



**UNIVERSITAS INDONESIA**

**PENINGKATAN KINERJA ZEOLIT KLINOPTILOLIT AKTIF  
UNTUK MENGHILANGKAN MERKURI DALAM  
HIDROKARBON CAIR DENGAN PENAMBAHAN  
TIN(II) KLORIDA**

**SKRIPSI**

**JAKA WIBOWO**

**0906604243**

**FAKULTAS TEKNIK  
PROGRAM STUDI TEKNIK KIMIA  
DEPOK  
JUNI 2012**



**UNIVERSITAS INDONESIA**

**PENINGKATAN KINERJA ZEOLIT KLINOPTILOLIT AKTIF  
UNTUK MENGHILANGKAN MERKURI DALAM  
HIDROKARBON CAIR DENGAN PENAMBAHAN  
TIN(II) KLORIDA**

**SKRIPSI**

**Diajukan sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar Sarjana Teknik**

**JAKA WIBOWO**

**0906604243**

**FAKULTAS TEKNIK  
PROGRAM STUDI TEKNIK KIMIA  
DEPOK  
JUNI 2012**

## HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS

**Skripsi ini adalah hasil karya saya sendiri,  
dan semua sumber baik yang dikutip maupun dirujuk  
telah saya nyatakan dengan benar.**

**Nama : Jaka Wibowo**

**NPM : 0906604243**

**Tanda tangan : **

**Tanggal : 27 Juni 2012**

## HALAMAN PENGESAHAN

Skripsi ini diajukan oleh :  
Nama : Jaka Wibowo  
NPM : 0906604243  
Program Studi : Teknik Kimia  
Judul : Peningkatan Kinerja Zeolit Klinoptilolit Aktif  
Untuk Menghilangkan Merkuri Dalam  
Hidrokarbon Cair Dengan Penambahan Tin (II)  
Klorida

Telah berhasil dipertahankan di hadapan Dewan Penguji dan diterima sebagai bagian pernyataan yang diperlukan untuk memperoleh gelar Sarjana Teknik pada Program Studi Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Indonesia

### DEWAN PENGUJI

Pembimbing : Dr. Eny Kusrini, S.Si (  )  
Penguji : Dr. Ir. Sukirno, M.Eng (  )  
Penguji : M. Ibadurrohman, ST, MT, MSc.Eng (  )  
Penguji : Dr. Ir. Praswasti PDK Wulan, MT (  )

Ditetapkan di : Depok

Tanggal : Juni 2012

## KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis panjatkan kepada Allah SWT karena atas berkat dan rahmat-Nya, penulis dapat menyelesaikan skripsi ini. Penulisan skripsi ini dilakukan dalam rangka memenuhi salah satu syarat untuk mencapai gelar Sarjana Teknik Jurusan Teknik Kimia pada Fakultas Teknik Universitas Indonesia.

Skripsi ini berhasil diselesaikan berkat bimbingan, bantuan, dan dukungan dari berbagai pihak. Oleh karena itu, penulis mengucapkan banyak terimakasih kepada :

- 1) Dr. Eny Kusriani, S.Si sebagai dosen pembimbing yang telah menyediakan waktu, tenaga, dan pemikiran untuk mengarahkan penulis dalam penyusunan skripsi ini,
- 2) Orang tua dan keluarga saya yang telah memberikan bantuan dukungan dan semangat,
- 3) Bambang Heru Susanto, ST. MT selaku dosen pembimbing akademis yang telah menyediakan waktu dan membantu kehidupan akademik perkuliahan selama ini,
- 4) Gefin Yesya, rekan satu bimbingan yang selalu membantu dalam pencarian referensi serta bertukar wawasan dan referensi,
- 5) Gita Agitia yang telah banyak membantu dan memberikan semangat dalam menyelesaikan skripsi ini.
- 6) Teman-teman di Intertek yang telah mendukung dan membantu saya dalam menempuh pendidikan di UI

Penulis menyadari bahwa makalah skripsi ini masih jauh dari sempurna. Semoga tulisan ini mampu memberikan manfaat bagiparapembacaserta dunia pendidikan dan ilmu pengetahuan.

Depok, Juni 2012

Penulis

## HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI TUGAS AKHIR UNTUK KEPENTINGAN AKADEMIS

---

Sebagai sivitas akademik Universitas Indonesia, saya yang bertanda tangan di bawah ini :

Nama : Jaka Wibowo  
NPM : 0906604243  
Program Studi : Teknik Kimia  
Departemen : Teknik Kimia  
Fakultas : Fakultas Teknik  
Jenis Karya : Skripsi

demi pengembangan ilmu pengetahuan, menyetujui untuk memberikan kepada Universitas Indonesia **Hak Bebas Royalti Noneksklusif (*Non-exclusive Royalty Free Right*)** atas karya ilmiah saya yang berjudul :

**Peningkatan Kinerja Zeolit Klinoptilolit Aktif Untuk Menghilangkan  
Merkuri Dalam Hidrokarbon Cair Dengan Penambahan Tin (II) Klorida**

beserta perangkat yang ada (jika diperlukan). Dengan Hak Bebas Royalti Noneksklusif ini Universitas Indonesia berhak menyimpan, mengalihmedia/formatkan, mengelola dalam bentuk pangkalan data (*database*), merawat, dan mempublikasikan tugas akhir saya tanpa meminta izin dari saya selama tetap mencantumkan nama saya sebagai penulis/pencipta dan sebagai pemilik Hak Cipta.

Demikian pernyataan ini saya buat dengan sebenarnya,

Dibuat di : Depok  
Pada tanggal : 27 Juni 2012

Yang menyatakan



(Jaka Wibowo)

## ABSTRAK

Nama : Jaka Wibowo  
Program Studi : Teknik Kimia  
Judul : Peningkatan Kinerja Zeolit Klinoptilolit Aktif Untuk Menghilangkan Merkuri dalam Hidrokarbon Cair Dengan Penambahan Tin (II) Klorida

Suatu konsep baru sistem penghilangan merkuri yang dikembangkan dalam penelitian ini adalah merubah bentuk organomerkuri ke bentuk yang dapat di adsorp dengan cara impregnasi zeolit dengan senyawaan reduktor  $\text{SnCl}_2$ . Adsorben Zeolit/ $\text{SnCl}_2$  di preparasi pada komposisi yang berbeda, mengandung 0,5 – 10 %  $\text{SnCl}_2$  dalam adsorben. Hasil karakterisasi menunjukkan keberadaan Sn(II) pada permukaan zeolit dengan tidak merusak struktur zeolit. Hasil uji adsorpsi menunjukkan komposisi optimum adsorben adalah Zeolit/ $\text{SnCl}_2$  0,5 % wt dengan luas permukaan  $15,72 \text{ m}^2/\text{g}$ . Zeolit klinoptilolit aktif tanpa impregnasi memberikan efisiensi adsorpsi 25,59 % dan pada Zeolit/ $\text{SnCl}_2$  0,5% wt efisiensi adsorpsinya sebesar 54,70 %. Hasil ini mengindikasikan bahwa penambahan  $\text{SnCl}_2$  dalam zeolit klipnotilolit aktif mampu meningkatkan efisiensi kemampuan adsorpsi merkuri dalam minyak mentah.

Kata kunci:

Adsorpsi, Hidrokarbon Cair, Merkuri, Reduktor, Zeolit Klinoptilolit

## ABSTRACT

Name : Jaka Wibowo  
Study Program : Teknik Kimia  
Title : Improvement Performance Activated Clinoptilolite Zeolite with Addition of Tin(II) Chloride for Removal Mercury from Liquid Hydrocarbon

A new concept of mercury removal system has been developed in this study is to change organomercury shape into a form that can be adsorbed by impregnating clinoptilolite zeolite with  $\text{SnCl}_2$  as reductor. Preparation of clinoptilolite zeolite/ $\text{SnCl}_2$  adsorbent with different compositions, contain 0.5 - 10%  $\text{SnCl}_2$  in the adsorbent. Characterization results showed the presence of Sn(II) on the surface of the clinoptilolite zeolite with no damage to structure of clinoptilolite zeolite. Adsorption test carried out using a batch reactor to determine the ability of an adsorbent which has been in preparation. Test results showed the optimum adsorbent composition is 0.5 wt% Zeolite/ $\text{SnCl}_2$  with a surface area of  $15.72 \text{ m}^2/\text{g}$ . Adsorption without impregnation of the activated clinoptilolite zeolite provided adsorption efficiency of 25.59 % and 0.5% wt Zeolite/ $\text{SnCl}_2$  adsorption efficiency of 54.70%. These results indicate that the addition of  $\text{SnCl}_2$  in the activated zeolite clinoptilolite be able to increase the efficiency of adsorption performance of mercury in crude oil.

*Keywords:*

Adsorption, Liquid Hydrocarbon, Mercury, Reductor, Clinoptilolite Zeolite



## DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL.....	i
HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS.....	ii
HALAMAN PENGESAHAN.....	iii
KATA PENGANTAR .....	iv
HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI.....	v
ABSTRAK .....	vi
DAFTAR ISI.....	viii
DAFTAR GAMBAR .....	ix
DAFTAR TABEL.....	x
DAFTAR LAMPIRAN.....	xi
BAB 1 PENDAHULUAN .....	1
1.1 Latar Belakang .....	1
1.2 Perumusan Masalah .....	4
1.3 Tujuan Penelitian .....	4
1.4 Batasan Masalah.....	5
1.5 Sistematika Penulisan .....	5
BAB 2 TINJAUAN PUSTAKA .....	7
2.1 Zeolit .....	7
2.1.1 Struktur Zeolit .....	7
2.1.2 Sifat Zeolit.....	9
2.1.3 Komponen Zeolit .....	11
2.1.4 Jenis Zeolit .....	12
2.1.5 Zeolit Klipnotilolit .....	13
2.1.6 Aktivasi Zeolit.....	13
2.2 SnCl <sub>2</sub> (Tin II Klorida).....	15
2.3 Isoterm Adsorpsi .....	15
2.3.1 Kinetika Adsorpsi .....	17
2.3.1 Keseimbangan Adsorpsi .....	19
2.4 Karakterisasi Adsorben .....	21
2.5 Logam Hg (Merkuri).....	24
2.6 Merkuri Dalam Minyak Bumi.....	26
2.7 Analisa Kandungan Merkuri Dalam Minyak bumi.....	29
BAB 3 METODE PENELITIAN.....	31
3.1 Diagram Alir Penelitian .....	31
3.2 Variabel Penelitian .....	32
3.3 Alat dan Bahan Penelitian.....	32
3.4 Prosedur Penelitian.....	33
3.4.1 Preparasi Adsorben Zeolit/SnCl <sub>2</sub> .....	33
3.4.2 Merkuri Adsorpsi <i>Batch Experiment</i> .....	35
3.4.3 Penetapan Spesies Merkuri .....	36

BAB 4	HASIL DAN PEMBAHASAN.....	38
4.1	Karakterisasi FTIR .....	38
4.2	Karakterisasi Kristalinitas (XRD).....	41
4.3	Karakterisasi Kandungan Logam Sn (ICP).....	45
4.4	Karakterisasi Morfoloigi dan Komposisi Kimia (SEM-EDS) .....	45
4.5	Karakterisasi BET .....	47
4.6	Penentuan Spesies Merkuri.....	48
4.7	Uji Kinerja Adsorpsi Merkuri ( <i>Batch Experiment</i> ).....	51
4.7.1	Uji Trial 1 (Penentuan Komposisi Optimum).....	51
4.7.2	Uji trial 2 (Penentuan Dosis Optimum) .....	53
4.7.3	Uji trial 3 (Uji Waktu Kontak).....	54
BAB 5	PENUTUP .....	55
5.1	Kesimpulan .....	55
5.2	Saran.....	56
	DAFTAR PUSTAKA .....	57
	LAMPIRAN.....	59



## DAFTAR GAMBAR

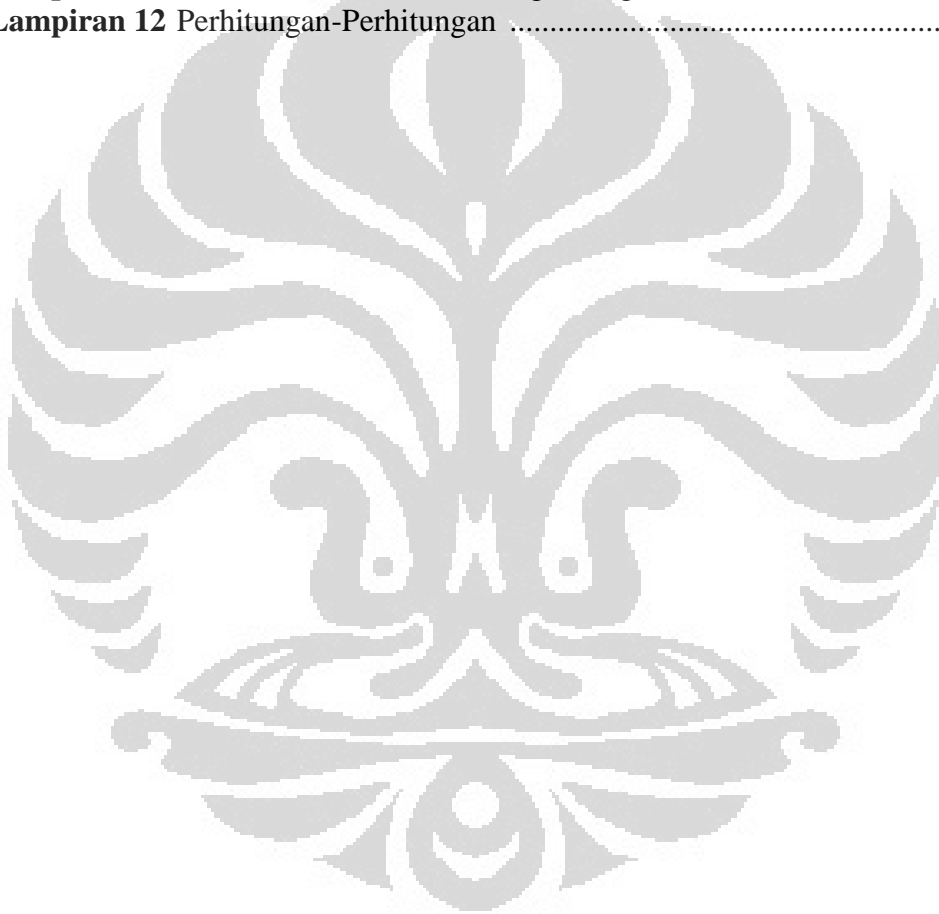
<b>Gambar 1.1</b>	Skema Diagram Dua Tahap Sistem Penghilangan Merkuri .....	3
<b>Gambar 2.1</b>	Struktur Pori Di Dalam Zeolit.....	8
<b>Gambar 2.2</b>	Zeolit Klipnotilolit .....	13
<b>Gambar 2.3</b>	Struktur Kristal SnCl <sub>2</sub> .....	15
<b>Gambar 2.4</b>	Grafik Hubungan Pada Persamaan Langmuir.....	20
<b>Gambar 2.5</b>	Grafik Hubungan Pada Persamaan Freundlich .....	21
<b>Gambar 2.6</b>	Kelarutan dari Elemental Merkuri .....	27
<b>Gambar 2.7</b>	Mercury Analyzer Lumex RA915+ .....	30
<b>Gambar 2.8</b>	Skema Instrumen Lumex RA915+ .....	30
<b>Gambar 3.1</b>	Diagram Alir Penelitian .....	31
<b>Gambar 3.2</b>	Diagram Alir Preparasi Adsorben.....	34
<b>Gambar 3.3</b>	Skema Secara Umum Penetapan Spesies Merkuri.....	36
<b>Gambar 4.1</b>	Spektra Absorbansi IR Zeolit klipnotilolit Tanpa impregnasi .....	38
<b>Gambar 4.2</b>	Spektra Absorbansi IR Zeolit/SnCl <sub>2</sub> .....	40
<b>Gambar 4.3</b>	Spektra Absorbansi IR Zeolit/NI dan Zeolit/SnCl <sub>2</sub> .....	41
<b>Gambar 4.4</b>	Spektrum Difraksi Sinar-X Adsorben.....	42
<b>Gambar 4.5</b>	Spektrum Difraksi Sinar-X Standar .....	42
<b>Gambar 4.6</b>	Bentuk Morfologi Permukaan Adsorben Zeolit/NI .....	46
<b>Gambar 4.7</b>	Bentuk Morfologi Permukaan Adsorben Zeolit/SnCl <sub>2</sub> .....	47
<b>Gambar 4.8</b>	Adsorpsi Vs Dosis Adsorben .....	53
<b>Gambar 4.9</b>	Adsorpsi Vs Waktu kontak .....	54

## DAFTAR TABEL

<b>Tabel 1.1</b>	Sistem penghilangan Merkuri dalam Hidrokarbon .....	2
<b>Tabel 2.1</b>	Komposisi Kimia Zeolit Alam .....	12
<b>Tabel 2.2</b>	Titik Didih Dari Senyawa Organik merkuri .....	28
<b>Tabel 2.3</b>	Kelarutan beberapa Senyawa Merkuri Dalam Heksana.....	28
<b>Tabel 2.4</b>	Karakteristik Analisa Merkuri Analyzer RA915+ .....	29
<b>Tabel 4.1</b>	Relatif Intensitas (%) dan Height Adsorben Zeolit .....	43
<b>Tabel 4.2</b>	Relatif Intensitas (%) dan Height Zeolit/SnCl <sub>2</sub> .....	44
<b>Tabel 4.3</b>	Hasil Karakterisasi Kandungan Logam Sn Dengan ICP.....	45
<b>Tabel 4.4</b>	Hasil Karakterisasi BET .....	47
<b>Tabel 4.5</b>	Hasil Penetapan Spesies Merkuri Sebelum Adsorpsi .....	48
<b>Tabel 4.6</b>	Kemudahan Kelarutan Beberapa Spesies Merkuri Dalam Heksan	49
<b>Tabel 4.7</b>	Hasil Penetapan Spesies Merkuri Setelah Adsorpsi.....	50
<b>Tabel 4.8</b>	Uji Trial 1 Adsorpsi Merkuri Dalam Hidrokarbon Cair Hasil Penetapan Spesies Merkuri Sebelum Adsorpsi.....	51

## DAFTAR LAMPIRAN

<b>Lampiran 1</b>	Hasil Karakterisasi FTIR Zeolit Klinoptilolit Aktif .....	59
<b>Lampiran 2</b>	Hasil Karakterisasi FTIR Zeolit/SnCl <sub>2</sub> 0,5 % wt .....	60
<b>Lampiran 3</b>	Hasil Karakterisasi XRD Zeolit Klipnotilolit Aktif .....	61
<b>Lampiran 4</b>	Hasil Karakterisasi XRD Zeolit/SnCl <sub>2</sub> 0,5% wt.....	62
<b>Lampiran 5</b>	Hasil Analisa Uji Trial 1 .....	63
<b>Lampiran 6</b>	Hasil Analisa Uji Trial 2 .....	64
<b>Lampiran 7</b>	Hasil Analisa Merkuri uji waktu kontak .....	65
<b>Lampiran 8</b>	Hasil Analisa Spesiasi Merkuri Sebelum Adsorpsi .....	66
<b>Lampiran 9</b>	Hasil Analisa Spesiasi Merkuri Sesudah Adsorpsi .....	67
<b>Lampiran 10</b>	Hasil Analisa ICP Kandungan Logam Sn .....	68
<b>Lampiran 11</b>	Hasil Karakterisasi Kandungan Logam Adsorben (EDS) .....	69
<b>Lampiran 12</b>	Perhitungan-Perhitungan .....	70



# BAB 1

## PENDAHULUAN

### 1.1 Latar Belakang Masalah

Merkuri dapat hadir dalam minyak mentah dan gas kondensat dalam bentuk logamnya (elemental merkuri), merkuri halida (anorganik merkuri), kompleks merkuri, merkuri sulfida (*suspended mercury*) atau sebagai senyawa organologam. Pemahaman kimia mengenai geologi dari merkuri telah berkembang karena kemajuan teknis yang memungkinkan diferensiasi berbagai bentuk kimia merkuri dalam matriks hidrokarbon. Jumlah dan distribusi relatif dari senyawa merkuri dalam hidrokarbon cair tergantung pada sumber sampel dan sejarah. Merkuri termasuk kelas senyawa yang memiliki efek negatif tertentu pada manusia, peralatan dan katalis. Merkuri secara universal merugikan sistem pengolahan minyak bumi. Dalam pengolahan gas, merkuri dapat menyebabkan kerusakan peralatan khususnya alat penukar panas pada pendinginan kriogenik. Dalam industri petrokimia dan pengilangan minyak, merkuri dapat meracuni katalis dan mencemari air limbah.

Sistem penghilangan merkuri yang menggunakan adsorben untuk menangkap merkuri di umpan gas dan hidrokarbon cair tidak bekerja efektif pada semua bentuk kimia merkuri. Memahami reaksi penyerapan kimiawi adsorben pada berbagai spesies yang hadir dalam umpan sangat penting untuk rancangan disain sistem penghilangan merkuri. Spesiasi bentuk kimia merkuri dalam minyak mentah dan kondensat sangat penting dalam evaluasi efisiensi sistem adsorben untuk perbaikan, pengembangan dan pemantauan kinerja sistem penghilangan merkuri yang baru dikembangkan atau yang tersedia secara komersial.

Beberapa proses komersial tersedia untuk menghilangkan senyawa merkuri dari hidrokarbon. Beberapa sistem penghilangan merkuri komersial ditargetkan untuk penghilangan merkuri pada fase gas dan beberapa ditargetkan pada fase cairan. Tabel 1.1 memperlihatkan beberapa sistem penghilangan merkuri dalam fase gas hidrokarbon terutama terdiri dari karbon

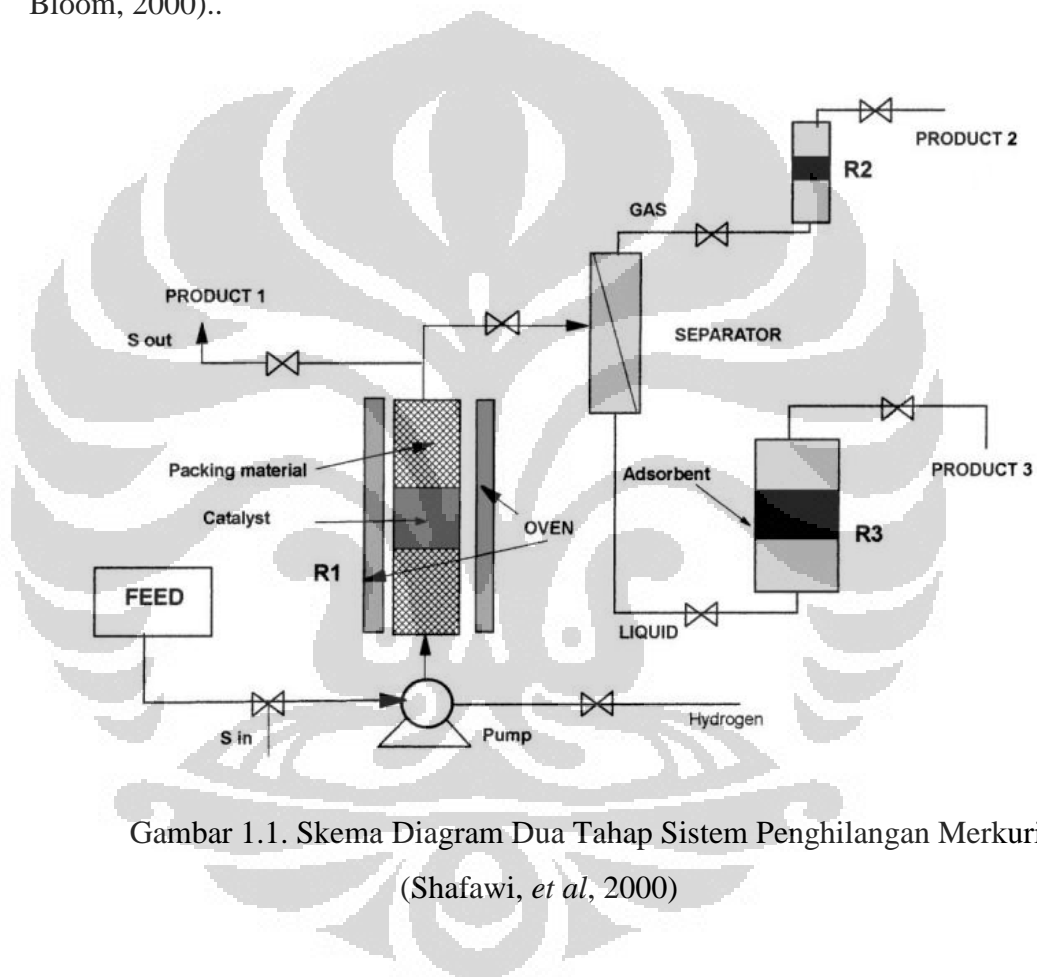
impregnasi sulfur, sulfida logam pada karbon atau alumina, dan *regeneratif molesieve* atau Ag menggunakan zeolit sebagai penyangga (Wilhelm dan Bloom, 2000). Proses penghilangan merkuri untuk hidrokarbon cair terdiri dari karbon impregnasi iodida, logam sulfida pada karbon atau alumina, sistem amalgam molsieve dan proses dua langkah yang terdiri dari katalis konversi hidrogenasi diikuti dengan reaksi logam sulfida dengan unsur merkuri (Wilhelm,1999) . Sistem penghilangan pada berbagai cairan memiliki keuntungan dan kerugian yang bergantung pada komposisi umpan dan lokasi aliran.

