



# Kinetika Proses Ekstraksi Katalis Bekas Ni/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dengan Pelarut Asam Sulfat: Model *Shrinking Core* dan Model *Lump*

Elsha Pamida Bahri<sup>1</sup>, Ivanna Crecentia Narulita Simanungkalit<sup>2</sup>, Ratna Frida Susanti<sup>3</sup>, Gelar Panji Gemilar<sup>4</sup>, Widi Astuti<sup>5</sup>, Himawan Tri Bayu Murti Petrus<sup>6</sup>, Kevin Cleary Wanta<sup>7\*</sup> 

<sup>1,2,3,7</sup> Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknologi Industri, Universitas Katolik Parahyangan, Bandung, Indonesia

<sup>4</sup> PT Petrokimia Gresik, Gresik, Indonesia

<sup>5</sup> Balai Penelitian Teknologi Mineral, Badan Riset dan Inovasi Nasional, Tanjung Bintang, Indonesia

<sup>6</sup> Departemen Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta, Indonesia

## ARTICLE INFO

### Article history:

Received August 28, 2022

Accepted July 19, 2023

Available online October 25, 2023

### Kata Kunci:

Ekstraksi, Katalis Bekas, Kinetika, Model *Lump*, Model *Shrinking Core*

### Keywords:

Extraction, Spent Catalysts, Kinetics, Lump Model, Shrinking Core Model



This is an open access article under the [CC BY-SA](https://creativecommons.org/licenses/by-sa/4.0/) license.

Copyright © 2023 by Author. Published by Universitas Pendidikan Ganesha.

## ABSTRAK

Tahapan *scale-up* dari suatu proses kimia, kinetika atau mekanisme dari proses tersebut perlu untuk dipelajari. Hal ini dilakukan untuk meminimalkan kesalahan dalam tahap perancangan suatu alat proses. Studi kali ini bertujuan untuk mengevaluasi model matematika yang dapat menggambarkan fenomena riil dari proses ekstraksi katalis bekas Ni/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dengan menggunakan pelarut asam sulfat (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>). Studi ini melibatkan dua tahapan utama, yaitu tahap pengambilan data eksperimen dan tahap simulasi model matematika terhadap data eksperimen. Data untuk studi kinetika diperoleh melalui eksperimen proses ekstraksi dalam kondisi atmosferis di mana temperatur operasi divariasikan pada 30, 60, dan 85°C. Larutan asam sulfat yang digunakan memiliki konsentrasi 1 M, sedangkan ukuran partikel katalis kurang 74 mikron. Proses ekstraksi dilakukan selama 120 menit dengan pengambilan sampel secara berkala. Kandungan nikel pada sampel tersebut dianalisis dengan menggunakan instrumen *Atomic Absorption Spectroscopy* (AAS). Hasil eksperimen menunjukkan bahwa pada temperatur 85°C dan waktu ekstraksi 120 menit, nikel yang diperoleh paling banyak dibandingkan kondisi operasi lainnya, yaitu sebesar 16,95%. Studi kinetika terhadap data eksperimen tersebut menunjukkan bahwa model *lump* merupakan model kinetika terbaik untuk menggambarkan fenomena fisis yang terjadi selama proses ekstraksi ini berlangsung. Model *lump* memberikan persentase kesalahan rata-rata yang lebih kecil dibandingkan model *shrinking core*. Hal ini mengindikasikan bahwa tahapan difusi internal dan reaksi kimia merupakan tahapan yang mengendalikan proses ekstraksi ini.

## ABSTRACT

To perform a *scale-up* step of a chemical process, the kinetics or mechanism of the process needs to be studied. It is done to minimize errors in the design step of a process unit. This study aims to evaluate a mathematical model that can describe the real phenomenon of the extraction process of the spent catalysts Ni/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> using sulfuric acid (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) as a solvent. This study involves two main steps, namely the step of taking experimental data and the step of simulating the mathematical models on experimental data. The data for the kinetic study were obtained through the experiment for the extraction process under atmospheric condition where the operating temperatures were varied at 30, 60, and 85°C. The sulfuric acid solution used has a concentration of 1 M, while the particle size of the catalysts is <74 microns. The extraction process was carried out for 120 minutes with periodic sampling. The nickel content in that sample was analyzed using the Atomic Absorption Spectroscopy (AAS). The experimental results show that at a temperature of 85°C and an extraction time of 120 minutes, the nickel obtained is the most compared to other operating conditions, which is 16.95%. The kinetic study of the experimental data shows that the lump model is the best kinetic model to describe the physical phenomena that occur during the extraction process. The lump model gives a smaller average error percentage than the shrinking core model. This indicates that the internal diffusion and chemical reactions are the stages that control this extraction process.

## 1. PENDAHULUAN

Unsur logam merupakan unsur yang penting karena dapat diaplikasikan pada berbagai industri. Akibatnya, kebutuhan akan logam menjadi sangat tinggi dan memerlukan sumber daya mineral yang banyak serta beragam untuk memenuhi kebutuhan tersebut. Sampai saat ini, sumber daya mineral logam yang paling banyak digunakan adalah sumber daya mineral primer, seperti bijih (*ore*) atau konsentrat. Akan tetapi, untuk jangka panjang, ketergantungan terhadap sumber daya mineral primer ini bukanlah pilihan yang bijak dan tepat. Hal ini disebabkan bijih (*ore*) dan konsentrat digolongkan sebagai sumber daya mineral yang tidak terbarukan. Oleh karena itu, sumber daya mineral alternatif perlu untuk dicari dan digunakan sebagai pengganti dari penggunaan bijih (*ore*) dan konsentrat. Sumber daya mineral lain yang dapat

\*Corresponding author.

