

SINTESIS ZEOLIT SNX MENGGUNAKAN SUMBER SILIKA DARI RUMPUT GAJAH (*Pennisetum Purpureum*) SEBAGAI KATALIS DALAM ESTERIFIKASI ASAM OLEAT

MUHAMAD RIFKI RESNA PERMANA¹, WAGIN ROSABRUARI¹, ATTHAR LUQMAN IVANSYAH², DAN SONI SETIADJI^{1*}

¹Jurusan Kimia, Fakultas Sains dan Teknologi, UIN Sunan Gunung Djati Bandung, Jl. A.H. Nasution 105 Bandung, Jawa Barat, 40614, Indonesia

²Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Bandung, Jl. Ganesha 10 Bandung, Jawa Barat, 40132, Indonesia

*alamat email korespondensi: s.setiadji@uinsgd.ac.id

Informasi Artikel

Abstrak/Abstract

Kata Kunci: NaX; esterifikasi; asam oleat; biodiesel; zeolit.

Katalis telah banyak diaplikasikan di industri karena katalis dapat meningkatkan efisiensi dalam proses pengolahan, seperti dalam produksi biodisel. Zeolit merupakan katalis heterogen, salah satunya adalah zeolit NaX dapat disintesis dari biomassa, seperti dari rumput gajah (*Pennisetum purpureum*). Zeolit SnX diperoleh dari impregnasi NaX dengan SnCl₂. Impregnasi NaX bertujuan untuk meningkatkan situs aktif katalitik, yang mana kedua zeolit ini diujikan pada esterifikasi asam oleat. Metode hidrotermal digunakan untuk menyintesis zeolit NaX dari silika yang bersumber dari rumput gajah. Zeolit NaX dan zeolit SnX dikarakterisasi menggunakan instrumen XRD dan SEM. Hasil XRD mengkonfirmasi zeolit NaX memiliki 2 theta khas pada 6 – 40°, sedangkan zeolit SnX memiliki 2 theta khas pada 26 – 54° dan menunjukkan kesesuaian puncak-puncaknya dengan database IZA. Hasil SEM menunjukkan zeolit NaX memiliki bentuk tetrahedral terpenggal (*truncated tetrahedral*), sedangkan zeolit SnX memiliki bentuk bulatan. Hasil uji esterifikasi asam oleat dengan variasi berat katalis yang dikatalisis oleh zeolit SnX adalah dapat menurunkan kadar FFA optimum sebesar 74,15%, sedangkan dengan variasi mol etanol penurunan kadar FFA optimum sebesar 85,23%. Dengan demikian zeolit SnX dapat digunakan sebagai katalis pada percobaan reaksi esterifikasi asam oleat untuk mendapatkan biodiesel karena zeolit SnX dapat menurunkan kadar FFA dalam asam oleat dengan cukup besar.

Keywords: NaX; esterification; oleic acid; biodiesel; zeolite.

*Catalysts have been widely applied in industry because catalysts can increase efficiency in processing processes, such as in biodiesel production. Zeolites are heterogeneous catalysts, one of which is NaX zeolite which can be synthesized from biomass, such as from elephant grass (*Pennisetum purpureum*). SnX zeolite is obtained from the impregnation of NaX with SnCl₂. NaX impregnation aims to increase the catalytic active site, in which both zeolites were tested in the esterification of oleic acid. The hydrothermal method was used to synthesize NaX zeolite from silica sourced from elephant grass. NaX zeolite and SnX zeolite were characterized using XRD and SEM instruments. XRD results confirmed that NaX zeolite has 2 characteristic theta at 6 – 40°, while SnX zeolite has 2 characteristic theta at 26 – 54° and showed a match between their peaks with the IZA database. SEM results show that NaX zeolite has a truncated tetrahedral shape, while SnX zeolite has a spherical shape. The results of the oleic acid esterification test with variations in catalyst weight catalyzed by SnX zeolite are able to reduce the optimum FFA content by 74.15%, while with variations in ethanol moles the optimum FFA content reduction is 85.23%. Thus, SnX zeolite can be used as a catalyst in the oleic acid esterification reaction experiment to obtain biodiesel because SnX zeolite can reduce the FFA content in oleic acid quite significantly.*

PENDAHULUAN

Katalisis telah menjadi suatu proses yang penting dalam produksi skala besar di berbagai bidang industri. Katalisis merupakan suatu

mekanisme yang dapat mempercepat suatu reaksi kimia dengan jalur energi aktivasi yang lebih rendah melalui penggunaan suatu zat yang disebut sebagai katalis. Katalis menjadi salah satu aspek yang mendorong perkembangan dalam berbagai

bidang industri untuk memperoleh suatu pemanfaatan sumber daya alam yang efisien dan mengurangi kompleksitas dalam proses pengolahan tertentu. Oleh karena itu, katalis telah banyak diaplikasikan di berbagai industri dalam produksi bahan bakar, bahan kimia, dan aplikasi lingkungan [1-17].

Biodiesel termasuk salah satu bahan bakar alternatif cair yang diproduksi melalui esterifikasi asam lemak bebas atau transesterifikasi trigliserida dengan menggunakan katalis homogen, heterogen, ataupun enzimatis yang sesuai sebagai zat yang mempercepat reaksi tersebut. Namun, katalis heterogen memiliki keunggulan dibandingkan dengan katalis homogen dan enzimatis karena hasil produksinya yang rendah polusi dan dapat dengan mudah dipulihkan kembali. Katalis homogen seperti KOH, NaOH, H₂SO₄, dan katalis asam basa lainnya memiliki banyak kekurangan karena sifatnya yang irreversible, korosif, dan menimbulkan polusi terhadap lingkungan. Begitupun dengan katalis enzimatis yang memiliki stabilitas yang rendah dan biayanya yang relatif mahal [18]. Oleh karena itu, katalis heterogen menjadi katalis yang lebih ramah lingkungan sehingga dapat dikembangkan dan berkelanjutan, seperti pada zeolit, heteropoliacid, oksida logam, dan lain sebagainya.

