

## PEMILIHAN ADSORBEN UNTUK PENJERAPAN KARBON MONOKSIDA MENGGUNAKAN MODEL ADSORPSI ISOTERMIS LANGMUIR

Yuliusman<sup>1)</sup>, Widodo Wahyu Purwanto<sup>2)</sup>, dan Yulianto Sulisty Nughoro<sup>3)</sup>

<sup>1,2)</sup>Departemen Teknik Kimia, Fakultas Teknik Universitas Indonesia

<sup>3)</sup>Departemen Teknik Mesin, Fakultas Teknik Universitas Indonesia  
Kampus UI Depok, Depok 16424

Telepon: 021-7863516, Fax: 021-7863515

\*Penulis korepondensi: usman@che.ui.ac.id

### Abstract

**ADSORBENT SELECTION FOR CO ADSORPTION USING LANGMUIR ISOTHERMIC ADSORPTION MODEL.** *The objective of this research is to choose the adsorbent that can be applied to decrease toxicity level and to purify fire smoke. In case of fire, toxicity level is high due to carbon monoxide. Adsorbent is chosen based on its ability to adsorb carbon monoxide using volumetric method in constant temperature. Materials to be tested are natural zeolite, active carbon, TiO<sub>2</sub>, CuO, MgO. Due to existence of organic and mineral pollutants, natural zeolite needs to be activated prior to adsorption test using fluoride acid (HF), chloride acid (HCl), ammonium chloride (NH<sub>4</sub>Cl) and followed by calcination process. Result shows that activation of natural zeolite can increase Si/Al ratio and surface area. According to Langmuir adsorption model obtained, adsorption capacity of active carbon and natural zeolite are the highest. At 1 atmospheric pressure, adsorption capacity are 0.0682 mmol/g for active carbon, 0.0464 for activated natural zeolite with particle size of 400 nm, and 0.0265 mmol/g for activated natural zeolite with particle size of (37-50) μm.*

**Keywords:** activation; adsorbent; adsorption; carbon monoxide; natural zeolite

### Abstrak

*Penelitian ini bertujuan untuk memilih adsorben yang dapat diaplikasikan untuk menurunkan tingkat racun dan menjernihkan asap kebakaran. Pada kasus kebakaran tingkat racun asap disebabkan tingginya kandungan karbon monoksida. Proses pemilihan adsorben dilihat pada kemampuan adsorben mengadsorpsi karbon monoksida, yang dilakukan dengan metode volumetrik pada temperatur konstan. Material yang diuji adalah zeolit alam, karbon aktif, TiO<sub>2</sub>, CuO, MgO. Zeolit alam banyak terdapat pengotor baik organik maupun mineral, oleh karena itu sebelum dilakukan uji adsorpsi, zeolit alam terlebih dahulu diaktifasi menggunakan larutan asam florida (HF), asam klorida (HCl) dan larutan amonium klorida (NH<sub>4</sub>Cl), dilanjutkan dengan proses kalsinasi. Hasil penelitian menunjukkan bahwa aktifasi zeolit alam dapat meningkatkan rasio Si/Al dan luas permukaan. Semua adsorben yang diuji mempunyai kemampuan mengadsorpsi karbon monoksida. Berdasarkan model adsorpsi Langmuir yang diperoleh, karbon aktif dan zeolit alam mempunyai kapasitas adsorpsi yang paling besar. Dengan menggunakan kondisi tekanan 1 atmosfer, kapasitas adsorpsi adalah 0,0682 mmol/g untuk karbon aktif, 0,0464 mmol/g untuk zeolit alam teraktifasi dengan ukuran partikel 400 nm dan 0,0265 mmol/g untuk zeolit alam teraktifasi dengan ukuran partikel (37-50) μm.*

**Kata kunci:** aktifasi; adsorben; adsorpsi; karbon monoksida, zeolit alam

### PENDAHULUAN

Kebakaran merupakan peristiwa terbakarnya material baik itu padat, cair atau gas dalam skala besar yang disertai terbentuknya asap, penyebaran nyala api yang tidak terkendali dan terprediksi.

Semakin banyak material yang terbakar maka akan semakin besar pula kemungkinan terjadinya pembentukan asap dan penyebaran nyala api. Asap kebakaran mengandung senyawa yang berbahaya bagi kesehatan, diantaranya karbon monoksida (CO).

Karbon monoksida adalah polutan yang sangat berbahaya karena karakteristiknya yang tidak berwarna, tidak berbau dan tidak berasa. Konsentrasi karbon monoksida 1600 ppm dalam waktu 20 menit dapat menyebabkan sakit kepala, kontraksi jantung cepat, pusing dan mual, dalam waktu 2 jam dapat menyebabkan kematian (Hull, 2007). Pada kasus kebakaran banyak korban meninggal karena terhirup dan terinfeksi oleh karbon monoksida (Wang dkk., 2007). Usaha pencegahan timbulnya kebakaran dan mengurangi resiko keracunan asap kebakaran sangat diperlukan. Salah satu usaha untuk mengurangi resiko keracunan asap kebakaran adalah mengadsorpsi karbon monoksida.

Proses adsorpsi adalah peristiwa tertariknya suatu molekul tertentu dari fluida (cair atau gas) pada permukaan zat padat (adsorben). Ada 2 jenis adsorpsi yaitu adsorpsi fisika dan kimia. Adsorpsi fisika terjadi karena adanya gaya *Van der Waals* antara adsorbat dengan permukaan adsorben. Adsorpsi fisika ikatannya relatif lemah, bersifat reversibel dan dapat membentuk lapisan *multilayer*. Adsorpsi kimia terjadi karena terbentuk ikatan kovalen atau ion antara adsorbat dengan adsorben. Adsorpsi kimia ikatannya kuat, tidak reversibel dan membentuk lapisan *monolayer* (Maron dan Lando, 1988). Adsorpsi bisa terjadi pada suhu tetap disebut adsorpsi isotermis. Persamaan matematika pertama untuk kondisi isotermis diberikan oleh Freundlich dan Küster, dapat dilihat pada persamaan berikut ini,

$$\frac{x}{m} = kP^{\frac{1}{n}} \tag{1}$$

Model adsorpsi isotermis yang paling sederhana untuk adsorpsi *monolayer* adalah model Langmuir. Model Langmuir pertama kali dikembangkan untuk menunjukkan adsorpsi kimia. Persamaan umum yang digunakan pada model Langmuir adalah sebagai berikut (Yang, 1987),

$$\theta = \frac{n_{gibbs}}{n_{maks}} = \frac{bP}{1+bP} \tag{2}$$

$$n_{gibbs} = n_{maks} \frac{bP}{1+bP} \tag{3}$$

Pada tekanan rendah, persamaan 3 dapat disederhanakan menjadi bentuk linier mengikuti hukum Henry's sebagai berikut,

$$\theta = bP \tag{4}$$

Proses adsorpsi fluida terjadi pada permukaan adsorben. Zeolit dan oksida logam merupakan adsorben yang potensial untuk mengadsorpsi karbon monoksida. Pemanfaatan zeolit sebagai adsorben sudah banyak digunakan pada industri, pertanian, dan lingkungan. Tabel 1 menunjukkan selektivitas adsorbat terhadap beberapa jenis zeolit.