E-mail addresses: [kcwanta@unpar.ac.id](mailto:kcwanta@unpar.ac.id) (Kevin Cleary Wanta)

digunakan adalah sumber daya mineral sekunder di mana sumber daya mineral ini memanfaatkan limbah padat yang masih banyak mengandung berbagai macam unsur atau senyawa logam dan dalam kadar yang masih tinggi. Contoh sumber daya mineral sekunder ini adalah katalis bekas (*spent catalysts*), baterai bekas (*spent batteries*), dan limbah elektronik (*e-waste*) (Nugroho et al., 2021; Raghupathy & Chaturvedi, 2013).

Katalis bekas (*spent catalysts*) merupakan katalis yang sudah tidak layak untuk digunakan lagi dalam menjalankan reaksi kimia. Hal ini terjadi karena katalis tersebut telah mencapai kondisi jenuh dan sudah tidak efektif untuk digunakan lagi (Chiranjeevi et al., 2016). Penggantian katalis ini akan menimbulkan masalah lain, khususnya permasalahan lingkungan. Katalis bekas dikategorikan sebagai limbah padat yang berbahaya dan beracun karena kandungan logam berat yang tinggi. Beberapa logam berat yang biasanya terkandung di dalam katalis bekas ini adalah besi (Fe), aluminium (Al), nikel (Ni), kobalt (Co), molybdenum (Mo), lanthanum (La), vanadium (V), dan lainnya (Mangini et al., 2020; Marafi & Rana, 2018; Pradhan et al., 2020; Sposato et al., 2021; Wiecka et al., 2020). Pembuangan katalis ini tidak dapat dilakukan secara sembarangan. Salah satu cara untuk meminimalkan tingkat bahaya dari pembuangan limbah katalis ini adalah mengambil kembali (*recover*) berbagai logam berat yang ada pada katalis tersebut. Cara ini tidak hanya menyelesaikan persoalan pembuangan katalis bekas saja sehingga tidak mencemari lingkungan, melainkan juga cara ini dapat menjadi solusi untuk memenuhi kebutuhan logam yang tinggi dan tidak bergantung pada sumber daya mineral primer. Hal tersebut dapat dilakukan karena hasil pengambilan kembali (*recover*) logam dari katalis bekas dapat dimurnikan dan dimanfaatkan untuk berbagai aplikasi. Dalam bidang metalurgi, proses pengambilan kembali logam dari suatu sumber daya mineral dapat dilakukan dengan menggunakan proses ekstraksi padat-cair atau biasanya dikenal sebagai proses hidrometalurgi. Studi terkait proses ini, khususnya kondisi operasi proses dalam skala laboratorium sudah banyak dilakukan oleh banyak peneliti dan memberikan hasil yang baik. Untuk itu, pengaplikasian proses ini dalam skala industri layak untuk dipertimbangkan. Untuk mengubah proses ekstraksi ini dari skala laboratorium ke skala industri, tahapan *scale-up* tidak dapat dilakukan secara langsung dan linier. Oleh karena itu, studi kinetika terkait proses ekstraksi perlu dilakukan dengan layak. Hal ini dibutuhkan supaya alat proses (ekstraktor) untuk skala industri dapat dirancang sesuai dengan fenomena riil yang terjadi baik dalam skala laboratorium maupun skala industri.

Studi kinetika proses ekstraksi melibatkan suatu model kinetika di mana penggambaran mekanisme yang terjadi selama proses ekstraksi dinyatakan dalam suatu persamaan matematika. Selama ini, berbagai studi kinetika untuk proses ekstraksi logam menunjukkan bahwa model *shrinking core* (SCM) merupakan model yang cocok untuk mengilustrasikan mekanisme proses ekstraksi ini (Dong, Y.-bo, Liu & Lin, 2018; J. Li et al., 2020; Liu et al., 2019; Mohanty et al., 2021; Rogozhnikov et al., 2019; Yaraş & Arslanoğlu, 2020). Namun, dalam beberapa kasus, pengaplikasian SCM kurang menunjukkan hasil yang baik (Mirwan et al., 2017; Setiawan et al., 2019; Wanta et al., 2022). Kedua kondisi ini mengindikasikan bahwa kecocokan suatu model kinetika tidak dapat digeneralisasi terhadap suatu proses yang sejenis. Dengan kata lain, perbedaan kondisi operasi dari suatu proses dapat memengaruhi kecocokan terhadap suatu model kinetika. Kondisi ini dapat terjadi karena mekanisme yang terjadi selama proses ekstraksi berlangsung juga berbeda-beda. Tujuan studi kali ini adalah menganalisis kinetika proses ekstraksi katalis bekas dari proses *reforming* di PT Petrokimia Gresik dengan menggunakan pelarut asam sulfat (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>). Studi tersebut dilakukan dengan mengevaluasi model matematika yang mengilustrasikan mekanisme dari proses ekstraksi tersebut. Hasil dari studi ini menjadi dasar dalam proses perancangan ekstraktor, ekstraktor yang akan terancang merupakan unit yang sesuai dengan mekanisme riil yang terjadi selama proses ekstraksi ini.

