

PENGARUH KANDUNGAN Cu DAN JUMLAH ADSORBEN PADA PROSES ADSORPSI SO₂ MENGGUNAKAN ADSORBEN CuO/ γ -AL₂O₃-SiO₂ DALAM REAKTOR *FIXED BED*

M. F. Pasmawijaya¹, Nurmala¹, D. Bahrin^{*1}, P. Coniwanti¹, P. Susmanto¹

¹Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Sriwijaya

Jln. Raya Palembang Prabumulih Km. 32 Insralaya Ogan Ilir (OI) 30662

*Corresponding author: davidbahrin@ft.unsri.ac.id

ABSTRAK: Sulfur dioksida adalah gas tak berwarna, beraroma menyegat, bersifat iritatif, dan sangat mudah larut dalam air. Sulfur dioksida (SO₂) merupakan senyawa utama penyebab hujan asam yang dihasilkan dari pembakaran bahan bakar yang mengandung sulfur seperti pada pembangkit tenaga energi listrik tenaga uap berbahan bakar batubara. Adsorben CuO dengan penyangga γ -Al₂O₃-SiO₂ sangat prospek untuk dikembangkan dan digunakan sebagai adsorben untuk menyerap SO₂. Penelitian dilakukan pada konsentrasi SO₂ dalam gas umpan sekitar 10.000 ppmv, kandungan Cu dalam adsorben CuO/ γ -Al₂O₃-SiO₂ adalah 8, 15, dan 20%-berat Cu, dan jumlah adsorben adalah 2, 4, dan 8 gram dalam reaktor unggun diam (*fixed bed reactor*) dengan diameter 1,27 cm dan tinggi 45 cm selama 60 menit. Percobaan dilakukan pada temperatur 300, 350, 400, dan 450°C dan tekanan atmosferik. Hasil penelitian memperlihatkan bahwa persentase penyerapan gas SO₂ terbesar terjadi pada kandungan Cu sebesar 20%-berat dan jumlah adsorben sebanyak 8 gram dengan % penyerapan gas SO₂ sebesar 54,8%-volume.

Kata kunci: Adsorpsi; CuO/ γ -Al₂O₃-SiO₂; jumlah adsorben; konsentrasi Cu.

ABSTRACT: Sulfur dioxide is a colorless gas, flavorfully stinging, irritative, and very easily soluble in water. Sulfur dioxide (SO₂) is the main compound that causes acid rains produced from the burning of sulfur-containing fuels such as on coal-fired steam power plants. CuO adsorbent with γ -Al₂O₃-SiO₂ as a support are very prospects to development and used as adsorbent for absorb SO₂. The research was conducted on the concentration of SO₂ in feed gases is about 10,000 ppmv, Cu content in CuO/ γ -Al₂O₃-SiO₂ adsorbent are 8, 15, and 20%-weight Cu, and the weight of the adsorbent are 2, 4, and 8 grams in fixed bed reactors with a diameter of 1.27 cm and a height of 45 cm for 60 minutes. Experiments were conducted at temperatures of 300°C and atmospheric pressure. The results showed that the highest percentage of SO₂ gas absorption occurred in Cu content of 20%-weight and the number of adsorbent by 8 grams with % absorption of SO₂ gas is 54.8%-volume.

Keywords: Adsorption; CuO/ γ -Al₂O₃-SiO₂; Cu concentration; weight of adsorbent

PENDAHULUAN

Gas SO₂ merupakan penyebab utama kerusakan lingkungan yang diakibatkan karena hujan asam dan apabila terhirup manusia dapat menimbulkan gangguan kesehatan. Pembakaran bahan bakar yang mengandung sulfur dapat menghasilkan gas SO₂ yang melebihi baku mutu emisi seperti yang ditetapkan oleh pemerintah apabila kandungan sulfur dalam bahan bakar tersebut tinggi. Sebagai contoh, pembakaran batubara dengan kadar sulfur lebih dari 0,23%-berat (*dry basis*) dengan udara pembakaran berlebih 50% pada Pembangkit Listrik Tenaga Uap (PLTU) batubara dapat menghasilkan emisi

SO₂ diatas 750 mg/Nm³, sebagai batas baku mutu emisi SO₂ untuk PLTU berbahan bakar batubara (Bahrin, 2017).