Dari Tabel 1 terlihat bahwa zeolit jenis *mordenite* dan *clinoptilolite* dapat digunakan untuk mengadsorpsi karbon monoksida. Jenis zeolit alam Indonesia umumnya jenis *mordenite* dan *clinoptilolite* (Trisunaryanti dkk., 2005).

Kemampuan zeolit mengadsorpsi karbon monoksida sangat bergantung pada rasio Si/Al. Rasio Si/Al rendah, zeolit bersifat *hydrophilic* mempunyai afinitas tinggi terhadap air dan senyawa polar lainnya. Sebaliknya jika rasio Si/Al tinggi, maka zeolit bersifat *hydrophobic* dan mengadsorpsi senyawa non-polar. Kepolaran karbon monoksida relatif kecil dibandingkan uap air. Agar zeolit efektif mengadsorpsi karbon monoksida dibandingkan uap air, zeolit harus bersifat *hydrophobic*. Transisi dari sifat *hydrophilic* menjadi *hydrophobic* pada rasio Si/Al antara 8 hingga 10.

Penelitian adsorpsi karbon monoksida belum banyak dilakukan. German dan Moshe (2008) meneliti secara teori kinetika adsorpsi dan desorpsi CO pada bidang (111) logam transisi ruthenium, iridium, palladium, rhodium, dan platinum. Pada dasarnya penelitian ini melihat fungsi logam sebagai katalis. Hasilnya menunjukkan bahwa energi adsorpsi CO oleh rhodium dan iridium relatif lebih besar dibandingkan logam yang lain. Hal ini menunjukkan bahwa logam rhodium dan iridium mempunyai kemampuan mengadsorpsi CO lebih besar dibanding logam lain. Ranjan dkk. (2007) mempelajari efek elektronik adsorpsi kimia CO pada permukaan Pt-Pb. Hasilnya menunjukkan bahwa donasi elektron dari atom Pb ke atom Pt memainkan peran penting dalam membedakan kemisorpsi pada permukaan tersebut. Semakin tinggi energi ikatan permukaan Pt-Pb relatif terhadap permukaan Pt (111), menyebabkan interaksi Pt-adsorbat menjadi lemah.

Tabel 1. Selektivitas Adsorbat terhadap Jenis Zeolit (Ackley dkk., 2003)

Jenis Zeolit	Aplikasi	Gas Sedikit Diadsorpsi	Gas Banyak Diadsorpsi	Peneliti
Chabazite	Prapurifikasi udara	Udara (N <sub>2</sub> dan O <sub>2</sub> )	CO <sub>2</sub>	Tomoki (1988)
Clinoptilolite	Prapurifikasi udara	Udara (N <sub>2</sub> dan O <sub>2</sub> )	CO <sub>2</sub> , CO, NO	Tezel (1995)
Erionite	Separasi udara	O <sub>2</sub>	N <sub>2</sub>	Honan (1974)
Ferrierite	Purifikasi gas alam, batubara, biogas	CH <sub>4</sub> , C <sub>2</sub> 's, C <sub>3</sub> 's	NH <sub>3</sub>	Hayhurst (1978)
Mordenite	Purifikasi gas	H <sub>2</sub> , He, Ne, Kr, Xe	H <sub>2</sub> O, CO, CO <sub>2</sub> , CH <sub>4</sub>	Nishizawa (1984)
Phillipsite	Purifikasi gas alam, batubara, biogas	CH <sub>4</sub> , C <sub>2</sub> 's, C <sub>3</sub> 's	NH <sub>3</sub>	Kirov (1992)

Mulukutla dkk. (2007) menguji oksida dan hidroksida logam Mg, Sr, Ba, Ca, Ti, Zr, Fe, V, Mn, Ni, Cu, Al, Si, Zn, Ag, Mo, Sb, karbonat/bikarbonat logam Na, Al, Mg dan Ca. Asap yang diuji dibuat dari bahan yang dibakar seperti: kertas, minyak diesel, *jet mill*, dan glikol.  $TiO_2$ , MgO dan  $Al_2O_3$  mempunyai kemampuan mengadsorpsi asap lebih baik dibandingkan adsorben yang lain. Yadav dkk. (2007) melakukan penelitian penjerapan asap glikol. Adsorben yang diuji adalah  $TiO_2$ , MgO, MgO plus,  $NaHCO_3$ ,  $Ca(OH)_2$ ,  $TiO_2$  dan MgO mempunyai kemampuan penjerapan asap lebih baik dibandingkan yang lain. Semakin kecil ukuran partikel sampai pada ukuran tertentu semakin baik kinerja oksida logam.

Penelitian ini bertujuan untuk mendapatkan adsorben yang mempunyai kemampuan mengadsorpsi karbon monoksida. Adsorben dengan kapasitas adsorpsi paling besar akan digunakan untuk mengadsorpsi karbon monoksida dan penjernihan asap.

## METODE PENELITIAN

### Bahan

Bahan yang digunakan sebagai adsorben adalah zeolit alam, MgO (Merck), CuO (Merck) dan  $TiO_2$  (Merck). Bahan untuk aktifasi zeolit alam adalah HF 2% (Merck), HCl 6 M (Merck),  $NH_4Cl$  0,1 M (Merck) dan *demineralized water*. Adsorbat yang digunakan untuk uji adsorpsi adalah karbon monoksida (99,99%). Uji kebocoran dan volume *void* menggunakan Helium (99,99%).