## 2. METODE

Bahan baku utama yang digunakan dalam studi ini adalah katalis bekas Ni/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Katalis ini merupakan limbah padat yang berasal dari unit *reforming* di PT. Petrokimia Gresik. Katalis ini mengandung beberapa unsur logam seperti yang tersaji pada Tabel 1.

**Tabel 1.** Komposisi Katalis Bekas Ni/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Unsur	Komposisi, %b
Al	16,67
Ni	6,50
Ca	3,30
Si	0,41
S	0,18
Fe	0,08
K	0,04
Cr	0,02

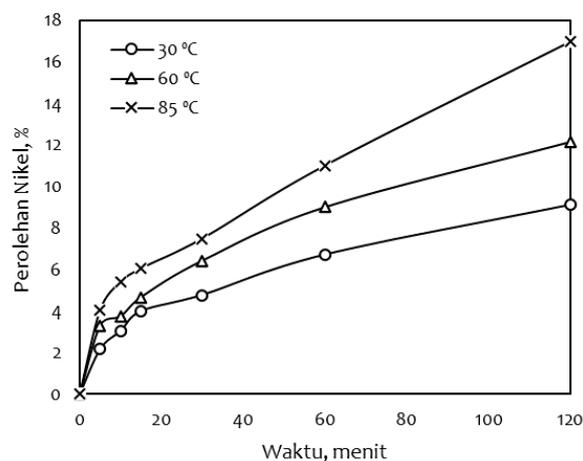
Selain itu, asam sulfat ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) digunakan sebagai pelarut. Seluruh bahan kimia dilarutkan dengan menggunakan air demin. Alat penelitian dalam melakukan proses ekstraksi ini, alat utama yang digunakan adalah suatu rangkaian alat ekstraktor yang terdiri dari labu leher tiga, motor pengaduk, kondensor, *waterbath*, *thermostat*, dan termometer. Selain itu, *Atomic Absorption Spectroscopy* (AAS) digunakan untuk menganalisis sampel, khususnya menganalisis kandungan logam dalam sampel cair. Studi kinetika untuk proses ekstraksi katalis bekas ini dilakukan dengan menggunakan data yang diambil secara langsung dari suatu eksperimen. Proses ekstraksi ini berlangsung dengan menggunakan larutan asam sulfat ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) pada konsentrasi 1 M. Larutan asam sulfat sebanyak 180 mL dimasukkan ke dalam labu leher tiga. Setelah alat dirangkai, larutan tersebut dipanaskan hingga mencapai temperatur yang diinginkan. Pada studi ini, temperatur operasi divariasikan pada 30, 60, dan 85°C. Kemudian, setelah temperatur operasi yang diinginkan tercapai, padatan katalis dengan ukuran <74 mikron dimasukkan ke dalam ekstraktor sebanyak 36 gram. Pemasukan padatan ini terhitung sebagai waktu ke-0. Proses ekstraksi ini berlangsung selama 120 menit. Selama waktu operasi tersebut, pengambilan sampel dilakukan secara berkala pada 5, 10, 15, 30, 60, dan 120 menit. Fasa cair dari sampel dipisahkan dari fasa padatnya dengan menggunakan metode sentrifugasi. Fasa cair ini dianalisis kadar nikel yang terkandung di dalamnya dengan menggunakan AAS.

Data yang diperoleh dari hasil analisis dengan AAS adalah konsentrasi nikel yang terkandung pada sampel. Konsentrasi ini dapat didefinisikan sebagai berapa banyak nikel yang berhasil terekstrak selama waktu operasi tertentu. Supaya data tersebut lebih standar dan dapat dibandingkan, parameter persentase perolehan nikel. Terdapat dua model kinetika dari proses ekstraksi yang dipelajari pada studi ini. Kedua model tersebut adalah model *shrinking core* (SCM) dan model *lump*. Pada model pertama, SCM diaplikasikan terhadap data eksperimen di mana persamaan yang digunakan tersaji pada persamaan (2) hingga (4) (Z. Li et al., 2021; Wanta et al., 2017). Untuk model kedua, model *lump* juga akan dievaluasi terhadap data percobaan di mana persamaan yang digunakan adalah persamaan (5) (Wanta et al., 2020). Penentuan model kinetika terbaik dilakukan dengan membandingkan nilai persentase kesalahan antara data percobaan dengan data simulasi dari kedua model. E merupakan persentase kesalahan,  $x_{\text{data}}$  merupakan persentase perolehan nikel dari data eksperimen, dan  $x_{\text{simulasi}}$  merupakan persentase perolehan nikel dari hasil simulasi model kinetika.

### 3. HASIL DAN PEMBAHASAN

#### Hasil

Pengaruh temperatur dan waktu operasi terhadap perolehan nikel, untuk studi kinetika dari proses ekstraksi katalis bekas Ni/ $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ , data perolehan nikel diperoleh dengan memvariasikan temperatur operasi pada rentang 30–85°C. Proses ekstraksi ini menggunakan larutan asam sulfat dengan konsentrasi 1 M. Hasil perolehan nikel dari proses ekstraksi yang berlangsung selama 120 menit tersaji pada Gambar 1.