Zeolit merupakan kristalin aluminosilikat yang memiliki struktur berpori, luas permukaan yang tinggi, serta memiliki stabilitas struktur dan termal yang baik [19]. Zeolit berdasarkan sumbernya dapat dibedakan menjadi dua, yaitu zeolit alam dan zeolit sintesis. Zeolit banyak disintesis karena lebih murni dari zeolit alam karena sifatnya yang multifungsi sehingga zeolit dapat dimanfaatkan sebagai pemisah campuran, penukar ion, penyerap dan katalisator [20]. Selain itu, zeolit dapat disintesis dari bahan alternatif yang murah dan memiliki kadar alumina atau silika yang tinggi baik dari limbah maupun biomassa, seperti sekam padi, daun bambu, dan rumput gajah. Hal tersebut telah dilakukan oleh Setiadji, dkk. yang telah mensintesis zeolit faujasite NaX dari rumput gajah dengan kadar silika yang terekstraksi sebesar 86,33% [21].

Berbagai jenis zeolit telah disintesis dengan berbagai metode yang memperlihatkan perbedaan yang signifikan terhadap sifat

fisikokimia yang kemungkinan besar menghasilkan situs aktif katalitik yang berbeda, seperti dengan inkorporasi isomorfik ion logam Ti⁴⁺, Sn⁴⁺, dan Zr⁴⁺ ke dalam kerangka silika [22]. Hal tersebut sejalan dengan penelitian Zhang, dkk. yang telah menggunakan katalis TPA/Sn(II)-BDC dengan TPA sebesar 60 wt% yang menghasilkan konversi asam oleat sebesar 91,7% dengan kondisi optimum pada massa katalis sebesar 0,15 g, rasio molar metanol terhadap asam oleat sebesar 20:1, dan pada suhu 120 °C [23]. Begitupun pada penelitian Tututi-Ríos, dkk. yang telah memproduksi katalis inkorporasi gugus -PrSO₃H ke dalam katalis Sn-SBA-15 sehingga terjadi peningkatan laju reaksi pada proses esterifikasi asam oleat dari metanol, dengan konversi mencapai 96% pada suhu 120 °C selama 2 jam [24]. Adapun pada penelitian Nam, dkk., penggunaan katalis Sn-phyllsilicate menghasilkan konversi asam oleat mencapai 92,23% dengan kondisi optimum pada suhu 80 °C selama 4 jam [25].

Pada penelitian ini, zeolit disintesis dari rumput gajah yang memiliki sumber silika tinggi untuk memperoleh zeolit NaX. Zeolit tersebut diimpregnasi dengan Sn⁴⁺ sehingga diperoleh zeolit SnX yang berpotensi terjadinya peningkatan situs aktif katalitik. Dengan demikian, Zeolit NaX dan SnX dikarakterisasi menggunakan SEM dan XRD untuk mengidentifikasi morfologi dan kemurnian dari masing-masing zeolit tersebut, serta dilakukan pengujian esterifikasi asam oleat pada zeolit SnX untuk menentukan efisiensi katalitik dari zeolit tersebut.

EKSPERIMEN

Material

Material yang digunakan pada penelitian ini, yaitu rumput gajah, NaOH (Merck®), HCl (37%, Merck®), KOH (Merck®), etanol (Merck®), pita aluminium (tebal 0,3 mm lebar 30 mm Merck®), akua-DM, asam oleat, SnCl₂·2H₂O dan kertas saring Whatmann.

Instrumentasi

Instrumen yang digunakan pada penelitian ini, yaitu XRD-Bruker D8 Advance dan SEM Jeol JSM IT300.

Prosedur

Ekstraksi Silika dari Rumput Gajah

Ekstraksi silika dilakukan dengan mengeringkan rumput gajah yang telah dicuci bersih, kemudian dibakar secara konvensional sampai menjadi abu. Abu hasil pembakaran dilarutkan dalam akua DM (100 mL/20 g abu) dan ditambah HCl pekat beberapa tetes sampai pH 2. Setelah penambahan HCl, campuran diaduk selama 2 jam pada suhu ruang. Setelah itu campuran disaring sehingga diperoleh suatu residu. Residu tersebut direndam dalam larutan NaOH 1 M panas selama 1 jam. Campuran tersebut didinginkan hingga suhu ruang dan disaring. Filtrat yang dihasilkan, ditambahkan HCl 1 M sampai pH 8 untuk membentuk suatu gel. Gel tersebut kemudian dicuci dengan akua DM panas sampai berwarna putih. Gel kemudian dipanaskan dalam oven pada suhu 105 °C selama 10 jam. Setelah itu, gel yang sudah kering digerus hingga menjadi serbuk. Serbuk tersebut kemudian dikarakterisasi dengan instrumen XRD dan SEM.

Sintesis Zeolit NaX

Zeolit NaX disintesis dengan mengadopsi metode yang dilakukan oleh Zhang, dkk. dengan rasio mol $3,5\text{NaOH} : \text{Al}_2\text{O}_3 : 2,9\text{SiO}_2 : 150\text{H}_2\text{O}$ [10]. Tahap pertama adalah pembuatan larutan A dengan melarutkan 2,41 g NaOH dalam 25 mL akua DM yang kemudian ditambahkan 0,931 g Al_2O_3 dan diaduk dengan pemanasan hingga homogen. Setelah itu, dibuatkan larutan B dengan melarutkan sejumlah serbuk silika hasil sintesis sebanyak 3,47 g SiO_2 ke dalam larutan NaOH panas (2,41 g dalam 20,5 mL akua DM) kemudian diaduk hingga larut. Larutan A ditambahkan ke dalam larutan B dengan pengadukan cepat selama 40 menit. Kemudian dimasukkan ke dalam kontainer PP *hydrothermal autoclave*. Setelah itu, campuran dipanaskan dalam oven pada suhu 90 °C selama 12 jam. Zeolit yang terbentuk dicuci dengan akua DM hingga pH 7. Zeolit tersebut kemudian dikeringkan pada suhu 105 °C selama 12 jam. Zeolit NaX yang terbentuk kemudian dianalisis dengan instrumen XRD dan SEM.