### Aktifasi Zeolit Alam

Aktifasi hanya dilakukan pada zeolit alam, sedangkan adsorben lain langsung dilakukan uji adsorpsi. Aktifasi yang dilakukan adalah merendam zeolit dalam larutan HF 2% selama 10 menit disertai pengadukan menggunakan pengaduk magnetik. Kemudian merendam zeolit dalam larutan HCl 6 M dan diaduk selama 30 menit. Selanjutnya merendam zeolit dalam larutan  $NH_4Cl$  0,1 M selama 5 hari dan diaduk tiap 3 jam. Kemudian zeolit dikalsinasi dalam *furnace* pada suhu  $500^\circ C$  selama 5 jam. Kemudian

zeolit dihaluskan untuk mendapatkan ukuran partikel (37-50)  $\mu m$ . Penghalusan untuk mendapatkan ukuran 400 nm menggunakan alat *ball mil*, dilakukan di *Nanotech Indonesia Inspection & Laboratorium Testing*, BPPT Puspitek, Serpong-Tangerang.

### Karakterisasi

Karakterisasi zeolit alam meliputi penentuan komposisi kimiawi menggunakan XRF (*X-Ray Fluorescence*). Pengukuran luas permukaan dilakukan untuk semua adsorben menggunakan metode BET (Autosorb-6 Quantacrome).

### Uji Adsorpsi

#### Skema alat

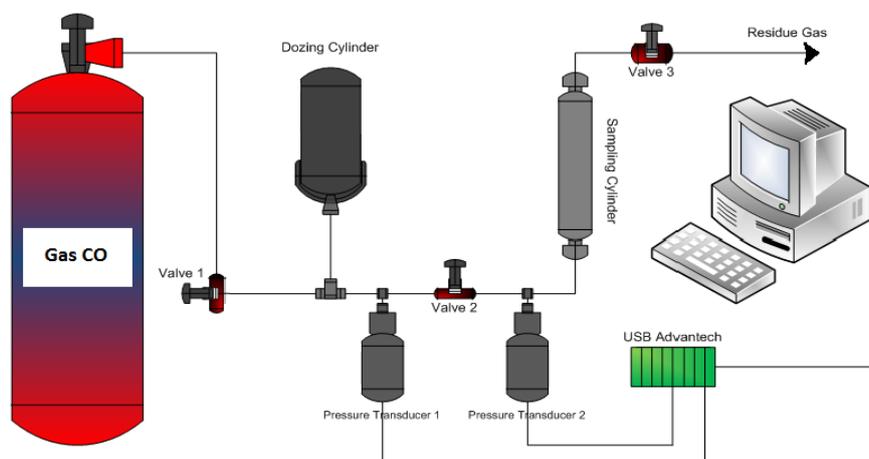
Skema alat uji adsorpsi dapat dilihat pada Gambar 1. Sebelum dimasukkan ke *sampling cylinder*, adsorben dikeringkan di dalam oven pada suhu  $120^\circ C$  selama 1 jam. Uji adsorpsi dimulai dengan memasukkan adsorben seberat 2 gram ke dalam *sampling cylinder*. Alat dipanaskan pada suhu  $50^\circ C$  untuk menghilangkan kandungan uap air yang masih terdapat dalam adsorben, dibantu dengan pompa vakum. Kemudian dilanjutkan dengan uji kebocoran, menentukan volume kekosongan (*volume void*) dan adsorpsi CO.

#### Uji kebocoran

Uji kebocoran dilakukan dengan memasukkan helium (He) ke dalam alat adsorpsi sampai tekanan 630 psi, kemudian diamati perubahan tekanan selama 3 jam. Jika tidak ada perubahan tekanan maka proses pengukuran volume *void* dan uji adsorpsi dapat dilakukan.

#### Volume void

Volume *void* pada *sampling cylinder* diperoleh dengan cara mengalirkan helium ke *dozing cylinder* dicatat temperatur ( $T_i$ ) dan tekanan ( $P_i$ ). Jumlah mol He awal ( $n$ ) pada *dozing cylinder* dihitung berdasarkan persamaan 5. Kemudian helium dialirkan dari *dozing cylinder* ke *sampling cylinder*, dicatat temperatur ( $T_f$ ) dan tekanan ( $P_f$ ).



Gambar 1. Skema alat uji adsorpsi

Jumlah mol He yang masuk pada *sampling cylinder* ( $n_i$ ) merupakan pengurangan mol He pada *dozing cylinder* (persamaan 6). Volume *void* pada *sampling cylinder* dapat dihitung dengan persamaan 7. Volume pada persamaan 5, 6 dan 7 sudah termasuk volume pipa penghubung.

$$n = \frac{P_i V_{dozing\ cylinder}}{Z_{He} RT_i} \quad (5)$$

$$n_i = \left( \frac{P_i}{z_{He} RT_i} - \frac{P_f}{z_{He} RT_f} \right) V_{dozing\ cylinder} \quad (6)$$

$$V_{void} = \frac{n_i z_{He} RT_f}{P_{sf}} \quad (7)$$

### Adsorpsi karbon monoksida

Proses adsorpsi dilakukan dengan mengalirkan CO ke dalam *dozing cylinder* sampai tekanan yang diinginkan, mencatat temperatur ( $T_i$ ) dan tekanan ( $P_i$ ) CO di *dozing cylinder*. Kemudian mengalirkan CO ke *sampling cylinder* secara bertahap dengan interval tekanan sekitar 50 psi, sampai tekanan pada *sampling cylinder* sekitar 350 psi. Setiap tahap dicatat temperatur ( $T_f$ ) dan tekanan ( $P_f$ ) pada *dozing cylinder*, tekanan akhir *sampling cylinder* ( $P_{sf}$ ) dicatat setelah 30 menit gas masuk *sampling cylinder*. Jumlah mol CO yang masuk *sampling cylinder* ( $n_{CO}$ ) dihitung dari pengurangan mol CO pada *dozing cylinder* ( $n_{dc}$ ) menggunakan persamaan 8.

$$n_{CO\ masuk\ sc} = \left( \frac{P_i}{z_{CO,i} RT_i} - \frac{P_f}{z_{CO,f} RT_f} \right) V_{dc} \quad (8)$$

Jumlah mol CO yang teradsorpsi oleh adsorben pada *sampling cylinder* dihitung berdasarkan jumlah mol CO yang masuk *sampling cylinder* dikurangi dengan mol CO yang tidak teradsorpsi (persamaan 10).

