

OPTIMASI TEMPERATUR KALSINASI TERHADAP KARAKTERISTIK DAN TRANSFORMASI KRISTAL SUPPORT ALUMINA DI PT. PERTAMINA RESEARCH TECHNOLOGY INNOVATION

Annasit¹, Marthina Valentina Manila¹, Agus Setiyono¹

¹Teknik Pengolahan Minyak dan Gas, Politeknik Energi dan Mineral Akamigas, Cepu, Blora, Indonesia

*E-mail: agasasutadewa@gmail.com

ABSTRACT

One commonly used support is gamma alumina (γ -Al₂O₃). The advantage of this buffer is that it can be regenerated after intensive use at high temperatures and pressures which are usually the conditions used in the hydrotreating process. The aim of this research is to optimize the calcination temperature which can transform alumina crystals and determine the characteristics of the alumina support. The procedure in this research is divided into several stages, namely as follows: Synthesis of alumina supports, understanding crystal characteristics with X-Ray Diffraction (XRD), water pick up, and trench crushing. Based on the research results, it can be concluded that at a temperature of 350°C the support is in the form of boehmite and in the form of gamma alumina at temperatures of 450°C, 550°C, 650°C and 750°C. The most optimal calcination temperature in the buffer synthesis process occurs at 650°C with a crystal size of 1.03 nm, has the broadest diffraction peak and has the ability to absorb the greatest fluid, namely 0.39 ml/g and the mechanical strength value is of 10N/m.

Keywords: Alumina, Boehmite, Calcination Temperature, Crystal Transformation

ABSTRAK

Salah satu penyangga yang umum digunakan yaitu gamma alumina (γ -Al₂O₃). Kelebihan penyangga ini adalah dapat diregenerasi setelah pemakaian yang intensif pada suhu dan tekanan tinggi di mana biasanya kondisi tersebut digunakan dalam proses hydrotreating. Tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengoptimasi temperatur kalsinasi yang dapat mentransformasikan kristal alumina dan mengetahui karakteristik dari support alumina. Prosedur dalam penelitian ini dibagi menjadi beberapa tahapan, yaitu sebagai berikut: Sintesis penyangga alumina, memahami karakteristik kristal dengan X-Ray Diffraction (XRD), water pick up, dan crushing trength. Berdasarkan hasil penelitian dapat disimpulkan bahwa pada suhu 350°C penyangga berbentuk boehmite dan berbentuk gamma alumina pada suhu 450°C, 550°C, 650°C, dan 750°C. Temperatur kalsinasi paling optimal pada proses sintesis penyangga terjadi pada suhu 650°C dengan ukuran kristal sebesar 1,03 nm, memiliki puncak difraksi yang paling luas serta memiliki kemampuan untuk menyerap fluida paling besar yaitu sebesar 0,39 ml/g dan nilai kekuatan mekanik adalah sebesar 10N/m.

Kata kunci: Alumina, boehmite, temperatur kalsinasi, dan transformasi kristal

PENDAHULUAN

Proses produksi pada dasarnya selalu membutuhkan hasil yang sama durasi maksimum dan relatif singkat. Katalis adalah zat yang dapat mempercepat reaksi secara kimiawi tanpa mengubah atau mempengaruhi hasil reaksi yang terjadi dalam proses. Faktor penting yang mempengaruhi karakteristik katalis padatan diantaranya adalah penyangga. Alumina (Al_2O_3) merupakan material yang sering digunakan dalam berbagai aplikasi karena mempunyai sifat fisika dan kimia yang tinggi, seperti kekuatan yang sangat tinggi, sangat keras, isolasi elektrik yang baik, ketahanan panas yang tinggi, temperature lebur yang tinggi, ketahanan abrasi dan korosi yang tinggi. Salah satu penyangga yang umum digunakan yaitu gamma alumina ($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$). Kelebihan penyangga ini adalah dapat di regenerasi setelah pemakaian yang intensif pada suhu dan tekanan tinggi di mana biasanya kondisi tersebut digunakan dalam proses *hydrotreating* (Satterfield, 1991).