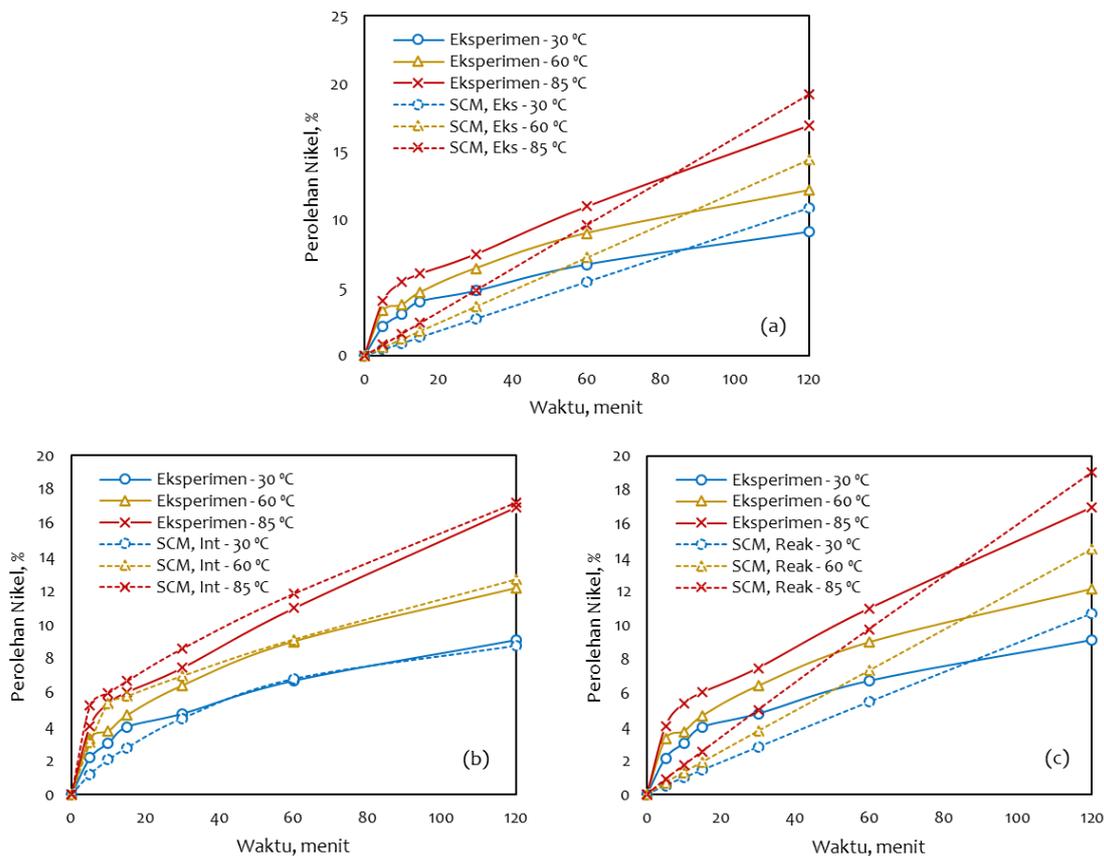
**Gambar 1.** Pengaruh Temperatur dan Waktu Operasi dalam Proses Ekstraksi Katalis Bekas dengan Larutan Asam Sulfat 1 M

Simulasi Model *Shrinking Core* (SCM) terhadap data perolehan nikel. Model matematika pertama yang dievaluasi terhadap data eksperimen adalah SCM. Terdapat tiga pendekatan yang digunakan dalam simulasi SCM ini, yaitu pendekatan di mana difusi eksternal, difusi internal, dan

reaksi kimia yang menjadi pengendali proses ekstraksi. Hasil simulasi model ini tersaji pada [Tabel 2](#), dan [Gambar 2](#).

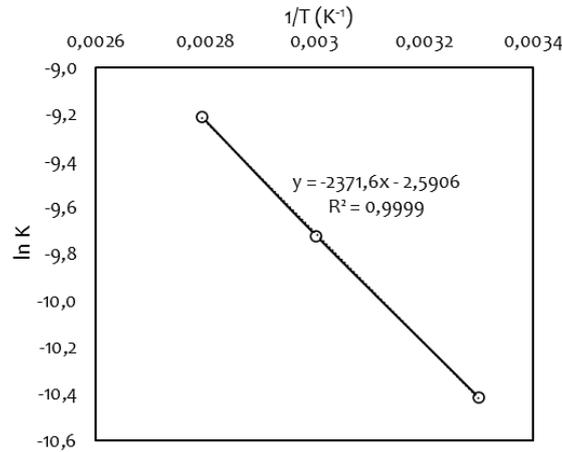
**Tabel 2.** Hasil Simulasi Model *Shrinking Core* terhadap Proses Ekstraksi Katalis Bekas Ni/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dengan Larutan Asam Sulfat 1 M

Suhu, °C	Konstanta Laju Proses, $\times 10^{-5}$ menit <sup>-1</sup>	Koefisien Determinasi (R <sup>2</sup> )	Persentase Kesalahan Rata-Rata, %
<b>Difusi Eksternal sebagai Pengendali Proses</b>			
30	90,4	0,904	42,39
60	120,4	0,879	41,92
85	160,1	0,871	38,93
<b>Difusi Internal sebagai Pengendali Proses</b>			
30	3,35	0,979	17,05
60	5,62	0,988	12,74
85	9,81	0,994	10,86
<b>Reaksi Kimia sebagai Pengendali Proses</b>			
30	30,6	0,876	40,21
60	41,2	0,887	40,19
85	55,6	0,913	36,93