Hasil penelitian yang dilakukan oleh Yo dkk (1996), Xie dkk (2003), Buelna dan Lin (2003), Mathieu dkk (2013) dan Bahrin dkk (2016) memperlihatkan bahwa adsorben CuO/ γ -Al₂O₃ mampu menyerap gas SO₂ dengan kapasitas adsorpsi berkisar antara 38 s.d 147,2 mg/g. Tingginya kapasitas adsorpsi dalam penelitian Xie dkk (2003) dan Buelna dan Lin (2003) yang masing-masing mencapai 115 dan 147,2 mg/g dikarenakan adanya kemungkinan penyangga γ -Al₂O₃ ikut bereaksi dengan SO₂ membentuk senyawa Al₂(SO₄)₃ (Yoo dkk., 1996; Wittayakun dkk., 2002; Yu dkk., 2007; David dkk., 2016)

Penambahan silika pada konsentrasi tertentu saat pembuatan penyangga γ -Al₂O₃ atau *mesoporous* γ -Al₂O₃ dapat meningkatkan stabilitas *thermal* penyangga (Horiuchi dkk., 1999; Kosuge dan Ogata, 2010; Mardkhe dkk., 2015). Hasil penelitian sebelumnya memperlihatkan bahwa, adsorben CuO/ γ -Al₂O₃-SiO₂ dengan kandungan Cu sekitar 8%-berat adsorben memiliki luas permukaan yang cukup besar yaitu 148 m²/g namun nilai ini masih lebih rendah dibandingkan dengan adsorben CuO/ γ -Al₂O₃ yang mencapai 196,11 m²/g. Penelitian yang dilakukan oleh Wittayakun dkk (2002) memperlihatkan bahwa kapasitas adsorpsi SO₂ adsorben berpenyangga modernite atau Al₂O₃-SiO₂ tidak sebesar adsorben berpenyangga γ -Al₂O₃ yaitu berkisar antara 23 s.d 30 mg/g adsorben. Namun demikian, penambahan SiO₂ pada penyangga γ -Al₂O₃ pada pembuatan adsorben berbasis oksida logam CuO/ γ -Al₂O₃ dapat menurunkan potensi penyangga γ -Al₂O₃ ikut bereaksi dengan gas SO₂ karena senyawa SiO₂ cukup *inert* terhadap gas SO₂ (Kiel dkk., 1992).

Kinerja adsorben CuO/ γ -Al₂O₃-SiO₂ dapat diketahui dari banyaknya jumlah SO₂ yang diserap oleh adsorben. Progres konsentrasi SO₂ dalam aliran gas keluar reaktor dapat memperlihatkan kinerja adsorben dan lama waktu adsorben mencapai kejenuhan. Beberapa penelitian terdahulu menggunakan analisis termogravimetri (tga) untuk mengukur kinerja adsorben seperti gavaskar dan Abbasian (2006) dan Yu dkk. (2007). Uji kinerja adsorben CuO/ γ -Al₂O₃-SiO₂ dilakukan dalam reaktor unggun diam (*fixed bed reactor*) dengan beberapa pertimbangan diantaranya adalah reaktor jenis ini banyak digunakan oleh peneliti-peneliti sebelumnya dan pengoperasiannya relatif lebih mudah serta praktis. Pada uji kinerja adsorben tersebut akan diperoleh kurva *breaktrough* yang dapat mewakili unjuk kerja adsorben yang digunakan. Kurva *breaktrough* merupakan perbandingan konsentrasi SO₂ dalam gas umpan keluar reaktor dengan sebelum reaktor yang memiliki nilai pada rentang 0 s.d 1. Selain kurva *breaktrough*, unjuk kerja adsorben CuO/ γ -Al₂O₃-SiO₂ dalam mengadsorpsi SO₂ dapat dilihat dari kapasitas adsorpsinya.

METODE PENELITIAN

Alat dan Bahan Penelitian

Alat yang digunakan adalah oven, *furnace*, *beaker glass*, thermometer, gelas ukur, *hot plate*, batang pengaduk, pipet tetes, batang statif, nearca analitik, sendo, Erlenmeyer, corong, labu ukur, kaca arloji, dan rangkaian alat ydroge.

Bahan yang digunakan adalah SIRAL-10, *aquadest*, HNO₃ 65%, ammonium hidroksida 25% v/v,

Cu(NO₃)₂.3H₂O, katapal, NaOH, ydrogen peroksida 20% v/v, metil merah, dan Na₂S₂O₅.