$$n_{CO\ teradsorpsi} = n_{CO\ masuk\ sc} - n_{CO\ tidak\ teradsorpsi} \quad (9)$$

$$n_{CO\ teradsorpsi} = \left[ \left( \frac{P_i}{z_{CO,i} RT_i} - \frac{P_f}{z_{CO,f} RT_f} \right) V_{dc} \right] - \left[ \frac{P_f V_{void}}{z_{CO,f} RT_f} \right]_{sc} \quad (10)$$

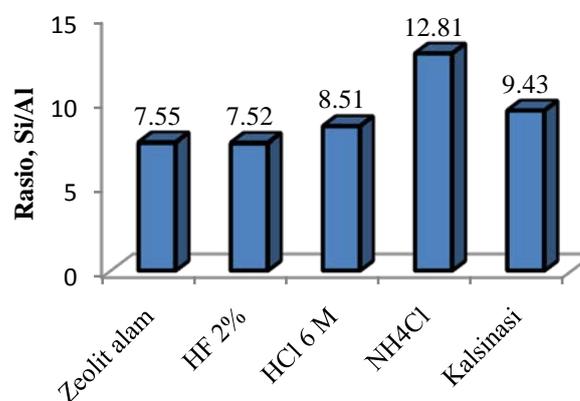
Pengolahan data membuat kurva adsorpsi CO oleh adsorben, dengan cara menghubungkan jumlah mol CO yang teradsorpsi per gram adsorben terhadap tekanan *sampling cylinder*. Dari jumlah mol yang teradsorpsi dibuat model adsorpsi Langmuir menggunakan persamaan 2. Dengan bantuan program *Solver Microsoft Excel*, konstanta adsorpsi model Langmuir  $b$  dan kapasitas adsorpsi maksimum ( $n_{maks}$ ) akan didapat. Nilai  $b$  dan  $n_{maks}$  dapat diterima jika nilai % AAD (*absolute average deviation*) < 10%. % AAD adalah deviasi rata mutlak dari jumlah mol adsorpsi Gibbs eksperimen ( $n_{eksp}$ ) terhadap jumlah mol adsorpsi Gibbs model ( $n_{model}$ ).

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Rasio Si/Al

Pengaruh aktivasi terhadap rasio Si/Al pada zeolit dilihat pada Gambar 2. Perlakuan perendaman zeolit dengan HF 2% tidak menyebabkan perubahan rasio Si/Al. Hal ini dapat terjadi karena larutan HF

2% berfungsi melarutkan oksida pengotor bukan sebagai pelarutan oksida aluminium.



Gambar 2. Pengaruh perlakuan aktivasi terhadap rasio Si/Al

Proses aktivasi menggunakan larutan HCl 6 M, dapat meningkatkan rasio Si/Al dari 7,52 menjadi 8,51. Larutan HCl 6 M dapat melarutkan oksida aluminium ( $AlO_4$ )<sup>5-</sup> dengan membuka pori-pori zeolit menjadi berukuran pori lebih besar sehingga oksida aluminium akan keluar dari struktur zeolit. Proses aktivasi menggunakan larutan NH<sub>4</sub>Cl 0,1 M terjadi peningkatan rasio Si/Al sangat besar dari 8,51 menjadi 12,81. Hal ini dimungkinkan pada saat proses dealuminasi menggunakan HCl masih banyak oksida aluminium sudah lepas dari struktur Kristal tetapi masih tertinggal dalam pori zeolit. Perendaman dengan NH<sub>4</sub>Cl selama 5 hari dan diaduk dapat mendorong alumina keluar dari pori zeolit. Proses kalsinasi pada temperatur 500°C terjadi kembali penurunan rasio Si/Al dari 12,81 menjadi 9,43. Proses kalsinasi dapat juga merusak struktur yang bukan kristal (*amorf*) sehingga rasio Si/Al menurun.

### Komposisi Unsur Lain

Unsur lain yang terdapat dalam zeolit alam adalah Cl, K, Ca, Ti, Fe, Ni, Zn, Pb dan Sr. Unsur tersebut bersifat pengotor yang dapat menutupi pori sehingga menurunkan kapasitas adsorpsi zeolit. Komposisi unsur tersebut dapat dilihat pada Tabel 2 berikut ini.

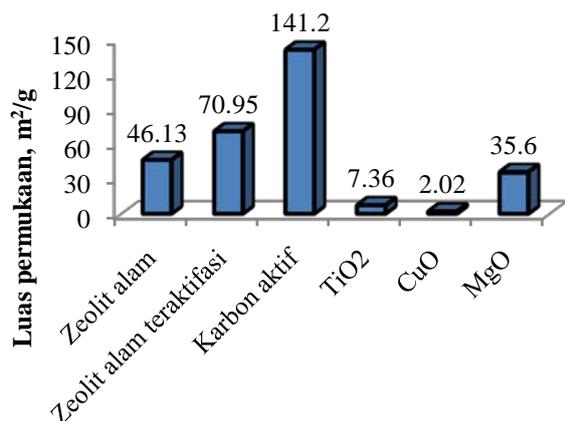
Secara umum, setiap tahap aktivasi dapat menurunkan unsur pengotor dalam hal ini oksida logam. Tidak semua oksida logam dapat dilarutkan pada proses aktivasi, yang dapat dilarutkan kalium 45%, kalsium 63% dan besi 45%. Perendaman dengan NH<sub>4</sub>Cl selama 5 hari dan diaduk sangat membantu membersihkan pori zeolit dari pengotor. Pengotor lain yang terdapat pada zeolit alam adalah oksida Ni, Zn dan Pb. Ketiga oksida logam ini dapat langsung terlarut pada proses perendaman dengan larutan HF 2%.