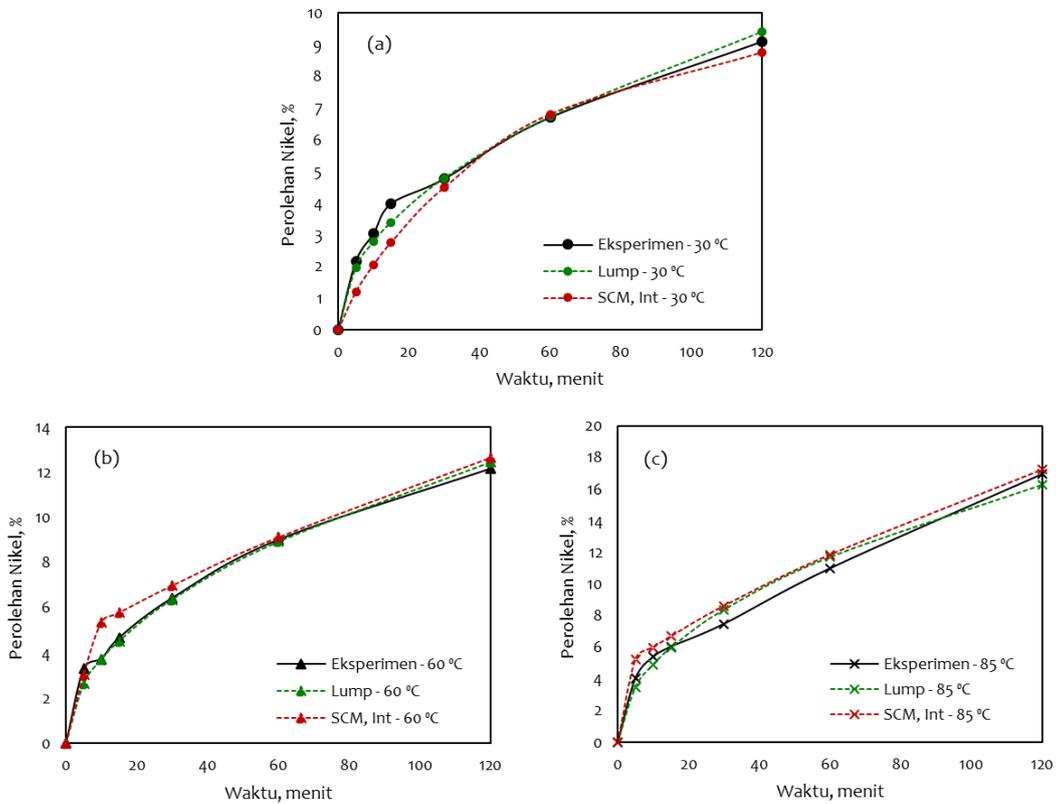


**Gambar 2.** Perbandingan Data Eksperimen dan Data Simulasi Model *Shrinking Core* saat Tahap (a) Difusi Eksternal, (b) Difusi Internal, dan (c) Reaksi Kimia Mengendalikan Proses Ekstraksi Katalis Bekas Ni/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dengan Larutan Asam Sulfat 1 M

SCM ini dievaluasi parameter energi aktivasi ( $E_a$ ). Penentuan nilai energi aktivasi ini dilakukan terhadap SCM dengan pendekatan difusi internal sebagai pengendali proses ekstraksi. Hasil penentuan nilai dari parameter ini tersaji pada [Gambar 3](#). Simulasi model *lump* terhadap data perolehan nikel. Model matematika selanjutnya yang dievaluasi adalah model *lump* di mana hasil simulasi terhadap model ini tersaji pada [Gambar 4](#).

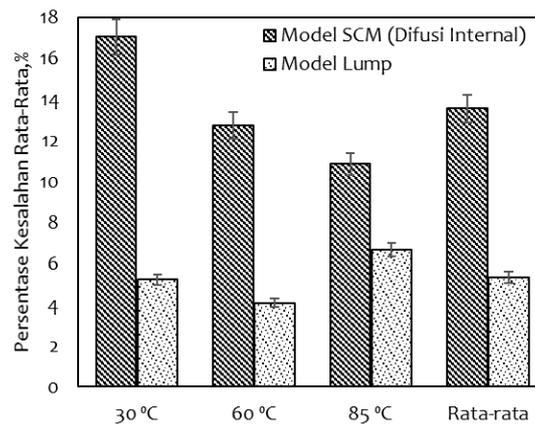


**Gambar 3.** Penentuan Nilai Energi Aktivasi dengan SCM dimana Tahap Difusi Internal sebagai Pengendali Proses Ekstraksi



**Gambar 4.** Perbandingan Hasil Simulasi Model *Lump* dengan SCM dimana Tahap Difusi Internal Mengendalikan Proses Ekstraksi Katalis Bekas Ni/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dengan Larutan Asam Sulfat 1 M terhadap Data Eksperimen saat Temperatur (a) 30, (b) 60, dan (c) 85°C Reaksi Kimia

Perbandingan SCM dengan Model *Lump*, penentuan model matematika terbaik ditentukan dari nilai kesalahan kedua model tersebut. Perbandingan dari kesalahan kedua model matematika tersaji pada Gambar 5.