Tabel 1.1. Sistem Penghilangan Merkuri Dalam Hidrokarbon (Wilhelm dan Bloom, 2000)

<b>Reaktan</b>	<b>Substrat</b>	<b>Bentuk Kompleks</b>	<b>Aplikasi</b>
<b>Sulfur</b>	Karbon, Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	HgS	Gas
<b>Logam Sulfida</b>	Karbon, Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	HgS	Gas, <i>Liquid</i>
<b>Iodida</b>	Karbon	HgI <sub>2</sub>	<i>Dry liquid</i>
<b>Pd+H<sub>2</sub>; Logam Sulfida</b>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	HgS	<i>Liquid</i>
<b>Ag</b>	Zeolit	Ag/Hg Amalgam	Gas, <i>Light Liquid</i>
<b>Logam Oksida/Sulfida</b>	Oksida	HgS	Gas, <i>Liquid</i>

Sistem penghilangan merkuri yang paling banyak digunakan untuk hidrokarbon cair secara kimiawi khusus untuk satu bentuk merkuri, biasanya dalam bentuk elemental merkuri. Jika suatu umpan mengandung sejumlah besar merkuri ion, dialkil atau kompleks, maka sistem penghilangan merkuri mungkin tidak mencapai efisiensi kriteria desain yang diinginkan karena sistem penghilangan merkuri tersebut hanya mampu menghilangkan merkuri dalam bentuk elemental merkuri saja (McNamara, 1993). Suatu sistem penghilangan merkuri untuk cairan hidrokarbon yang sudah ada sekarang menggunakan dua

tahaap proses (Shafawi, *et al.*, 2000), seperti terlihat pada Gambar 1.1 langkah pertama menggunakan katalis hidrogenolisis yang dirancang untuk merubah organo dan anorganik menjadi bentuk elemental merkuri dan kemudian mengadsorp bentuk elemental merkuri tersebut pada langkah selanjutnya. Demikian pula, sistem penghilangan merkuri dengan menggunakan logam sulfida secara kimiawi khusus untuk bentuk unsur (elemental merkuri) dan tidak akan bereaksi dengan senyawa merkuri kovalen terikat (Wilhelm dan Bloom, 2000)..



Gambar 1.1. Skema Diagram Dua Tahap Sistem Penghilangan Merkuri (Shafawi, *et al.*, 2000)

Zeolit memiliki potensi diberbagai jenis industri karena kemampuannya sebagai adsorben, Leppert (1990) melaporkan zeolit klinoptilolit memiliki afinitas tinggi terhadap ion logam berat. Zeolit klinoptilolit merupakan salah satu jenis zeolit alam yang berasal dari Lampung. Pemilihan zeolit sebagai adsorben didasarkan pada keunggulannya, yaitu memiliki luas permukaan yang besar dan mempunyai struktur pori terbuka. Ukuran pori ini menentukan



ukuran molekul yang dapat teradsorp. Zeolit mampu mengadsorp merkuri dalam bentuk merkuri halida dan elemental merkuri, namun sulit untuk mengadsorp organomercuri (Wilhelm, 1999). Pada tahun 1993, Weekman dan Yan, memperkenalkan sistem penghilangan merkuri menggunakan zeolit impregnasi Ag melalui proses Ag/Hg amalgam, konsep ini mampu menghilangkan merkuri dalam bentuk organomercuri namun Ag merupakan salah satu logam yang mahal harganya. Suatu konsep baru sistem penghilangan merkuri yang dikembangkan dalam penelitian ini adalah merubah bentuk organomercuri ke bentuk yang dapat di adsorp dengan cara impregnasi zeolit dengan senyawaan reduktor  $\text{SnCl}_2$ . Modifikasi ini diharapkan mampu meningkatkan efisiensi adsorpsi merkuri dalam minyak mentah dan kondensat.

Metode pembuatan adsorben yang dipakai adalah metode impregnasi. Metode ini sudah dikenal dalam dunia industri karena cukup sederhana dan relatif mudah (Campanati, 2003). Impregnasi dengan larutan  $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  dimanfaatkan untuk mendapatkan deposit SnO pada zeolit dan diharapkan menghasilkan zeolit/Sn dengan karakteristik yang baik.

## 1.2 Perumusan Masalah

Rumusan masalah yang dihadapi dalam penelitian ini adalah untuk dapat mengetahui kemampuan zeolit alam termodifikasi dengan  $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  sebagai adsorben dalam uji aktivitas adsorpsi merkuri dalam minyak mentah.

## 1.3 Tujuan Penelitian

Tujuan yang ingin dicapai pada penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Memperoleh zeolit/ $\text{SnCl}_2$  dengan metode impregnasi
2. Mengetahui karakteristik zeolit/ $\text{SnCl}_2$
3. Menguji aktivitas adsorpsi zeolit/ $\text{SnCl}_2$  sebagai sistem penghilangan merkuri pada minyak mentah

#### 1.4 Batasan Masalah

Dalam penelitian ini, pembatasan terhadap masalah yang akan dibahas adalah:

1. Metode preparasi zeolit/ $\text{SnCl}_2$  yang digunakan adalah metode impregnasi dengan variasi % w/w  $\text{SnCl}_2$  sebesar 0,5%, 1%, 2%, 5%, dan 10%.
2. Zeolit alam yang digunakan adalah zeolit klinoptilolit
3. Karakterisasi zeolit/ $\text{SnCl}_2$  yang dihasilkan dengan menggunakan SEM, FTIR, BET, dan XRD
4. Kinerja zeolit/ $\text{SnCl}_2$  sebagai adsorben dilakukan menggunakan model *batch experiment*

#### 1.5 Sistematika Penulisan

Sistematika penulisan dari makalah tersebut adalah sebagai berikut:

##### BAB 1. PENDAHULUAN

Bab ini berisi latar belakang penelitian, perumusan masalah yang dibahas, tujuan dilakukannya penelitian, batasan masalah, dan sistematika penulisan.

##### BAB 2. TINJAUAN PUSTAKA

Bab ini berisi tentang sistem penghilangan merkuri dalam minyak dan gas, spesiasi merkuri,  $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ , zeolit, dan sifat adsorpsi material.

##### BAB 3. METODE PENELITIAN

Bab ini membahas diagram alir penelitian, alat dan bahan yang digunakan, prosedur kerja, variabel penelitian, serta cara pengambilan data dan pengolahan terhadap data yang diperoleh.

##### BAB 4. HASIL DAN PEMBAHASAN

Di dalam bab ini akan diberikan penjelasan tentang semua hal yang berkaitan dengan prosedur dan analisis penelitian yang dilakukan. Pembahasan mencakup karakterisasi zeolit Klinoptilolit aktif dan zeolit/ $\text{SnCl}_2$ , merkuri dalam minyak mentah sebelum dan sesudah uji adsorpsi.

## BAB 5. PENUTUP

Bab ini merupakan bagian penutup tulisan yang memberikan poin-poin penting yang merepresentasikan hasil penelitian.

## DAFTAR PUSTAKA

Terdiri dari acuan pustaka dan referensi baik dari literatur, jurnal ilmiah, maupun sumber lain yang digunakan sebagai rujukan dalam penulisan skripsi ini.

## LAMPIRAN

Berisi tentang hasil karakterisasi adsorben dan pengukuran kadar merkuri dalam sampel beserta perhitungan-perhitungan.



## BAB 2

### TINJAUAN PUSTAKA

#### 2.1 Zeolit

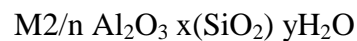
Zeolit merupakan mineral alami aluminosilikat yang terhidrasi. Zeolit termasuk golongan yang dikenal sebagai mineral “tektosilikat”. Zeolit alam biasanya terbentuk dari perubahan batuan yang kaya akan gelas di danau atau air laut (Erden *et al.*, 2004). Pertama kali zeolit ditemukan oleh seorang ahli mineralogi asal swedia bernama Axel Frederick Cronstedt pada tahun 1756. Mineral yang ditemukan akan dengan cepat melepaskan air bila dipanaskan dan seolah-olah mendidih. Sehingga mineral alam ini dinamakan zeolit yang dalam bahasa Yunani berarti batu didih. Zeolit merupakan mineral hasil tambang yang bersifat lunak dan mudah kering. Zeolit berwarna putih keabu-abuan, putih kehijau-hijauan, atau putih kekuning-kuningan. Ukuran kristal zeolit biasanya tidak lebih dari 10-15 mikron (Sutarti, 1994).

Di Indonesia, zeolit ditemukan pada tahun 1985 oleh PPTM Bandung dalam jumlah besar, diantaranya tersebar di beberapa daerah pulau Sumatera dan Jawa. Namun dari 46 lokasi zeolit, baru beberapa lokasi yang ditambang secara intensif antara lain di Kec. Bayah (Jawa Barat), Banten, Cikalong, Tasikmalaya, Cikembar, Sukabumi, Nanggung, Bogor dan Propinsi Lampung. Pada saat ini dikenal sekitar 40 jenis zeolit alam, meskipun yang mempunyai nilai komersial ada sekitar 12 jenis, diantaranya klinoptilolit, mordenit, filipsit, kbasit dan erionit. Zeolit sintetis dihasilkan dari beberapa perusahaan seperti Union Carbide, ICI dan Mobil Oil dan lebih dari 100 jenis telah dikenal strukturnya antara lain zeolit A, X, Y, grup ZSM/AIPO<sub>4</sub> (Zeolite Sieving Materials/Aluminium Phosphate) dan bahkan akhir-akhir ini dikenal grup Zeotip, yaitu material seperti zeolit tetapi bukan senyawa alumino-silikat.

##### 2.1.1 Struktur Zeolit

Zeolit alam merupakan senyawa alumino silikat terhidrasi dengan unsur utama yang terdiri dari kation alkali dan alkali tanah. Senyawa ini berstruktur

tiga dimensi dan mempunyai pori yang dapat diisi oleh molekul air. Rumus empiris zeolit alam adalah:



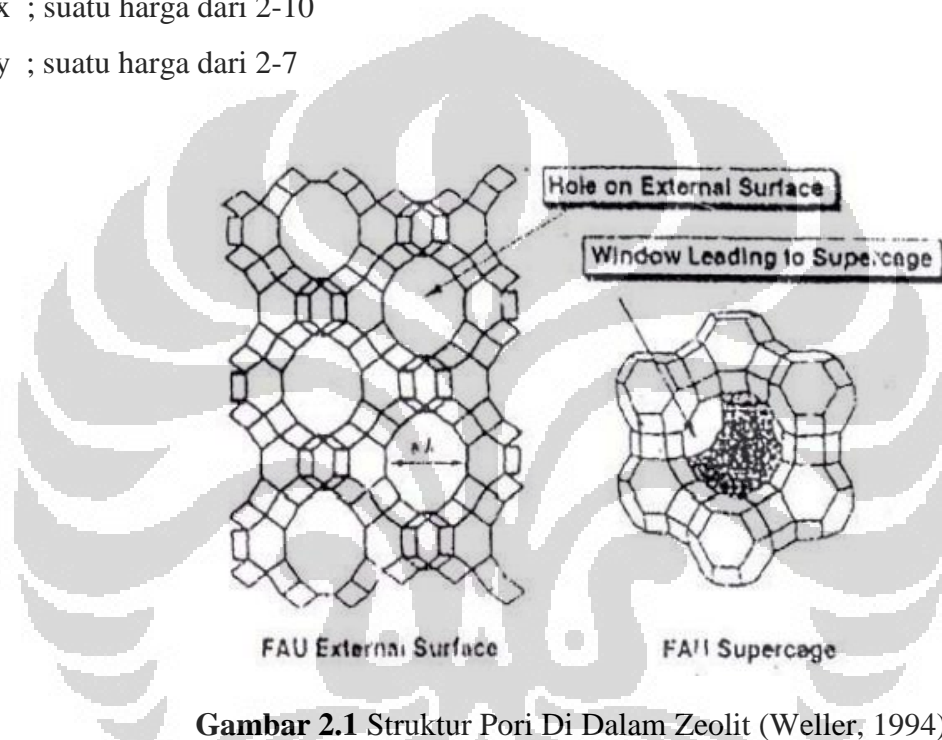
Dimana :

M ; kation alkali atau alkali tanah

n ; valensi kation

x ; suatu harga dari 2-10

y ; suatu harga dari 2-7



**Gambar 2.1** Struktur Pori Di Dalam Zeolit (Weller, 1994)

Zeolit yang terhidrasi akan mempunyai struktur pori terbuka dengan *internal surface area* besar sehingga kemampuan mengadsorp molekul selain air semakin tinggi. Ukuran pori menentukan ukuran molekul yang dapat teradsorp. Sifat ini yang menjadikan zeolit mempunyai kemampuan penyaringan yang sangat spesifik yang dapat digunakan untuk pemurnian dan pemisahan. Zeolit yang digunakan sebagai penyaring molekular tidak menunjukkan perubahan cukup besar pada struktur kerangka dasar pada dehidrasi walaupun kation berpindah menuju posisi dengan koordinasi lebih rendah. Setelah dehidrasi, zeolit sangat stabil terhadap pemanasan dan tidak terdekomposisi dibawah 600°C. (Zeolit, 2010)

Pada tahun 1967, Meier mengklasifikasikan dan mengilustrasikan struktur zeolit berdasarkan susunan unit pembangunnya, yaitu: unit pembangun primer, sekunder, dan tersier.

- a) Unit pembangun primer berupa tetrahedral  $\text{SiO}_4$  dan  $\text{AlO}_4$  yang merupakan satuan unit terkecil.
- b) Unit pembangun sekunder 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 atau struktur ruang terbentuk dari ikatan unit pembangun sekunder satu sama lain dengan berbagai kombinasi. Kristal zeolit merupakan rangkaian tiga dimensi unit tersier tersebut.

### 2.1.2 Sifat Zeolit

Sifat zeolit yang terpenting adalah sebagai penyerap yang selektif, penukar ion, dan mempunyai sifat katalisis yang tinggi. Sifat-sifat serapan zeolit dipengaruhi oleh muatan-muatan kation. Kation-kation ini terkoordinasi pada atom oksigen. Pada zeolit terhidrasi penuh, kation-kation mobil dapat diganti kation-kation lain tidak harus monovalen. Penggantian kation dengan kation lain yang berbeda ukurannya dan muatan listriknya dapat mempengaruhi ukuran pori-pori yang akhirnya mempengaruhi sifat-sifat serapannya. Perubahan sifat zeolit tergantung pada sifat-sifat dan ukuran kation, temperatur, tekanan, konsentrasi larutan, dan struktur zeolit. Kation-kation yang ada dalam zeolit mempengaruhi sifat fisiknya. Berikut adalah sifat-sifat zeolit antara lain:

- a) Dehidrasi

Sifat dehidrasi zeolit berpengaruh terhadap sifat serapannya. Keunikan zeolit terletak pada struktur porinya yang spesifik. Pada zeolit alam di dalam pori-porinya terdapat kation-kation atau molekul air. Bila kation-kation atau molekul air tersebut dikeluarkan dari dalam pori dengan suatu perlakuan tertentu, maka zeolit akan meninggalkan pori yang kosong (Barrer, 1982).

b) Penyerapan (Adsorpsi)

Dalam keadaan normal ruang hampa dalam kristal zeolit terisi oleh molekul air yang berada disekitar kation. Bila zeolit dipanaskan maka air tersebut akan keluar. Zeolit yang telah dipanaskan dapat berfungsi sebagai penyerap gas atau cairan (Khairinal, 2000).

Keuntungan lain dari penggunaan mineral zeolit sebagai bahan penyaring adalah pemilahan molekul zat yang terserap, disamping penyerapan berdasarkan ukuran garis tengah molekul ruang hampa. Apabila ada dua molekul atau lebih yang dapat melintas, tetapi karena adanya pengaruh kutub atau hubungan antara molekul zeolit itu sendiri dengan molekul zat yang diserap, maka hanya sebuah saja yang diloloskan, sedang yang lain ditahan atau ditolak. Molekul yang berkutub lebih atau tidak jenuh akan lebih diterima daripada yang tidak berkutub atau yang jenuh (Rakhmatullah *et al.*, 2007)

Ukuran pori merupakan faktor yang cukup penting yang berperan dalam proses adsorpsi. Molekul dengan ukuran besar sulit dapat masuk kedalam pori atau ruang-ruang yang terdapat dalam zeolit jika ukuran porinya lebih kecil dibanding molekulnya. Molekul dengan ukuran kecil lebih mudah melakukan penetrasi kedalam pori. Ukuran molekul erat kaitannya dengan bentuk geometri molekul, sehingga bentuk molekul berpengaruh terhadap adsorpsi (Smith, 1992)

Selektivitas adsorpsi zeolit terhadap ukuran molekul tertentu dapat disesuaikan dengan cara penukar kation, dekationisasi, dealuminasi secara hidrotermal, dan perubahan perbandingan kadar Si dan Al.

c) Penukar Ion

Ion-ion pada rongga berguna untuk menjaga kenetralan zeolit. Ion-ion ini dapat bergerak bebas sehingga pertukaran ion yang terjadi tergantung dari ukuran dan muatan maupun jenis zeolitnya. Sifat sebagai penukar ion dari zeolit antara lain tergantung dari sifat kation, suhu, dan jenis anion. Penukaran kation dapat menyebabkan perubahan beberapa sifat zeolit seperti stabilitas terhadap panas, sifat adsorpsi, dan aktifitas katalis.

d) Katalis

Zeolit merupakan katalisator yang baik karena mempunyai pori-pori yang besar dan permukaan maksimum. Sistem saluran pada zeolit ada 3 macam, yaitu satu, dua, dan tiga dimensi. Pada saluran tiga dimensi, molekul yang berdifusi dapat bergerak ke semua arah atau semua sisi kristal. Saluran dua dimensi memberikan kemungkinan molekul berdifusi kedua arah atau dalam satu bidang datar, sedangkan pada saluran satu dimensi molekul hanya bergerak ke satu arah saja. Keasaman zeolit merupakan salah satu faktor yang penting dalam penggunaan zeolit sebagai pengemban dan sebagai katalis. Penggunaan zeolit sebagai katalis dapat dioptimalkan dengan cara perlakuan asam, hidrotermal, kalsinasi, oksidasi, dan impregnasi logam kromium serta reduksi akan meningkatkan rasio Si/Al, keasaman, dan luas permukaan spesifik dari zeolit. Zeolit yang digunakan secara luas sebagai katalis didasarkan pada produksi situs asam bronsted dan adanya situs asam lewis yang terdapat dalam pori zeolit. Kemampuan zeolit untuk mengkatalisis suatu reaksi kimia terutama berhubungan dengan sifatnya sebagai padatan asam karena adanya situs-situs asam tersebut.

e) Penyaring atau pemisah

Zeolit memiliki kemampuan untuk memisahkan berdasarkan perbedaan ukuran, bentuk dan polaritas dari suatu molekul yang disaring. Zeolit dapat memisahkan suatu zat atau molekul gas dalam suatu campuran tertentu karena mempunyai ruang hampa yang cukup besar dengan garis tengah yang bermacam-macam antara  $2\text{Å}$  -  $8\text{Å}$ , tergantung jenis zeolit. Volume dan ukuran garis tengah ruang hampa dan kisi-kisi kristal menjadi dasar kemampuan zeolit untuk bertindak sebagai penyaring molekul.

### 2.1.3 Komponen Zeolit

Pada dasarnya zeolit dikenal sebagai kelompok senyawa jenis mineral aluminasilikat hidrat dengan logam alkali yang juga mengandung beberapa oksida dan strukturnya. Komposisi kimia dalam zeolit secara umum dapat dilihat pada Tabel 2.1.



Tabel 2.1 Komposisi kimia sampel zeolit alam (% Wt) (Erden *et al.*, 2004)

Komponen Kimia	(%)
SiO <sub>2</sub>	69,31
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	13,11
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1,31
CaO	2,07
MgO	1,13
Na <sub>2</sub> O	0,52
K <sub>2</sub> O	2,83
SO <sub>3</sub>	0,10
H <sub>2</sub> O	6,88
Si/Al	4,66

#### 2.1.4 Jenis Zeolit

##### a) Zeolit Alam

Zeolit alam terbentuk karena adanya proses perubahan alam (zeolitisasi) dari batuan vulkanik tuf, sedangkan zeolit sintesis direkayasa oleh manusia secara proses kimia. Pembentukan mineral zeolit alam diduga merupakan hasil reaksi antara debu vulkanik dengan air garam, ada juga beberapa zeolit seperti kabsit, erionit dan flipsit diduga sebagai hasil dari proses hidrotermal. Pembentukan zeolit alam ini tergantung komposisi dari batuan induk, temperatur, tekanan, tekanan parsial dari air, pH dan aktivitas dari ion-ion tertentu (Saputra, 2006)

##### b) Zeolit sintesis

Zeolit sintesis dapat dibuat menggunakan tiga jenis bahan kimia yang kegunaannya sama dengan zeolit alam, yaitu karbon aktif, silika gel, dan zeolit buatan. Akan tetapi berdasarkan penelitian kemampuan karbon aktif dan silika gel sebagai bahan penyerap tidak melebihi zeolit alam. Zeolit sintesis diproduksi dengan cara hidrotermal dan kebanyakan diproduksi dibawah kondisi tidak setimbang, akibatnya zeolit yang dihasilkan merupakan bahan metastabil atau mudah berubah. Tahap pertama dalam pembuatan zeolit adalah reaksi bahan dasar seperti gel atau

zat padat amorf hidroksida alkali dengan pH tinggi dan basa kuat dengan kondisi operasi pada suhu hidrotermal rendah.