Boehmite merupakan direct parent dari $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$, morfologi dan ukuran partikel boehmite mempengaruhi karakter $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ yang dihasilkan. Sifat boehmite dapat berbeda-beda diantaranya disebabkan oleh metode pembuatan yang dikembangkan. Ada berbagai cara untuk sintesis boehmite seperti metode sol gel, presipitasi, hidrolisis alkoksida alumina, dekomposisi termal aluminium sulfat, deposisi uap logam organik dengan $\text{Al}(\text{CH}_3)_3$. Di samping metode pembuatan boehmite, kondisi pembuatan selama transformasi boehmite menjadi gamma alumina, juga mempengaruhi sifat penyangga alumina yang dihasilkan. Prosedur dan resep pembuatan gamma alumina yang diturunkan dari boehmite sesuai untuk penyangga katalis nafta *hydrotreating* (Ulfah dan Subagjo, 2012) telah diperoleh. Penelitian tersebut mempelajari perubahan yang mempengaruhi sifat alumina. Hasil penelitian tersebut menunjukkan bahwa sifat gamma alumina dapat diatur melalui rasio mol asam nitrat terhadap boehmite, rasio mol ammonia terhadap boehmite, lama pengeringan, dan temperatur kalsinasi. Tujuan penelitian ini adalah mengoptimasi temperatur kalsinasi yang dapat mentransformasikan kristal Alumina dan mendapatkan karakteristik dari support alumina

METODE PENELITIAN

Pengambilan data ini dilaksanakan di Laboratorium *Catalyst and Materials Research and Innovation* dan Laboratorium *Process Development Research* Direktorat Pengolahan PT. Pertamina (Persero), Jalan Raya Bekasi Km 20, Pulogadung, Jakarta Timur. Untuk penelitian dan

pengambilan data berlangsung pada tanggal 2 Januari 2023 s/d 31 Maret 2023. Peralatan yang digunakan dalam pelaksanaan Penelitian ini yakni *Crushing Strength*, *X-Ray Diffraction* (XRD) dan *Furnace*. Bahan yang digunakan dalam pelaksanaan Penelitian ini adalah Asam Nitrat, Aquades, Amonia, dan Boehmite. Subjek dalam penelitian ini adalah Penyangga (support) Alumina.

Bagan penelitian dapat dilihat pada Gambar 1. Prosedur dalam penelitian ini dibagi menjadi beberapa tahapan, yaitu sebagai berikut:

1. Sintesis Penyangga (Support) Alumina

Timbang 1kg boehmite (AlOOH) masukkan ke dalam alat stirrer. Kemudian tambahkan 220 mL aquades dan diaduk selama 5 menit setelah itu, tambahkan 680 mL larutan nitrit (627,7 mL aquades dan 52,3 mL HNO_3) pengadukan dilakukan selama 10 menit. Tambahkan 50 mL amonia (NH_4OH) kemudian aduk selama 1-2 menit. Setiap pengadukan yang telah dilakukan harus dipastikan bahwa pencampuran larutan tersebut tercampur dengan homogen/merata/kalis. Jika sudah kalis maka bahan akan dicetak dengan menggunakan alat hidrolik dan setelah itu akan dijemur dan kemudian di kalsinasi dengan suhu yang sudah ditentukan yaitu, 350°C , 450°C , 550°C , 650°C dan 750°C selama 5 jam.

2. Karakteristik Katalis

a. Karakteristik dengan X-Ray Diffraction (XRD)

Penyangga (support) dihaluskan sebelum dipreparasi pada plat sampel. Sampel akan di masukan pada tempat yang tersedia. Pilih menu lalu pilih opsi measure. Pilih program dan selanjutnya pilih aplikasi yang akan digunakan. Di masukan identitas sampel dan di klik ok agar alat mulai menganalisa. Analisis XRD dilakukan dengan radiasi Cu pada tegangan 40 kV dan arus 35 mA dengan rentang sudut $5-90^\circ$. Difraktogram yang dihasilkan akan memberikan informasi mengenai fase kristalin katalis.