Pembuatan Penyangga γ -Al₂O₃-SiO₂

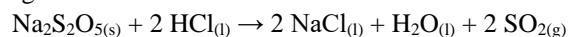
Pembuatan penyangga γ -Al₂O₃-SiO₂ (5%-berat SiO₂) dilakukan mengikuti prosedur penelitian sebelumnya. Sebanyak 6,204 gram SIRAL-10 sebagai sumber alumina dan 6,67 gram Katapal-B sebagai sumber silika dicampurkan untuk mendapatkan 10 gram penyangga γ -Al₂O₃-SiO₂. *Aquadest* (16,59 mL) ditambahkan ke dalam campuran sambil diaduk kemudian di tambahkan larutan HNO₃ (5%-volume) sebanyak 4,57 mL di aduk kembali selama 30 menit hingga terbentuk gel. Selanjutnya 1,54 mL ammonium hidroksida (25%-volume) ditambahkan kedalam campuran dan diaduk hingga kalis. Endapan dicetak dan dikeringkan pada suhu kamar selama 30 menit kemudian dilanjutkan dengan pengeringan di dalam oven selama 2 jam pada suhu 120°C. Terakhir campuran dikalsinasi selama 2 jam pada suhu 550°C.

Pembuatan Adsorben CuO/ γ -Al₂O₃-SiO₂

Larutan garam prekursor Cu(NO₃)₂.6H₂O, dengan jumlah tertentu ditambahkan sedikit demi sedikit ke dalam bahan penyangga γ -Al₂O₃-SiO₂ untuk mendapatkan konsentrasi logam Cu sekitar 8, 15, dan 20%-berat adsorben. Campuran larutan garam nitrat dan penyangga diaduk pada suhu kamar selama 1 jam, dilanjutkan pemanasan pada suhu 50°C sambil tetap diaduk selama 8 jam sampai semua larutan terserap merata dipermukaan penyangga. Selanjutnya penyangga yang sudah ditemplei larutan tembaga nitrat dicuci dengan *aquadest* berulang kali kemudian dikeringkan pada suhu 120°C selama 5 jam serta terakhir dikalsinasi pada suhu 400°C selama 8 jam.

Pembuatan Gas SO₂

Prosedur pembuatan gas SO₂ mengikuti penelitian yang dilakukan oleh Yuono dkk (2015). Sebanyak 1.320 mL gas SO₂ diinjeksikan ke dalam *mixed tank* berukuran volume 22,4 L dan dicampurkan dengan udara sampai dengan diperoleh konsentrasi SO₂ yang diinginkan yaitu sekitar 10.000 ppmv. Reaksi pembuatan gas SO₂ adalah sebagai berikut.



Campuran udara dan gas SO₂ terlebih dahulu dianalisa sebelum dialirkan kedalam eactor yang berisi adsorben menggunakan metode titrasi. Sebelum dititrasi, campuran udara dan gas SO₂ dialirkan kedalam impinger yang berisi larutan H₂O₂ (20%-volume) sebanyak 30 mL dan membentuk larutan H₂SO₄. Selanjutnya larutan H₂SO₄

ditetesi dengan metil merah sebanyak 5 s.d 6 tetes kemudian dititrasi menggunakan larutan NaOH 0,1 M. Titrasi dihentikan saat terjadi perubahan warna larutan dari merah bata menjadi orange kemudian volume NaOH sebagai penitran dicatat dan dikonversikan menjadi jumlah atau konsentrasi SO₂ didalam umpan. Campuran udara dan gas SO₂ dapat digunakan sebagai gas umpan apabila konsentrasi gas SO₂ berkisar antara 9000 s.d 11000 ppmv. Penggunaan konsentrasi gas SO₂ pada rentang ini disebabkan karena sangat sulit untuk mendapatkan konsentrasi gas SO₂ dalam umpan yang benar-benar tepat 10.000 ppmv.

Uji Kinerja Adsorben CuO/γ-Al₂O₃-SiO₂ dalam Menjerap Gas SO₂ dalam Reaktor Fixed Bed

Reaktor bervolume 40 mL yang berisi adsorben dengan jumlah 2, 4, atau 8 gram dipanasi sampai temperaturnya mencapai 300°C. selanjutnya campuran udara dan gas SO₂ dari *mixed tank* yang dialirkan secara terus-menerus kedalam reaktor dengan laju sekitar 1,5 s.d 1,8 mL/menit selama 35 menit. Campuran udara dan gas SO₂ keluaran reaktor SO₂ dianalisa dengan metode yang sama dengan analisa campuran udara dan gas SO₂ dalam umpan. Pengukuran dilakukan setiap 5 menit sekali sehingga total jumlah data yang diperoleh setiap percobaan sebanyak 7 data.