**Gambar 5.** Perbandingan Nilai Persentase Kesalahan Rata-Rata dari Model SCM (Difusi Internal) dengan Model Lump

### Pembahasan

Temuan pertama, pengaruh temperatur dan waktu operasi dalam proses ekstraksi katalis bekas Ni/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Selama proses ekstraksi berlangsung, banyak faktor atau kondisi operasi yang memengaruhi keberhasilan dari proses tersebut. Salah satu faktor terpenting dalam proses ini adalah temperatur. Temperatur memiliki pengaruh besar dalam menentukan laju proses ekstraksi, baik dalam tahap difusi maupun tahap reaksi kimia. [Gambar 1](#) menunjukkan bahwa peningkatan nilai temperatur menyebabkan nikel yang terekstrak semakin banyak. Hasil percobaan menunjukkan bahwa persentase perolehan nikel tertinggi dicapai hingga 16,95% saat proses ekstraksi berlangsung selama 120 menit pada temperatur 85°C. Apabila hasil ini dibandingkan dengan data eksperimen pada temperatur 30 dan 60°C, maka perolehan nikel pada temperatur 85°C meningkat sebesar 1,39 kali (dibandingkan dengan temperatur 60°C) dan 1,86 kali (dibandingkan dengan temperatur 30°C). Fenomena yang terjadi pada studi ini sudah sejalan dengan berbagai teori atau studi sejenis lainnya yang pernah dilakukan sebelumnya ([Ilyas et al., 2020](#); [Wu et al., 2018](#); [Zhang et al., 2020](#)). Faktor temperatur memiliki pengaruh yang besar terhadap pergerakan molekul dalam sistem. Peningkatan temperatur menyebabkan semakin besar energi kinetik pada setiap molekul dalam sistem. Akibatnya, frekuensi tumbukan antarmolekul, khususnya molekul reaktan, akan lebih sering terjadi sehingga reaksi kimia juga akan berlangsung lebih cepat. Selain faktor ini memengaruhi reaksi kimia, temperatur yang tinggi juga akan mengakibatkan tahap difusi berlangsung lebih cepat. Hasil penelitian tidak hanya menunjukkan pengaruh temperatur saja, melainkan juga pengaruh waktu terhadap perolehan nikel. Waktu ekstraksi yang semakin lama akan meningkatkan perolehan nikel. Hal ini terjadi pada ketiga temperatur operasi. Semakin lama waktu ekstraksi menyebabkan antarmolekul akan semakin sering bertumbukan. Dengan demikian, reaksi kimia yang terjadi pun juga akan semakin sering terjadi sehingga seluruh reaktan dapat berubah menjadi produk. Selain itu, waktu ekstraksi yang semakin lama juga menyebabkan seluruh molekul produk terdifusi dari dalam padatan ke badan cairan sehingga semakin banyak pula nikel yang terekstrak.

Model pertama yang akan dievaluasi terhadap data eksperimen yang diperoleh sebelumnya adalah model *shrinking core* (SCM). Evaluasi model ini dilakukan dengan menggunakan persamaan (2) hingga (4). Hasil simulasi SCM terhadap data eksperimen menunjukkan bahwa model di mana tahap difusi internal sebagai pengendali proses ekstraksi memberikan hasil simulasi yang cukup sesuai dengan data eksperimen. Hal ini dapat dibuktikan dari nilai koefisien determinasi, persentase kesalahan rata-rata, dan hasil *fitting* data simulasi dengan data eksperimen. Apabila dilihat dari nilai koefisien determinasi ( $R^2$ ), nilai  $R^2$  untuk SCM di mana tahap difusi internal sebagai pengendali proses memiliki nilai pada rentang 0,979–0,994 di mana nilai tersebut sudah sangat mendekati nilai terbaik dari parameter tersebut, yaitu 1. Sementara itu, untuk kedua SCM lainnya, nilai  $R^2$  nya cukup jauh dari nilai 1. Hal ini semakin diperkuat dengan melihat parameter persentase kesalahan rata-rata antara data eksperimen dengan data simulasi model. Untuk SCM dengan tahap difusi internal sebagai pengendali proses, persentase kesalahan rata-rata untuk model tersebut berada pada rentang 10,86–17,05% atau secara rata-rata bernilai 13,55%. Nilai ini jauh lebih kecil bila dibandingkan dengan kedua SCM lainnya di mana secara rata-rata, persentasenya berada pada kisaran 40%. Bukti lain yang dapat menegaskan hasil yang diperoleh adalah hasil *fitting* kedua data) terlihat jauh lebih cocok antara data eksperimen dengan data simulasi.

Hasil yang diperoleh dari evaluasi SCM ini memberikan gambaran yang cukup jelas bagaimana mekanisme yang terjadi selama proses ekstraksi berlangsung. Proses ekstraksi katalis bekas ini

digolongkan sebagai proses heterogen di mana terdapat lebih dari satu tahapan yang terlibat. Secara umum, terdapat tiga tahapan utama, yaitu tahap difusi eksternal, tahap difusi internal, dan tahap reaksi kimia. Dikarenakan hasil simulasi dengan SCM memberikan hasil terbaik pada tahap difusi internal sebagai pengendali proses ekstraksi, hal ini menunjukkan bahwa tahap difusi setiap molekul di padatan (lapisan abu) merupakan tahapan yang memiliki laju yang paling lambat dan menjadi pengendali dari seluruh rangkaian proses ekstraksi katalis bekas tersebut dengan larutan asam sulfat 1 M. Di dalam padatan katalis, terdapat suatu "jalur" di mana setiap molekul reaktan bertransportasi dari badan cairan menuju permukaan padatan yang mengandung senyawa logam. Sebaliknya, setiap molekul produk juga bertransportasi dari permukaan padatan menuju ke badan cairan. Ukuran diameter jalur ini tergolong kecil sehingga ketika seluruh molekul, baik reaktan dan produk, bertransportasi secara bersamaan, maka setiap molekul akan saling menghalangi. Hal inilah yang menyebabkan laju difusi di dalam padatan akan lebih lambat dibandingkan laju pada tahap difusi di lapisan film cairan (difusi eksternal) dan laju pada tahap reaksi kimia.