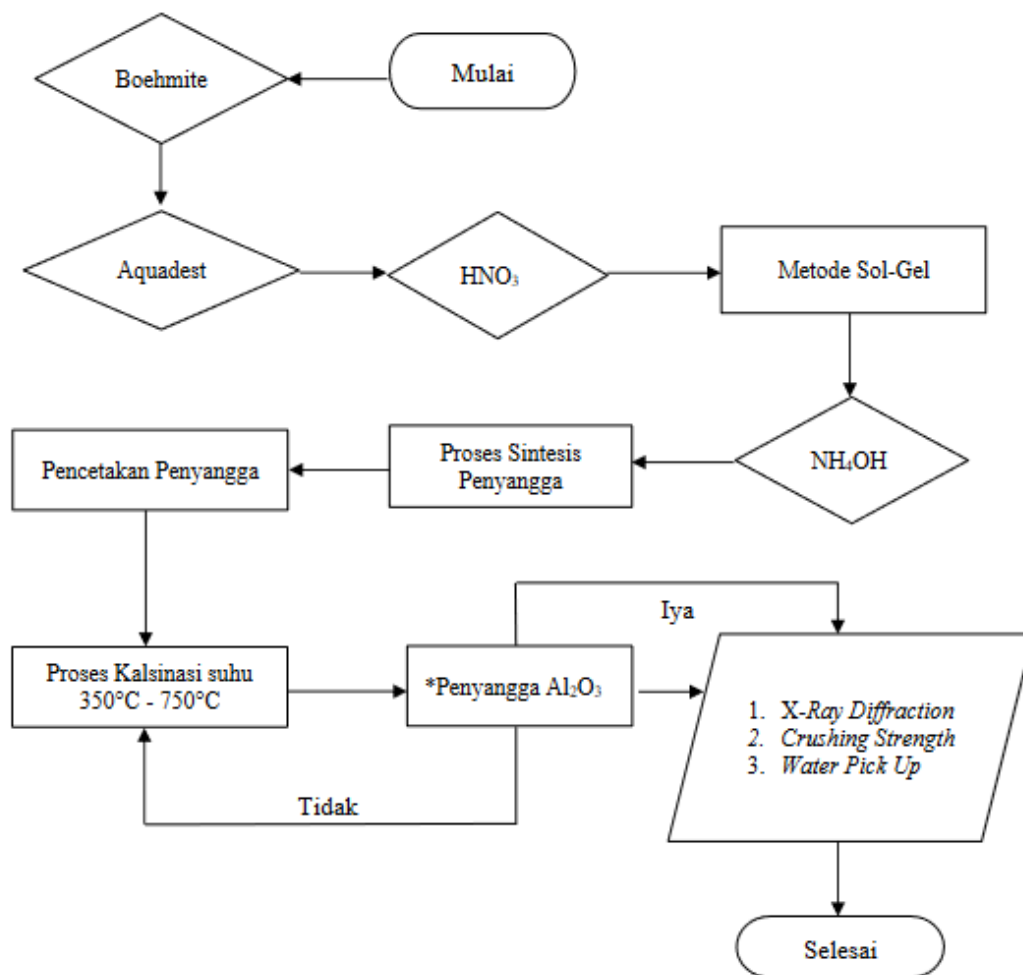
b. Karakteristik dengan *Water Pick Up*

Timbang penyangga (support) sebanyak 0,3 g di wadah yang telah disediakan dan dicatat beratnya. Kemudian tuang air secukupnya kedalam wadah, diamkan selama 15 menit setelah itu, saring sampel tersebut menggunakan kertas saring dan setelah itu masukkan Kembali ke dalam wadah dan timbang berat sampel tersebut.

c. Karakteristik dengan *Crushing trength*

Penyangga yang sudah dikalsinasi selanjutnya dimasukan ke desikator. Selanjutnya sampel

dituang diwadah yang telah disediakan dan pengujian dilakukan dengan menguji 60 butir penyangga (support).