Perhitungan Persentase Gas SO₂ yang diserap Adsorben CuO/γ-Al₂O₃-SiO₂

Persentase gas SO₂ yang diserap adsorben γ-Al₂O₃-SiO₂ dapat dihitung menggunakan persamaan (1) berikut ini.

Jumlah gas SO₂ yang diserap adsorben γ-Al₂O₃-SiO₂ =

$$\frac{\text{Jumlah SO}_2 \text{ mengalir kedalam reaktor} - \text{Jumlah SO}_2 \text{ mengalir keluar reaktor}}{\text{massa SO}_2 \text{ mengalir masuk kedalam reaktor}} \times 100\% \quad \dots(1)$$

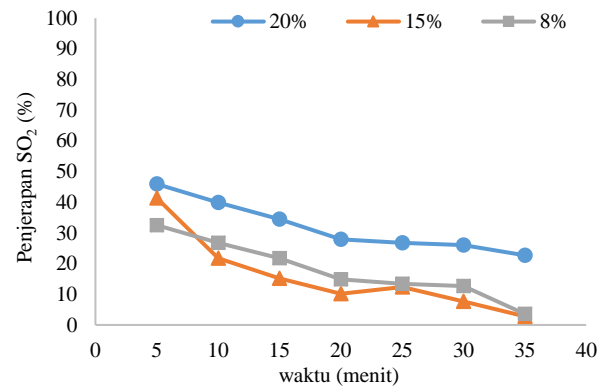
Jumlah SO₂ dalam aliran campuran udara dan gas SO₂ yang masuk kedalam reaktor diasumsikan sama setiap 5 menit pengukuran. Sedangkan untuk jumlah gas SO₂ dalam aliran gas keluar reaktor diukur dari banyaknya gas SO₂ yang diserap oleh larutan H₂O₂ (20%-volume) setiap 5 menit selama 35 menit percobaan.

HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN

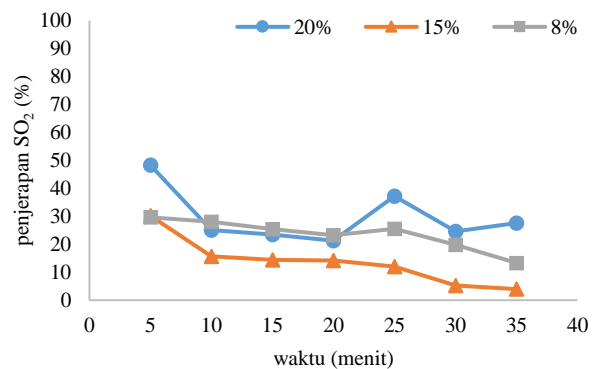
Kemampuan adsorben CuO/γ-Al₂O₃-SiO₂ dalam menjerap SO₂ dilihat dari seberapa besar persentase penjerapan gas SO₂ pada setiap percobaan pada berbagai kandungan Cu dan jumlah adsorben.

Pengaruh Kandungan Cu terhadap persen penyerapan SO₂

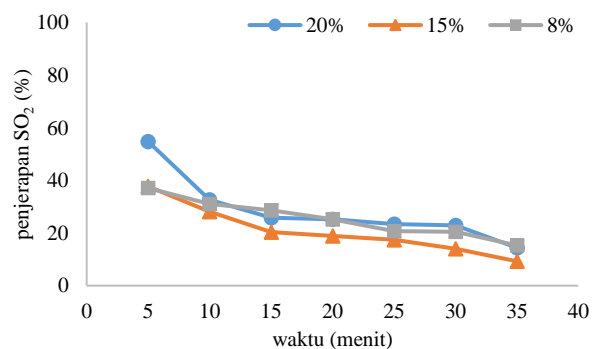
Banyaknya gas SO₂ dalam umpan yang dapat diserap oleh adsorben pada berbagai jumlah atau kandungan logam Cu dalam adsorben ditampilkan pada Gambar 1 s.d Gambar 3.