Sintesis Zeolit SnX

Sintesis zeolit SnX dilakukan dengan metode pertukaran ion yang mengadopsi pada metode yang dilakukan D. Romero [11]. Sebanyak

7 g zeolit NaX yang didapat dari percobaan sebelumnya, ditambahkan $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 0,05 M 350 mL yang kemudian diaduk dalam suhu ruang selama 24 jam. Setelah itu, campuran tersebut disaring untuk memisahkan residu dan filtratnya. Residu yang diperoleh, dicuci dengan akua DM. Residu tersebut dioven pada suhu 100 °C selama 12 jam. Perlakuan tersebut dilakukan sebanyak 3 kali pengulangan untuk mendapatkan hasil yang optimum. Setelah residu dikeringkan, kemudian dikalsinasi dalam *furnace* pada suhu 500 °C selama 3 jam. Serbuk zeolite SnX yang didapat, dikarakterisasi dengan XRD dan SEM.

Karakterisasi NaX dan SnX

Serbuk zeolit NaX dan SnX dikarakterisasi dengan *X-Ray Diffraction* (XRD) dan *Scanning Electron Microscope* (SEM). Karakterisasi XRD dilakukan untuk mengidentifikasi kemurnian dan fasa dari zeolit NaX dan SnX. Sedangkan, karakterisasi SEM dilakukan untuk mengidentifikasi morfologi dari zeolit NaX dan SnX.

Pengujian Katalitik Esterifikasi Asam Oleat

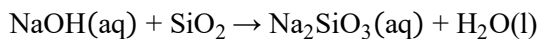
Asam oleat, etanol, dan zeolite SnX dibuat dengan rasio 1:6:1 (%b/b). Sebanyak 19,5425 g etanol 99% dan 0,20 g zeolit SnX dimasukkan ke dalam labu leher 3 dan dilakukan *stirring* sampai suhunya mencapai 65 °C. Setelah suhunya mencapai 65 °C, campuran tersebut ditambahkan 20 g asam oleat dan direfluks. Campuran dalam labu bundar, diambil sebanyak 5 mL dengan waktu reaksi 6 jam. Campuran tersebut kemudian dimasukkan ke dalam tabung falkon dan disentrifugasi selama 3 menit dengan kecepatan 3000 rpm. Larutan campuran dimasukkan ke dalam erlemeyer dan ditimbang, kemudian ditambahkan 5 tetes indikator fenolftalein dan dititrasi dengan KOH 1 M sampai berwarna merah muda

HASIL DAN PEMBAHASAN

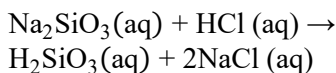
Ekstraksi Silika dari Rumput Gajah

Proses ekstraksi silika dari abu rumput gajah direndam terlebih dahulu dan diaduk dengan larutan HCl hingga pH 2. Hal tersebut bertujuan untuk melarutkan logam-logam lain selain silika. Kemudian residu yang diperoleh, direndam dalam larutan NaOH 1 M yang disertai dengan pemanasan selama 2 jam untuk mengekstrak silika

dalam abu rumput gajah, karena SiO_2 hanya larut dalam alkil hidroksida dan leburan – leburan karbonat. Saat penambahan NaOH reaksi yang terjadi sebagai berikut:



Pada proses ekstraksi ini, didapatkan filtrat berwarna kuning kecoklatan. Warna kuning kecoklatan ini disebabkan karena adanya pengotor organik. Filtrat ini kemudian ditambahkan HCl 1 hingga terbentuk gel setelah mencapai pH 7. Penambahan HCl ini bertujuan untuk menurunkan pH sehingga kelarutan silika dalam NaOH menurun dan membentuk silika hidrogel. Adapun reaksi yang terjadi saat natrium silika ketika ditambahkan dengan HCl adalah sebagai berikut :



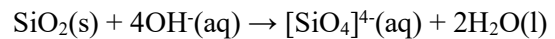
Hidrogel yang berwarna kuning kecoklatan ini kemudian dicuci dengan akua DM panas secara berulang sehingga diperoleh silika hidrogel yang berwarna putih yang mengindikasikan bahwa garam hasil reaksi dan pengotor lain telah hilang. Kemudian setelah didapat gel putih, dioven pada suhu 105°C selama 10 jam untuk menghilangkan kadar airnya. Komposisi kimia ekstrak rumput gajah menunjukkan kadar SiO_2 dalam abu rumput gajah sebesar 86,33% dengan demikian kemurniannya cukup baik.

Sintesis NaX

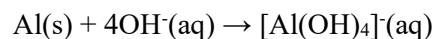
Zeolit NaX disintesis dari sumber silika hasil ekstraksi dari rumput gajah dengan kemurnian 86,33% seperti yang telah dilaporkan Setiadji, dkk [21]. Sedangkan sumber aluminium yang digunakan adalah pita logam aluminium. Zeolit NaX disintesis dengan metode yang diadaptasi dari penelitian Zhang dkk [26] dengan sedikit perubahan. Metode yang digunakan memiliki dua tahap utama yaitu tahap pencampuran dengan rasio mol 3,5 NaOH : Al_2O_3 : 2,9 SiO_2 : 150 H_2O , dan tahap kristalisasi pada keadaan hidrotermal.