Gambar 1. Bagan penelitian

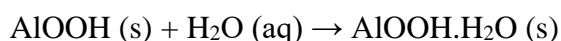
HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN

Sintesis Penyangga (Support) Alumina

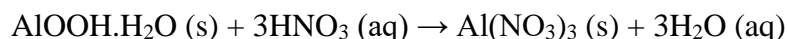
Pada proses sintesis γ - Al_2O_3 menggunakan metode sol-gel dan disertai pengadukan. Tujuan dilakukan pengadukan adalah agar sampel menjadi homogen selain itu, memicu terbentuknya inti kristal (nukleasi) dan pengendapan kristal sehingga mempengaruhi ukuran kristal. Ukuran kristal yang kecil akan menghasilkan luas permukaan yang besar. Berikut beberapa Langkah atau tahapan dalam membuat penyangga (support).

Langkah pertama adalah mencampurkan boehmite dengan air, proses ini akan menghasilkan

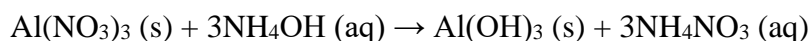
aluminium hidroksida bisa dilihat pada reaksi dibawah ini:



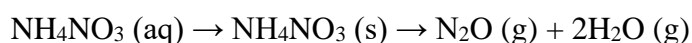
Pada langkah kedua yaitu penambahan asam nitrat. Tujuan dari pada penambahan asam nitrat adalah untuk membentuk sol-gel. Reaksi sol-gel yang terbentuk menghasilkan aluminum nitrat dan air seperti pada reaksi dibawah ini:



Setelah padatan berbentuk sol-gel maka akan ditambahkan dengan ammonia hidroksida hingga berbentuk serbuk aluminium hidroksida seperti reaksi dibawah ini:



Serbuk yang sudah terbentuk kemudian dicetak berbentuk triloop untuk dikalsinasi pada suhu yang berbeda yakni 350°C, 450°C, 550°C, 650°C dan 750°C selama 5 jam. Reaksi yang terjadi pada proses kalsinasi adalah sebagai berikut:

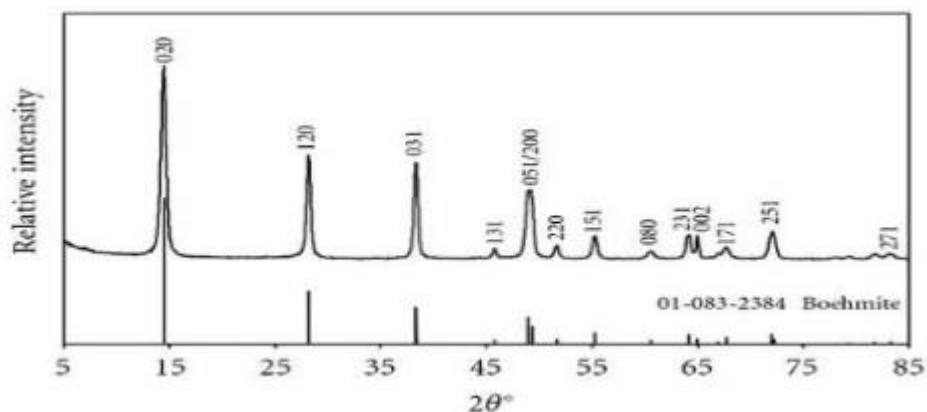


Tujuan dilakukan kalsinasi adalah untuk mendekomposisi ammonium nitrat sehingga senyawa ini hilang dari penyangga dan diperoleh penyangga Al_2O_3 yang lebih murni yang terikat pada struktur kristal berupa gas yang mudah menguap seperti dinitrogen monoksida dan air. Selain itu, jika kalsinasi dilakukan pada suhu yang tinggi dengan kenaikan bertahap maka akan terjadi pembentukan oksida, serta dapat menaikkan kekuatan fisik suatu katalis.