Tabel 2. Kandungan logam pada zeolit pada berbagai perlakuan aktivasi

Zeolit	Persen Berat (%)					
	Cl	K	Ca	Ti	Fe	Ni, Zn dan Pb
Zeolit alam asli	0	7,113	6,243	0,667	5,522	1,389
Zeolit HF 2%	0	6,413	5,123	0,347	4,235	0
Zeolit HCl 6M	4,208	4,465	3,708	0,323	3,739	0
Zeolit NH <sub>4</sub> Cl	0	3,89	1,989	0,357	2,809	0
Zeolit kalsinasi	0	3,89	2,332	0,305	3,038	0

**Luas Permukaan dan Diameter Rata-Rata Pori**

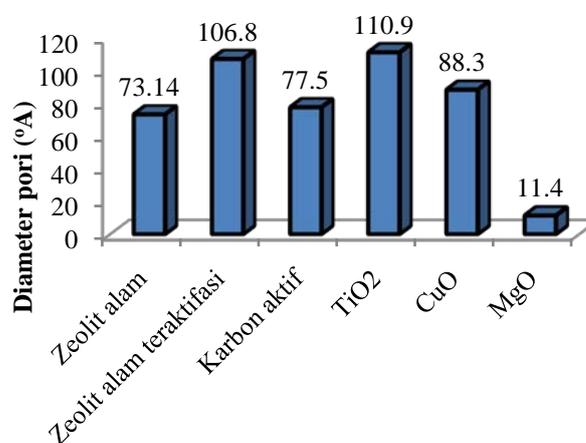
Gambar 3 menunjukkan luas permukaan adsorben yang diuji pada penelitian ini. Dari Gambar 3 terlihat bahwa karbon aktif mempunyai luas permukaan yang paling besar 141 m<sup>2</sup>/g, MgO 35 m<sup>2</sup>/g, TiO dan CuO mempunyai luas permukaan sangat kecil, dapat dikatakan tidak berpori. Luas permukaan adsorben oksida logam sangat bervariasi dari 20-600 m<sup>2</sup>/g (Mulukutla dkk., 2007) dan permukaan karbon aktif bisa mencapai > 3000 m<sup>2</sup>/g (Yang, 1987). Luas permukaan adsorben sangat dipengaruhi oleh proses pembuatan dan aktivasi. Pada penelitian ini oksida logam yang digunakan tidak melalui aktivasi, sehingga luas permukaannya masih sangat kecil.



Gambar 3. Luas permukaan adsorben

Gambar 3 juga menunjukkan bahwa luas permukaan zeolit yang telah diaktivasi meningkat dari 46,13 m<sup>2</sup>/g menjadi 70,95 m<sup>2</sup>/g. Setiap tahapan aktivasi memungkinkan terjadinya penghilangan pengotor yang terdapat dalam pori zeolit, sehingga dapat meningkatkan luas permukaan. Penambahan larutan NH<sub>4</sub>Cl pada proses aktivasi dapat melarutkan senyawa pengotor yang masih terdapat dalam zeolit dan membersihkan pengotor pada permukaan zeolit yang terbentuk selama proses dealuminasi. Proses kalsinasi pada temperatur 500°C dapat memperbaiki struktur kristal zeolit, menguapkan molekul air dan senyawa organik yang terikat pada struktur zeolit, sehingga dapat membuka pori dan meningkatkan luas permukaan. Proses aktivasi zeolit alam pada penelitian ini belum meningkatkan luas permukaan secara signifikan. Hal ini dimungkinkan karena tidak semua oksida logam dapat dilarutkan, sehingga dapat menutup pori dan menurunkan luas permukaan.

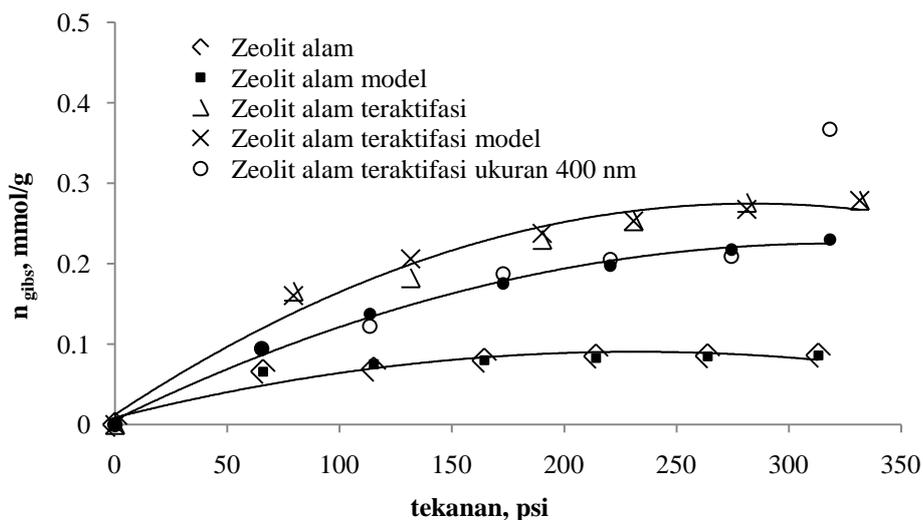
Proses adsorpsi juga bergantung pada diameter rata-rata pori adsorben. Diameter rata-rata pori adsorben ditunjukkan pada Gambar 4. Pada Gambar 4 terlihat bahwa diameter rata-rata pori adsorben jauh lebih besar dibandingkan dengan diameter CO (3,590<sup>o</sup>A). Artinya bahwa pori adsorben bisa dilewati oleh CO.



Gambar 4. Diameter rata-rata pori adsorben

**Adsorpsi Karbon Monoksida oleh Zeolit Alam**

Molekul CO pada permukaan zeolit terikat dengan Al yang berikatan koordinasi-3 dengan atom oksigen. Banyaknya CO yang teradsorpsi pada zeolit direpresentasikan dalam bentuk mol adsorpsi Gibbs (*n<sub>gibbs</sub>*). Gambar 5 menunjukkan pengaruh tekanan terhadap jumlah CO teradsorpsi oleh zeolit alam yang belum teraktivasi, zeolit alam teraktivasi dan zeolit alam teraktivasi dengan ukuran partikel 400 nm. Semakin tinggi tekanan gas maka semakin banyak CO yang berdifusi masuk ke dalam pori zeolit untuk berinteraksi dengan atom permukaan zeolit, sehingga jumlah CO yang teradsorpsi akan semakin besar. Dengan struktur yang berpori dan sifat permukaannya menyebabkan zeolit alam mampu mengadsorpsi gas CO. Pada zeolit alam yang belum teraktivasi, jumlah CO yang teradsorpsi relatif kecil dibandingkan kapasitas adsorpsi CO oleh zeolit alam teraktivasi dan zeolit alam teraktivasi ukuran partikel 400 nm. Hal ini ditunjukkan juga oleh Tabel 3, zeolit alam yang belum diaktivasi mempunyai nilai konstanta adsorpsi model Langmuir *n<sub>max</sub>* dan nilai *b* paling kecil. Kemampuan adsorpsi yang kecil ini disebabkan zeolit alam yang belum diaktivasi masih banyak pengotor yang menutupi permukaan aktif dan pori sehingga mengurangi luas (Gambar 3).