Perubahan metode dilakukan pada tahap pencampuran, dimana bahan sumber silika tidak langsung dimasukan kedalam larutan aluminium melainkan dilarutkan terlebih dahulu dalam larutan NaOH dengan proses pemasan dan pengadukan. Hal ini dilakukan untuk melarutkan sumber silika, karena sumber silika yang

digunakan, yaitu SiO_2 yang hanya larut dalam larutan alkali panas membentuk ion silikat.



Larutan aluminium dibuat dengan melarutkan pita logam aluminium dalam larutan NaOH panas yang disertai dengan pengadukan. Pita logam alumina yang dilarutkan berupa potongan kecil, sehingga pita alumina tersebut memiliki luas permukaan besar yang dapat mempercepat proses pelarutan. Pelarutan logam aluminium dalam NaOH membentuk ion aluminat seperti pada persamaan berikut:



Larutan silika dicampurkan ke dalam larutan aluminium dengan pengadukan cepat selama 40 menit pada suhu ruang untuk memperoleh pencampuran secara merata dan membentuk gel berwarna putih keabuan. Terbentuknya gel ini disebabkan karena terjadinya kopolimerasi antara ion silikat dan aluminat.

Gel zeolit dikristalisasi pada keadaan hidrotermal. Metode hidrotermal melibatkan proses pemanasan reaktan didalam botol polipropilen. Ketika botol polipropilen dipanaskan, tekanan akan naik dan air yang berada didalam botol polipropilen akan tetap berfasa cair. Namun, kekurangan botol polipropilen ini tidak dapat digunakan jika suhunya melebihi 150°C , karena suhu tersebut merupakan titik leleh dari polipropilen. Proses kristalisasi gel zeolit dilakukan pada suhu 90°C selama 12 jam yang merupakan suhu optimum kristalisasi hidrotermal zeolit NaX. Sehingga keseragaman susunan kristal pada zeolit akan meningkat, karena pembentukan kristal pada zeolit terjadi pada proses pemanasan.

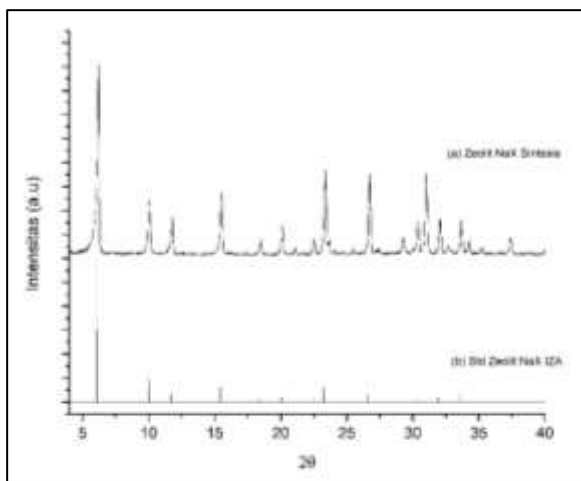
Sintesis SnX

Zeolit NaX diubah menjadi zeolit SnX dengan metode pertukaran ion, yaitu berdasarkan perbedaan nilai muatan permukaan antar senyawa. Zeolit SnX merupakan salah satu senyawa anorganik metastabil yang tidak dapat disintesis langsung dari komponen oksida binernya, atau dari larutan berair dari ion penyusunnya. Oleh karena itu, sintesis zeolit SnX dilakukan melalui proses pertukaran ion perendaman zeolit NaX menggunakan larutan $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 0,05 M yang disertai dengan pengadukan pada suhu ruang selama 24 jam. Perlakuan tersebut dilakukan untuk mengubah zeolit NaX menjadi zeolit SnX. Zeolit tersebut dipisahkan dari filtratnya dan dioven pada

suhu 100 °C selama 12 jam untuk menghilangkan kadar airnya. Proses pertukaran ion ini dilakukan tiga kali pengulangan supaya mendapatkan hasil yang maksimal. Serbuk Zeolit SnX digerus dan dikalsinasi pada suhu 500 °C selama 3 jam untuk menghilangkan pengotor yang tidak diinginkan pada zeolit serta untuk menjaga kristalinitasnya.

Karakterisasi Zeolit NaX dan SnX

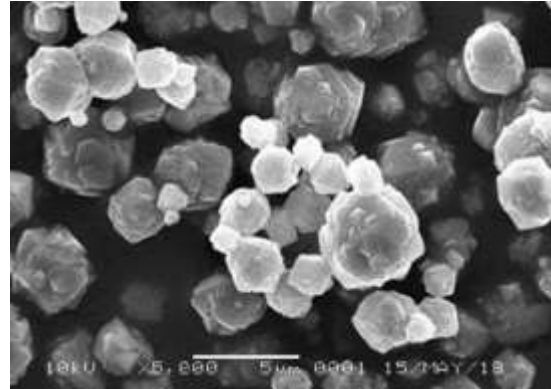
Zeolit NaX yang diperoleh dari ekstrak silika rumput gajah, dikarakterisasi dengan menggunakan instrumen XRD (**Gambar 1**). Pada pola difraksi tersebut dapat diketahui bahwa struktur kristal hasil sintesis pada penelitian ini adalah kristal faujasit, yang merupakan struktur kristal NaX. Zeolit NaX memiliki puncak-puncak yang khas pada 2θ antara 6 – 40 °. Adapun puncak-puncak khas zeolit NaX menurut database IZA berada pada 6,12; 9,98; 10,02; 11,72; 15,42; 18,40; 20,06; 22,44; 23,28; 26,64; 30,28; 30,92; 31,96; 33,56; dan 40,70 °. Sedangkan puncak zeolit NaX hasil sintesis didapatkan, terdapat pada 6,20; 9,94; 10,08; 11,80; 15,52; 18,50; 20,14; 22,54; 23,38; 26,74; 30,36; 31,00; 32,04; 33,64; dan 40,80 °. Berdasarkan puncak khas yang pada Gambar 1, zeolit NaX hasil sintesis cukup sesuai dengan standar dari Komisi Asosiasi Zeolit Internasional (IZA). Puncak tajam yang dihasilkan menandakan bahwa zeolit hasil sintesis berfasa kristalin, sementara intensitas yang tinggi menandakan banyaknya kristal yang terbentuk.