Karakteristik Penyangga (Support) Alumina

1. Hasil Analisa XRD

Spektroskopi difraksi sinar-X (*X-Ray Diffraction/XRD*) digunakan untuk menghitung ukuran kristal senyawa inti aktif maupun penyangga pada sampel katalis yang terbentuk. Proses analisa pengujian XRD dilakukan pada penyangga (support) alumina di mana hasil yang diperoleh akan dibandingkan dengan standar pola difraktogram yang sudah ada hal ini untuk membuktikan apakah penelitian yang dilakukan sudah sesuai atau tidak.



Gambar 2. Referensi Pola Difraktogram Boehmite



Gambar 3. XRD Penyangga (support) pada suhu 350°C

Dari gambar 2 dan gambar 3 menunjukkan kemiripan antara pola difraksi referensi dan pola penyangga pada suhu 350°C. Kemiripan ini menandakan bahwa penyangga yang di sintesis berada dalam bentuk boehmite. Umumnya, puncak utama difraktogram dari boehmite akan muncul pada (JCPDS card. 01-083-2384) sudut dua theta (2θ) = 15°, 28°, 38°, 49°, 56°, 64°, dan 72°.

Tabel 1. Perbandingan data standar boehmite dan data sintesis penyangga (support) pada suhu 350°C

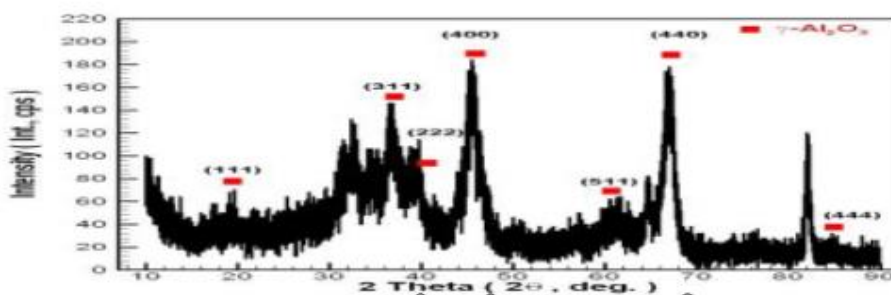
<i>Bohmite Standar</i>	<i>Bohmite 350°C Parameter B</i>	
$2\theta (^{\circ})$	$2\theta (^{\circ})$	1
15	14,27	1107
28	28,02	1150
38	38,2	663
49	49,01	860
56	55,22	46
64	64,69	583
72	71,89	219

Berdasarkan tabel 1, di ketahui bahwa sudut dua theta (2θ) dari data standar yang digunakan dan data sintesis penyangga pada suhu 350°C sudah mendekati standar.

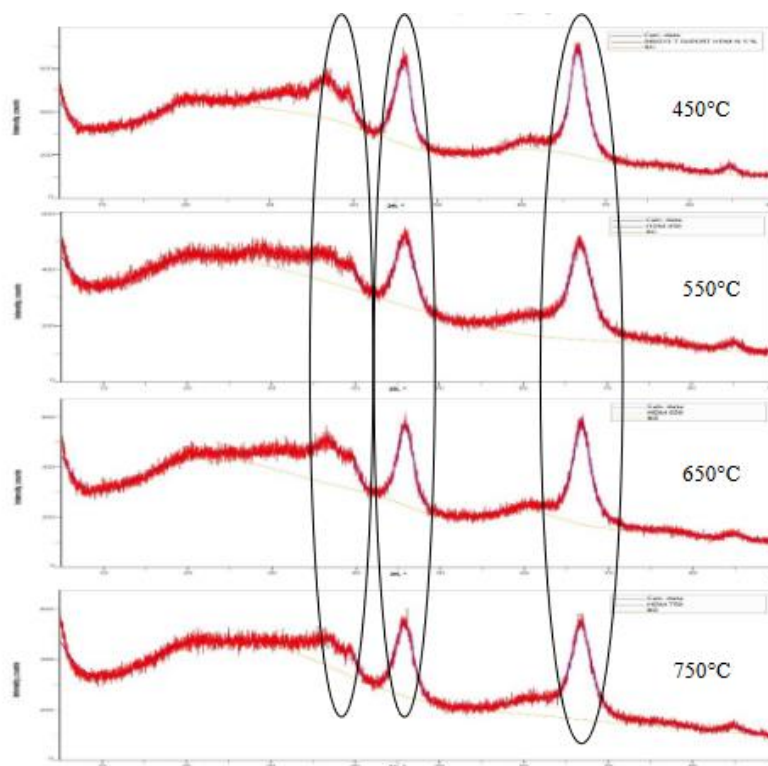
Tabel 2. Ukuran Kristal Sampel pada suhu 350°C