### 2.1.5 Zeolit Klinoptilolit

Pada penelitian ini digunakan zeolit jenis klinoptilolit yang merupakan salah satu zeolit alam yang terbentuk dari sedimentasi vulkanik pada lingkungan danau dan perairan yang bersifat alkali selama jutaan tahun. Alasan pemilihan zeolit alam ini diantaranya sifat-sifatnya yang mendukung, dan jumlahnya berlimpah di Indonesia. Menurut data statistik dari Pusat Pengembangan Teknologi Mineral di Bandung tahun 1991, deposit zeolit alam diperkirakan sekitar 120 juta ton dan tersebar di 46 lokasi, diantaranya Bayah, Tasikmalaya, Pacitan, Malang, dan Lampung.

Klinoptilolit kaya akan silika dengan perbandingan Si/Al antara 4 sampai 10 dan mempunyai kerangka struktur tetrahedral  $[\text{SiO}_4]^{4-}$  dan  $[\text{AlO}_4]^{5-}$ , dengan rumus molekul  $\text{Na}_6[\text{Al}_6\text{Si}_{30}\text{O}_{72}]\cdot 24\text{H}_2\text{O}$  (Hasyim, 2011). Zeolit klinoptilolit yang memiliki kadar Si/Al sedang juga dapat dimanfaatkan sebagai adsorben polielektrolit kationik melalui mekanisme pertukaran kation.



**Gambar 2.2** Zeolit Klinoptilolit

### 2.1.6 Aktivasi Zeolit

Agar dapat dimanfaatkan zeolit harus mempunyai spesifikasi tertentu, dan berkaitan dengan hal tersebut kualifikasi zeolit ditentukan oleh daya serap, daya tukar kation (KTK), maupun daya katalis. Oleh sebab itu, untuk memperoleh zeolit dengan kemampuan tinggi diperlukan beberapa pengolahan, antara lain:

a. Preparasi.

Tahap ini bertujuan untuk memperoleh ukuran produk yang sesuai dengan tujuan penggunaannya. Tahapan preparasi zeolit pertama-tama akan dilakukan pembersihan kotoran yang melekat pada bongkahan batuan zeolit, kemudian tahap penghancuran (*crushing*), yakni bongkahan batuan zeolit yang berukuran besar dipecah-pecahkan menjadi ukuran yang lebih kecil sehingga mudah dihancurkan di dalam *ball mill* (alat penggiling).

Tahapan selanjutnya adalah penggerusan (*grinding*) untuk memperoleh material zeolit yang lebih halus sesuai keperluan. Kemudian dilakukan pengayakan, biasanya menggunakan alat "*the tyker standard screen*", untuk mendapatkan material zeolit dengan ukuran mesh tertentu.

b. Aktivasi.

Proses ini bertujuan meningkatkan sifat-sifat khusus zeolit dengan cara menghilangkan unsur-unsur pengotor (*impurities*) dan menguapkan air yang terperangkap dalam pori-pori zeolit. Ada 2 cara yang umum digunakan dalam proses aktivasi zeolit, yaitu aktivasi secara fisik dan secara kimia. Aktivasi secara fisik dilakukan dengan cara pemanasan pada suhu 200-400<sup>0</sup>C selama 2-3 jam untuk menghilangkan molekul-molekul air yang terperangkap di dalam pori-pori kristal zeolit.

Aktivasi secara kimia melalui proses destruksi dengan menggunakan pereaksi HCl, NaOH atau H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> untuk menghilangkan zat-zat pengotor berupa logam-logam alkali dan alkali tanah serta beberapa jenis logam lainnya yang terdapat di dalam kerangka zeolit.

c. Modifikasi.

Proses modifikasi dimaksudkan untuk mengubah sifat permukaan zeolit alam, dengan cara melapiskan polimer organik (sintesis dan alamiah) pada zeolit tersebut. Modifikasi struktur zeolit dapat dilakukan dengan berbagai cara, antara lain: modifikasi melalui proses pertukaran

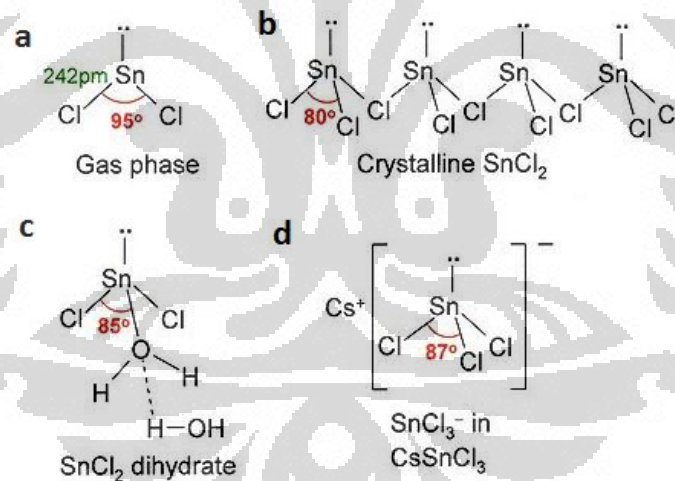
kation (*cation exchange*), pengadsorpsi molekul-molekul polar, modifikasi kerangka zeolit dan sebagainya.

## 2.2 SnCl<sub>2</sub> (Tin II Klorida)

SnCl<sub>2</sub> berupa padatan kristal berwarna putih, dapat membentuk dihidrat yang stabil. SnCl<sub>2</sub> dipakai sebagai reduktor dalam larutan asam, dan juga dalam cairan elektroplating. SnCl<sub>2</sub> dibuat dengan cara reaksi gas HCl kering dengan logam Sn.



SnCl<sub>2</sub> memiliki satu pasangan electron bebas. Dalam bentuk fasa gas maka molekul SnCl<sub>2</sub> berbentuk bengkok, sedangkan pada bentuk padatan SnCl<sub>2</sub> membentuk rantai yang saling terhubung dengan jembatan klorida. Selain dipakai sebagai reduktor SnCl<sub>2</sub> juga dipakai sebagai katalis, reagen analisis untuk raksa, dan juga dipakai sebagai aditif makanan untuk mempertahankan warna dan sebagai antioksidan.



**Gambar 2.3** Struktur Kristal SnCl<sub>2</sub> (a) Gas phase (b) Kristal SnCl<sub>2</sub> (c) SnCl<sub>2</sub> dihidrat (d) SnCl<sub>3</sub><sup>-</sup> dalam CsSnCl<sub>3</sub>

## 2.3 Isoterm Adsorpsi

Secara umum adsorpsi merupakan interaksi antara adsorbat dengan permukaan adsorben yang biasanya merupakan padatan atau cairan. Adsorpsi merupakan reaksi reversibel yang dapat terjadi melalui beberapa mekanisme

diantaranya melalui gaya Coulomb, ikatan hidrogen, pertukaran ligan, kemosorpsi, ikatan dipol-dipol, dan ikatan hidrofobik (Abdelrasool, 1992). Istilah yang diberikan untuk zat yang teradsorpsi disebut dengan adsorbat sedangkan zat yang mengadsorpsi adalah adsorben.

Adsorpsi secara umum dibagi menjadi dua, yaitu:

a) Adsorpsi Fisika

Adsorpsi fisika merupakan interaksi yang lemah antara adsorbat dengan adsorben dan tidak melibatkan pembentukan ikatan kimia (Abdelrasool, 1992). Adsorpsi fisika terjadi karena adanya gaya Van der Waals dan gaya elektrostatik antara molekul-molekul adsorbat dengan molekul-molekul pada permukaan adsorben.

Adsorpsi fisika memiliki karakteristik khusus, antara lain:

- Panas adsorpsi 5-10 kal/mol
- Dapat dibalik (regenerasi)
- Waktu adsorpsi singkat
- Multilayer
- Jumlah adsorpsi pada permukaan merupakan fungsi adsorbat
- Kesetimbangan lebih cepat dicapai
- Adsorpsi terjadi pada suhu dibawah titik didih adsorbat

b) Adsorpsi Kimia

Adsorpsi kimia terjadi akibat adanya ikatan kimia dan bersifat ireversibel.

Karakteristik dari adsorpsi kimia antara lain:

- Panas adsorpsi 10 – 100 kkal/mol
- Sukar diregenerasi
- Kesetimbangan lebih lama tercapai
- Monolayer
- Jumlah adsorpsi pada permukaan merupakan karakteristik adsorben dan adsorbat
- Waktu adsorpsi lama
- Terjadi pada suhu lebih tinggi daripada adsorpsi fisika karena membutuhkan energi aktivasi

Proses adsorpsi dipengaruhi oleh beberapa faktor, antara lain: luas permukaan, dan ukuran adsorben, sifat adsorben, kelarutan adsorbat, bentuk dan ukuran adsorbat, derajat keasaman dan temperatur.

Adsorpsi isoterm menunjukkan banyaknya zat yang teradsorpsi per gram adsorben yang dialirkan pada suhu tetap. Proses adsorpsi terjadi pada batas permukaan dua fase, sebagai contohnya fase cair dengan fase padat (adsorpsi zat warna dengan air dengan karbon sebagai adsorben), fase cair dengan fase gas (adsorpsi pada campuran gas klor dan air), fase cair dengan fase cair (adsorpsi detergen pada permukaan emulsi) dan lain-lain.

Kurva isoterm untuk adsorpsi logam dalam sistem cair-padat didasarkan pada pengukuran konsentrasi logam di fase cair pada kesetimbangan, sedangkan konsentrasi logam pada fase padat diperoleh dari neraca massa menggunakan larutan pada saat awal dan akhir waktu percobaan dengan persamaan berikut:

$$q_e = (C_o - C_e) \times \frac{v}{m} \quad (2.2)$$

Dengan:

$q_e$ =Jumlah adsorbat terserap per massa per padatan pada kesetimbangan, mg/g

$C_o$ =Konsentrasi awal larutan, mg/L

$C_e$ =Konsentrasi larutan pada kesetimbangan, mg/L

$m$ =Massa zeolit, g

$v$ =Volume larutan pada percobaan, L

### 2.3.1 Kinetika Adsorpsi

Untuk mempelajari kinetika adsorpsi yang berlangsung dari suatu reaksi maka dapat digunakan reaktor batch. Reaktor batch merupakan suatu reaksi, dimana reaksi akan terjadi dengan kondisi sesuai dengan yang diinginkan untuk reaksi tersebut. Ketepatan penggunaan reaktor batch diantaranya selama reaksi berlangsung tidak terjadi perubahan temperatur, pengadukan dilakukan secara sempurna, dan konsentrasi disemua titik dalam reaktor adalah sama.

Untuk menentukan besaran tetapan laju reaksi (K) dan orde reaksi (n) pada reaktor ideal tipe reaktor batch, dapat digunakan beberapa metode, seperti metode mekanisme reaksi, metode waktu paruh, metode laju awal, metode integrasi, dan metode diferensiasi.

Penentuan kinetika adsorpsi dapat dilakukan dengan menggunakan metode regresi linier terhadap persamaan orde nol, orde satu, orde dua, dan orde tiga.

Model kinetika orde nol dapat dirumuskan sebagai berikut:

$$C_e = -k_0 t + C_0 \quad (2.3)$$

Melalui pengaluran data  $C_e$  terhadap  $t$  dapat diketahui kessesuaian data terhadap model kinetika, yaitu dari nilai korelasi ( $R^2$ ) sedangkan nilai konstanta reaksi orde 0 ( $k_0$ ) diperoleh dari kemiringan (slope) dan perpotongan (intercept).

Model kinetika orde satu, dirumuskan:

$$\ln C_e = -k_1 t + \ln C_0 \quad (2.4)$$

Melalui pengaluran data  $\ln C_e$  terhadap  $t$  dapat diketahui kesesuaian data terhadap model kinetika, yaitu dari nilai korelasi ( $R^2$ ) sedangkan nilai konstanta reaksi orde 1 ( $k_1$ ) diperoleh kemiringan (slope) dan perpotongan (intercept).

Persamaan orde dua, dirumuskan:

$$\frac{1}{C_e} - \frac{1}{C_0} = k_2 t \quad (2.5)$$

Melalui pengaluran data  $1/C_e$  terhadap  $t$  dapat diketahui kesesuaian data terhadap model kinetika, yaitu dari nilai korelasi ( $R^2$ ) sedangkan nilai konstanta reaksi orde 2 ( $k_2$ ) dalam persamaan orde 2 dapat diperoleh dari kemiringan (slope) dan perpotongan (intercept).

Sedangkan untuk persamaan orde ketiga dapat dirumuskan sebagai berikut:

$$\frac{1}{C_e^2} = \frac{1}{C_0^2} + 2k_3 t \quad (2.6)$$

Melalui pengaluran data  $1/C_e^2$  terhadap  $t$  dapat diketahui kesesuaian data terhadap model kinetika, yaitu dari nilai korelasi ( $R^2$ ) sedangkan nilai konstanta reaksi orde 3 ( $k_3$ ) pun dalam persamaan orde tiga dapat diperoleh dari kemiringan (slope) dan perpotongan (intercept).

### 2.3.2 Kesetimbangan Adsorpsi

Kesetimbangan adsorpsi adalah suatu keadaan dinamis yang tercapai ketika laju partikel yang teradsorpsi ke permukaan sama dengan laju desorpsinya. Konsep kimia fisika yang terlibat sangat kompleks dan tidak ada satu pun teori adsorpsi yang telah dikemukakan yang dapat menjelaskannya semua sistem. Hampir semua teori adsorpsi dikembangkan untuk sistem padat-gas karena pemahaman gas lebih baik dari keadaan cair. Sampai sekarang teori-teori yang dikembangkan untuk sistem padat-gas diterapkan untuk semua sistem padat-cair. Model kesetimbangan yang paling banyak dikenal untuk memahami sistem adsorpsi adalah persamaan isoterm Langmuir dan Freundlich.

#### 2.3.2.1 Isoterm Adsorpsi Langmuir

Pada tahun 1918, Langmuir menurunkan teori isoterm adsorpsi dengan menggunakan model sederhana berupa padatan yang mengadsorpsi gas pada permukaannya. Pendekatan Langmuir meliputi asumsi mutlak yaitu:

- a) Gas yang teradsorpsi berkelakuan ideal dalam fasa uap
- b) Gas yang teradsorpsi dibatasi sampai lapisan monolayer
- c) Permukaan adsorbat homogen, artinya afinitas setiap kedudukan ikatan untuk molekul gas sama
- d) Tidak ada interaksi lateral antar molekul adsorbat
- e) Molekul gas yang teradsorpsi terlokalisasi, artinya tidak bergerak pada permukaan.

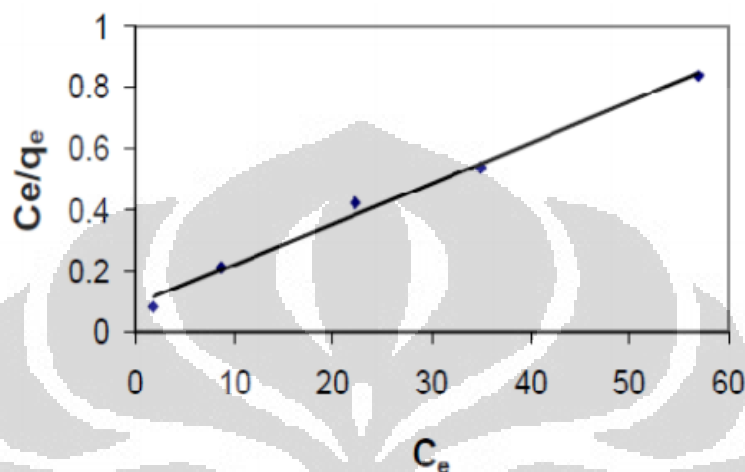
Langmuir mengembangkan suatu model kuantitatif untuk menjelaskan fenomena isoterm adsorpsi dengan pendekatan kinetika. Analog dari penurunan persamaan adsorpsi pada gas, Langmuir mengasumsikan bahwa pada permukaan adsorben terdapat sisi-sisi aktif yang proporsional dengan luas permukaan. Penurunan persamaan isoterm adsorpsi Langmuir sistem cair padat didasarkan pada kesetimbangan proses adsorpsi dan desorpsi adsorbat dipermukaan padatan. Menurut Panneerselvam et al.,(2009) persamaan isoterm Langmuir dapat ditulis sebagai berikut (Langmuir, 1918):

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{Q_o b} + \frac{C_e}{Q_o} \quad (2.7)$$



Dengan  $Q_0$  adalah kapasitas adsorpsi lapisan tunggal (mg/g) dan  $b$  adalah konstanta yang berhubungan dengan energi adsorpsi (L/mg).

Untuk menentukan konstanta dalam persamaan Langmuir, dibuat grafik persamaan linier dengan membuat plot data  $C_e/q_e$  terhadap  $C_e$  seperti yang tercantum pada Gambar 2.4



**Gambar 2.4** Grafik Hubungan Antara  $C_e/q_e$  dengan  $C_e$  pada Persamaan Langmuir (Singh *et al.*, 2008)

### 2.3.2.2 Isoterm Adsorpsi Freundlich

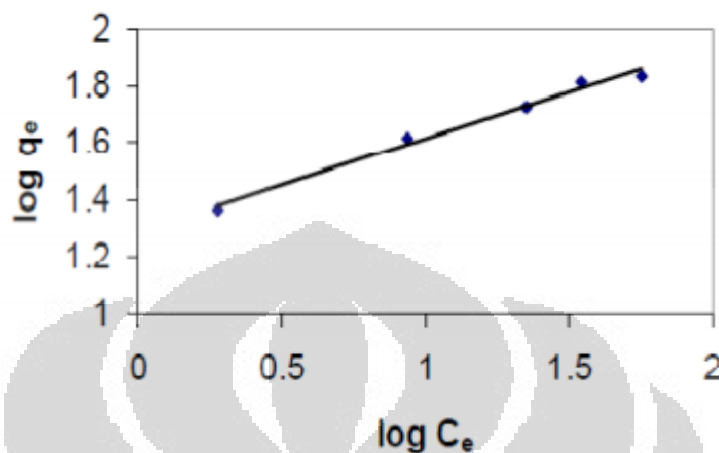
Adsorpsi zat terlarut (dari suatu larutan) pada padatan adsorben merupakan hal yang penting. Aplikasi penggunaan prinsip ini antara lain penghilangan warna larutan (decolorizing) dengan menggunakan batu apung (charcoal) dan proses pemisahan dengan menggunakan teknik kromatografi.

Pendekatan isoterm adsorpsi yang cukup memuaskan dijelaskan oleh H.Freundlich. bentuk logaritmik persamaan isoterm Freundlich menurut Panneerselvam *et al.*,(2009) dapat ditulis menjadi (Freundlich, 1906):

$$\log q_e = \log K_f + \frac{1}{n} \log C_e \quad (2.8)$$

Dengan  $K_f$  adalah kapasitas adsorpsi relatif adsorben (mg/g) dan  $1/n$  adalah konstanta indikatif yang menunjukkan intensitas proses adsorpsi. Untuk menentukan konstanta dalam persamaan Freundlich, dibuat grafik persamaan

linier dengan membuat plot data  $\log q_e$  terhadap  $\log C_e$  seperti yang tercantum pada Gambar 2.5



**Gambar 2.5** Grafik hubungan Antara  $\log q_e$  dengan  $\log C_e$  pada persamaan Freundlich (Singh *et al.*, 2008)

#### 2.4 Karakterisasi Adsorben

Karakterisasi adsorben perlu dilakukan agar dapat diketahui perbedaan sifat fisik maupun kimia pada adsorben sebelum ataupun setelah proses adsorpsi. Pada penelitian ini, karakterisasi adsorben dilakukan dengan menggunakan metode BET untuk mengetahui luas permukaan adsorben, XRD untuk mengukur kristalinitas adsorben, SEM untuk mengetahui komposisi adsorben serta FTIR untuk mengetahui gugus fungsi adsorben.

##### a) Luas Permukaan (BET)

Metode BET untuk mengetahui luas permukaan zeolit sebelum dan sesudah impregnasi  $\text{SnCl}_2$ . Metode BET didasarkan pada penentuan volume molekul yang teradsorpsi secara fisika setebal satu lapis molekul (monolayer) pada permukaan katalis ( $V_m$ ). Asumsi yang digunakan pada teori BET ini adalah adsorpsi berlapis banyak (multilayer),  $V_m$  yang dihitung adalah jumlah volume lapisan terluar.

Berikut persamaan BET yang digunakan:

$$\frac{\left(\frac{P}{P_o}\right)}{V\left(1-\frac{P}{P_o}\right)} = \frac{1}{C.V_m} + \left[\frac{(C-1)}{C.V_m}\right]\left(\frac{P}{P_o}\right) \quad (2.9)$$

Keterangan:

P : Tekanan gas saat adsorpsi

Po : Tekanan jenuh adsorbat gas pada temperatur percobaan

V : Volume gas yang di adsorp pada tekanan P

Vm : Volume gas yang di adsorp untuk lapisan tunggal monolayer

C : Konstanta sebagai fungsi eksponensial dari panas adsorpsi dan panas pencairan

$$C = \exp\frac{(Q_a - Q_p)}{R} \quad (2.10)$$

Qa : Panas adsorpsi pada lapisan pertama

Qp : Panas pencairan gas pada lapisan yang lainnya

Gas yang digunakan untuk metode BET ini adalah gas yang mudah terkondensasi, mempunyai ukuran kecil seperti nitrogen (N<sub>2</sub>). Temperatur yang digunakan pada saat pengukuran adsorpsi isoterm adalah 77 K (-196°C) dengan nitrogen cair.

#### b) Kristalinitas dengan Difraksi Sinar-X

Difraksi pada dasarnya disebabkan oleh adanya hubungan fasa tertentu antara dua penggerak atau lebih sehingga paduan dua gelombang tersebut bisa saling menguatkan atau melemahkan.

Difraksi sinar X untuk bahan berwujud serbuk adalah metode yang penting untuk karakterisasi kualitatif dan kuantitatif karena pola umum difraksi sinar-X untuk zeolit khas dan mudah dikenal. Pola difraksi bubuk zeolit adalah plot intensitas sinar difraksi yang menyatakan indeks Miller (hkl) sebagai fungsi 2θ dimana θ adalah sudut difraksi:

$$N.\lambda = 2d \sin \theta \quad (2.11)$$

D adalah jarak antar bidang kristal dan λ adalah panjang gelombang sinar-X. Jarak bidang kristal atau indeks Miller menentukan unit sel kristal.

Secara umum hasil yang diperoleh dari metode XRD adalah analisis kualitatif. Pengukuran intensitas dari difraksi sinar-X menggunakan skala relatif. Penentuan kristalinitas atau sering disebut sebagai “%kristalinitas” pada dasarnya adalah membandingkan intensitas yang diperoleh dari suatu sampel dengan intensitas sampel standar. Penentuan ini menjadi lebih mudah dengan jalan merata-rata tinggi dari beberapa puncak dominan, kemudian dibagi rata-rata tinggi peak sampel standar yang dianggap mempunyai kristalinitas 100%.

c) Komposisi Kimia (SEM-EDS)

Alat ini terbagi menjadi dua bagian fungsi yang berbeda, yaitu EDS dan SEM. Uji EDS ini dapat membaca suatu permukaan sampel dengan suatu alat pembaca elektron (5-50kV) sehingga dapat mengetahui komposisi logam-logam yang ada di dalam zeolit, dalam hal ini terutama untuk mengetahui rasio Si/Al. Jika rasio Si/Al meningkat, maka zeolit akan lebih stabil terhadap suhu tinggi.