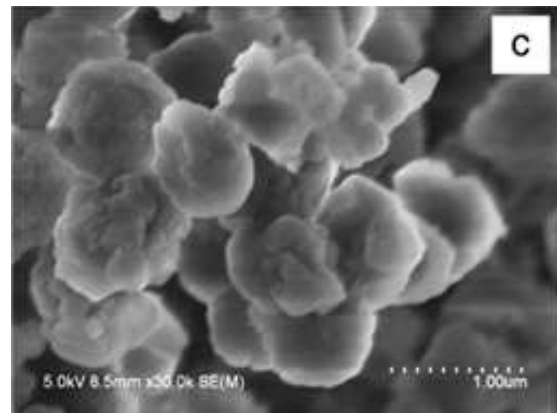
Gambar 1. Difraktogram zeolit NaX.

Zeolit NaX hasil sintesis dikarakterisasi menggunakan SEM dengan perbesaran permukaan 5.000x. Berdasarkan hasil SEM pada

Gambar 2 morfologi zeolit NaX mempunyai struktur kristal oktahedral terpenggal (*truncated octahedron*), sementara fasa yang dihasilkan yaitu fasa kristal. Fasa kristal dapat dilihat dengan tidak terdapatnya bentuk yang terpecah berupa bulatan-bulatan kecil menggumpal.



(a)



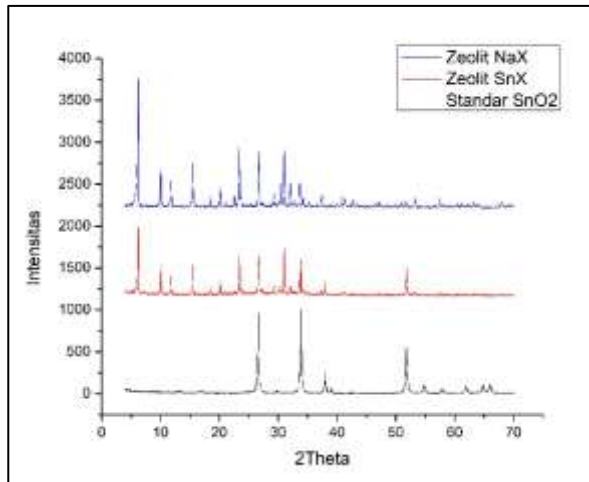
(b)

Gambar 2. Hasil SEM (a) Zeolit NaX hasil sintesis 5.000x dan (b) Zeolit NaX pada Zhang dkk perbesaran 5.000x [10].

Hasil karakterisasi SEM pada zeolit NaX menunjukkan ukuran dan morfologi partikel kristal hampir sama dengan zeolit NaX Zhang dkk. Namun, distribusi ukuran kristal NaX hasil sintesis memiliki distribusi ukuran kristal yang kurang seragam. Hal tersebut dapat terjadi karena pengaruh suhu maupun komposisi bahan baku yang digunakan.

Proses pembentukan kristal terdiri dari nukleasi (pembentukan inti) dan pertumbuhan kristal. Pada proses pertumbuhan kristal, terjadi penambahan ukuran kristal, dimana molekul – molekul pembentuk kristal menempel pada inti kristal secara beraturan sehingga membentuk

partikel kristal. Namun pada proses ini, sering kali terjadi aglomerasi sehingga bentuk partikel tidak sama dengan struktur kristal.

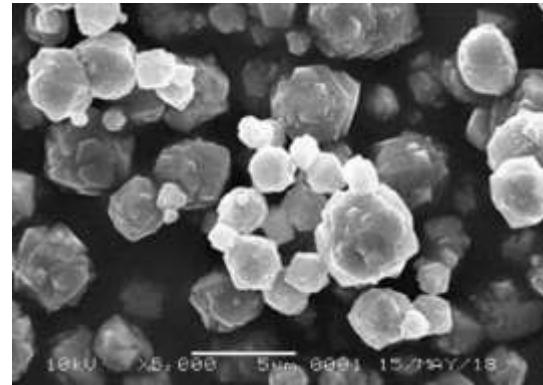


Gambar 3. Difraktogram zeolit SnX hasil sintesis dibandingkan dengan zeolit NaX dan standar SnO₂.

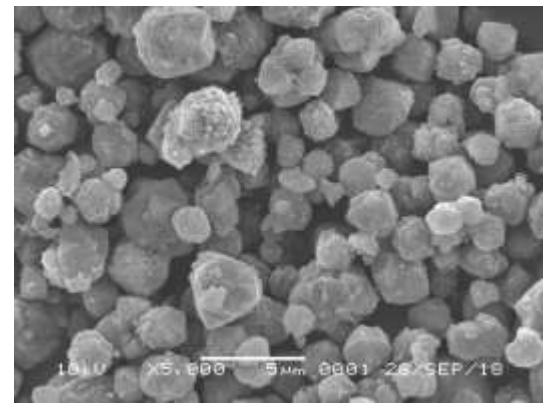
Zeolit SnX hasil sintesis memiliki puncak khas XRD yang dapat dilihat pada Gambar 3. Puncak khas Sn berada pada $2\theta = 26,61; 33,81; 38,04; 38,86; 51,71$ dan $54,74^\circ$. Dengan demikian puncak zeolit SnX hasil sintesis yang terbentuk sesuai dengan puncak khas SnO₂, sehingga impregnasi yang dilakukan telah berhasil dan mengindikasikan adanya logam Sn yang masuk ke dalam zeolit. Tingginya intensitas ini menandakan banyaknya kristal yang terbentuk. Pada Gambar 2 juga dapat dilihat bahwa struktur zeolit SnX tersebut tidak mengalami perubahan dari sebelum diimpregasi yang menunjukkan struktur zeolit tidak mengalami kerusakan. Namun, puncak zeolit SnX yang terbentuk lebih rendah jika dibandingkan dengan zeolit NaX. Hal ini disebabkan karena adanya pengaruh ketika dilakukan impregnasi sehingga puncak difraktogram yang diperoleh sedikit lebih rendah.