<i>Suhu</i>	$2\theta (^{\circ})$	<i>FWHM (rad)</i>	<i>D(nm)</i>	<i>Rata-rata</i>
350°C	14,27	0,00221	4,40	1,89
	28,02	0,00215	2,30	
	38,2	0,00209	1,74	
	49,01	0,00271	1,04	
	55,22	0,00134	1,87	
	64,69	0,00223	0,96	
	71,89	0,00203	0,95	

Berdasarkan tabel 2, nilai FWHM (Full Width at Half Maximum) akan semakin kecil maka ukuran atau diameter kristal semakin besar. Dan suhu 350°C memiliki diameter kristal yang besar yaitu 1,89 nm. Semakin banyak kristal yang terbentuk menandakan susunan atom yang teratur dalam suatu material (Rosma & Pratap,2015).



Gambar 4. Referensi pola difraktogram $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$



Gambar 5. XRD sintesis penyangga (support) pada suhu 450°C, 550°C, 650°C dan 750°C

Pada gambar 4 dan gambar 5 menunjukkan kemiripan pola difraksi antara standar pola difraktogram γ - Al_2O_3 dengan difraktogram XRD penyangga (support) pada suhu 450°C, 550°C, 650°C dan 750°C hal ini menandakan bahwa penyangga (support) alumina pada suhu 450°C, 550°C, 650°C dan 750°C berada dalam bentuk γ - alumina. Umumnya, puncak utama difraktogram dari γ - alumina berada pada sudut difraksi 40°-50° dan 60°-70°. Berdasarkan ICDD no. 98-009-9836, pola difraksi γ - Al_2O_3 akan muncul pada sudut 2θ : 37,79°; 45,38° dan 67,37°.

Tabel 3. Perbandingan data standar dan data sintesis penyangga γ - Al_2O_3 pada suhu 450°C, 550°C, 650°C dan 750°C

γ - Al_2O_3 standar	Alumina							
	450°C		550°C		650°C		750°C	
2θ (°)	2θ (°)	I	2θ (°)	I	2θ (°)	I	2θ (°)	I
37,79	39,58	265	36,80	1156	36,46	454	37,21	375
45,38	45,84	465	46,17	714	45,84	644	45,83	548
67,37	66,84	1009	66,55	1103	66,68	1033	66,68	1043

Pada tabel 3 merupakan perbandingan nilai gamma alumina (γ - Al_2O_3) standar dengan gamma alumina (γ - Al_2O_3) hasil sintesis, dari tabel ini dapat diperoleh informasi bahwa nilai sudut dua theta (2θ) dari keempat sampel menunjukkan struktur gamma alumina (γ - Al_2O_3) yang terbentuk pada rentang temperatur 450°C, 550°C, 650°C dan 750°C. Dari tabel 5.3 menyatakan puncak kristal tertinggi dari gamma alumina berada pada suhu 550°C dan 650°C. Hasil pengamatan X-Ray Diffraction (XRD) menunjukkan intensitas pada suhu 450°C dan 750°C terjadi perubahan transformasi yang tidak cukup signifikan. Hal ini mungkin terjadi karena pada rentang suhu 450°C boehmite bertransisi ke gamma alumina dan pada rentang suhu 750°C gamma alumina (γ - Al_2O_3) bertransisi ke delta alumina (δ - Al_2O_3), bisa dilihat pada gambar 3.1. Jika dilihat pada puncak sudut dua theta (2θ) = 67,37° terjadi perubahan yang signifikan seiring dengan terjadinya perubahan temperatur yaitu intensitas rendah ke tinggi hal ini menunjukkan bahwa semakin tinggi temperatur maka semakin tinggi juga puncak yang dihasilkan oleh gamma alumina (γ - Al_2O_3). Puncak-puncak yang terbentuk pada pola difraksi dan intensitas dapat mengindikasikan kristanilisasi dan ukuran kristal pada suatu material. Semakin tinggi puncak dan intensitasnya menandakan derajat kristanilitas suatu material semakin tinggi. Semakin banyak kristal yang terbentuk menandakan susunan atom yang teratur dalam suatu material (Rosma & Pratap, 2015).