Tujuan uji SEM adalah untuk mengukur kehomogenan pembentukan ukuran partikel dari sintesis yang dilakukan. Selain itu, uji SEM dapat memberikan data nilai ukuran partikel adsorben. Uji SEM menghasilkan foto partikel adsorben yang diperoleh dengan perbesaran gambar untuk pengamatan adsorben yang dikarakterisasi. Pengolahan data uji SEM dilakukan dengan mengukur panjang partikel yang terdapat difoto dengan menggunakan penggaris. Selanjutnya, ukuran yang diperoleh dibandingkan dengan skala yang terdapat dibagian bawah foto sehingga diperoleh nilai ukuran partikel.

d) Karakterisasi FTIR

Karakterisasi FTIR dilakukan untuk mengetahui struktur dan jenis ikatan serta sifat-sifat permukaan adsorben. Metode FTIR dapat digunakan untuk analisis kualitatif, dengan mendeteksi ikatan-ikatan kovalen yang ada di dalam suatu senyawa. Karena hampir setiap senyawa yang memiliki ikatan kovalen baik organik maupun anorganik mengadsorpsi energi gelombang

dari radiasi elektromagnetik di daerah spektrum infra merah yaitu pada sekitar panjang gelombang 2,5 – 1,5  $\mu\text{m}$ .

Energi yang diadsorb dari radiasi infra merah akan digunakan oleh ikatan molekul untuk menaikkan energi vibrasi dari ikatan tersebut. Vibrasi dilakukan suatu ikatan adalah vibrasi ulur (stretch vibration) dan tekuk (bend vibration). Setiap suatu ikatan kovalen akan menyerap radiasi infra merah pada panjang gelombang tertentu untuk menaikkan energi vibrasinya. Perbedaan radiasi saat sinar infra merah masuk dan keluar sampel dideteksi dan hasilnya merupakan spektrum absorpsi atau transmittansi.

## 2.5 Logam Hg (Merkuri)

Logam merkuri atau air raksa mempunyai nama kimia hydrargyrum yang berarti perak cair (Palar, 1994). Merkuri dan senyawa-senyawanya tersebar luas di alam, mulai dari batuan, air, udara dan bahkan dalam tubuh organisme hidup di alam, merkuri biasanya dijumpai dalam bentuk logam merkuri dan ion-ion merkuri. [Merkuri](#) merupakan logam yang dalam keadaan normal berbentuk cairan berwarna abu-abu, tidak berbau, dengan nomor atom 80, berat molekul 200,59, titik didih 357° C, Titik Leleh 38,4° C, dan massa jenis 13,6 g/mL. Tidak larut dalam air, alkohol, eter, asam hidroklorida, hydrogen bromida dan hidrogen iodida; Larut dalam asam nitrat, asam sulfuric panas dan lipid. Tidak tercampurkan dengan oksidator, halogen, bahan yang mudah terbakar, logam, asam, logam *carbide* dan *amine* Menurut Palar (1994), secara umum logam merkuri mempunyai sifat-sifat sebagai berikut:

- Berwujud cair pada suhu kamar (25°C) dengan titik beku paling rendah sekitar -39°C, sehingga mudah menyebar di permukaan air dan sulit dikumpulkan.
- Masih berwujud cair pada suhu 396°C, pada temperatur 396°C ini telah terjadi pemuaihan secara menyeluruh.
- Merupakan logam yang paling mudah menguap jika dibandingkan dengan logam yang lain.

- Tahanan listrik yang dimiliki sangat rendah, sehingga menempatkan merkuri sebagai logam yang sangat baik untuk menghantarkan daya listrik.
- Dapat melarutkan bermacam-macam logam untuk membentuk alloy yang disebut dengan amalgam.
- Merupakan unsur yang sangat beracun bagi semua makhluk hidup, baik itu dalam bentuk unsur tunggal (logam) ataupun dalam bentuk persenyawaan.

Duffus (1980), menjelaskan bentuk dan penggunaan merkuri. Merkuri berada dalam bentuk senyawa, satu diantaranya yang paling utama adalah sinabar ( $\text{HgS}$ ) yang sudah ditambang sejak 700 SM. Pada saat ini digunakan dalam industri dalam tiga bentuk: senyawa logam, senyawa organik, dan senyawa anorganik. Penggunaan paling besar adalah dalam produksi alat elektronik. Penggunaan kedua terbesar adalah dalam industri kloro-alkali, yang memproduksi klorine dan soda kaustik dengan menggunakan merkuri sebagai katoda dalam sel elektrolisis. Penggunaan terbesar ketiga di dunia adalah dalam fungisida termasuk pelindung benih (seed dressing), meskipun perlu dicatat bahwa di beberapa negara penggunaannya telah dilarang.

Merkuri di alam terdapat dalam berbagai bentuk sebagai berikut:

- Merkuri metal ( $\text{Hg}_0$ ) merupakan logam berwarna putih, berkilau dan pada suhu kamar berada dalam bentuk cairan. Pada suhu kamar akan menguap dan membentuk uap merkuri yang tidak berwarna dan tidak berbau. Makin tinggi suhu, makin banyak yang menguap.
- Merkuri anorganik, termasuk logam merkuri ( $\text{Hg}^{2+}$ ) dan garam-garamnya seperti merkuri klorida ( $\text{HgCl}_2$ )
- Komponen merkuri organik/organomerkuri, terdiri dari aril merkuri, alkil merkuri dan alkoksialkil merkuri.

Merkuri klorida ( $\text{HgCl}_2$ ) termasuk dalam senyawa merkuri anorganik dan ada dalam bentuk garam Hg yang penggunaannya semakin meluas antara lain digunakan dalam industri elektronik, pembuatan plastik, fungisida, germisida bahkan pernah digunakan sebagai obat cacing. Merkuri klorida dalam sedimen di dasar laut dan sungai akan diubah oleh mikroorganisme menjadi senyawa organik metil merkuri ( $\text{R} - \text{O} - \text{Hg}$ ), yang tetap akan larut di dalam air. Di perairan, metil

merkuri masuk ke tubuh ikan kemudian terakumulasi pada pemangsa alaminya hingga meracuni manusia (Anonim, 2004 b).

Baik garam-garam Hg maupun senyawa-senyawa Hg organik bersifat toksik, tetapi senyawa-senyawa Hg organik bahkan memiliki daya racun yang lebih tinggi dari Hg anorganik (Nurhasan, 1982). Merkuri anorganik dapat berubah menjadi merkuri organik yaitu metil merkuri ( $\text{CH}_3\text{-Hg}$ ) oleh aktifitas mikroorganisme. Metil merkuri mempunyai sifat racun, daya ikat yang kuat dan kelarutan yang tinggi terutama dalam tubuh hewan air. Hal tersebut mengakibatkan merkuri terakumulasi melalui proses bioakumulasi dan biomagnifikasi dalam jaringan tubuh hewan-hewan air, sehingga kadar merkuri dapat mencapai level yang berbahaya baik bagi kehidupan hewan air maupun kesehatan manusia yang mengkonsumsi (Sanusi, 1980 dalam Budiono, 2003).

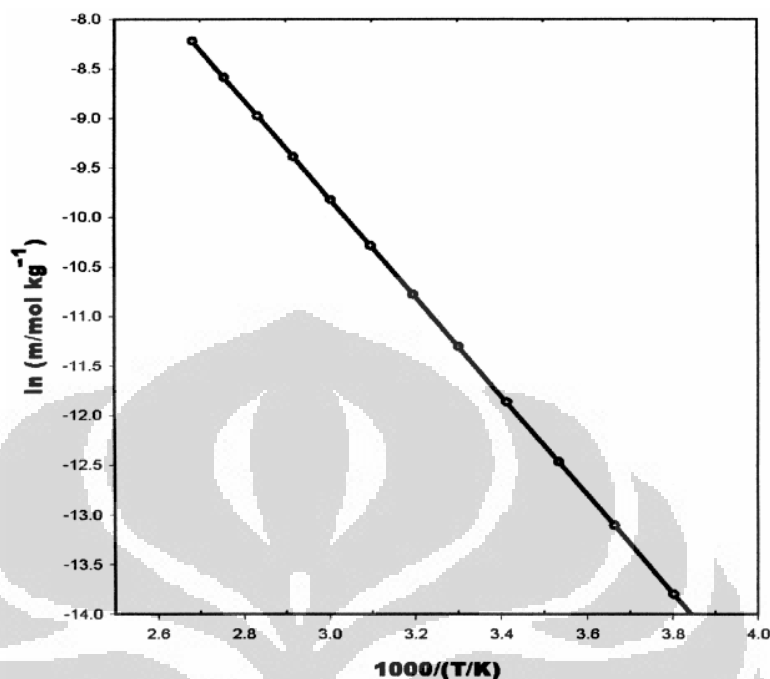
## 2.6 Merkuri Dalam Minyak Bumi

Merkuri dalam minyak bumi, baik dalam gas maupun kondensat dapat berada dalam bentuk logamnya (elemental merkuri), merkuri halida (*suspended* merkuri), merkuri terkomplekskan atau dalam bentuk organomerkuri (Wilhelm and Bloom, 1999). Merkuri dalam minyak bumi secara umum sangat merugikan. Dalam proses pengolahan gas, merkuri dapat merusak peralatan terutama pada alat penukar panas kriogenik (*cryogenic heat exchanger*). Pada industri petrokimia dan pengilangan minyak, merkuri dapat meracuni katalis dan mengkontaminasi air limbah.

### a) Elemental Merkuri

Elemental merkuri dan beberapa senyawaan merkuri secara alamiah terdapat dalam hidrokarbon. Pada temperatur ambien, elemental merkuri ( $\text{Hg}^0$ ) larut dalam likuid hidrokarbon alifatik berkisar anatar 1 – 3 ppm. Seperti terlihat pada Gambar 2.7. yang beberapa kali kelarutannya lebih besar dari air yang berkisar 0,05 ppm. Elemental merkuri sangat mudah terserap dalam permukaan logam dan bahan padat tersuspensi dalam cairan seperti pasir.  $\text{Hg}^0$  bereaksi dengan besi oksida menyebabkan korosi pada pipa dan dinding peralatan. Kelarutan  $\text{Hg}^0$  dalam hidrokarbon sangat

tergantung pada suhu, maka ketika cairan jenuh didinginkan  $\text{Hg}^0$  dapat mengendap diperalatan.



**Gambar 2.6** Kelarutan dari Elemental Merkuri Dalam Normal Alkana sebagai fungsi Suhu (Wilhelm and Bloom, 1999).

b) Senyawa Organik Merkuri (Organomerkuri)

Senyawa organik merkuri ( $\text{RHgR}$  dan  $\text{RHgCl}$ , dimana  $\text{R} = \text{CH}_3, \text{C}_2\text{H}_5$ , dst) memiliki kelarutan yang tinggi di dalam minyak bumi dan gas kondensat. Senyawaan dialkil merkuri terbagi melalui proses pemisahan dari likuid

hidrokarbon ke dalam fraksi distilasi berdasarkan titik didihnya (Tabel 2.2). Monoetilmerkuri terpisah secara istimewa dari air dalam pemisahan awal. Keberadaan senyawa organik merkuri dalam matriks cairan hidrokarbon dapat disimpulkan dari analisa total merkuri dimana neraca massa tidak sesuai dari penetapan operasi spesiasi merkuri. Senyawa dialkilmerkuri dapat terdeteksi dengan menggunakan teknik kromatografi tetapi biasanya pada konsentrasu rendah.



**Tabel 2.2** Titik Didih Dari Senyawa Organik Merkuri

<i>Hg compound</i>	<i>Boiling point (°C)</i>
Hg <sup>0</sup>	357
(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> Hg	96
(C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> ) <sub>2</sub> Hg	170
(C <sub>3</sub> H <sub>7</sub> ) <sub>2</sub> Hg	190
(C <sub>4</sub> H <sub>9</sub> ) <sub>2</sub> Hg	206

## c) Merkuri Halida

Merkuri halida (HgCl) sekitar 10 kali lebih larut daripada Hg<sup>0</sup> dalam minyak bumi dan gas kondensat (Tabel 2.3). Tetapi terpisah kedalam fasa air pada proses pemisahan hidrokarbon-air. Tingkat distribusi HgCl kedalam air atau hidrokarbon tergantung salinitas dan pH-nya.

**Tabel 2.3.** Kelarutan beberapa Senyawa Merkuri Dalam Heksana

<i>Species</i>	<i>Solubility (ppb)</i>	<i>Temperature (°C)</i>
Hg <sup>0</sup>	1200	27,5
HgCl <sub>2</sub>	11500	27,5
CH <sub>3</sub> HgCl	>1000000	20,0
(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> Hg	∞	

d) *Suspended* Merkuri

Cairan hidrokarbon yang belum di proses biasanya banyak mengandung *suspended* merkuri. Contoh yang paling umum adalah merkuri sulfida (HgS) yang tidak larut dalam air dan minyak. Ukuran partikel biasanya kecil. Elemental merkuri dapat menjadi *suspended* merkuri karena cairan hidrokarbon menjadi jenuh melalui proses pendinginan kriogenik.

## e) Kompleks Merkuri

Merkuri kompleks sulfur (HgK, dimana K adalah suatu organik sulfida, thiol, merkaptan) dipastikan terdapat dalam minyak mentah dan kondensat. Saat ini keberadaan senyawaan tersebut dalam hidrokarbon adalah spekulatif. Kompleks merkuri yang spesifik belum dapat

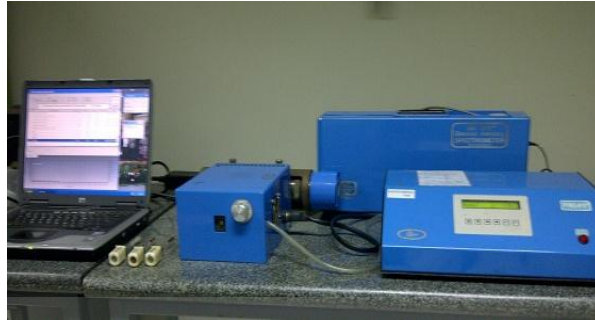
diidentifikasi secara pasti. Tetapi keberadaannya dapat disimpulkan dengan kromatografi dan percobaan spesiasi merkuri.

## 2.7 Analisa Kandungan Merkuri Dalam Minyak Bumi

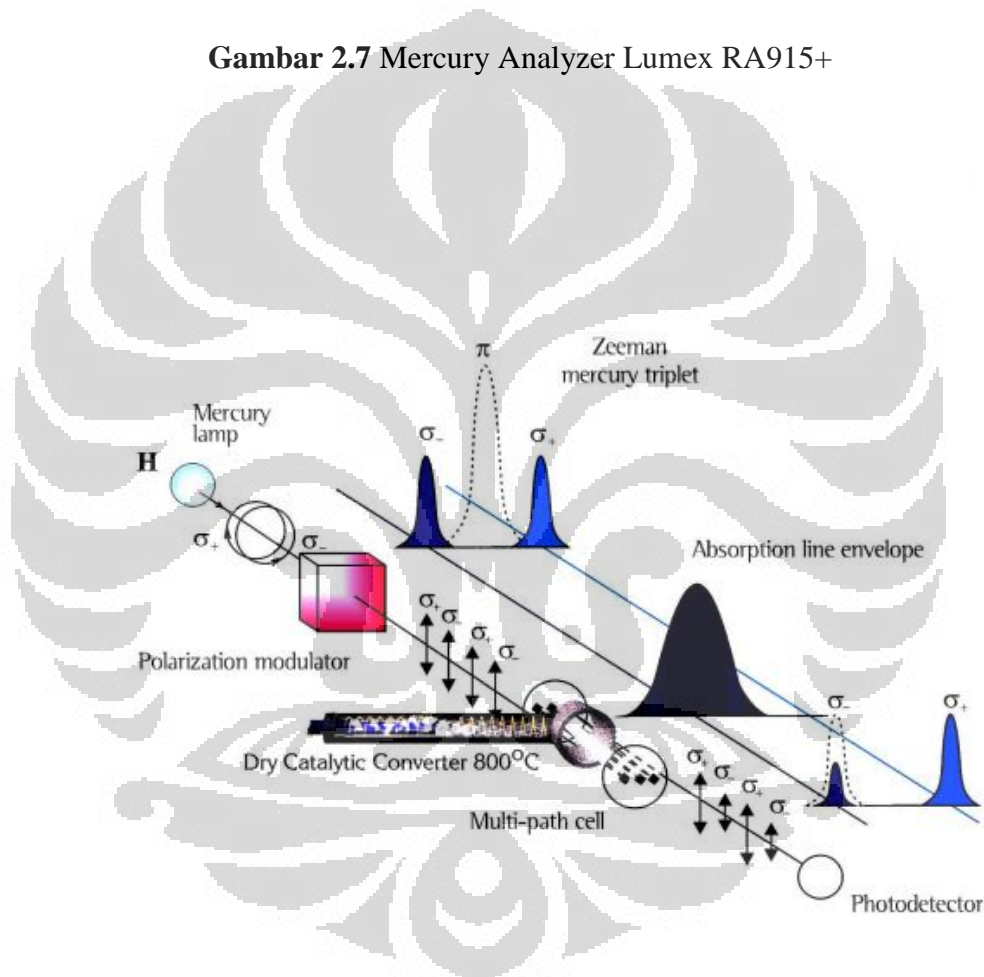
Analisa kandungan merkuri dalam minyak bumi pada percobaan ini menggunakan LUMEX portabel RA-915 analyzer untuk penentuan merkuri berdasarkan Metode UOP-938. Ini adalah instrumen yang sangat serbaguna, prinsipnya berdasarkan spektrometri serapan atom Zeeman, dengan modulasi frekuensi polarisasi oflight tinggi (ZAAS-HFM) (Sholupov dan Ganeyev, 1995). Penerapan koreksi latar belakang Zeeman dan sel analitis multipath pada alat memberikan selektivitas dan sensitivitas tinggi pada pengukuran. Penambahan unit PYRO-915 (pirolisis) pada Lumex memungkinkan pengukuran Hg dalam sampel padat. Merkuri dalam sampel diubah dari keadaan terikat ke bentuk atom dengan dekomposisi termal dalam dua bagian atomizer. Sebagai langkah pertama sampel yang mengandung senyawaan merkuri di uapkan sehingga terdekomposisi, kemudian diikuti dengan pemanasan sampai 800 ° C, ketika senyawa merkuri menjadi sepenuhnya terurai, sedangkan senyawa organik dan partikel karbon berubah menjadi karbon dioksida dan air. Analisis ini memakan waktu 1-2 menit. Karakteristik analisa dapat dilihat pada Tabel 2.4

**Tabel 2.4.** Karakteristik Analisa Mercury Analyzer RA-915 ([www.lumex.ru](http://www.lumex.ru))

Sample weight	up to 100 mg (oil) up to 50 mg (gasoline)
Detection limit	1–2 µg/kg (oil) 2–5 µg/kg (gasoline)
Measurement time	< 2 min
Air flow rate	1 l/min
Upper limit of the measurement range	10 000 µg/kg



**Gambar 2.7** Mercury Analyzer Lumex RA915+



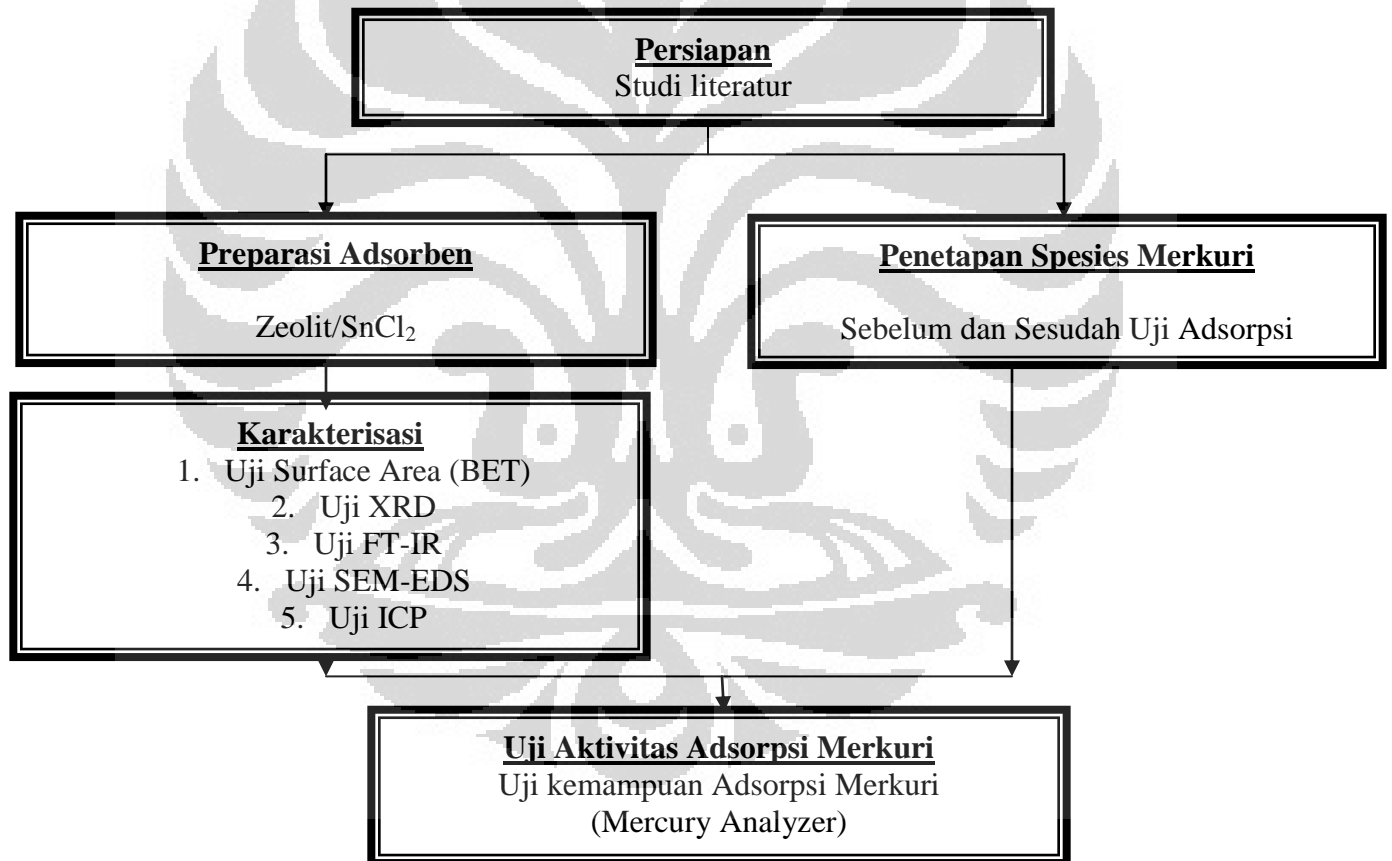
**Gambar 2.8** Skema Instrumen RA915+

## BAB 3

### METODE PENELITIAN

#### 3.1 Diagram Alir Penelitian

Penelitian ini dilakukan di laboratorium uji PT Intertek Utama Services, yang terdiri dari tahap preparasi adsorben, karakterisasi adsorben, penetapan spesies merkuri dan uji adsorpsi adsorben yang telah disintesis. Alur penelitian ditunjukkan oleh bagan pada gambar 3.1 :



**Gambar 3.1** Diagram Alir Penelitian

### 3.2 Variabel Penelitian

Variabel bebas yang di variasikan pada penelitian ini adalah

1. Komposisi adsorben, membuat variasi adsorben 0,5%, 1%, 2%, 5%, dan 10% (b/b)  $\text{SnCl}_2$ /Zeolit dengan metode impregnasi
2. Dosis adsorben, membuat variasi dosis adsorben yang di tambahkan 0,1%, 0,5%, 1%, dan 5%
3. Waktu kontak, variasi waktu kontak uji adsorpsi selama 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 90, 100, 110, dan 120 menit

Variabel kontrol dalam penelitian ini adalah temperatur adsorpsi sebesar  $30^\circ\text{C}$  dan kecepatan pengadukan reaktor batch sebesar 150 rpm.