Zeolit SnX hasil sintesis dikarakterisasi dengan menggunakan SEM seperti halnya pada zeolit NaX. Berdasarkan hasil SEM pada zeolit SnX (**Gambar 4**) menunjukkan bahwa terlihat perbedaan antara zeolit sebelum transformasi (NaX) dan setelah transformasi (SnX). Pada zeolit NaX memiliki bentuk kristal oktahedral terpenggal sedangkan pada zeolit SnX memiliki bentuk bulatan – bulatan. Selain itu, pertumbuhan kristal pada zeolit SnX lebih menyebar ke segala arah dan ukurannya lebih homogen, sedangkan

pada zeolit NaX pertumbuhannya kurang menyebar dan ukurannya tidak cukup homogen.



(a)



(b)

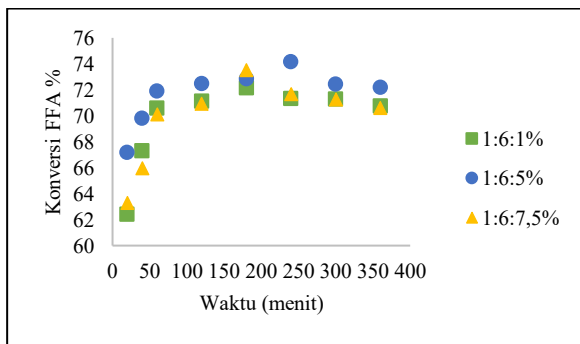
Gambar 4. Hasil SEM (a) Zeolit NaX dan (b) Zeolit SnX dengan pembesaran 5.000x.

Pengujian Katalitik Zeolit SnX Pada Esterifikasi Asam Oleat

Pada penelitian ini, Zeolit SnX hasil sintesis digunakan sebagai katalis untuk reaksi esterifikasi asam oleat. Pengujian tersebut dimulai dengan pengujian kadar asam lemak bebas (FFA) awal pada asam oleat. Kadar FFA yang terkandung dalam asam oleat berdasarkan analisis sebesar 291,5803%. Asam oleat yang digunakan berfasa cairan kental dan telah dihilangkan kadar airnya terlebih dahulu sehingga tidak mengganggu proses esterifikasi, karena jika masih terdapat kandungan air, proses esterifikasi akan terganggu.

Uji esterifikasi asam oleat ini dilakukan beberapa variasi rasio katalis dan rasio etanol. Untuk variasi katalis rasio mol yang digunakan, yaitu asam oleat : etanol : katalis (1 mol : 6 mol : 1% b/b), (1 mol : 6 mol : 5% b/b), dan (1 mol : 6 mol : 7,5% b/b). Sementara untuk variasi rasio mol

yang digunakan yakni, (1 mol : 6 mol : 1% b/b), (1 mol : 12 mol : 1% b/b), dan (1 mol : 15 mol : 1% b/b). Data penurunan kadar FFA dengan variasi berat katalis dapat dilihat pada **Gambar 5**. Data konversi angka asam mengalami peningkatan hanya saja peningkatannya tidak berbeda jauh, hasilnya masih berada pada rentang 70-75%. Namun hasil yang didapat sudah sesuai dengan literatur yaitu penggunaan katalis berlebih dapat menggeser kearah produk, hanya saja pada penelitian ini penggunaan katalis berlebih tidak mendapatkan hasil yang lebih optimal.

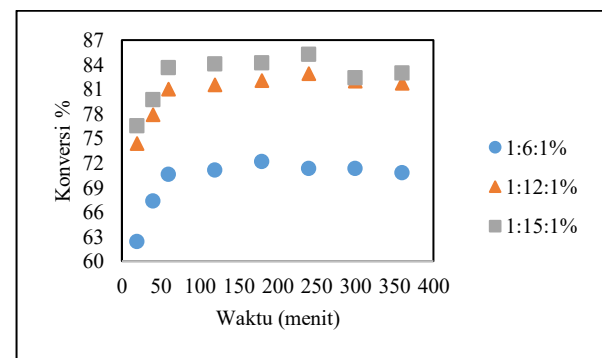


Gambar 5. Data konversi kadar FFA dengan variasi berat katalis (asam oleat : etanol : katalis).

Pada penelitian ini penggunaan katalis 1% dengan waktu reaksi selama 6 jam dapat menurunkan kadar asam lemak bebas paling optimum sebesar 72,16%, kondisi optimum ini terjadi saat waktu reaksi 3 jam, sementara pada penggunaan katalis 5% dapat menurunkan kadar asam lemak bebas paling optimum sebesar 74,15% pada waktu reaksi 4 jam, dan penggunaan katalis 7,5% kondisi optimum pada saat waktu reaksi 3 jam dapat menurunkan kadar asam lemak sebesar 73,52%. Jika dilihat dari keseluruhan reaksi (6 jam), penurunan kadar FFA cenderung stabil karena tidak ada kenaikan ataupun penurunan yang signifikan. Karena penurunan kadar FFA yang cenderung stabil meskipun dilakukan variasi berat katalis yang cukup jauh, maka berat katalis 1% digunakan untuk percobaan selanjutnya.