Gambar 1 Persentase penjerapan SO₂ pada jumlah adsorben 2 gram



Gambar 2 Persentase penjerapan SO₂ pada berat adsorben 4 gram



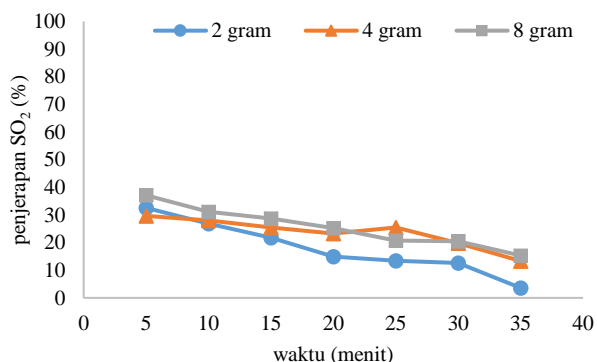
Gambar 3 Persentase penjerapan SO₂ pada berat adsorben 8 gram

Gambar 1 s.d. Gambar 3 memperlihatkan bahwa kandungan Cu dalam adsorben mempengaruhi tingkat penjerapan SO₂. Namun peningkatannya tidak linier

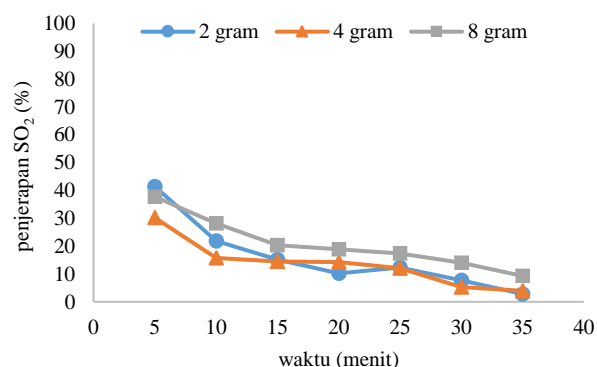
dengan peningkatan kandungan logam Cu. Pada penelitian ini, persentase penjerapan SO₂ tertinggi terjadi pada adsorben CuO/γ-Al₂O₃-SiO₂ dengan kandungan logam Cu sekitar 20 %-berat adsorben. Logam Cu atau senyawa CuO merupakan fasa aktif didalam adsorben yang menjadi media pereaksi atau reaktan yang bereaksi dengan SO₂ membentuk CuSO₄. Hasil ini bertolak belakang dengan penelitian yang dilakukan oleh Bahrin, dkk (2016) dimana hasil terbaik didapatkan pada % Cu sebesar 8% dan penelitian McCrea, dkk (1970) yang menyatakan konsentrasi optimum Cu sebesar 4-6% w/w.

Pengaruh Jumlah Adsorben terhadap Persen Penyerapan SO₂

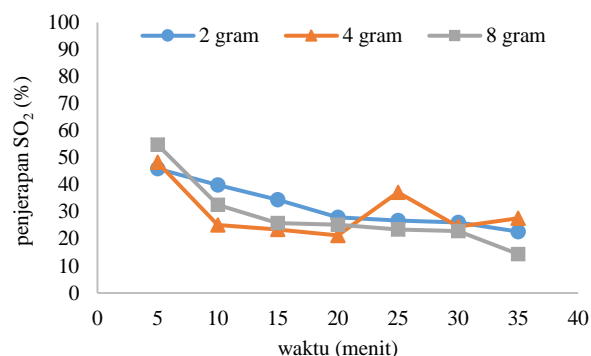
Banyaknya gas SO₂ dalam umpan yang dapat diserap oleh adsorben CuO/γ-Al₂O₃-SiO₂ pada berbagai jumlah adsorben ditampilkan pada Gambar 4 s.d Gambar 6 berikut ini.



Gambar 4 Persentase penjerapan SO₂ pada konsentrasi Cu 8%-berat adsorben



Gambar 5 Persentase penjerapan SO₂ pada konsentrasi Cu 15%-berat adsorben



Gambar 6 Persentase penjerapan SO₂ pada konsentrasi Cu 20%-berat adsorben

Berdasarkan hasil dari analisa persen penjerapan gas SO₂ keluaran reaktor pada variasi logam Cu sekitar 8 dan 15%-berat adsorben (Gambar 4 dan Gambar 5) menunjukkan bahwa semakin besar jumlah adsorben yang digunakan maka tingkat penjerapan gas SO₂ keluaran reaktor akan semakin tinggi. Semakin besar jumlah adsorben dalam reaktor menyebabkan gas campuran berupa udara dan gas SO₂ akan semakin lama kontak dengan adsorben sehingga peluang SO₂ bereaksi dengan fasa aktif adsorben semakin besar (Bahrin, 2017).