Gambar 5. Pengaruh tekanan CO terhadap kapasitas adsorpsi zeolit alam

Gambar 5 juga memperlihatkan profil kurva adsorpsi eksperimen mendekati kurva adsorpsi model. Hal ini menunjukkan bahwa data eksperimen dapat diterima, dipertegas oleh nilai deviasi rata-rata yang kecil pada Tabel 3.

Tabel 3. Nilai  $n_{maks}$  dan  $b$  zeolit alam

Adsorben	$n_{maks}$ (mmol/g)	$b$	% AAD
Zeolit alam	0,09371	0,03613	2,93
Zeolit alam teraktifasi	0,36648	0,00531	4,44
Zeolit alam teraktifasi (400 nm)	0,36310	0,00997	3,75

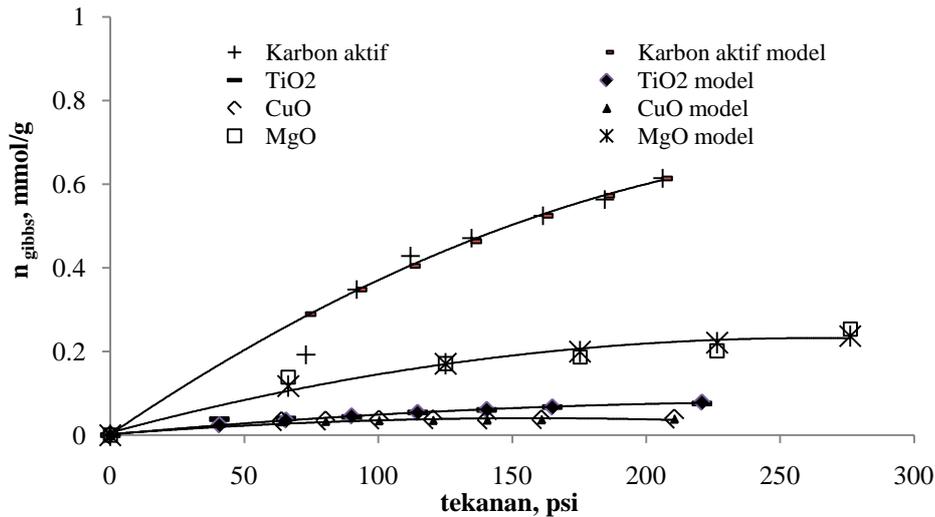
Kapasitas adsorpsi pada zeolit alam teraktifasi jauh lebih besar dibandingkan dengan zeolit alam yang belum teraktifasi. Hal ini ditunjukkan oleh konstanta  $n_{maks}$  yang dimiliki oleh zeolit alam teraktifasi 4 kali lebih besar dibandingkan zeolit alam tidak teraktifasi. Proses adsorpsi adalah suatu proses penjerapan suatu fasa (gas atau cair) pada permukaan adsorben yang berupa padatan. Hal ini terjadi karena adanya ketidakseimbangan gaya-gaya molekul pada zat padat, yang cenderung menarik molekul lain yang bersentuhan pada permukaannya. Jumlah berpori dan luas permukaan meningkat dapat menyebabkan ketidakseimbangan gaya-gaya molekul pada adsorben dan meningkatkan kemampuan adsorpsi. Peningkatan kapasitas adsorpsi zeolit alam teraktifasi, dimungkinkan karena meningkatnya luas permukaan. Proses aktifasi dapat membersihkan pengotor, baik pengotor organik maupun mineral, sehingga meningkatkan luas permukaan, maka molekul CO yang teradsorpsi akan semakin meningkat. Luas permukaan zeolit alam teraktifasi meningkat dari 46,13 m<sup>2</sup>/g menjadi 70,95 m<sup>2</sup>/g.

Peningkatan kapasitas adsorpsi zeolit alam teraktifasi dapat juga disebabkan karena meningkatnya rasio Si/Al. Rasio Si/Al meningkat maka zeolit lebih bersifat *hydrophobic*, lebih suka terhadap molekul non polar seperti CO. Sifat *hydrophobic* zeolit dapat juga meningkat karena terjadi pertukaran kation selama

proses aktifasi. Aktifasi dengan larutan NH<sub>4</sub>Cl menyebabkan pertukaran kation logam dengan H<sup>+</sup>. Zeolit dengan kation H<sup>+</sup> lebih bersifat *hydrophobic* dibandingkan kation logam, sehingga dapat meningkatkan adsorpsi terhadap CO. Gambar 5 juga menunjukkan pengaruh ukuran partikel zeolit terhadap kapasitas adsorpsi. Perubahan ukuran partikel zeolit dari (37-50) μm menjadi 400 nm, belum memberikan peningkatan secara signifikan terhadap kapasitas adsorpsi CO. Pengaruh ukuran partikel terhadap kapasitas adsorpsi akan terlihat jika adsorben ditaburkan, karena ada aspek gravitasi. Semakin kecil partikel maka kontak adsorben dan adsorbat akan semakin lama, sehingga kapasitas adsorpsi akan meningkat.

#### Adsorpsi Karbon Monoksida oleh Karbon Aktif, TiO<sub>2</sub>, CuO dan MgO

Adsorpsi CO oleh karbon aktif, TiO<sub>2</sub>, CuO dan MgO dapat dilihat pada Gambar 6. Pada Gambar 6 terlihat juga bahwa profil kurva adsorpsi eksperimen mendekati kurva adsorpsi model dengan nilai %AAD < 5%. Kurva adsorpsi karbon aktif jauh di atas TiO<sub>2</sub>, CuO dan MgO, dapat dikatakan bahwa karbon aktif mempunyai kapasitas adsorpsi ( $n_{gibbs}$ ) paling besar. Jika dibandingkan konstanta adsorpsi Langmuir nilai  $n_{maks}$  karbon aktif > MgO > TiO<sub>2</sub> > CuO. Nilai  $n_{maks}$  karbon aktif 10 kali dibandingkan nilai  $n_{maks}$  MgO. Jika dibandingkan dengan zeolit alam teraktifasi, nilai  $n_{maks}$  karbon aktif 5 kali lebih besar dibandingkan dengan  $n_{maks}$  zeolit alam teraktifasi. Nilai konstanta adsorpsi Langmuir dapat dilihat pada Tabel 4. Kapasitas adsorpsi karbon aktif yang tinggi disebabkan karena karbon aktif mempunyai luas permukaan yang paling besar, yaitu 141,2 m<sup>2</sup>/g. Sementara itu luas permukaan MgO, TiO<sub>2</sub> dan CuO berturut-turut 35,6, 7,36 dan 2,02 m<sup>2</sup>/g. CO adalah salah satu gas yang bersifat *hydrophobic*, maka akan lebih mudah diadsorpsi oleh permukaan *hydrophobic*. Kapasitas adsorpsi karbon aktif dapat juga disebabkan permukaan karbon aktif bersifat *hydrophobic*.