Esterifikasi asam oleat dengan etanol bersifat reversibel, sehingga pada umumnya reaksi ini digunakan jumlah etanol berlebih. Oleh karena itu, pengujian esterifikasi ini digunakan tiga variasi rasio mol etanol yang cukup tinggi, yaitu 6, 12, dan 15 mol. Pada **Gambar 6** dapat dilihat bahwa penurunan optimum pada rasio 6 mol

sebesar 72,16% pada waktu reaksi 3 jam, sementara pada variasi etanol dengan rasio 12 mol dapat menurunkan kadar FFA sebesar 82,87% dengan waktu reaksi 4 jam, dan pada variasi etanol dengan rasio 15 mol menghasilkan penurunan optimum kadar FFA sebesar 85,23% dengan waktu reaksi 4 jam. Dengan demikian, pengujian tersebut dapat disimpulkan bahwa penggunaan etanol berlebih dapat menurunkan kadar FFA yang lebih tinggi. Hal tersebut telah sesuai dengan literatur, namun pada penelitian ini penggunaan rasio 12 mol dan 15 mol hasilnya tidak berbeda jauh. Hal ini disebabkan karena reaksi tersebut tetap memiliki kondisi optimum tersendiri meskipun esterifikasi bersifat reversibel.

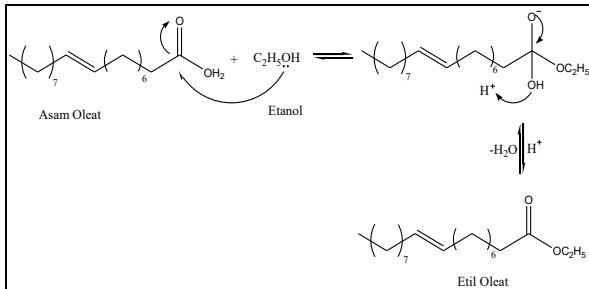


Gambar 6. Data konversi kadar FFA dengan variasi mol etanol (asam oleat : etanol : katalis).

Pada **Gambar 7** dijelaskan mekanisme reaksi esterifikasi secara umum tentang asam lemak yang terdeprotonasi oleh situs asam (H^+) yang akan berikatan dengan atom O pada asam oleat dengan membentuk ion oksonium. Atom C yang mengikat OH kehilangan satu tangannya yang menyebabkan terbentuknya karbokation. Pada etanol terdapat gugus O yang bersifat elektronegatif sehingga gugus tersebut dapat menyerang karbokation dan berikatan membentuk senyawa antara. Adanya ikatan gugus O menyebabkan kelebihan muatan, sehingga menjadi bermuatan positif (+) dan melepaskan gugus H dan OH dengan adanya bantuan pemanasan yang membentuk H_2O . Oleh karena itu, pada esterifikasi asam oleat ini menghasilkan produk berupa etil ester dan air [26].

Pada penelitian ini juga dilakukan uji esterifikasi dengan perlakuan yang sama namun tidak menggunakan katalis. Ketika dihitung kadar FFANYa, campuran ini hanya mengalami sedikit

penurunan yakni sebesar 1,8% pada waktu reaksi 3 jam dengan rasio mol asam oleat : etanol 1:6. Hal tersebut menandakan bahwa penggunaan katalis zeolit SnX hasil sintesis telah berhasil bereaksi dan cukup efektif untuk digunakan sebagai katalis.



Gambar 7. Mekanisme reaksi secara umum.

SIMPULAN

Hasil dari penelitian ini dapat disimpulkan bahwa hasil karakterisasi XRD zeolit SnX dari ekstrak silika rumput gajah memiliki puncak khas pada $2\theta = 26,61; 33,81; 38,04; 38,86; 51,71$ dan $54,74$. Hasil karakterisasi SEM zeolit SnX hasil sintesis menunjukkan bentuk bulatan-bulatan. Zeolit SnX hasil sintesis dapat digunakan sebagai katalis pada proses esterifikasi biodiesel karena dapat menurunkan kadar FFA asam oleat. Penurunan optimum kadar FFA pada variasi rasio mol asam oleat : etanol : katalis (1:15:1% b/b) sebesar 85,23%. Variasi berat katalis dan mol etanol pada reaksi esterifikasi asam oleat berpengaruh pada penurunan kadar FFA. Penurunan kadar FFA yang paling tinggi terjadi ketika dilakukan variasi mol etanol, dimana semakin tinggi mol etanol yang digunakan maka semakin tinggi juga penurunan kadar FFA pada asam oleat.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terimakasih kepada Wagin Rosabruari sebagai tim riset penelitian ini. Penulis juga berterimakasih kepada Dr.Soni Setiadji, M.T., M.Si. dan Dr.Atthar Luqman Ivansyah, M.Si. atas bimbingan, saran, dan masukan selama proses penelitian dan penulisan artikel ini.

REFERENSI

[1] W. N. R. W. Isahak dan A. Al-Amiery, "Catalysts driving efficiency and innovation in thermal reactions: A

comprehensive review," *Green Technol. Sustain.*, vol. 2, no. 2, hal. 100078, Mei 2024, doi: 10.1016/J.GRETS.2024.100078.