### 3.3 Alat dan Bahan

Alat-alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah:

1. Hot Plate (IKA<sup>®</sup> C-MA6)
2. Neraca Analitik (Metler Toledo)
3. Tanur (Barnstead, Thermolyne)
4. Mercury Analyzer (Lumex, RA915<sup>+</sup>)
5. Botol Gelas 25mL (Schote Duran with Red Cap)
6. Shaker/Rotary Equipment
7. Kertas saring, milipore filtration 0,2 um dan 0,8 um
8. Cawan Porselain
9. Corong Pemisah, 125 mL Pyrex
10. Gas Washing Bottle, 250 mL Pyrex, coarse porosity
11. Pressure Filtration Apparatus
12. Tubing Tygon
13. Flowmeter
14. Magnetic Stirrer
15. Oven dan alat-alat gelas.

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah:

1.  $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  (pure analysis, MERCK)
2. Zeolite Alam Kolipnotilit
3. Minyak Mentah (Sumatera *Crude oil*)
4. Helium, high purity 99,99% (UHP BOC)
5. L-Cystein, 1% Aqueous solution
6. Heksana, p.a (Merck)
7. Aquades

### 3.4 Prosedur Penelitian

Prosedur penelitian dibagi menjadi 3 bagian besar, yaitu preparasi adsorben, karakterisasi adsorben, dan uji adsorpsi adsorben dalam aplikasinya sebagai sistem penghilangan merkuri dalam hidrokarbon cair.

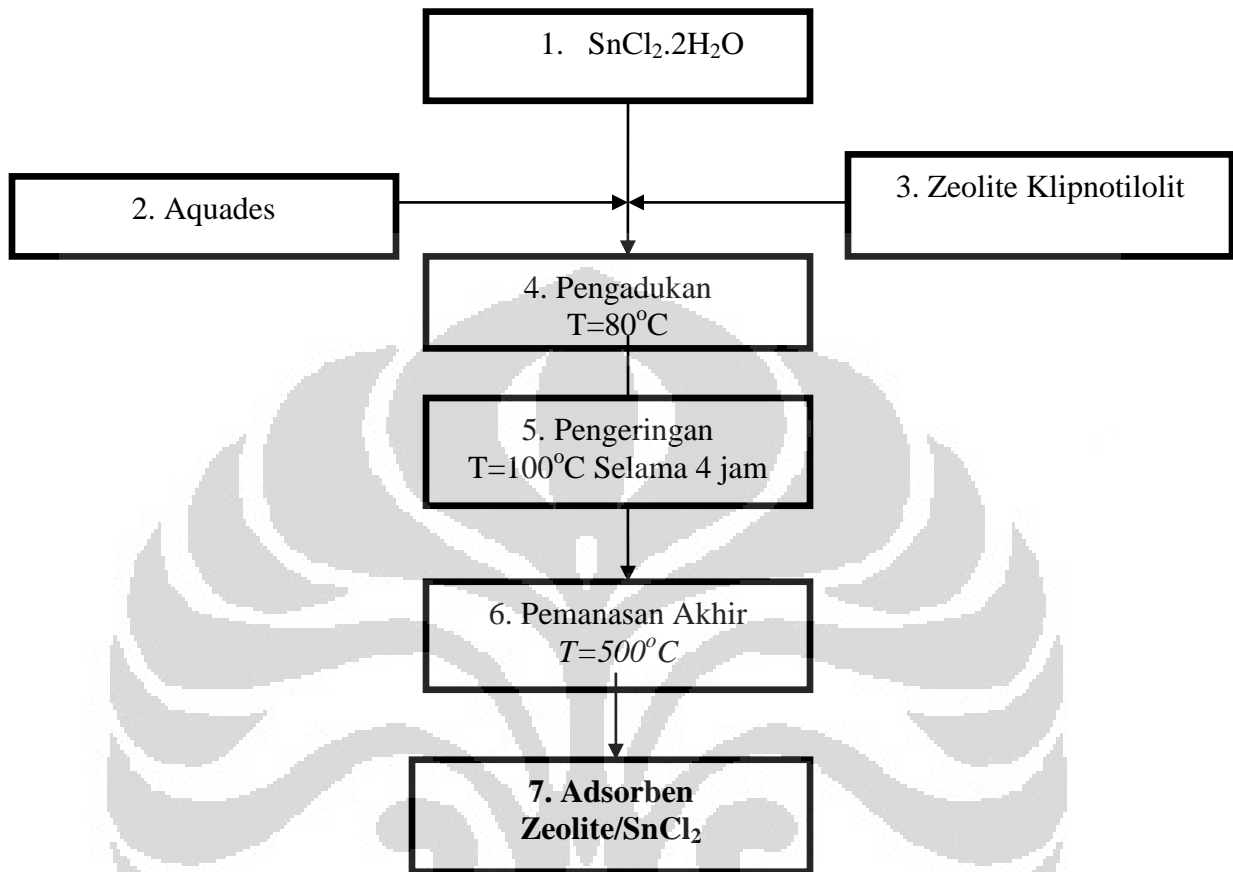
#### 3.4.1 Preparasi Adsorben Zeolite/ $\text{SnCl}_2$

Pada penelitian ini, akan dibuat adsorben Zeolite/Sn (0,5%, 1%, 2%, 5%, dan 10% wt Sn). Berikut diagram alir preparasi adsorben Zeolite/Sn:

Berikut adalah prosedur kerja untuk preparasi adsorben Zeolite/Sn :

- a. Kedua bahan dicampurkan langsung kemudian dilarutkan dengan menggunakan aquades. Perbandingan berat sebagai berikut:

<b>Komposisi Adsorben (%Sn)</b>	<b>Bobot <math>\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}</math> (gram)</b>	<b>Bobot Zeolite (gram)</b>	<b>Aquadest (mL)</b>
<b>0,5%</b>	0,05	10	50
<b>1%</b>	0,1	10	50
<b>2%</b>	0,2	10	50
<b>5%</b>	0,5	10	50
<b>10%</b>	1	10	50



**Gambar 3.2** Diagram Alir Preparasi Adsorben

- b. Campuran ini kemudian diaduk dengan *magnetic stirrer* sambil dipanaskan di atas *hot plate* pada suhu 80°C selama 4 jam
- c. Campuran ini kemudian dituangkan kedalam cawan porselen, lalu dikeringkan pada suhu 100°C
- d. Campuran tersebut dipanaskan pada suhu 500°C didalam tanur selama 4 jam
- e. Produk akhir berupa serbuk Zeolite/SnCl<sub>2</sub>

### 3.4.2 Mercury Adsorption Batch Experiment

#### a. Initial Isotherm Test For Removal Of Mercury From Liquid Hydrocarbon (Uji Trial 1)

Pada tahap ini, dilakukan tes awal kemampuan adsorpsi adsorben melalui batch experiment terhadap ketiga adsorben yang telah di preparasi (0,5%, 1%, dan 2% wt ) Zeolit/SnCl<sub>2</sub>. Dosis adsorben yang digunakan pada tes awal ini sebanyak 0,25 gram. Sejumlah adsorben tersebut dimasukkan kedalam botol gelas *schote duran* kemudian dimasukkan 25 gram industrial condensate lalu ditutup dengan tidak adanya jarak udara antara campuran tersebut dengan tutup botol. Campuran tersebut dimasukkan kedalam rotary equipment dengan suhu diatur 30°C diputar 150 rpm selama 24 jam hingga dicapai kesetimbangan. Setelah setimbang, campuran disaring dengan milipore membrane 0,2 um. Filtrat kemudian dianalisa kandungan mercury dengan mercury analyzer Lumex, RA915+.

#### b. Dosage Optimum Test For Removal Of Mercury From Liquid Hydrocarbon (Uji Trial 2)

Pada tahap ini, dilakukan penentuan dosis optimum menggunakan adsorben yang memiliki efesiensi adsorpsi terbaik pada uji trial pertama melalui batch experiment pada suhu 30°C. Variasi dosis yang digunakan yaitu, 0,1%, 0,5%, 1%, dan 5%.. Sejumlah adsorben dengan dosis tersebut dimasukkan kedalam botol gelas *schote duran* kemudian dimasukkan 25 gram industrial condensate lalu ditutup dengan tidak adanya jarak udara antara campuran tersebut dengan tutup botol. Campuran tersebut dimasukkan kedalam rotary equipment dengan 150 rpm selama 24 jam hingga dicapai kesetimbangan. Setelah setimbang, campuran disaring dengan milipore membrane 0,2 um. Filtrat kemudian dianalisa kandungan mercury dengan mercury analyzer Lumex, RA915+.

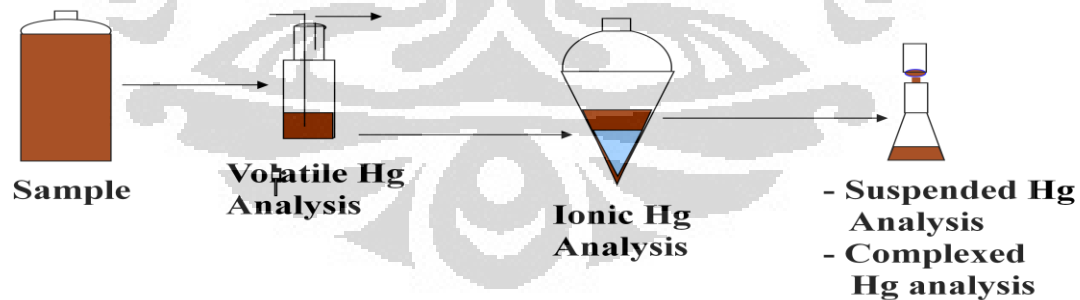


c. Uji Waktu Kontak

Percobaan ini dilakukan setelah percobaan optimasi dan diperoleh data kondisi optimum percobaan, yaitu komposisi dan dosis optimum adsorben. Sejumlah adsorben dengan komposisi dan dosis optimum tersebut dimasukkan ke dalam botol gelas *schote duran* kemudian dimasukkan 25 gram industrial condensate lalu ditutup dengan tidak adanya jarak udara antara campuran tersebut dengan tutup botol. Percobaan dilakukan dengan memvariasikan waktu reaksi sebagai variabel bebas. Campuran tersebut dimasukkan ke dalam rotary equipment pada kecepatan 150 rpm selama waktu 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 90, 100, 110 dan 120 menit. Setiap variasi waktu tertentu, sampel disaring dan filtratnya diukur menggunakan mercury analyzer Lumex RA915+ untuk menentukan kadar merkuri dalam sampel.

### 3.4.3 Penetapan Spesies Merkuri

Penetapan spesies merkuri dalam sampel hidrokarbon cair secara umum dapat dilihat pada Gambar 3.3



**Gambar 3.3** Skema Secara umum Penetapan Spesies Merkuri

a. Prosedur Analisa Volatil Merkuri

- Sampel hidrokarbon cair terlebih dahulu di analisa kandungan total merkuri yang terkandung dalam sampel dengan mercury analyzer Lumex RA915+
- Sebanyak 50 mL sampel hidrokarbon cair dimasukkan ke dalam 250 mL gas wash bottle kemudian level cairan diberi tanda
- Bagian inlet dari gas wash bottle disambungkan dengan gas helium dan flowmeter disambungkan pada bagian keluaran gas wash bottle
- Sampel di purge dengan helium pada laju alir 350 mL/min selama 2 jam.
- Heksana ditambahkan ke dalam gas wash bottle apabila level cairan berkurang sampai volume seperti awal sebelum purging, kemudian sampel hidrokarbon cair tersebut di analisa kandungan total merkuri dengan mercury analyzer RA915+

b. Prosedur Analisa Partikulat/Suspended Merkuri

- Sampel hidrokarbon cair dari hasil analisa volatil merkuri disaring dengan 0,8 um kertas saring melalui pressure filtration. Hasil filtrasi di analisa kandungan total merkuri dengan mercury analyzer Lumex RA915+

c. Prosedur Analisa Ionik Merkuri

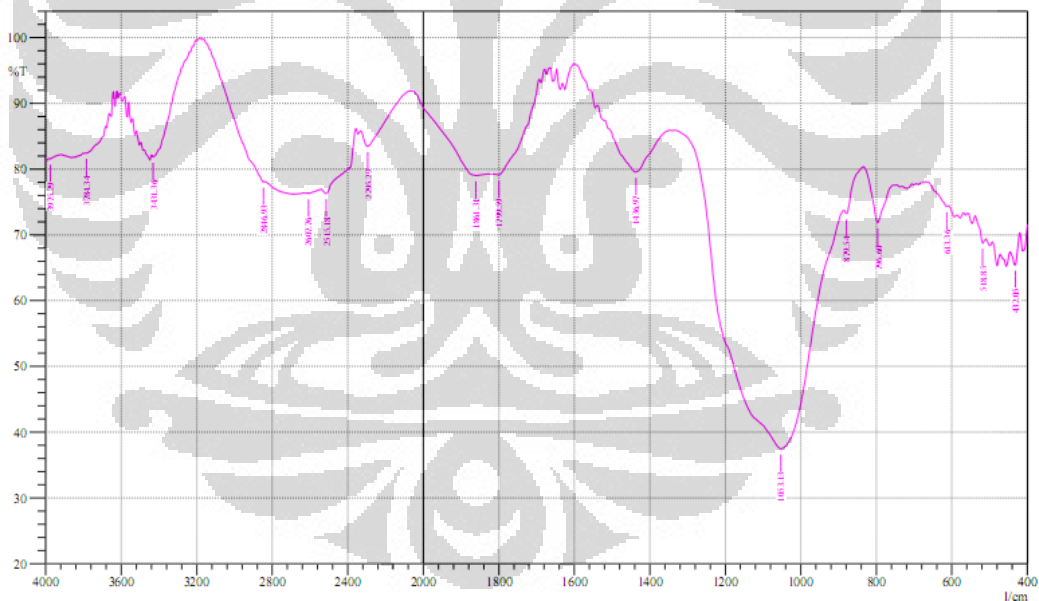
- Sampel hidrokarbon cair dari hasil analisa Partikulat merkuri di pindahkan kedalam corong pemisah yang berisi magnetik bar
- Sebanyak 25 mL larutan 1% L-Cystein dimasukkan ke dalam corong pemisah, kemudian sampel diekstrak dengan posisi miring sambil di aduk dengan magnetik stirer selama 15 menit.
- Corong pemisah dibiarkan selama 10 menit, diletakkan berdiri dengan clamp hingga terpisah menjadi dua fase.
- Lapisan bawah yang berupa fase air di drain, kemudian sampel pada fase berikutnya yang merupakan hidrokarbon cair dimasukkan kedalam botol gelas, selanjutnya di analisa kandungan total merkuri dengan mercury analyzer Lumex RA915+

## BAB 4

### HASIL DAN PEMBAHASAN

#### 4.1 Karakterisasi FTIR

Spektrum IR menyatakan jumlah radiasi inframerah yang diteruskan melalui cuplikan sebagai fungsi frekuensi atau bilangan gelombang. Analisis spektra inframerah pada zeolit dikelompokkan menjadi 2 bagian, yaitu pada bilangan gelombang  $4000 - 1250 \text{ cm}^{-1}$  dan  $1250 - 350 \text{ cm}^{-1}$  (Geide *et al.*, 2003). Kelompok pertama mengamati gugus yang bukan merupakan identitas spesifik dari struktur zeolit, sedangkan kelompok kedua merupakan identitas spesifik dari struktur zeolit. Hasil pengamatan dengan FTIR menunjukkan puncak-puncak yang spesifik. Spektra inframerah zeolit klinoptilolit sebelum impregnasi tersaji pada Gambar 4.1.



**Gambar 4.1** Spektra Absorbansi IR untuk zeolit klinoptilolit tanpa impregnasi

Gambar 4.1 menunjukkan bahwa zeolit klinoptilolit mempunyai puncak serapan pada daerah bilangan gelombang  $432,05 \text{ cm}^{-1}$ ,  $796,6 \text{ cm}^{-1}$ ,  $1053,13 \text{ cm}^{-1}$ ,  $1436,97 \text{ cm}^{-1}$ ,  $1799,59 \text{ cm}^{-1}$ ,  $1861,31 \text{ cm}^{-1}$ ,  $2295,29 \text{ cm}^{-1}$ ,  $2515,18 \text{ cm}^{-1}$ ,  $2607,76 \text{ cm}^{-1}$ ,  $2846,93 \text{ cm}^{-1}$ ,  $3431,36 \text{ cm}^{-1}$ ,  $3784,34 \text{ cm}^{-1}$ ,  $3975,29 \text{ cm}^{-1}$ . Pada Gambar 4.1 puncak  $3431,3 \text{ cm}^{-1}$  menunjukkan serapan dari gugus O-H pada zeolit terhidrasi

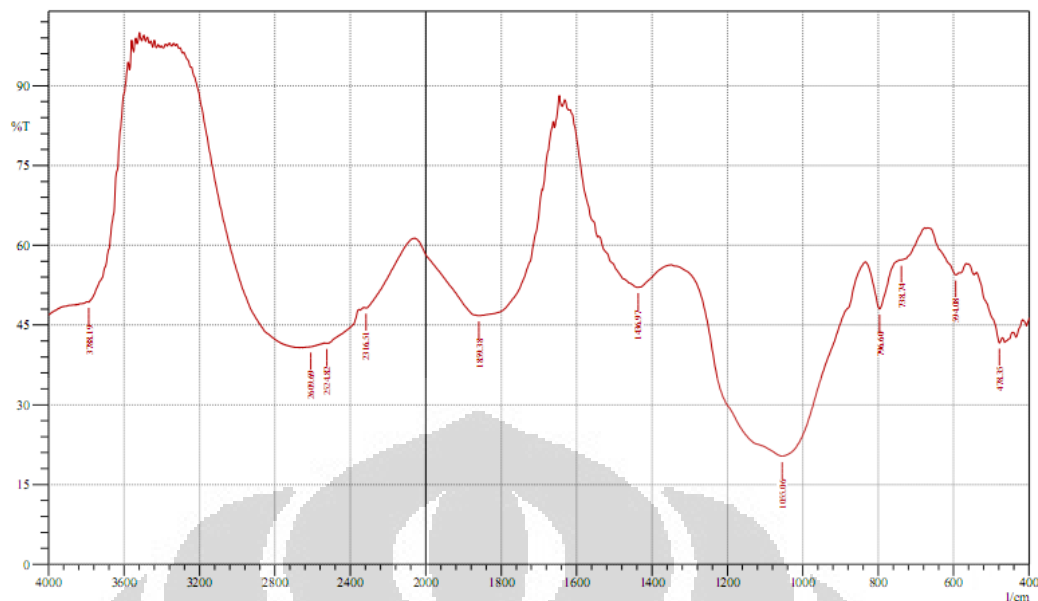
dan merupakan vibrasi ulur O-H dari molekul air yang teradsorpsi. Serapan pada  $1639,4\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi tekuk gugus O-H dari molekul  $\text{H}_2\text{O}$  yang teradsorpsi. Carrado *et al.*, (2001) melaporkan bahwa  $\text{H}_2\text{O}$  yang terserap memberikan pita serapan pada daerah  $3435$  dan  $1628\text{ cm}^{-1}$ .

Puncak  $1053,1\text{ cm}^{-1}$  adalah serapan yang menunjukkan adanya vibrasi ulur asimetris Si-O atau Al-O pada TO4. Heraldry *et al.*, (2003) menyatakan angka  $1043,3$  dan  $1052,3\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi ulur asimetris Si-O-Si atau Al-O-Al pada zeolit alam. Puncak pada bilangan gelombang  $1053,1\text{ cm}^{-1}$  merupakan puncak dengan intensitas paling tinggi. Berdasarkan intensitas puncak tersebut dapat diketahui bahwa kandungan Si-O pada zeolit klinoptilolit yang digunakan sangat tinggi.

Serapan vibrasi tekuk T-O berada pada kisaran  $420\text{-}500\text{ cm}^{-1}$ . Puncak  $432,05\text{ cm}^{-1}$  pada Gambar 4.1 menunjukkan adanya vibrasi tekuk dari ikatan T-O. Puncak ini merupakan interpretasi dari jalinan internal pada kerangka zeolit. Pada zeolit alam Ponorogo menunjukkan serapan pada  $447,2\text{ cm}^{-1}$  dan zeolit alam Wonosari pada  $470,6\text{ cm}^{-1}$  (Heraldry *et al.*, 2003). Berdasarkan hasil analisis spektroskopi inframerah tersebut dapat disimpulkan bahwa zeolit alam menunjukkan karakter kerangka struktur zeolit.

Terdapatnya gugus Si-OH, Si-O-Si, dan Si-O dengan intensitas vibrasi yang signifikan dalam spektrum FTIR mengindikasikan bahwa di dalam sampel zeolit klinoptilolit tanpa impregnasi terdapat bahan silika yang belum berikatan dengan bahan lain dengan kadar yang dominan.

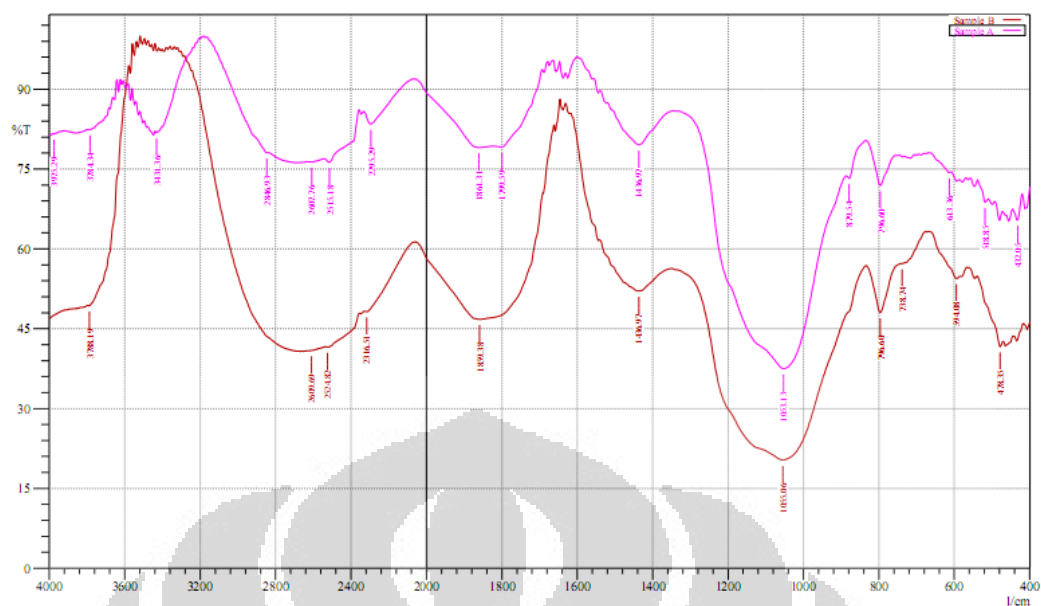
Sama halnya dengan Zeolit tanpa impregnasi, Zeolit/ $\text{SnCl}_2$  dikarakterisasi dengan menggunakan spektrofotometer FTIR. Karakterisasi ini dilakukan untuk menentukan keberhasilan dalam proses impregnasi, yang ditunjukkan adanya perbedaan dalam spektra FTIR zeolit tanpa impregnasi. Spektra inframerah Zeolit/ $\text{SnCl}_2$  disajikan dalam Gambar 4.2



**Gambar 4.2** Spektra Absorbansi IR untuk Zeolit/SnCl<sub>2</sub>

Pada spektra Zeolit/SnCl<sub>2</sub>, terlihat bahwa puncak-puncak serapan khas yang dihasilkan pada dasarnya sama dengan spektra Zeolit/NI. Pada Zeolit/SnCl<sub>2</sub> tidak terdapat serapan pada 3431,3 cm<sup>-1</sup> dan 1639,4 cm<sup>-1</sup>, hal ini menandakan bahwa Zeolit/SnCl<sub>2</sub> bebas dari molekul H<sub>2</sub>O. Zeolit yang terdehidrasi akan mempunyai struktur pori terbuka dengan *internal surface area* besar sehingga kemampuan mengadsorpsi molekul selain air semakin tinggi.