Gambar 6. Pengaruh tekanan CO terhadap kapasitas adsorpsi karbon aktif dan oksida logam

Tabel 4. Nilai  $n_{maks}$  dan  $b$  karbon aktif dan oksida logam

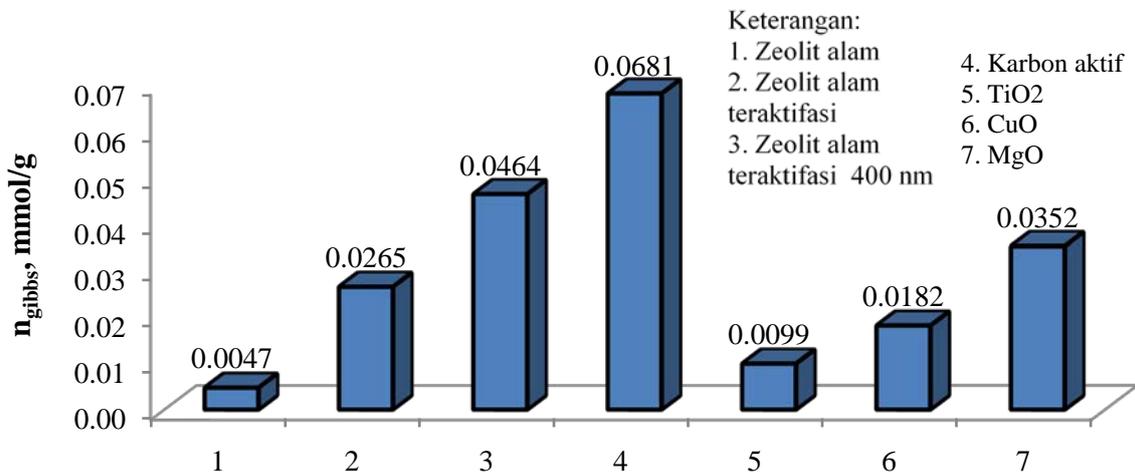
Adsorben	$n_{maks}$ (mmol/g)	$b$	% AAD
Karbon aktif	1,58827	0,00305	1,73
TiO <sub>2</sub>	0,15451	0,00467	3,04
CuO	0,04269	0,05033	3,24
MgO	0,34968	0,00762	4,39

Pada fenomena adsorpsi CO oleh MgO, jika dibandingkan luas permukaan MgO setengahnya zeolit alam teraktifasi, tetapi kapasitas adsorpsi hanya sedikit di bawah zeolit alam teraktifasi. Karbon monoksida (CO) teradsorpsi pada permukaan MgO (001) adalah adsorpsi fisika (Xu dkk., 2003). Kemampuan adsorpsi MgO sangat bergantung pada struktur MgO dan pengotor. Kerusakan struktur dan pengotor pada MgO dapat mengubah interaksi antara MgO (001) dan CO secara signifikan. Hal ini dapat menurunkan luas permukaan dan menurunkan kemampuan adsorpsi MgO. Proses mempersiapkan permukaan MgO (001) yang bebas kerusakan struktur dan pengotor adalah proses yang sangat sulit.

Luas permukaan MgO pada penelitian ini 35,6 m<sup>2</sup>/g, sangat kecil dibandingkan dengan peneliti terdahulu 600 m<sup>2</sup>/g (Mulukutla, 2007). Hal ini menunjukkan adanya struktur yang rusak pada MgO yang digunakan. Fenomena yang sama ditemukan pada adsorben TiO<sub>2</sub> dan CuO. Kapasitas adsorpsi kedua adsorben tersebut sangat rendah karena luas permukaan rendah. Hal ini dimungkinkan karena terdapat kerusakan pada struktur dan pengotor.

**Pemilihan Adsorben**

Pemilihan adsorben yang akan digunakan untuk adsorpsi CO dan penjernihan asap pada kasus kebakaran berdasarkan pada kapasitas adsorpsi masing-masing adsorben. Diantara adsorben yang diuji, karbon aktif memiliki kapasitas adsorpsi paling besar, kemudian diikuti zeolit alam teraktifasi. Karena pada kasus kebakaran proses adsorpsi terjadi pada tekanan 1 atm, maka kapasitas adsorpsi dihitung menggunakan model adsorpsi Langmuir dengan memasukkan tekanan 1 atm.



Gambar 7. Kapasitas adsorpsi adsorben berdasarkan persamaan model Langmuir dan tekanan atmosfer

Gambar 7 menunjukkan bahwa karbon aktif memiliki kapasitas adsorpsi yang paling besar diikuti oleh zeolit alam teraktifasi 400 nm dan zeolit alam teraktifasi (37-50  $\mu\text{m}$ ) dengan kapasitas adsorpsi masing-masing 0,0682, 0,0464, 0,00265 mmol/g sampel. Adsorben yang dipilih untuk adsorpsi CO dan penjernihan asap pada kasus kebakaran adalah karbon aktif dan zeolit alam teraktifasi.