- [2] S Setiadji, et al., "Preparation of reduced Graphene Oxide (rGO) assisted by microwave irradiation and hydrothermal for reduction methods," *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* 434 (1), 012079, 2018.
- [3] A Hidayat, dkk., "Sintesis Oksida Grafena Tereduksi (rGO) dari Arang Tempurung Kelapa (Cocos nucifera)," *al Kimiya: Jurnal Ilmu Kimia dan Terapan* 5 (2), 68-73, 2018.
- [4] Soni Setiadji, dkk., "Alternatif Pembuatan Biodiesel Melalui Transesterifikasi Minyak Castor (*Ricinus communis*) Menggunakan Katalis Campuran Cangkang Telur Ayam dan Kaolin," *Kimia VALENSI* 3 (1), 1-10, 2017.
- [5] Soni Setiadji, et al., "Computational Study of Inclusion Complexes Between Omeprazole Enantiomer with Hydroxypropyl- β -Cyclodextrin," *Journal of Physics: Conference Series* 1090 (1), 012055, 2018.
- [6] Soni Setiadji, et al., "Synthesis of solid catalyst from egg shell waste and clay for biodiesel production," *IOP Conf. Series: Journal of Physics* 1013 (1), 012199, 2018.
- [7] Soni Setiadji, et al., "The increased use value of bamboo leaves as silica source for t-type zeolite synthesis," *MATEC Web of Conferences* 197, 05003, 2018.
- [8] Soni Setiadji, et al., "Synthesis of zeolite ZSM-11 using bamboo leaf as silica source," *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* 434 (1), 012084, 2018.
- [9] Citra Deliana Dewi Sundari, et al., "Synthesis of zeolite L using rice husk ash silica for adsorption of methylene blue: kinetic and adsorption isotherm," *MATEC Web of Conferences* 197, 05002, 2018.
- [10] S Setiadji, et al., "Synthesis of zeolite NaX using elephant grass (*pennisetum purpureum*) as a silica source and its characterization," *Journal of Physics: Conference Series* 1402 (6), 066016, 2019.
- [11] S Setiadji, dkk., "Pemanfaatan Rumput Gajah Sebagai Sumber Silika Untuk Sintesis Zeolit T," *al Kimiya: Jurnal Ilmu Kimia dan Terapan* 4 (2), 51-60, 2017.

- [12] CDD Sundari, et al., "Synthesis of silicalite-1 zeolite using silica from elephant grass (*Pennisetum purpureum*)," *Journal of Physics: Conference Series* 1402 (5), 055064, 2019.
- [13] S Setiadji, et al., "Synthesis Of Zro₂ Via Ultrasonic Assisted Precipitation Method For Photodegradation Of Methylene Blue," *Indonesian Journal of Industrial Research* 30 (1), 46-56, 2021.
- [14] S Sanusi, et al., "The study of structural properties and photocatalytic activity of ZnO prepared by ultrasonic assisted precipitation method," *Journal of Physics: Conference Series* 1869 (1), 012013, 2021.
- [15] CDD Sundari, et al., "Ag-ZSM-11 Zeolite Synthesis Using Silica from Elephant Grass for LED Application," *Walisongo Journal of Chemistry* 1 (2), 82-90, 2018.
- [16] S Setiadji, et al., "Synthesis of SnO₂ Using Hydrothermal Method and Its Application as Catalyst in Esterification of Oleic Acid," *Walisongo Journal of Chemistry* 4 (2), 90-96, 2021.
- [17] S Setiadji, V Aprilia, "Effect of Calcination Temperature and Heating Rate on Zinc Oxide (ZnO) Synthesis Toward Antibacterial Properties," *Jurnal Kimia Sains dan Aplikasi* 28 (2), 82-87, 2025.
- [18] A. Cindioğlu, A. S. Issiaka Ibrahim, dan Ö. Sönmez, "Microwave-assisted esterification of oleic acid using pyrrolidonium-based bronsted-acidic ionic liquids catalyst," *Fuel*, vol. 382, hal. 133791, Feb 2025, doi: 10.1016/J.FUEL.2024.133791.
- [19] Y. Li, G. Zhu, Y. Wang, Y. Chai, dan C. Liu, "Preparation, mechanism and applications of oriented MFI zeolite membranes: A review," *Microporous Mesoporous Mater.*, vol. 312, hal. 110790, Jan 2021, doi: 10.1016/J.MICROMESO.2020.110790.
- [20] S. Affandi, H. Setyawan, S. Winardi, A. Purwanto, dan R. Balgis, "A facile method for production of high-purity silica xerogels from bagasse ash," *Adv. Powder Technol.*, vol. 20, no. 5, hal. 468–472, Sep 2009, doi: 10.1016/J.APT.2009.03.008.
- [21] S. Setiadji, C. D. D. Sundari, V. Aprilia, E. Sumiyanto, I. Novianti, dan A. L. Ivansyah, "Synthesis of zeolite NaX using elephant grass (*pennisetum purpureum*) as a silica source and its characterization," *J. Phys. Conf. Ser.*, vol. 1402, no. 6, 2019, doi: 10.1088/1742-6596/1402/6/066016.
- [22] X. Liu dan Z. Zhu, "Synthesis and Catalytic Applications of Advanced Sn- and Zr-Zeolites Materials," *Adv. Sci.*, vol. 11, no. 11, hal. 1–44, 2024, doi: 10.1002/advs.202306533.
- [23] Q. Zhang et al., "Environmentally-friendly preparation of Sn(II)-BDC supported heteropolyacid as a stable and highly efficient catalyst for esterification reaction," *J. Saudi Chem. Soc.*, vol. 28, no. 3, hal. 101832, Mei 2024, doi: 10.1016/J.JSCS.2024.101832.
- [24] E. Tututi-Ríos, H. González, D. A. Cabrera-Munguia, A. Gutiérrez-Alejandre, dan J. L. Rico, "Acid properties of Sn-SBA-15 and Sn-SBA-15-PrSO₃H materials and their role on the esterification of oleic acid," *Catal. Today*, vol. 394–396, hal. 235–246, Jul 2022, doi: 10.1016/J.CATTOD.2021.09.008.
- [25] B. Nam et al., "Dual-end-functionalized tin (Sn)-phyllosilicates for the esterification of oleic acid," *J. Ind. Eng. Chem.*, vol. 41, hal. 50–61, Sep 2016, doi: 10.1016/J.JIEC.2016.07.002.
- [26] X. Zhang, D. Tang, M. Zhang, dan R. Yang, "Synthesis of NaX zeolite: Influence of crystallization time, temperature and batch molar ratio SiO₂/Al₂O₃ on the particulate properties of zeolite crystals," *Powder Technol.*, vol. 235, hal. 322–328, Feb 2013, doi: 10.1016/J.POWTEC.2012.10.046.