KESIMPULAN

Kesimpulan dari penelitian ini adalah

1. Tingkat penyerapan SO₂ terbaik terjadi pada kandungan logam Cu sekitar 20%-berat adsorben dan jumlah adsorben 8 gram.
2. Semakin tinggi % Cu dan jumlah adsorben, maka % penjerapan gas SO₂ semakin tinggi.
3. Persentase penjerapan gas SO₂ cenderung menurun dengan bertambahnya waktu proses adsorpsi.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penelitian ini dibiayai dari skema dana penelitian SATEKS Fakultas Teknik Universitas Sriwijaya tahun 2020.

DAFTAR PUSTAKA

- Bahrin, D., Subagjo, dan Susanto, H., (2016). Kinetic Study on the SO₂ Adsorption using CuO/γ-Al₂O₃ Adsorbent, Bulletin of Chemical Reaction Engineering & Catalysis, 11 (1), 93-99.
- Bahrin, D. (2017). Adsorpsi SO₂ dengan Adsorben CuO/γ-Al₂O₃ dalam Reaktor Unggun Diam, Disertasi

Program Sudi Doktor Teknik Kimia, Institut Teknologi Bandung.

- Buelna, G., dan Lin, Y.S. (2003). Combined removal of SO₂ and NO using sol-gel-derived copper oxide coated alumina sorbents/catalysts, *Environmental Technology*, 24, 1087-1095.
- Horiuchi, T., Chen, L., Osaki, T., Sugiyama, T., Suzuki, K., dan Mori, T., (1999). A Novel Alumina Catalyst Support with High Thermal Stability Derived from Silica-Modified Alumina Aerogel, *Catalysis Letters*, 58, 89-92.
- Kiel, J.H.A., Prins, W., dan Swaaij, V.P.M. (1992). Performance of silica-supported copper oxide sorbent for SO_x/NO_x-removal from flue gas, 1. Sulfur dioxide absorption and regeneration kinetics, *Applied Catalysis B: Environmental*, 1 (1), 13-39.
- Kosuge, K., dan Ogata, A., (2010). Effect of SiO₂ Addition on Thermal stabilitas of Mesoporous γ -Al₂O₃ Composed of Nanocrystallites, Microporous and Mesoporous Material, 135, 60-65.
- Mardkhe, M.K., Huang, B., Bartholomew, C.H., Alam, T.M., dan Woodfield., B.F. (2015). Synthesis and characterization of silica doped alumina catalyst support with superior thermal stability and unique pore properties, *Journal of Porous Material*.
- Mathieu, Y., Tzanis, L., Soulard, M., Patarin, J., Vierling, M., dan Moliere, M. (2013). Adsorption of SO_x by oxide materials: a review, *Fuel Processing Technology*, 114, 81-100.
- Wittayakun, J., Mahachanon, K., dan Grisdanurak, N. (2002). Adsorption of sulfur dioxide by copper oxide supported on alumina and modernite, *Proceeding of Asian Pacific Confederation of Chemical Engineering (APCCHE)*, Christchurch, New Zealand.
- Xie, G., Liu, Z., Zhu, Z., Liu, Q., dan Ma, J. (2003). Reductive regeneration of sulfated CuO/Al₂O₃ catalyst sorbent in ammonia, *Applied Catalysis B: Environment*, 45, 213-221.
- Yoo, K.S., Jeon, S.M., Kim, S.D., dan Park, S.B. (1996). Regeneration of sulfated alumina support in CuO/ γ -Al₂O₃ sorbent by hydrogen, *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 35, 1543-1549.
- Yu, Q., Zhang, S., dan Wang, X. (2007): Thermogravimetric study of CuO/ γ -Al₂O₃ sorbents for SO₂ in simulated flue gas, *Industrial and Engineering Chemistry Research*, 46, 1975-1980.
- Yuono, Bahrin, D., dan Susanto, H. (2015). Preparation and characterization of CuO/ γ -Al₂O₃ for adsorption of SO₂ in flue gas, *Modern Applied Science*, 9, 107-113.