Pada Gambar 4.2 menunjukkan bahwa serapan dari ulur asimetris Si-O 1053,1 cm<sup>-1</sup> mengalami kenaikan menjadi 1055 cm<sup>-1</sup>, hal ini menunjukkan bahwa terjadi pengurangan Al-O sehingga bilangan gelombang yang dibutuhkan untuk melakukan vibrasi lebih besar. Fenomena ini membuktikan bahwa impregnasi logam Sn terjadi pada zeolit yang mampu menyebabkan dealuminasi pada padatan zeolit sehingga menghasilkan rasio keasaman yang lebih besar.

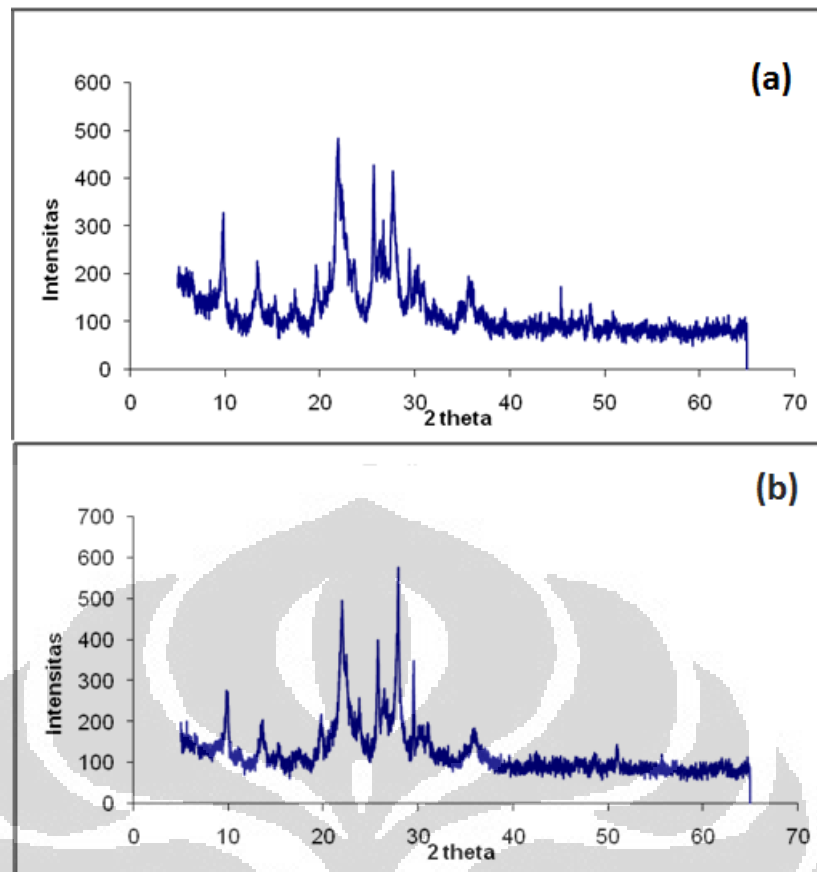


**Gambar 4.3** Spektra Absorbansi IR Sample A untuk Zeolit/Ni dan Sampel B untuk Zeolit/SnCl<sub>2</sub>

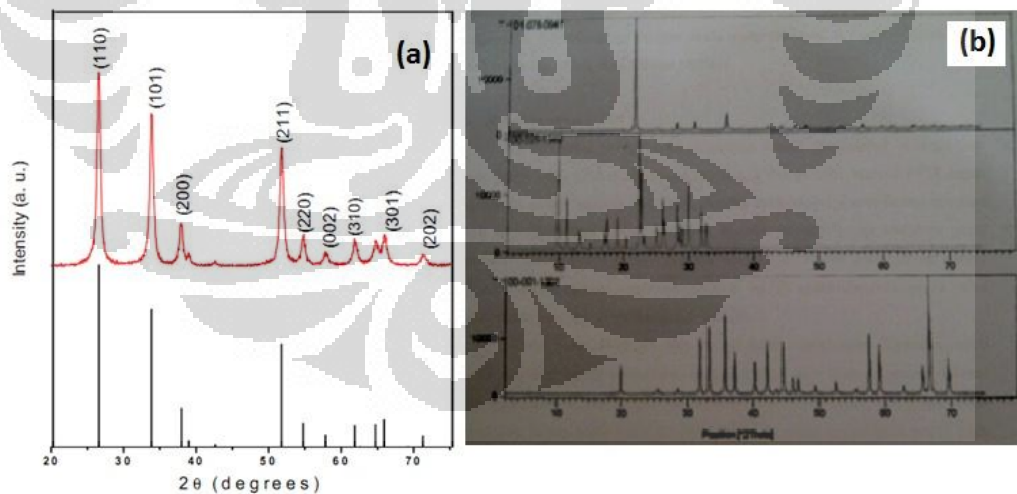
Berdasarkan Gambar 4.3 modifikasi zeolit klinoptilolit aktif dengan impregnasi SnCl<sub>2</sub>·2H<sub>2</sub>O tidak merusak struktur zeolit. Hal ini disebabkan pada dasarnya metode impregnasi tersebut hanya menyisipkan inti aktif kedalam permukaan penyangga, dan tidak berikatan dengan komposisi yang ada pada zeolit. Keberhasilan impregnasi logam Sn pada Zeolit klinoptilolit dapat dibuktikan pula dengan analisis XRD dan ICP.

#### 4.2 Karakterisasi Kristalinitas (XRD)

Metode difraksi sinar-x merupakan metode utama untuk mengidentifikasi dan menggambarkan struktur zeolit. Metode ini digunakan karena disamping cukup sederhana juga disebabkan zeolit merupakan kristal yang sangat kecil sehingga teknik single crystals tidak dapat digunakan (Hardono, 1997). Dengan data-data XRD berupa sudut (2θ), jarak antara kisi kristal (d), dan intensitas relatif (%) dapat diketahui struktur kristal dari adsorben yang dihasilkan melalui peak-peak yang timbul. Gambar 4.4 (a) dan (b) merupakan grafik struktur kristal adsorben percobaan untuk melihat sudut timbulnya kristalinitas dalam adsorben.



Gambar 4.4. Spektrum Difraksi Sinar-X Adsorben (a) Zeolit Klinoptilolit Tanpa Impregnasi (b) Zeolit/ $\text{SnCl}_2$



Gambar 4.5 (a) Spektrum Difraksi Sinar-X  $\text{SnO}_2$  (Lanje, et al., 2010) (b) Spektrum Difraksi Standar  $\text{SiO}_2$ , Klinoptilolit, dan  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (berurutan dari atas ke bawah)

Pada sudut  $20^{\circ}$ - $23^{\circ}$  merupakan difraktogram zeolit klinoptilolit aktif secara umum. Beberapa peak lain juga menunjukkan kemiripan dengan difraktogram standar. Peak yang tajam tersebut menginterpretasikan bahwa zeolit klinoptilolit mengandung senyawa  $\text{SiO}_2$  dan  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (Gambar 4.5 b), yang merupakan ciri utama zeolit. Selain itu juga setelah zeolit mengalami modifikasi, terdapat kemiripan peak  $\text{SnO}_2$  pada sudut  $27^{\circ}$  (Gambar 4.5 a). Fenomena ini menunjukkan bahwa impregnasi dan kalsinasi  $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  menghasilkan  $\text{SnO}_2$  berhasil dengan adanya kemunculan peak yang menyerupai standar pembandingnya.

Pada Tabel 4.1 spektrum adsorben zeolit tanpa impregnasi terlihat pada sudut difraksi ( $2\theta$ ) utama 21,9217 ; 22,3207 ; 25,6849 dan 27,6851 dengan % relatif intensitas peak berturut-turut 100 ; 70,07 ; 81,38 dan 83,05. Pada sudut difraksi tersebut terbentuk peak klinoptilolit yang cukup tajam dan berhimpit. Peak yang timbul pada difraktogram zeolit klinoptilolit aktif secara umum mengindikasikan bahwa sifat kekristalan yang dimiliki katalis.

Tabel 4.1 Relatif Intensitas (%) dan Height Adsorben Zeolit Tanpa Impregnasi

Sudut Difraksi ( $2\theta$ )	d-spacing (Å)	Relatif Intensitas (%)	Height (cts)
21,9217	4,05462	100	377,78
22,3207	3,98303	70,07	264,71
25,6849	3,46846	81,38	307,44
27,6851	3,22225	83,05	313,74

Pada Tabel 4.2 spektrum adsorben zeolit/ $\text{SnCl}_2$  terlihat pada sudut difraksi ( $2\theta$ ) utama 22,02 ; 22,452 ; 25,7949 dan 27,9087 dengan % relatif intensitas masing-masing adalah 83,19 ; 53,18 ; 59,22 dan 100. Sedangkan pada Berdasarkan literatur, sudut difraksi Sn yang telah di kalsinasi pada suhu  $500^{\circ}\text{C}$  yaitu pada  $27^{\circ}\text{C}$  (Lanje, et al, 2010).



Tabel 4.2 Relatif Intensitas (%) dan Height Zeolit/SnCl<sub>2</sub>

Sudut Difraksi ( $2\theta$ )	d-spacing ( $\text{\AA}$ )	Relatif Intensitas (%)	Height (cts)
22,02	4,03674	83,19	369,5
22,452	3,96003	53,18	236,22
25,7949	3,45392	59,22	263,03
27,9087	3,19693	100	444,16

Berdasarkan Tabel 4.2 spektrum diatas, struktur kristal dari zeolit klipnotilolit aktif tidak mengalami kerusakan, hal ini terlihat dari keberadaan sudut difraksi ( $2\theta$ ) antara  $20^\circ - 25^\circ$  yang merupakan daerah sudut difraksi H-zeolit dengan intensitas peak yang cukup besar. Pada Tabel 4.4 dapat juga dilihat sudut difraksi SnO<sub>2</sub> yang dikalsinasi pada suhu  $500^\circ\text{C}$  yaitu pada sudut  $27^\circ$  perbedaan peak yang tidak begitu signifikan. Pada sudut  $27^\circ$ , relatif intensitas katalis 1 lebih besar daripada katalis 2, begitu juga pada sudut difraksi 31.

Pada Tabel 4.2 memperlihatkan juga sudut difraksi dari H-zeolit yang muncul pada  $22,02^\circ$  dan  $25,7949^\circ$  dengan intensitas yang mulai menurun dibandingkan pada sampel sebelumnya (Tabel 4.1). Jadi dapat dianalisis bahwa struktur zeolit sudah mulai mengalami penurunan namun besarnya degradasi kristalinitas tersebut masih dalam batas toleransi. Penurunan puncak-puncak kurva pada zeolit dapat terjadi karena hilangnya sebagian kation-kation struktural ( $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Mg}^+$ , dll) dari struktur zeolit sehingga berkurang pula daya tahan struktur pori zeolit tersebut terhadap kemungkinan keruntuhan struktur porinya.

Proses penyisipan inti aktif SnO<sub>2</sub> ke dalam zeolit itu mengakibatkan sedikit penurunan puncak-puncak kurva. Hal ini dapat terjadi karena deposit oksida logam yang menutupi permukaan zeolit, telah mengubah karakteristik kristal zeolit dan memberi dampak pengurangan intensitas puncak pada kurva yang tercatat. Secara umum, pengurangan intensitas tersebut masih dalam batas toleransi, sehingga proses aktivasi secara keseluruhan dianggap tidak mengganggu kristalinitas material zeolit. Pola-pola XRD mengindikasikan bahwa integritas struktural dari mesopori zeolit klinoptilolit aktif tetap utuh setelah modifikasi dengan SnCl<sub>2</sub>.

### 4.3 Karakterisasi Kandungan Logam Sn (ICP)

Karakterisasi menggunakan ICP bertujuan untuk mengetahui kandungan logam Sn secara kuantitatif yang berada pada permukaan adsorben zeolit klinoptilolit aktif setelah di impregnasi dengan  $\text{SnCl}_2$ . Hasil ICP ditunjukkan dalam Tabel 4.3.

**Tabel 4.3** Hasil Analisa ICP Kandungan Logam Sn Adsorben Zeolit/ $\text{SnCl}_2$

Parameter Analisa	Adsorben Zeolit/ $\text{SnCl}_2$ 0,5% wt	
	Run-1	Run-2
Sn (% wt)	0,61	0,68

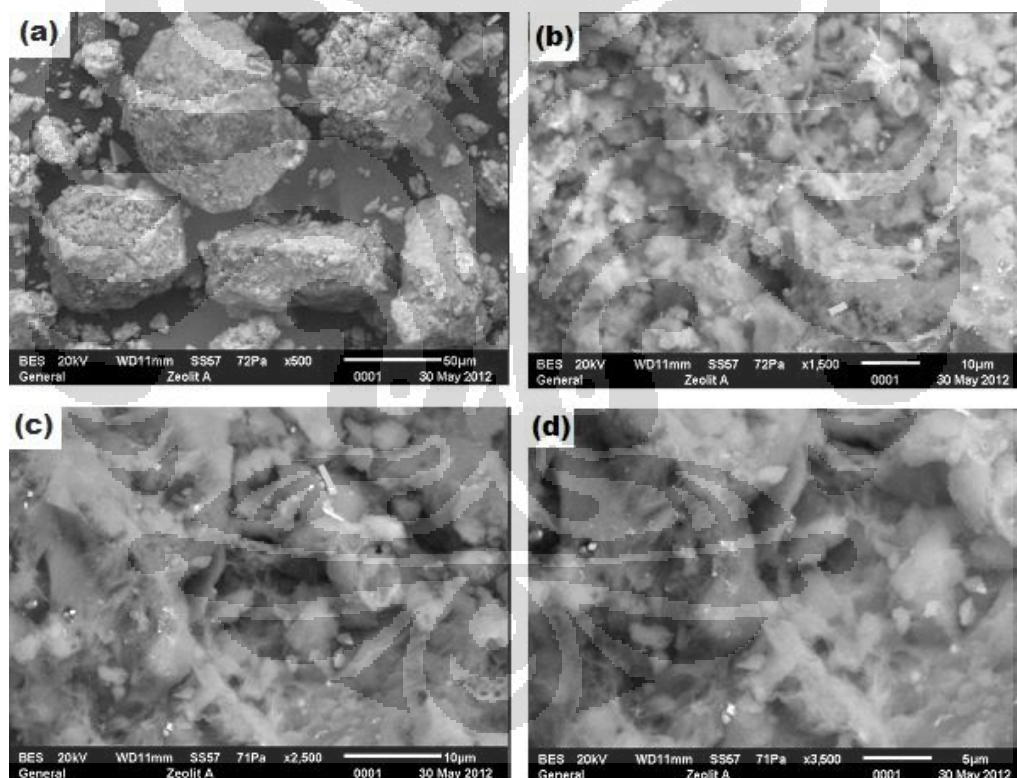
Dari hasil analisa kandungan logam Sn dengan menggunakan *inductive couple plasma* (ICP), terlihat pada Tabel 4.3 bahwa kandungan logam Sn pada adsorben zeolit/ $\text{SnCl}_2$  0,5 % wt sebesar 0,6%. Hasil ini membuktikan bahwa adanya logam Sn pada permukaan adsorben zeolit klinoptilolit aktif hasil impregnasi.

### 4.4 Karakterisasi Morfologi dan Komposisi Kimia (SEM-EDS)

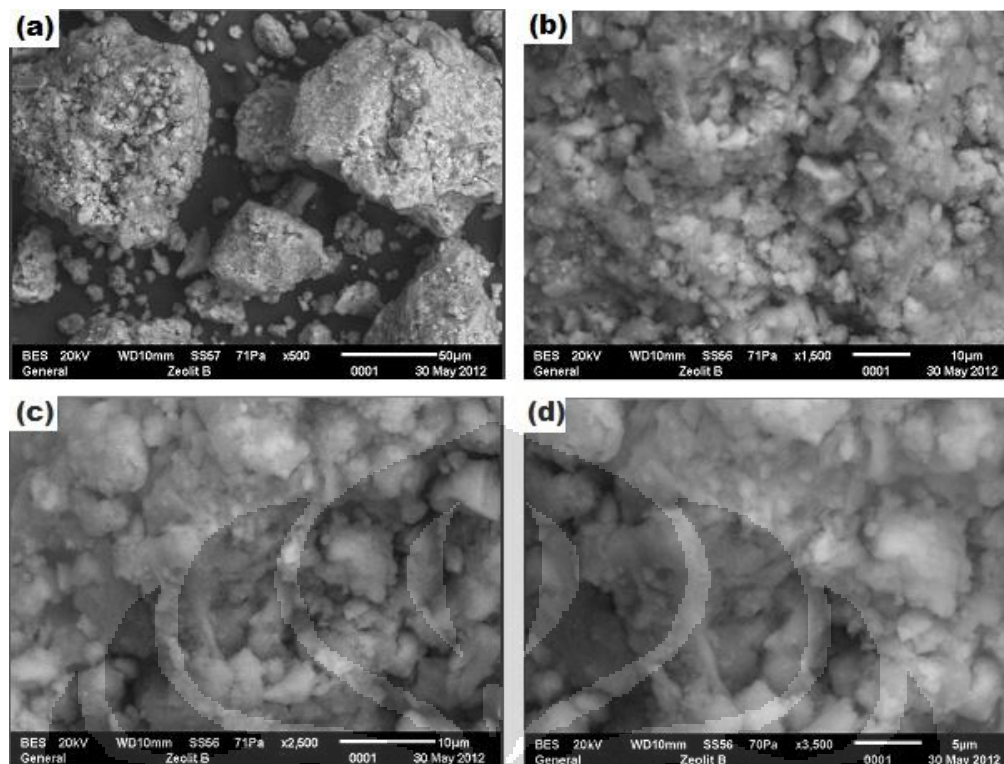
Karakterisasi menggunakan SEM-EDS bertujuan untuk mengetahui komposisi kimia secara semi kuantitatif dari adsorben zeolit dan gambar morfologi permukaan dari zeolit. Selain itu juga keasaman dari adsorben dapat diobservasi dengan melihat perbandingan Si/Al. Hasil SEM-EDS ditunjukkan dalam Lampiran.11.

Berdasarkan Lampiran.11 dengan membandingkan persentase massa Si/Al, diperoleh nilai rasio adsorben Zeolit/Ni dan Zeolit/ $\text{SnCl}_2$  masing-masing sebesar 5,94 dan 6,10. Perbandingan Si/Al pada adsorben tergolong sedang untuk kategori zeolit yang biasanya memiliki rasio Si/Al pada kisaran nilai 4-10 (Muthia, 2010). Dengan kadar keasaman yang diperoleh diharapkan dengan menunjukkan kuatnya ikatan alumina dan silika.

Dalam penelitian ini tidak semua sampel dianalisis dengan SEM. Analisis SEM digunakan untuk melihat tingkat dispersi logam yang diimbangkan pada permukaan zeolite. Gambar 4.6 dan 4.7 adalah adsorben Zeolit/Ni dan adsorben Zeolit/SnCl<sub>2</sub>. Gambar 4.6 merupakan hasil interpretasi bentuk morfologi adsorben sebelum modifikasi dengan SnCl<sub>2</sub>. Bentuk morfologi zeolit Klinoptilolit aktif berupa lempengan-lempengan tipis yang memanjang. Dapat dilihat dari Gambar 4.7, bahwa adanya gumpalan putih yang berkelompok menunjukkan terjadinya penumpukan logam terembankan pada permukaan zeolite. Artinya tingkat dispersi logam Sn pada permukaan zeolit tinggi sehingga menutupi hampir seluruh permukaan zeolit.



**Gambar 4.6** Bentuk Morfologi Permukaan Adsorben Tanpa Impregnasi, [a] 500x [b] 1500x [c] 2500x [d] 3500x



**Gambar 4.7** Bentuk Morfologi Permukaan Adsorben Impregnasi  $\text{SnCl}_2$ , [a] 500x [b] 1500x [c] 2500x [d] 3500

#### 4.5 Karakterisasi BET

Sample A (zeolit tanpa impregnasi) dan sample B (zeolit/ $\text{SnCl}_2$  0,5%wt) dikarakterisasi dengan *Surface Area Analyzer* (BET) untuk mengetahui luas permukaan, volume pori dan ukuran pori katalis. Hasil karakterisasi BET dapat dilihat pada Tabel 4.4 dibawah ini.

**Tabel 4.4** Hasil Karakterisasi BET

Sample ID	Surface Area ( $\text{m}^2/\text{g}$ )	Pore Volume ( $\text{cc}/\text{g}$ )	Pore Size ( $\text{\AA}$ )
Sample A	18,53	0.02251	21,10
Sample B	15,72	0,01622	18,58

Tabel 4.4 merupakan hasil proses modifikasi zeolit alam, dapat diketahui pengujian luas permukaan pada zeolit sebelum impregnasi kristal besar  $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  adalah  $18,53 \text{ m}^2/\text{g}$  dan sesudah impregnasi sebesar  $15,72 \text{ m}^2/\text{g}$ .

Semakin banyak logam Sn yang ditambahkan pada permukaan zeolit maka akan berpengaruh pada menurunnya luas permukaan spesifik dari katalis tersebut.. hal ini disebabkan oleh jumlah logam Sn yang semakin banyak maka akan terjadi kompetisi berdifusi ke dalam mulut pori sehingga akan terakumulasi pada beberapa tempat dan menutupi mulut pori (Astuti dan Jumaeri, 2007). Zeolit klipnotilolit ini memiliki luas permukaan dibawah  $50 \text{ m}^2/\text{g}$  yang menunjukkan bahwa zeolit alam Lampung yang digunakan tidak tergolong sebagai material porous. Yang disebut sebagai material porous adalah material yang memiliki luas permukaan besar ( $>50 \text{ m}^2/\text{g}$ ) dan memiliki banyak pori. Rendahnya luas permukaan zeolit juga mengindikasikan bahwa dalam pori zeolit masih terdapat banyak pengotor.

#### 4.6 Penentuan Spesies Merkuri (*Mercury Speciation*)

Penentuan spesies merkuri bertujuan untuk mengetahui jenis-jenis merkuri yang terkandung dalam sampel. Hasil spesiasi merkuri sampel sebelum dan sesudah adsorpsi dapat dilihat pada Tabel 4.5 dan Tabel 4.7.

**Tabel 4.5** Hasil Penetapan Spesies Merkuri Sebelum Adsorpsi

Spesies Merkuri	Sebelum Adsorpsi (ppb)
<b>Volatile Mercury</b>	42
<b>Particulate/Suspended Mercury</b>	11
<b>Ionic/Water Soluble Mercury</b>	10
<b>Organics Mercury</b>	110
<b>Total Mercury</b>	173

Pada percobaan ini digunakan hidrokarbon cair dari jenis kondensat dengan densitas  $0,8014 \text{ gr/cm}^3$  yang berasal dari area Sumatera. Dari hasil penetapan spesies merkuri dapat disimpulkan bahwa kandungan tertinggi adalah dari jenis organik merkuri sebesar 110 ppb yang mencapai 63,5% wt dari total merkuri yang terkandung dalam sampel sebelum dilakukan adsorpsi. Kandungan tertinggi spesies merkuri dari setiap minyak mentah atau kondensat belum tentu

dari jenis organik merkuri. Hal ini tergantung dari kondisi geologis dimana minyak mentah berasal. Pada minyak mentah dan kondensat biasanya menunjukkan dominasi spesies merkuri organik dikarenakan sifatnya yang mudah larut dalam hidrokarbon cair (Wilhelm dan Bloom, 2000). Tabel 4.6 menunjukkan kemudahan larut beberapa spesies merkuri dalam hidrokarbon cair.