Tabel 4. Ukuran Kristal Sampel pada suhu 450°C, 550°C, 650°C, 750°C

Suhu kalsinasi	2θ (°)	$FWHM(rad)$	$D(nm)$	Rata-rata diameter
450°C	39,58	0,00342	1,02	0,93
	45,84	0,00271	1,12	
	66,84	0,00325	0,64	
550°C	36,80	0,00582	0,65	0,94
	46,17	0,00233	1,29	
	66,55	0,00239	0,87	
650°C	36,46	0,00400	0,95	1,03
	45,84	0,00226	1,34	
	66,68	0,00256	0,81	
750°C	37,21	0,00522	0,71	0,87
	45,83	0,00258	1,17	
	66,68	0,00286	0,73	

Berdasarkan tabel 4, diketahui bahwa semakin kecil nilai FWHM (Full Width at Half Maximum) menunjukkan ukuran kristal yang semakin besar pula. Ukuran kristal suhu 650°C paling kecil dan diameter kristalnya adalah 1,03 nm ini dikarenakan puncak di fraksinya yang paling luas. Ukuran kristal mempengaruhi jumlah situs aktif yang disediakan (bertindak seperti nano partikel) yang

membuat rasio-rasio atom (logam aktif) tersebar secara merata pada permukaannya (Kurniawan dan Muraza, 2018). Kumar et al (2002) menyatakan bahwa semakin tinggi kristalinitas suatu katalis, semakin banyak sisi asam sehingga keasaman katalis juga akan meningkat.

2. Hasil Analisa Crushing Strength

Tujuan dari karakteristik ini adalah mengetahui sifat mekanik penyangga alumina yang telah dibuat. Nilai kekuatan mekanik memiliki arti sampai di mana suatu bahan material dapat menerima tekanan maksimal sebelum material itu mengalami penurunan ukuran (hancur menjadi kepingan yang lebih kecil). Setiap bahan material memiliki nilai kekuatan terhadap gaya yang berbeda-beda tergantung dari jenisnya (Stanislaus et al., 1998).

Tabel 5. Hasil analisis kekuatan mekanik penyangga

<i>Penyangga Alumina Suhu Kalsinasi</i>	<i>Kekuatan Mekanika (N/m)</i>
350°C	50,77
450°C	45,23
550°C	53,08
650°C	52,03
750°C	51,55

Alumina yang dibuat dengan menggunakan boehmite memiliki nilai kekuatan mekanik yang meningkat seiring dengan semakin tingginya konsentrasi asam. Peningkatan kekuatan mekanik disebabkan karena penambahan asam yang berperan sebagai peptizer sehingga menyebabkan ikatan antara partikel-partikel alumina menjadi semakin tersusun rapi (Ulfah & subagjo, 2012). Konsentrasi asam yang lebih tinggi meningkatkan kemampuannya sebagai peptizing agent. Selain dari penambahan asam dan faktor suhu kalsinasi juga sangat penting. Bisa dilihat pada tabel 5 hasil uji kekuatan mekanik sampel yang memiliki kekuatan yang paling besar berturut-turut adalah 550°C = 53,08 n/m, 650°C = 52,03 n/m, 750°C = 51,55 n/m, 350°C = 50,77 n/m dan 450°C = 45,23 n/m.