### KESIMPULAN

Dari penelitian yang dilakukan dan data yang diperoleh dapat ditarik kesimpulan bahwa preparasi zeolit alam dapat meningkatkan luas permukaan dari 46,13  $\text{m}^2/\text{g}$  menjadi 70,95  $\text{m}^2/\text{g}$  dan meningkatkan perbandingan Si/Al dari 7,55 menjadi 9,43. Luas permukaan berturut-turut karbon aktif,  $\text{TiO}_2$ , CuO dan MgO adalah 141,2  $\text{m}^2/\text{g}$ , 7,36  $\text{m}^2/\text{g}$ , 2,02  $\text{m}^2/\text{g}$  dan 35,6  $\text{m}^2/\text{g}$ . Proses aktifasi zeolit alam dapat meningkatkan kapasitas adsorpsi zeolit alam terhadap molekul CO pada kondisi atmosfer sebesar 0,0047 mmol/g sampel menjadi 0,0265 mmol/g sampel. Nilai ( $n_{\text{gibbs}}$ ) berturut-turut karbon aktif, zeolit alam 400nm, MgO, zeolit alam teraktifasi, CuO,  $\text{TiO}_2$  dan zeolit alam tanpa aktifasi adalah 0,0682, 0,0464, 0,0352, 0,0265, 0,0182, 0,0099 dan 0,0047 mmol/g. Karbon aktif dan zeolit alam teraktifasi dipilih karena mempunyai  $n_{\text{gibbs}}$  yang besar.

### DAFTAR NOTASI

$b$	konstanta adsorpsi Langmuir
$dc$	dozing cylinder
$f$	keadaan akhir
$i$	keadaan awal
$k$	konstanta persamaan Freundlich
$m$	massa adsorben (g)
$n$	mol adsorbat
	konstanta empiris pada persamaan Freundlich
$n_{\text{gibbs}}$	mol adsorbat teradsorpsi per satuan massa adsorben (mol/g)
$n_{\text{maks}}$	maksimum gas teradsorpsi per satuan massa adsorben (mol/g)
$P$	tekanan (psi)
$R$	konstanta gas 669,954 (psi $\text{cm}^3$ )/(mol. °R)
$sc$	sampling cylinder
$sf$	keadaan akhir sampling cylinder
$T$	temperatur (°R)
$V$	volume silinder (ml)
$V_{\text{void}}$	volume kekosongan (ml)
$x$	mol adsorbat
$Z$	kompresibilitas gas
$\theta$	fraksi luas permukaan yang tertutup oleh lapisan monolayer

### DAFTAR PUSTAKA

Ackley, M.W., Rege, S.U., and Himanshu, S., (2003), Application of Natural Zeolites in the purification and Separation of Gases, *Microporous and Mesoporous Materials Journal*, 61, pp. 25-42.

Galabova, I.M., Sheppard, R.A., and Haralampiev, G.A., (1997), Natural Zeolites, in Kirov, G., Filizova, L., and Petrov, O., (Ed.), *Proceedings of the Sofia Zeolite Meeting 95*, Pensoft, Sofia, pp. 153-160.

German, E.D. and Moshe, S., (2008), Comparative Theoretical Study of CO Adsorption and Desorption Kinetics on (111) Surfaces of Transition Metals, *Phys. Chem.* 112, pp. 14377-14384.

Hayhurst, D.T., (1978), The Potential Use of Natural Zeolites for Ammonia Removal During Coal-Gasification, in L.B. Sand, F.A. Mumpton (Ed.), *Natural Zeolites: Occurrence, Properties, Use*, Pergamon Press, Oxford, pp. 503-508.

Hull, T.R. and Keith, T.P., (2007), Bench-Scale Assessment of Combustion Toxicity - A Critical Analysis of Current Protocols, *Fire Safety Journal*, 42, pp. 340-365.

Kim, Y.D., Stultz, J., and Goodman, D.W., (2002), Characterization of MgO(100) Thin Film Growth on Mo(100), *Surface Science*, Elsevier, 506, pp. 228-234.

Maron, S.H. and Lando, J., (1988), *Fundamentals of Physical Chemistry*, Macmillan Publishing Co. Inc, New York.

Mulukutla, R.S., Paul, S.M., Ronaldo, M., John, S.K., Kennet, J.K., and Olga, K., (2007), Metal Oxide Nanoparticles for Smoke Clearing and Fire Suppression, *U.S. Patent No. 7,276,640*.

Nishizawa, J., Suzuki, R., and Aizawa, K., (1984), Adsorption by Zeolite Composition, *U.S. Patent 4,425,143*.

Ranjan, C., Roald, H., Francis, J.D., and Hector, D.A., (2007), Electronic Effects in CO Chemisorption on Pt-Pb Intermetallic Surfaces: A Theoretical Study. *J. Phys. Chem.*, 111 (46), pp. 17357-17369.

Tomoki, I., Okugawa, Y., and Yasuda, M., (1988), Relationship between properties of Various Zeolites and Their Carbon Dioxide Adsorption Behaviors in Pressure Swing Adsorption Operation, *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 27, pp. 1103-1109.

Triebe, R.W. and Tezel, F.H., (1995), Adsorption of Nitrogen, Carbon Monoxide, Carbon Dioxide and Nitric Oxide on Molecular Sieves, *Gas Separation Purification*, 9, pp. 223-230.

Trisunaryanti, W., Endang, T., dan Sri, S., (2005), Preparasi, Modifikasi dan Karakterisasi Ni-Mo/Zeolit Alam dan Mo-Ni/Zeolit Alam. *Jurnal Teknoin*, 4, hal. 269-282.

Tsitsishvili, G.V., Andronikashvili, T.G., Kirov, G.N., and Filizova, L.D., (1992), *Natural Zeolites*, Chichester, Ellis Horwood, New York.

Wang, W., Zhang, H., Ping, and Wan, Y.T., ( 2007), Experimental Study on CO<sub>2</sub>/CO of Typical Lining Materials in Full-Sclae Fire Test, *Chinese Science Bulletin*, 52, pp. 1282-1286.

Xu, Y., Li, J., Yongfan, Z., and Wenkai, C., (2003), CO Adsorption on MgO (001) Surface with Oxygen Vacancy and Its Low-Coordinated Surface Sites: Embedded Cluster Model Density Functional Study

Employing Charge Self-Consistent Technique, *Surface Science*, 525, pp. 13-23.

Yadav, R., Maghirang, R.G., Erickson, L.E., Kakumanu, B., and Castro, S.G., (2008), Laboratory Evaluation of the Effectiveness of Nanostructured and Conventional Particles in Clearing Smoke in Enclosed Spaces, *Fire Safety Journal*, 43, pp. 36-41.

Yang, T.R., (1987), Gas Separation by Adsorption Processes, *Series on Chemical Engineering*, Imperial College Press, London, 1, pp. 9-39.