Dalam konteks proses ekstraksi, energi aktivasi merupakan energi minimum yang dibutuhkan untuk menjalankan proses ekstraksi. Nilai dari parameter ini ditentukan dengan menggunakan persamaan Arrhenius (Chen & Ho, 2018; Ebrahimzade et al., 2018). Berdasarkan hasil perhitungan tersebut, nilai frekuensi tumbukan ( $A$ ) yang diperoleh sebesar 0,075 sedangkan nilai energi aktivasi ( $E_a$ ) yang diperoleh sebesar 19,72 kJ/mol. Apabila nilai  $E_a$  ini dibandingkan dengan beberapa studi sejenis, energi aktivasi yang diperoleh dari studi ini tergolong rendah (Arslanoğlu & Yaraş, 2019; Ilhan & Akgün, 2021; Wang et al., 2022). Hal ini menunjukkan bahwa ikatan nikel dengan anion yang terdapat pada sampel katalis yang digunakan pada studi ini mudah untuk dilepas sehingga untuk melakukan proses ekstraksi ini, energi yang dibutuhkan tidak terlalu tinggi. Nilai  $E_a$  yang telah diperoleh pada perhitungan ini, proses ekstraksi pada studi ini dapat dikategorikan sebagai suatu proses di mana tahap difusi dan tahap reaksi kimia mengendalikan proses ekstraksi secara simultan (Faraji et al., 2020). Dengan demikian, studi ini dilanjutkan dengan pengujian data eksperimen terhadap model kinetika *lump*.

#### Studi Kinetika: Model Lump

Seperti yang telah dijelaskan sebelumnya, model *lump* merupakan model yang mengilustrasikan dua tahap, yaitu tahap difusi internal dan tahap reaksi kimia, menjadi pengendali proses ekstraksi secara simultan. Model ini digunakan untuk menyempurnakan asumsi yang dipakai pada penyusunan model *shrinking core*. Gambar 4 memperlihatkan bahwa data perolehan nikel dari hasil simulasi dengan model *lump* lebih menyerupai atau mendekati data perolehan dari eksperimen dibandingkan dengan data perolehan nikel dari model *shrinking core* saat tahapan difusi internal mengendalikan proses ekstraksi. Selain melihat kecocokan data model dan data eksperimen, secara kuantitatif, penentuan model terbaik juga dapat dilihat dari nilai persentase kesalahan rata-rata seperti yang ditunjukkan pada Gambar 5. Berdasarkan Gambar 5, nilai persentase kesalahan pada model *lump* semakin menurun dan mendekati nilai 0 atau secara rata-rata, persentasenya sebesar 5,32%.

Hasil ini semakin menegaskan bahwa laju proses ekstraksi *spent catalyst* ini ditentukan dari laju tahap difusi internal dan tahap reaksi kimia yang berjalan secara simultan. Model *shrinking core* memang memiliki kelemahan untuk mengilustrasikan fenomena yang terjadi selama proses ekstraksi berlangsung. Dalam penyusunan persamaan matematikanya, SCM menyederhanakan mekanisme proses ekstraksi dengan hanya melibatkan satu tahapan saja di mana tahapan tersebut dianggap sebagai pengendali proses atau memiliki laju tahapan yang paling lambat.

Hal ini menimbulkan sebuah pertanyaan apakah SCM merupakan model yang cukup tepat untuk diaplikasikan dalam proses ekstraksi logam. Proses ekstraksi logam tergolong sebagai proses yang cukup kompleks karena melibatkan setidaknya lima tahapan proses, yaitu tahap difusi eksternal molekul reaktan, difusi internal molekul reaktan, reaksi kimia, difusi internal molekul produk, dan difusi eksternal molekul produk. Berdasarkan hasil dari studi ini, SCM terbukti belum cukup untuk menggambarkan fenomena riil dari proses ekstraksi yang terjadi. Studi kinetika menjadi hal yang penting karena data/nilai parameter yang diperoleh akan digunakan sebagai basis perancangan alat, khususnya unit ekstraktor dalam studi ini. Oleh karena itu, model kinetika yang memberikan kesalahan seminimal mungkin sangat dibutuhkan sehingga kesalahan perancangan alat tidak terjadi atau dapat diminimalisasi.

## 4. SIMPULAN

Hasil penelitian yang telah diperoleh sebelumnya menyimpulkan bahwa laju proses ekstraksi *spent catalyst* Ni/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dengan pelarut asam sulfat 1M sangat dipengaruhi oleh temperatur. Semakin tinggi temperatur operasi, maka semakin tinggi pula nikel yang dapat diperoleh selama proses ekstraksi berlangsung. Lebih lanjut, hasil studi kinetika terhadap data percobaan dan dua model kinetika

menunjukkan bahwa model *lump* merupakan model kinetika yang lebih cocok untuk menggambarkan mekanisme proses ekstraksi tersebut bila dibandingkan dengan model *shrinking core*. Hal ini terlihat dari persentase kesalahan rata-rata pada model *lump* kurang dari nilai kesalahan pada model *shrinking core*. Kondisi ini menyimpulkan bahwa proses ekstraksi yang berlangsung pada studi ini memiliki dua tahapan proses, yaitu tahapan difusi internal dan reaksi kimia yang mengendalikan proses ekstraksi. Kedua tahapan tersebut berlangsung secara simultan. Dengan demikian, perancangan ekstraktor untuk proses ini dapat dilakukan dengan menggunakan model *lump*.