Spesies volatil merkuri dalam sampel hidrokarbon cair menunjukkan keberadaan elemental merkuri ( $\text{Hg}^0$ ) dan dimethylmerkuri. Menurut UOP-938 sebanyak 30 % dari volatil merkuri adalah dimethylmerkuri. Hal ini disebabkan karena dimethylmerkuri mudah menguap. Tabel 2.2 memperlihatkan kemampuan volatilitas beberapa senyawaan merkuri. Sampel yang digunakan mengandung 42 ppb volatil merkuri. Hasil ini menunjukkan bahwa dalam sampel terdapat 29 ppb elemental merkuri dan 13 ppb dimethylmerkuri.

**Tabel 4.6** Kemudahan Kelarutan Beberapa Spesies Merkuri Dalam Heksana (Wilhelm dan Bloom, 2000)

Spesies	Solubilitas (ppb)	Temperatur ( $^{\circ}\text{C}$ )
$\text{Hg}^0$	1200	27,5
$\text{HgCl}_2$	11500	27,5
$\text{CH}_3\text{HgCl}$	>1000000	20
$(\text{CH}_3)_2\text{Hg}$	$\infty$	

Spesies ionik merkuri dalam sampel merupakan spesies dengan kandungan terkecil yaitu 5,78%. Monoalkilmerkuri ( $\text{HgCH}_3^+$ ) merupakan senyawaan ionik merkuri yang biasanya terdapat dalam sampel (Wilhelm dan Bloom, 2000). Monoalkilmerkuri tidak muncul menjadi spesies yang dominan dalam sampel. Spesies ionik merkuri ini terpisah kedalam fase air pada pemisahan utama pada produksi gas dan minyak sehingga keberadaanya pada minyak mentah setelah proses pemisahan dengan air menjadi kecil.

Merkuri tersuspensi pada sampel mengandung 11 ppb terlihat pada Tabel 4.5. Merkuri tersuspensi ini berasal dari senyawaan  $\text{HgS}$ . Minyak mentah dan kondensat setelah pemisahan dengan air dan gas mengandung sejumlah senyawaan merkuri tersuspensi. jumlah merkuri tersuspensi dapat memberikan

persentase yang besar dari konsentrasi total merkuri dalam sampel hidrokarbon cair yang diproduksi apabila hidrokarbon cair mengandung senyawaan sulfur yang tinggi dan mereka harus dipisahkan sebelum setiap spesiasi bentuk terlarut dilakukan.

Hidrokarbon cair yang digunakan pada penelitian ini mengandung sejumlah organik merkuri sehingga dapat digunakan untuk membuktikan kemampuan adsorpsi dari zeolit klipnotilolit aktif yang telah dimodifikasi dengan penambahan  $\text{SnCl}_2$ . Penetapan spesies merkuri setelah adsorpsi menggunakan sampel hidrokarbon cair yang telah di adsorp dengan zeolit/ $\text{SnCl}_2$  0,5 % wt. Hal ini disebabkan adsorben tersebut merupakan adsorben dengan komposisi optimum sesuai hasil dari uji trial 1 yang dilakukan untuk menentukan komposisi optimum.

Hasil penetapan spesies merkuri setelah adsorpsi dengan zeolit/ $\text{SnCl}_2$  dengan penambahan  $\text{SnCl}_2$  sebanyak 0,5 % wt terlihat pada Tabel 4.7. Penetapan spesies merkuri ini memperlihatkan pengaruh penambahan  $\text{SnCl}_2$ , dimana terjadi pengurangan kandungan spesies merkuri organik dalam sampel hidrokarbon cair. Hal ini membuktikan bahwa dengan adanya  $\text{SnCl}_2$  telah terjadi konversi organik merkuri ke bentuk elementasl merkuri. Sampel hidrokarbon cair masih mengandung 36 ppb senyawaan organik merkuri walaupun sampel telah di kontakkan dengan adsorben zeolit/ $\text{SnCl}_2$  selama 24 jam, hal ini disebabkan karena spesies merkuri organik tersebut sebagian berasal dari organik merkuri terkomplekskan yang tidak tereduksi oleh Sn. Dengan kata lain sampel hidrokarbon cair mengandung 36 ppb spesies organik merkuri terkomplekskan.

**Tabel 4.7** Hasil Penetapan Spesies Merkuri Setelah Adsorpsi

<b>Spesies Merkuri</b>	<b>Sesudah Adsorpsi Zeolit/<math>\text{SnCl}_2</math> 0,5% wt (ppb)</b>
<b>Volatile Mercury</b>	30
<b>Particulate/Suspended Mercury</b>	4
<b>Ionic/Water Soluble Mercury</b>	7
<b>Organics Mercury</b>	36
<b>Total Mercury</b>	77

## 4.7 Uji Kinerja Adsorpsi Mercury (*Batch Experiments*)

### 4.7.1 Uji Trial 1 (Penentuan Komposisi Optimum)

Uji kinerja awal kemampuan adsorpsi merkuri adsorben melalui *batch experiment* terhadap adsorben SnCl<sub>2</sub>/Zeolit yang telah di preparasi (0,1%, 0,5%, 1%, 2%, 5% dan 10% wt ). Dosis adsorben yang digunakan pada tes awal ini sebanyak 1%. Jumlah merkuri yang dapat diadsorp per gram adsorben dihitung berdasarkan perbedaan konsentrasi awal dan akhir merkuri setelah adsorpsi.

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e)M}{W} \quad (4.1)$$

Dimana  $q_e$  adalah jumlah merkuri yang di adsorp (ng/g) oleh adsorben.  $C_0$  adalah konsentrasi awal merkuri sebelum adsorpsi (ng/g).  $C_e$  adalah Konsentrasi setimbang merkuri setelah adsorpsi (ng/g).  $M$  adalah banyaknya sampel kondensat yang digunakan (g) dan  $W$  adalah berat adsorben yang digunakan (g).

**Tabel 4.8** Hasil Uji Trial 1 Adsorpsi Merkuri Dalam Hidrokarbon Cair

Deskripsi Adsorben	Dosis Adsorben (wt%)	Konsentrasi Awal (ng/g)	Konsentrasi Akhir (ng/g)	% Hg Removal	$q_e$ (ng/g)
<b>Zeolit/NI</b>	1	168	125	25,59	0,43
<b>Zeolit/SnCl<sub>2</sub></b>	1	170	77	54,70	0,93
<b>0,5 %</b>					
<b>Zeolit/SnCl<sub>2</sub></b>	1	168	98	41,66	0,70
<b>1%</b>					
<b>Zeolit/SnCl<sub>2</sub></b>	1	170	102	40,00	0,68
<b>2%</b>					
<b>Zeolit/SnCl<sub>2</sub></b>	1	168	120	28,57	0,48
<b>5%</b>					
<b>Zeolit/SnCl<sub>2</sub></b>	1	168	132	21,42	0,36
<b>10%</b>					

Adsorpsi merkuri dengan zeolit merupakan adsorpsi secara fisika sama halnya dengan adsorpsi merkuri dengan karbon aktif (McNamara, 1994).



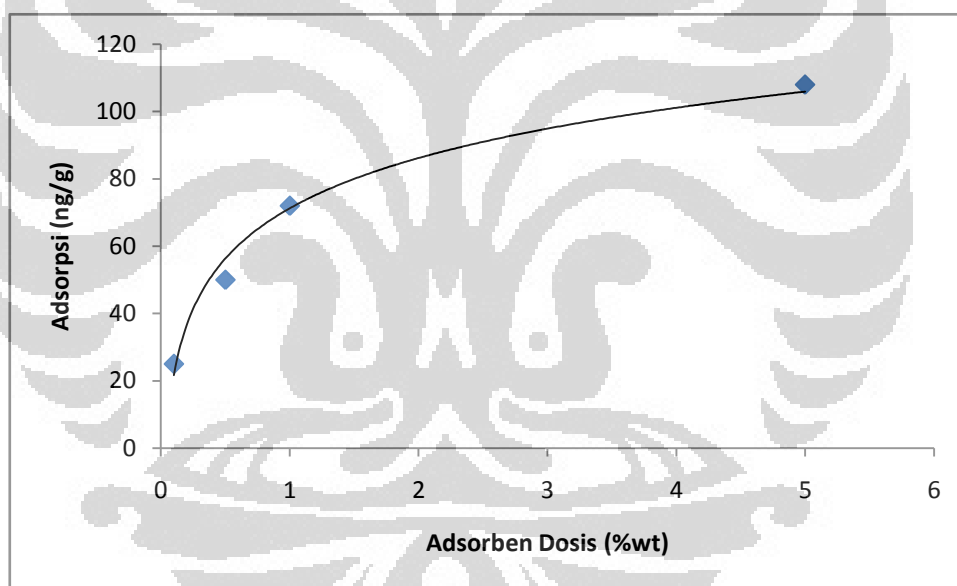
Adsorpsi ini terjadi karena adanya gaya Van der Waals dan gaya elektrostatis antara molekul-molekul adsorbat dengan molekul-molekul pada permukaan adsorben. Hasil uji adsorpsi merkuri pada Tabel 4.5 dan Tabel 4.7 memperlihatkan kemampuan Zeolit klipnotilolit aktif yang telah dimodifikasi dengan  $\text{SnCl}_2$ . Adsorben tersebut mampu mengadsorpsi merkuri yang terkandung dalam minyak mentah. Keberadaan Sn dalam zeolit klipnotilolit aktif memberikan pengaruh terhadap kemampuan adsorpsi. Zeolit tanpa impregnasi mampu mengadsorpsi 25,29% merkuri yang terdapat dalam sampel dan setelah dimodifikasi dengan  $\text{SnCl}_2$  sebanyak 0,5% wt kemampuan adsorpsinya meningkat menjadi 54,70%. Hal ini disebabkan zeolit klipnotilolit tanpa impregnasi hanya mampu mengadsorpsi merkuri dalam jenis elemental dan ionik merkuri sedangkan keberadaan merkuri organik ( $\text{RHg}$ ,  $\text{R}_2\text{Hg}$ ,  $\text{ArHg}$ ) yang jumlahnya mayoritas dalam sampel tidak dapat diadsorpsi. Bentuk dan ukuran molekul merkuri organik yang besar menyebabkan merkuri organik sulit diadsorpsi (McNamara, 1994). Penambahan  $\text{SnCl}_2$  sebanyak 0,5% wt dalam Zeolit klipnotilolit meningkatkan efisiensi penyerapan khususnya apabila kandungan merkuri organik dalam sampel tinggi, dimana  $\text{Sn}^{2+}$  bertindak sebagai agen pereduksi yang mampu mengubah merkuri organik seperti Dietilmerkuri ataupun MetilEtilMerkuri menjadi merkuri elemental  $\text{Hg}^0$ . Efisiensi penyerapan tertinggi diperoleh adsorben dengan komposisi  $\text{SnCl}_2$  0,5% wt yaitu sebesar 54,70%. Efisiensi tidak mencapai maksimum dikarenakan luas permukaan Zeolit/ $\text{SnCl}_2$  0,5% wt hanya sebesar  $15,72 \text{ m}^2/\text{g}$ .

Berdasarkan Tabel 4.8 penambahan  $\text{SnCl}_2$  lebih dari 0,5% wt memberikan pengaruh terhadap kemampuan adsorpsi merkuri dari adsorben zeolit/ $\text{SnCl}_2$ , dimana efisiensi semakin menurun seiring peningkatan jumlah  $\text{SnCl}_2$  yang diimpregnasikan ke dalam zeolit klipnotilolit aktif. Hal ini dikarenakan penambahan Sn mengurangi luas permukaan zeolit, pada adsorben zeolit/ $\text{SnCl}_2$  terdapat deposit  $\text{SnO}$  pada permukaan adsorben sehingga menutupi sebagian permukaannya seperti terlihat pada hasil SEM pada Gambar 4.7 Semakin banyak Sn yang ditambahkan maka semakin banyak pula permukaan adsorben zeolit/ $\text{SnCl}_2$  yang tertutupi sehingga mengurangi penyerapan merkuri walaupun sudah dalam bentuk

elemental merkuri. Sehingga dapat dikatakan bahwa efektivitas penambahan  $\text{SnCl}_2$  mencapai optimum pada titik tertentu.

#### 4.7.2 Uji Trial 2 (Penentuan Dosis Optimum)

Uji kinerja selanjutnya yaitu penentuan dosis optimum adsorben dengan menggunakan adsorben dengan efisiensi terbaik pada Uji Trial 1. Komposisi Zeolit/ $\text{SnCl}_2$  0,5% wt digunakan dalam penentuan dosis optimum karena memiliki % Hg removal tertinggi sebesar 54,70 % dan mampu menyerap 0,93 ng mercury dalam setiap gram hidrokarbon cair. Variasi dosis adsorben yang digunakan yaitu 0,1%, 0,5%, 1%, dan 5%. Gambar 4.8 memperlihatkan efek dari dosis yang digunakan dalam uji adsorpsi merkuri dalam sampel hidrokarbon cair.

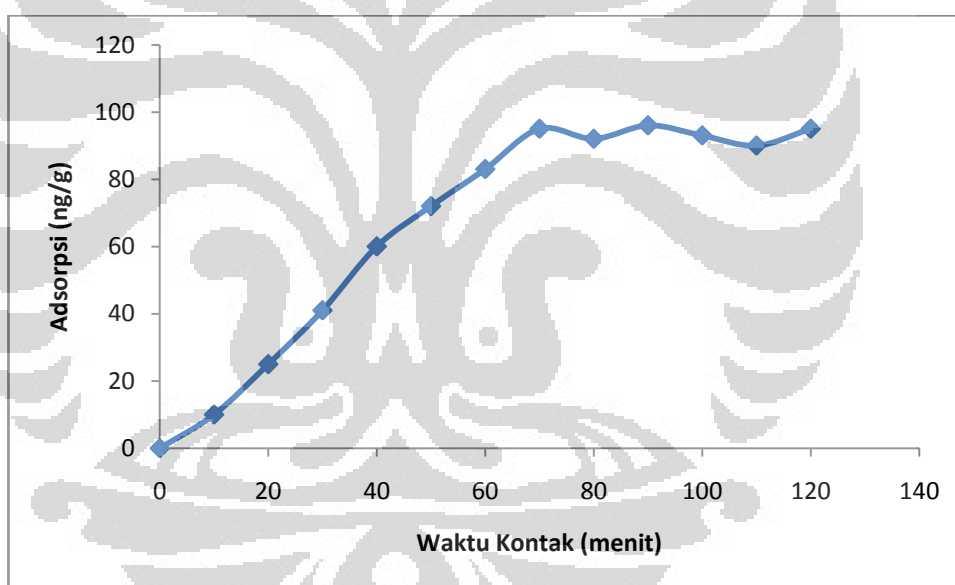


**Gambar 4.8** Adsorpsi vs Dosis Adsorben

Pada Gambar 4.8 dapat dilihat bahwa peningkatan adsorpsi meningkat signifikan ketika dosis di naikkan dari 0,1 % sampai 1% tetapi tidak signifikan ketika dosis di naikkan dari 1% sampai 5%. Hal ini menunjukkan setelah dosis tertentu adsorben, adsorpsi mencapai maksimum. Peningkatan adsorpsi merkuri dengan penambahan dosis adsorben dikarenakan penambahan ketersediaan yang lebih besar dari luas permukaan pada dosis adsorben yang lebih tinggi.

### 4.6.3 Uji Trial 3 (Pengaruh Waktu Kontak)

Kinetika adsorpsi menjelaskan kecepatan pengambilan zat terlarut (adsorbat) oleh adsorben selama waktu reaksi penyerapan. Parameter ini penting dilakukan karena menentukan efisiensi proses penyerapan. Pengaruh waktu kontak terhadap kapasitas adsorpsi dapat dilihat pada Gambar 4.9. Pada Gambar tersebut dapat diketahui peningkatan kapasitas adsorpsi adsorben selaras dengan waktu kontak dan pada menit ke-70 telah terjadi kesetimbangan. Waktu kesetimbangan yang dibutuhkan tergantung sekali dengan adsorbat dan adsorben yang digunakan dan interaksi keduanya. Gupta & Bhattacharyya (2008) telah melaporkan waktu kesetimbangan 180 menit untuk adsorbat Pb(II) dan Ni(II) dengan adsorben kaolin dan montmorilonite. Selain itu Panayotova (2001) telah melaporkan waktu kontak kesetimbangan 60 menit untuk adsorbat Cu dengan adsorben Bulgarian zeolit.



**Gambar 4.9** Adsorpsi (ng/g) vs Waktu Kontak (menit)

Peningkatan kecepatan adsorpsi terjadi pada awal waktu kontak, tetapi setelah hampir semua sisi aktif berinteraksi dengan merkuri, kecepatan adsorpsi menurun. Sehingga tidak terjadi peningkatan kapasitas adsorpsi secara signifikan karena sisi aktif adsorben telah jenuh, jadi kecepatan adsorpsi sekarang hanya bergantung dengan migrasi logam dalam fase cairan kepada permukaan kompleks adsorben-adsorbat (Yu et al. 2000).

## **BAB 5 PENUTUP**

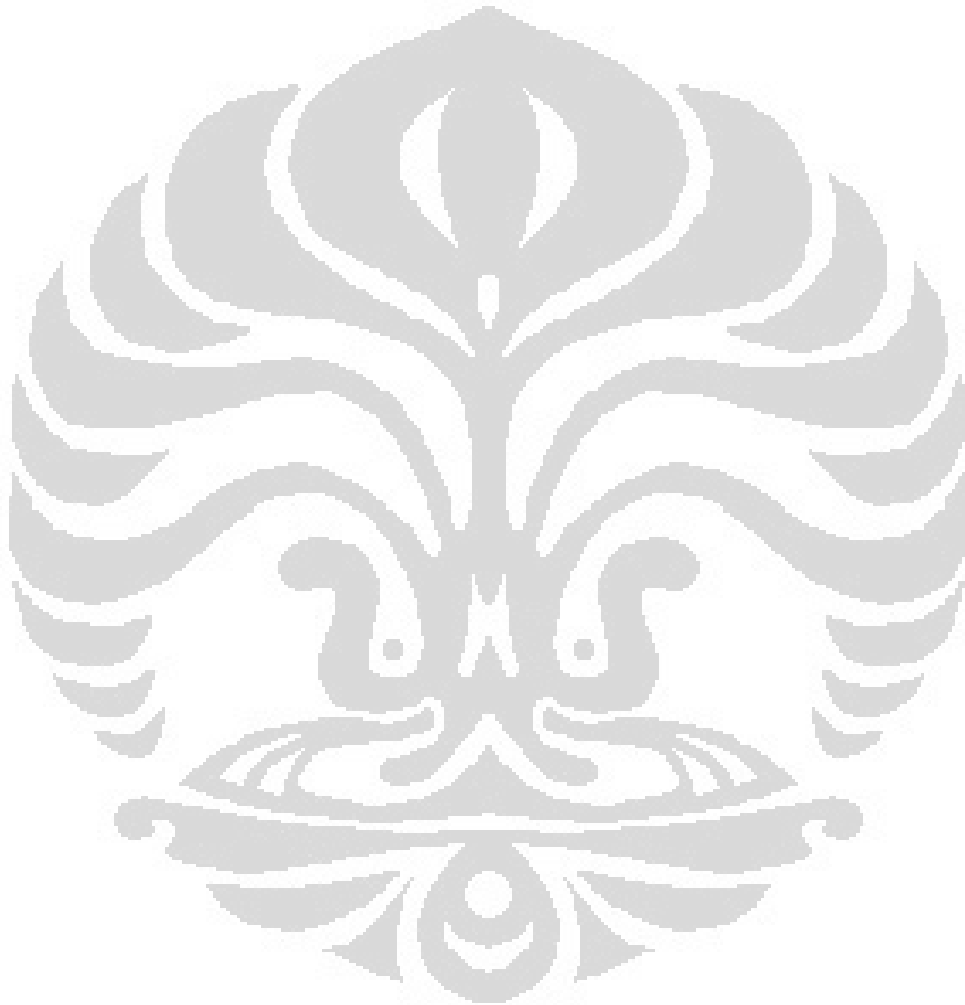
### **5.1 Kesimpulan**

Dari hasil penelitian dan pembahasan pada bab-bab sebelumnya, maka dapat disimpulkan bahwa:

1. Pada karakterisasi BET, terjadi penurunan luas permukaan spesifik adsorben yang dihasilkan dari  $18,53 \text{ m}^2/\text{g}$  menjadi  $15,72 \text{ m}^2/\text{g}$ .
2. Hasil uji SEM-EDS diperoleh kandungan rasio Si/Al adsorben Zeolit/SnCl<sub>2</sub> sebesar 6,10
3. Hasil analisa XRD dan FTIR menunjukkan bahwa zeolit klipnotilolit yang di impregnasi dengan SnCl<sub>2</sub> 0,5% wt tidak terjadi kerusakan struktur kristalinitas yang diakibatkan oleh beberapa perlakuan modifikasi.
4. Kandungan spesies merkuri terbanyak dalam sampel merupakan jenis organik merkuri sebanyak 110 ppb yang mencapai 63,58% wt dari total merkuri yang terkandung dalam sampel sebelum dilakukan adsorpsi.
5. Hasil uji adsorpsi memperlihatkan kemampuan adsorben pada komposisi optimum yaitu Zeolit/SnCl<sub>2</sub> 0,5% wt yang dapat menghilangkan merkuri dalam sampel sebanyak 0,93 ng/g adsorben.
6. Dosis optimum adsorben Zeolit/SnCl<sub>2</sub> 0,5 % wt yaitu sebanyak 1%, peningkatan adsorpsi signifikan ketika dosis di naikkan dari 0,1 % sampai 1% tetapi tidak signifikan ketika dosis di naikkan dari 1% sampai 5%
7. Dari hasil uji secara keseluruhan terbukti bahwa terjadi peningkatan kemampuan adsorpsi zeolit klipnotilolit aktif sebesar 29,11% setelah di impregnasi dengan SnCl<sub>2</sub>.

## 5.2 Saran

Untuk mendapatkan hasil yang lebih baik di masa yang akan datang maka perlu dilakukan impregnasi zeolit dengan kombinasi logam untuk meningkatkan efisiensi adsorpsi merkuri dalam hidrokarbon cair dan perlu dilakukan uji adsorpsi merkuri melalui kolom adsorpsi.



## DAFTAR PUSTAKA

- Abdelrasool, M. 1992. Kinetics of Adsorption. Colorado: UMI dissertation Service
- Astuti, Jumaeri dan W.T.P Lestari. 2007. Preparasi dan Karakterisasi Zeolit dari Abu Layang Batubara Secara Alkali Hidrotermal. Reaktor, volume 11. Hal 38 - 44
- Barrer, R.M. 1982. Hydrothermal Chemistry of Zeolite. Academic Press, London
- Brenchley, M. E., and M. T. Weller, M. T. (1994) Zeolites, 14, 682-686.
- Budiono, A. 2003. Pengaruh Pencemaran Merkuri Terhadap Biota Air.
- Campananti, M., G. Fornasari, A. Vaccari. 2003. Fundamentals in The preparation of heterogenous Catalyst. Catalyst Journal. 77299-314.
- Duffus, J.H., 1980. Environmental Toxicology. Edward Arnold Publishers Limited, London, pp: 21-103
- Erdem, E., Karapinar, N., Donat, R., 2004. The removal of heavy metal cations by natural zeolites. Journal of Colloid and Interface Science 280 (2), 309–314.
- Hardono. 1997. Preparasi CuO/Zeolit Alam Lampung Dengan Impregnasi Menggunakan Larutan  $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$  Serta Karakterisasinya Untuk Eleminasi Gas Buang Sox. Depok. Universitas Indonesia
- Khairinal, W. 2000. Dealuminasi Zeolit Alam Wonosari dengan Perlakuan Asam dan Proses Hidrotermal. Prosiding Seminar Nasional kimia VII. Yogyakarta
- Lanje, R.S. Ningthoujam, S.J. Shrama, R.K. Vatsa, R.B. Pode, 2010. Synthesis and optical characterization of copper oxide nanoparticles. Int. J. Nanotechnol, 7, 979.
- Leppert, D.W., 1990. Heavy metal Sorption With Clinoptilolite zeolite; alternatives for treating contaminated soil and water. Mining Engineering 42, 604-608
- McNamara, J. 1994. Process for Removal of Mercury From Liquid Hydrocarbon, US Patent 5,336,835
- Nurhasan. 1982. Pencemaran Merkuri. Warta Balai Industri. Semarang:BPPI
- Palar, H. 1994. Pencemaran dan Toksikologi Logam Berat.
- Panneerselvam, P., V.S.S. Bala, K.V. Thiruvengadaravi, J. Nandagopa, M. Palanichamy and S. Sivanesan, 2009. The Removal of Copper Ions From

Aqueous Solution Using Phosphoric Acid Modified  $\alpha$ -zeolite. *Indian J.Sci. Technol.*, 2:63-66.