3. Hasil Analisa Water Pick Up

Untuk analisa water pick up digunakan rumus sebagai berikut:

Rumus:

$$WPU = (Wt - W0) / W0$$

W0 = Berat penyangga sebelum direndam air

Wt = Berat penyangga setelah direndam air

Dari rumus diatas nilai yang diperoleh setelah melakukan pengujian serta perhitungan water pick up yaitu untuk suhu $350^{\circ}\text{C} = 0,25 \text{ ml/g}$, $450^{\circ}\text{C} = 0,31 \text{ ml/g}$, $550^{\circ}\text{C} = 0,32 \text{ ml/g}$, $650^{\circ}\text{C} = 0,39 \text{ ml/g}$, dan $750^{\circ}\text{C} = 0,37 \text{ ml/g}$. Dari kelima sampel yang memiliki kemampuan untuk menyerap fluida besar adalah $0,39 \text{ ml/g}$ yaitu suhu 650°C nilai yang diperoleh ini sudah hamper mendekati nilai volume pori standar $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ yaitu $0,5\text{-}1 \text{ cc/g}$. WPU ini bisa dimaksimalkan lagi tingginya dengan memperhatikan proses sintesis penyangga.

Berdasarkan data analisa menggunakan instrumen XRD, Crushing Strength Tester dan Water Pick Up, temperatur kalsinasi sangat berpengaruh terhadap karakteristik dan pembentukan kristal pada penyangga. Pada suhu 350°C wujud penyangga berbentuk boehmite, ukuran kristal $1,89 \text{ nm}$, kekuatan material $50,77 \text{ n/m}$, sedangkan pada suhu 450°C , 550°C , 650°C , 750°C penyangga berwujud gamma alumina ($\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$) dan ukuran kristal yang memiliki diameter paling besar berada pada suhu 650°C yaitu $1,03 \text{ nm}$ dan kekuatan material sebesar $52,03 \text{ n/m}$, serta memiliki water pick up yang paling besar yaitu $0,39 \text{ ml/g}$. Ini berarti suhu 650°C adalah suhu penyangga yang paling baik atau paling stabil dan bisa di aplikasikan dilapangan sebagai penyangga.

KESIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian dapat disimpulkan bahwa pada suhu 350°C penyangga berbentuk boehmite dan berbentuk gamma alumina pada suhu 450°C , 550°C , 650°C , dan 750°C . Temperatur kalsinasi paling optimal pada proses sintesis penyangga terjadi pada suhu 650°C dengan ukuran kristal sebesar $1,03 \text{ nm}$, memiliki puncak difraksinya yang paling luas serta memiliki kemampuan untuk menyerap fluida paling besar yaitu sebesar $0,39 \text{ ml/g}$ dan nilai kekuatan mekanik adalah sebesar 10 N/m .

DAFTAR PUSTAKA

- Diana, D. R., & Pratapa, S. (2015). Analisis kristalinitas serbuk magnesium oksida hasil sintesis metode logam-terlarut asam. Jurnal Sains dan Seni ITS, 4(1), B1-B4.
- Kumar, N., Nieminen, V., Demirkan, K., Salmi, T., Murzin, D. Y., & Laine, E. (2002). Effect of synthesis time and mode of stirring on physico-chemical and catalytic properties of ZSM-5 zeolite catalysts. Applied Catalysis A: General, 235(1-2), 113-123.

- Kurniawan, T., & Muraza, O. (2018). Perengkahan n-butana menggunakan katalis nanopartikel zeolit alam Klaten. *Jurnal Rekayasa Kimia & Lingkungan*, 13(2), 182-188.
- Satterfield, C. N. (1991). *Heterogeneous catalysis in industrial practice*, 2nd Ed. New York: McGraw-Hill.
- Stanislaus, A., Absi-Halabi, M., & Al-Doloma, K. (1988). Effect of phosphorus on the acidity of γ -alumina and on the thermal stability of γ -alumina supported nickel—molybdenum hydrotreating catalysts. *Applied catalysis*, 39, 239-253.
- Ulfah, M., & Subagjo, S. (2012). Pengaruh perbedaan sifat penyangga alumina terhadap sifat katalis hydrotreating berbasis nikel-molibdenum. *reaktor*, 14(2), 151-157.