- Saputra, R. (2006), "Pemanfaatan Zeolit Sintetis sebagai Alternatif Pengolahan Limbah Industri",
- Shafawi, Azman., Les, Ebdona., Mike, Foulkes., Peter, Stockwell., Warren, Corns. 2000. Preliminary evaluation of adsorbent-based mercury removal systems for gas condensate. *Analytica Chimica Acta* 415 (2000) 21–32
- Sholupov, S.E. & Ganeyev, A.A., 1995. Zeeman absorption spectrometry using high frequency modulated light polarization. *Spectrochim Acta Vol. 50B*, 1227-1238.
- Singh, A. Kumar, D. and Gaur, J.P., 2008. Removal of Cu (II) and Pb (II) by *Pithophora oedogonia*: Sorption, desorption and repeated use of the biomass, *Journal of Hazardous Materials*, 152, 1011-1019.
- Smith, J. V., 1992. "Origin and Structure of Zeolites," in *Zeolite Chemistry and Catalysis*, ACS Monograph 171, ed. Jule A. Rabo, Washington DC, 3-79.
- Sutarti. 1994. *Zeolite: Tinjauan Literatur*. Jakarta
- Wilhelm, S. 1999. Conceptual design of mercury removal systems for hydrocarbon liquids, *Hydrocarbon Processing*
- Weekman, W.V. and Yan, Tsoung. Regenerative Mercury Removal System. US Patent 5,419,884 May.. 1995
- Wilhelm and Bloom. 2000. Mercury in Petroleum. *Journal of Fuel Processing Technology* 63 (2000) 1-27. Elsevier Science Publisher B.V
- Yu, B., Zhang, Y., Shukla, A., Shukla, S.S. and Dorris, K.L., 2000. The Removal of Heavy Metal from Aqueous Solutions by Sawdust Adsorption—Removal of Copper, *Journal of Hazardous Materials B*, 80, pp. 33–42.

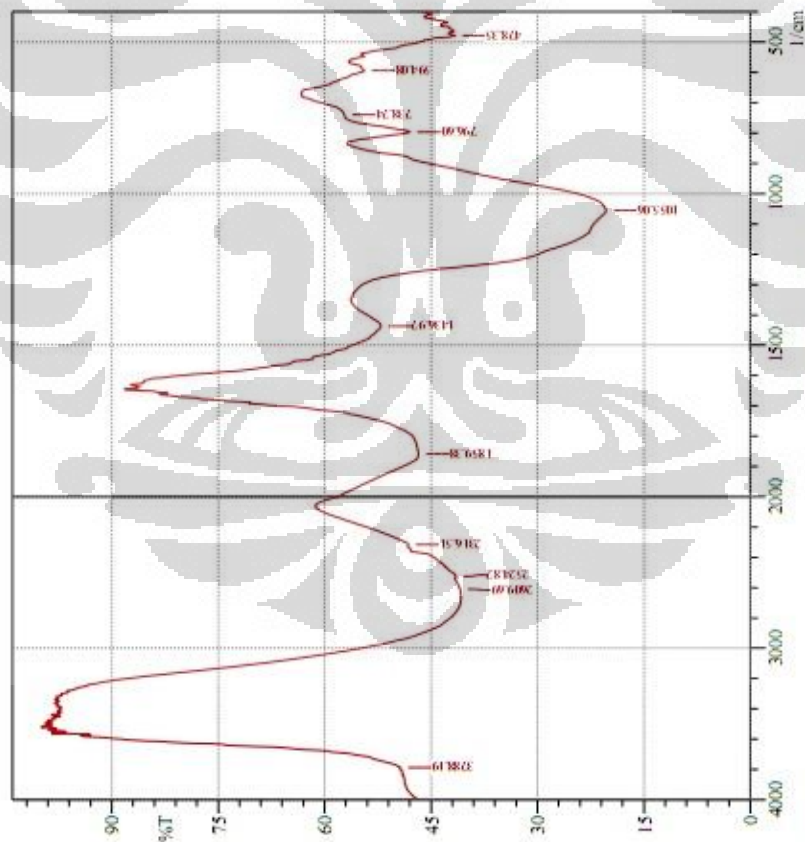




## Lampiran 2. Hasil Karakterisasi FTIR Zeolit/SnCl<sub>2</sub> 0,5% wt

SHIMADZU

Peak	Intensity	Corr. Intensity	Base (H)	Base (L)	Area	Corr. Area
1	41.84	2.39	538.14	470.83	21.92	0.52
2	54.44	1.37	667.37	664.43	19.53	0.45
3	57.2	0.4	742.59	677.01	14.75	0.33
4	48.02	8.98	893.25	744.52	24.37	2.73
5	20.32	38.29	1348.24	885.16	242.32	115.42
6	52.07	8.7	1541.72	1380.17	49.88	5.81
7	46.78	25.85	2058.05	1862.84	104.39	48.72
8	48.2	0.68	2328.08	2159.88	70.78	0.88
9	41.56	0.45	2538.39	2355.08	65.38	1.93
10	40.91	0.04	2813.85	2388.32	28.94	0.03
11	49.32	1.29	3793.88	3679.88	43.19	8.02



Comment:

Date/Time: 05/24/2012 11:02:24

No. of Scans:

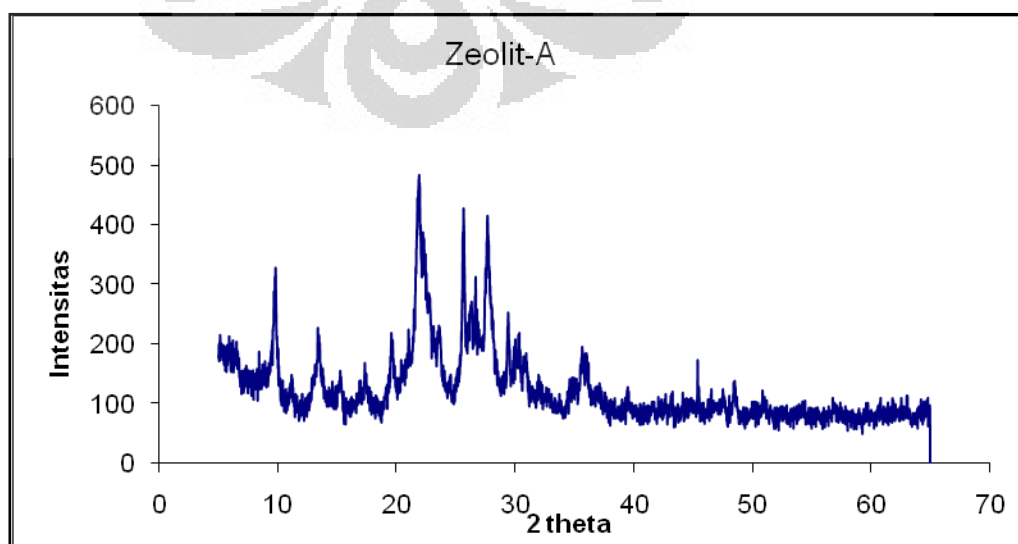
Resolution:

Apodization:

User: Administrator

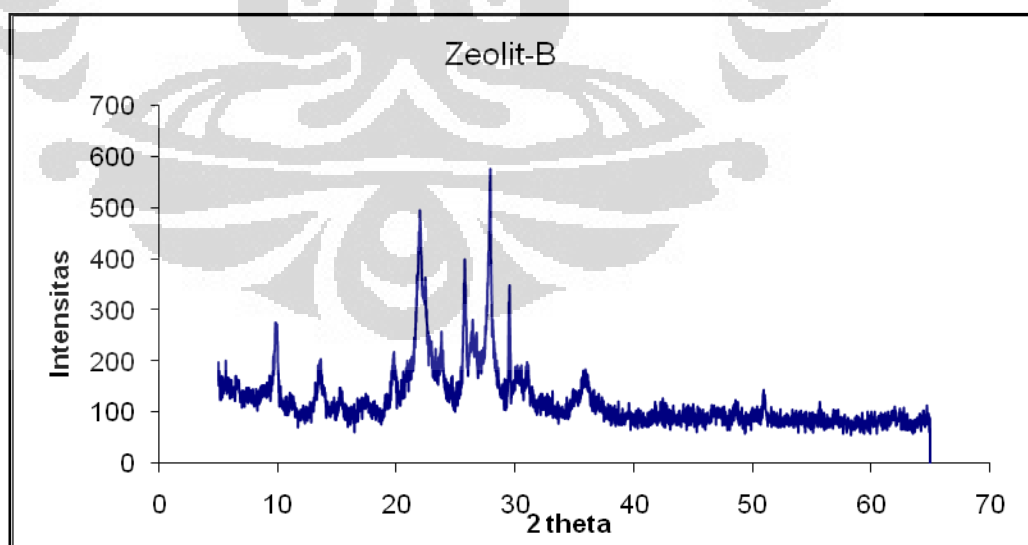
### Lampiran 3. Hasil Karakterisasi XRD Zeolit Klipnotilolit Aktif

No.	Pos. [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]	FWHM [°2Th.]	Area [cts*°2Th.]	Backgr.[cts]	Height [cts]
1	6,5614	13,4714	10,99	0,3149	12,89	141	41,51
2	9,8277	9,00021	56,52	0,0984	20,73	106	213,51
3	11,1562	7,93124	11,58	0,2362	10,19	93	43,76
4	13,4564	6,58025	29,98	0,1968	21,99	87	113,27
5	15,2855	5,79668	14,41	0,1968	10,57	88	54,44
6	17,4051	5,09525	12,72	0,6298	29,85	90	48,05
7	19,566	4,53714	28,33	0,1968	20,78	91	107,03
8	21,9217	4,05462	100	0,3149	117,34	93	377,78
9	22,3207	3,98303	70,07	0,1378	35,97	93	264,71
10	23,6152	3,76754	33,67	0,2362	29,63	93	127,19
11	25,6849	3,46846	81,38	0,1378	41,78	93	307,44
12	26,3196	3,38624	44,77	0,1574	26,27	93	169,14
13	26,6681	3,34277	51	0,0984	18,7	93	192,65
14	27,6851	3,22225	83,05	0,1574	48,73	92	313,74
15	29,4164	3,03643	37,92	0,1574	22,25	90	143,24
16	30,3388	2,94618	30,77	0,1181	13,54	89	116,25
17	30,8689	2,89678	21,88	0,2362	19,25	88	82,65
18	32,0601	2,79182	12,39	0,2362	10,91	87	46,81
19	32,9042	2,72211	6,92	0,4723	12,18	86	26,15
20	35,6849	2,5161	28,02	0,1968	20,55	81,75	105,85
21	36,0054	2,49444	25,38	0,1181	11,17	81	95,87
22	39,5211	2,28027	9,06	0,2362	7,97	76	34,23
23	43,1937	2,09452	12,2	0,1574	7,16	70	46,1
24	44,9551	2,01646	6,82	0,6298	16	68	25,76
25	45,4496	1,99567	10,08	0,1181	4,44	68	38,08
26	46,5725	1,95014	9,2	0,4723	16,19	67	34,74
27	47,5877	1,91087	11,26	0,3149	13,21	67	42,53
28	48,4966	1,87717	15,36	0,1574	9,01	66	58,01
29	50,907	1,7938	11,14	0,3149	13,07	64	42,09
30	56,9763	1,6163	8,27	0,9446	29,1	58	31,23
31	62,9857	1,47456	5,48	0,576	15,89	71	20,69



**Lampiran 4. Hasil Karakterisasi XRD Zeolit/SnCl<sub>2</sub> 0,5% wt**

No.	Pos. [°2Th.]	d-spacing [Å]	Rel. Int. [%]	FWHM [°2Th.]	Area [cts*°2Th.]	Backgr.[cts]	Height [cts]
1	6,614	13,36427	2,49	0,3149	3,43	144	11,04
2	9,9451	8,89425	35,99	0,1181	18,62	108	159,85
3	11,2034	7,89791	4,8	0,4723	9,94	101	21,34
4	13,5672	6,52674	20,2	0,2362	20,9	95,64	89,7
5	15,2457	5,81175	9,27	0,2755	11,19	93	41,15
6	17,3223	5,11943	6,59	0,6298	18,19	90	29,27
7	19,7277	4,50032	25,14	0,2362	26,01	91	111,67
8	22,02	4,03674	83,19	0,1968	71,73	96	369,5
9	22,452	3,96003	53,18	0,1574	36,69	97	236,22
10	23,7713	3,74315	30,82	0,1574	21,26	99	136,89
11	24,6502	3,61164	13,11	0,2362	13,57	100	58,25
12	25,7949	3,45392	59,22	0,1574	40,85	101	263,03
13	26,4037	3,37564	36,48	0,1181	18,87	101	162,02
14	26,739	3,33407	32,68	0,1181	16,91	101	145,17
15	27,9087	3,19693	100	0,1574	68,98	101	444,16
16	29,4979	3,02822	49,32	0,1378	29,77	99,1	219,08
17	29,872	2,99114	13,62	0,6298	37,59	99	60,51
18	30,9707	2,88749	18,91	0,1968	16,31	97	84,01
19	35,903	2,50132	18,19	0,4723	37,64	85	80,78
20	42,1819	2,14239	5,98	0,9446	24,75	69	26,56
21	46,9496	1,93535	7,31	0,6298	20,18	68	32,48
22	48,6472	1,87171	10,1	0,3149	13,94	68	44,87
23	50,9557	1,7922	14,15	0,1968	12,2	68	62,86
24	55,6673	1,65116	7,24	0,4723	14,98	67	32,15
25	62,2532	1,49014	6,01	1,152	40,98	63	26,68



## Lampiran 5. Hasil Analisa Mercury Uji Trial 1

RA-915+

4/17/2012

(c:\Program~1\lumex2\ra915p\datamercury)

No	Description	Concentration	Time
1	Crude Oil Initial	173	6:14:05
2	Blank	168	6:34:08
3	Zeolite/Sn 1%	98	6:52:21
4	Zeolite/Sn 5%	120	7:18:29
5	Zeolite/Sn 10%	132	7:28:11
6	Zeolite/NI	125	8:06:28

Analytical Features  
Analysis

Detection limit  
Accuracy

RA-915+

4/21/2012

(c:\Program~1\lumex2\ra915p\datamercury3)

No	Description	Concentration	Time
2	Blank	170	8:32:09
3	Zeolit/ Sn 0,1%	118	9:02:22
4	Zeolit/ Sn 0,5%	77	9:19:23
5	Zeolit/ Sn 2%	102	9:28:12

Analytical Features  
Analysis

Detection limit  
Accuracy

**Lampiran 6. Hasil Analisa Mercury Uji Trial 2**

RA-915+

5/19/2012

(c:\Program~1\lumex2\ra915p\datamercury3)

No	Description	Concentration	Time
1	Crude Oil Initial	173	5:11:04
2	Blank	170	5:34:08
3	Dosis 0,1%	145	6:02:21
4	Dosis 0,5%	120	6:18:29
5	Dosis 1%	98	6:38:14
6	Dosis 5%	62	7:02:28

Analytical Features  
Analysis

Detection limit  
Accuracy

## Lampiran 7. Hasil Analisa Mercury Uji Waktu Kontak

RA-915+

6/12/2012

(c:\Program~1\lumex2\ra915p\datamercury4)

No	Description	Concentration	Time
1	0 menit	170	8:00:09
3	10 menit	160	8:22:22
4	20 menit	145	9:01:23
5	30 menit	129	9:28:12
6	40 menit	110	10:09:03
7	50 menit	98	10:34:30
8	60 menit	87	11:02:14

Analytical Features  
 Detection limit Accuracy  
 Analysis

RA-915+

6/13/2012

(c:\Program~1\lumex2\ra915p\datamercury5)

No	Description	Concentration	Time
1	70 menit	75	9:10:09
2	80 menit	78	9:22:22
3	90 menit	74	10:08:23
4	100 menit	77	10:38:22
5	110 menit	80	10:59:09
6	120 menit	75	11:34:20

Analytical Features  
 Detection limit Accuracy  
 Analysis

## Lampiran 8. Hasil Analisa Spesiasi Mercury Sebelum Adsorpsi



### MERCURY SPECIATION ANALYSIS RESULT

Sample type	Condensate		
Sampling location			
Date of Analysis	19-Apr-12		
Method of Analysis	UOP 938 / MTSITS		
Chemist ID	TA		
<b>SPARGING ANALYSIS</b>	<b>Unit</b>	<b>Result</b>	
Total Mercury before sparging	wt ppb	173	Test
Total Mercury after sparging	wt ppb	131	Test
Volatile Mercury removed by sparging	wt ppb	42	Calculation
<b>Total Volatile Mercury</b>	<b>% mass balance</b>	<b>24,28</b>	
<b>FILTRATION/CENTRIFUGE ANALYSIS</b>			
Total Mercury before filtration/centrifuge	wt ppb	131	Test
Total Mercury after filtration/centrifuge	wt ppb	120,0	Test
Particulate mercury removed by filtration	wt ppb	11	Calculation
<b>Total Particulates/Suspended Mercury</b>	<b>% mass balance</b>	<b>6,36</b>	
<b>EXTRACTION ANALYSIS</b>			
Total Mercury before extraction	wt ppb	120	Test
Total Mercury after extraction/inorganic soluble Hg* *	wt ppb	10	Test
Organic soluble mercury removed by extraction	wt ppb	0	Calculation
<b>Total Ionic/water soluble Mercury</b>	<b>% mass balance</b>	<b>5,78</b>	
<b>Total Organics mercury</b>	<b>% mass balance</b>	<b>64,00</b>	
	<b>Total mass balance</b>	<b>100</b>	
REMARKS: *) Total inorganic soluble mercury concentration (wt.ppb) in the sample is total mercury remaining in the sample which is not purgeable, not filtrable and not organic-extractable			

Conclusion to the sample is : 64% of sample is organic mercury

\*) Total inorganic soluble mercury concentration (wt.ppb) in the sample is total mercury remaining in the sample which is not purgeable, not filtrable and not organic-extractable

**Lampiran 9. Hasil Analisa Spesiasi Mercury Setelah Adsorpsi Zeolit/SnCl<sub>2</sub>  
0,5% wt**



**MERCURY SPECIATION ANALYSIS RESULT**

Sample type	Condensate		
Sampling location			
Date of Analysis	9-Jun-12		
Method of Analysis	UOP 938 / MTS/ITS		
Chemist ID	MC		
<b>SPARGING ANALYSIS</b>	<b>Unit</b>	<b>Result</b>	
Total Mercury before sparging	wt ppb	77	Test
Total Mercury after sparging	wt ppb	47	Test
Volatile Mercury removed by sparging	wt ppb	30	Calculation
<b>Total Volatile Mercury</b>	<b>%mass balance</b>	<b>38,96</b>	
<b>FILTRATION/CENTRIFUGE ANALYSIS</b>			
Total Mercury before filtration/centrifuge	wt ppb	47	Test
Total Mercury after filtration/centrifuge	wt ppb	43	Test
Particulate mercury removed by filtration	wt ppb	4	Calculation
<b>Total Particulates/Suspended Mercury</b>	<b>%mass balance</b>	<b>5,20</b>	
<b>EXTRACTION ANALYSIS</b>			
Total Mercury before extraction	wt ppb	43	Test
Total Mercury after extraction/inorganic soluble Hg* *	wt ppb	7	Test
Organic soluble mercury removed by extraction	wt ppb	0	Calculation
<b>Total Ionic/water soluble Mercury</b>	<b>%mass balance</b>	<b>9,09</b>	
<b>Total Organics mercury</b>	<b>%mass balance</b>	<b>46,75</b>	
	<b>Total mass balance</b>	<b>100</b>	
REMARKS: *) Total inorganic soluble mercury concentration (wt.ppb) in the sample is total mercury remaining in the sample which is not purgeable, not filtrable and not organic-extractable			

Conclusion to the sample is :

46,75% of sample is organic mercury



## Lampiran 10. Hasil Analisa ICP Kandungan Logam Sn Adsorben

Page 1 of 3

VARIAN PETRO 19 JUNE 2012 6/20/2012 2:40:05 AM READ BY IB

---

Sample Label	Sn 189,927 ppm
BLANK	-0,540
STSD 4 (IC01)	1,346
BM 161 (IC01)	0,431
BLK HCl 25%	-0,671
Sample-1	12,34
Sample-2	14,04

### Bobot Sampel:

**Sampel 1 = 0,2013 gram**

**Sampel 2 = 0,2101 gram**

$$\text{Sampel - 1} \rightarrow \% Sn = \frac{12,34 \times 10^{-4}}{0,2013} \times 100\% = 0,6130\%$$

$$\text{Sampel - 2} \rightarrow \% Sn = \frac{14,04 \times 10^{-4}}{0,2101} \times 100\% = 0,6682\%$$

**Lampiran 11. Hasil Karakterisasi Kandungan Logam Adsorben dengan SEM-EDS**

Nama Unsur	% massa	
	Sample A (Zeolit/NI)	Sample B (Zeolit/SnCl <sub>2</sub> )
<b>C</b>	14,16	14,17
<b>O</b>	50,18	48,92
<b>Na</b>	0,88	0,83
<b>Mg</b>	0,43	0,29
<b>Al</b>	4,07	4,01
<b>Si</b>	24,20	24,50
<b>Cl</b>	0,40	0,05
<b>Ca</b>	1,22	0,62
<b>Fe</b>	0,78	0,47
<b>Cu</b>	1,03	0,78
<b>Zn</b>	0,81	0,61
<b>In</b>	1,84	4,75

## Lampiran 12. Perhitungan-Perhitungan

1. Impregnasi kristal besar  $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  ke dalam zeolit Klipnotilolit dengan perbandingan 1%, 2%, dan 5% w/w (zeolit yang digunakan 10 gram)

Diketahui:

M zeolit yang digunakan = 10 gram

Jawab:

- Adsorben 1% w/w  $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  / Zeolit Klipnotilolit aktif

$$\frac{m \text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}}{m \text{zeolit}} \times 100\% = 1\%$$

$$\frac{m \text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}}{10 \text{ gram}} \times 100\% = 1\%$$

$$m \text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O} = 0,1 \text{ gram}$$

- Adsorben 2% w/w  $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  / Zeolit Klipnotilolit aktif

$$\frac{m \text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}}{m \text{zeolit}} \times 100\% = 2\%$$

$$\frac{m \text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}}{10 \text{ gram}} \times 100\% = 2\%$$

$$m \text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O} = 0,2 \text{ gram}$$

- Adsorben 5% w/w  $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  / Zeolit Klipnotilolit aktif

$$\frac{m \text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}}{m \text{zeolit}} \times 100\% = 5\%$$

$$\frac{m \text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}}{10 \text{ gram}} \times 100\% = 5\%$$

$$m \text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O} = 0,5 \text{ gram}$$