## 5. DAFTAR PUSTAKA

- Arslanoglu, H., & Yaras, A. (2019). Recovery of precious metals from spent Mo-Co-Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> catalyst in organic acid medium: Process optimization and kinetic studies. *Petroleum Science and Technology*, 37(19), 2081–2093. <https://doi.org/10.1080/10916466.2019.1618867>.
- Chen, W.-S., & Ho, H.-J. (2018). Leaching behavior analysis of valuable metals from lithium-ion batteries cathode material. *Key Engineering Materials*, 775, 419–426. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/KEM.775.419>.
- Chiranjeevi, T., Pragma, R., Gupta, S., Gokak, D. T., & Bhargava, S. (2016). Minimization of Waste Spent Catalyst in Refineries. *Procedia Environmental Sciences*, 35, 610–617. <https://doi.org/10.1016/j.proenv.2016.07.047>.
- Dong, Y.-bo, Liu, Y., & Lin, H. (2018). Leaching behavior of V, Pb, Cd, Cr, and As from stone coal waste rock with different particle sizes. *International Journal of Minerals, Metallurgy and Materials*, 25(8), 861–870. <https://doi.org/10.1007/s12613-018-1635-2>.
- Ebrahimzade, H., Khayati, G. R., & Schaffie, M. (2018). Leaching kinetics of valuable metals from waste Li-ion batteries using neural network approach. *Journal of Material Cycles and Waste Management*, 20(4), 2117–2129. <https://doi.org/10.1007/s10163-018-0766-x>.
- Faraji, F., Alizadeh, A., Rashchi, F., & Mostoufi, N. (2020). Kinetics of leaching: A review. *Reviews in Chemical Engineering*, 38(2), 113–148. <https://doi.org/10.1515/revce-2019-0073>.
- Ilhan, S., & Akgün, D. (2021). Leaching Kinetics of Mo, Ni, and Al Oxides from Spent Nickel-Molybdenum Hydro-desulfurization Catalyst in H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> Solution. *Journal of Sustainable Metallurgy*, 7(2), 470–480. <https://doi.org/10.1007/s40831-021-00351-5>.
- Ilyas, S., Srivastava, R. R., Kim, H., & Cheema, H. A. (2020). Hydrometallurgical recycling of palladium and platinum from exhausted diesel oxidation catalysts. *Separation and Purification Technology*, 248, 1–8. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2020.117029>.
- Li, J., Yang, Y., Wen, Y., Liu, W., Chu, Y., Wang, R., & Xu, Z. (2020). Leaching kinetics and mechanism of laterite with NH<sub>4</sub> Cl-HCl solution. *Minerals*, 10(9), 1–11. <https://doi.org/10.3390/min10090754>.
- Li, Z., Xie, Z., Deng, J., He, D., Zhao, H., & Liang, H. (2021). Leaching kinetics of rare earth elements in phosphoric acid from phosphate rock. *Metals*, 11(2), 1–17. <https://doi.org/10.3390/met11020239>.
- Liu, J. -lia., Yin, Z. -la., Li, X. -ha., Hu, Q. -yan., & Liu, W. (2019). Recovery of valuable metals from lepidolite by atmosphere leaching and kinetics on dissolution of lithium. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 29(3), 641–649. [https://doi.org/10.1016/S1003-6326\(19\)64974-5](https://doi.org/10.1016/S1003-6326(19)64974-5).
- Mangini, L. F. K., Valt, R. B. G., Ponte, M. J. J. de S., & Ponte, H. de A. (2020). Vanadium removal from spent catalyst used in the manufacture of sulfuric acid by electrical potential application. *Separation and Purification Technology*, 246. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2020.116854>.
- Marafi, M., & Rana, M. S. (2018). Metal leaching from refinery waste hydroprocessing catalyst. *Journal of Environmental Science and Health - Part A Toxic/Hazardous Substances and Environmental Engineering*, 53(11), 951–959. <https://doi.org/10.1080/10934529.2018.1470802>.
- Mirwan, A., Susianto, Altway, A., & Handogo, R. (2017). A modified shrinking core model for leaching of aluminum from sludge solid waste of drinking water treatment. *International Journal of Technology*, 8(1), 19–26. <https://doi.org/10.14716/ijtech.v8i1.3233>.
- Mohanty, C., Behera, S. S., Marandi, B., Tripathy, S. K., Parhi, P. K., & Sanjay, K. (2021). Citric acid mediated leaching kinetics study and comprehensive investigation on extraction of vanadium (V) from the spent catalyst. *Separation and Purification Technology*, 276. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2021.119377>.
- Nugroho, M. E. C., Sutijan, Prasetya, A., & Astuti, W. (2021). Recovery of cobalt and molybdenum from spent catalyst using citric acid. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 882(1). <https://doi.org/10.1088/1755-1315/882/1/012006>.
- Pradhan, D., Pattanaik, A., Krishna Samal, D. P., Sukla, L. B., & Kim, D. J. (2020). Recovery of Mo, V and Ni from spent catalyst using leaching and solvent extraction. *Materials Today: Proceedings*, 30, 322–325.

- <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2020.01.614>.
- Raghupathy, L., & Chaturvedi, A. (2013). Secondary resources and recycling in developing economies. *Science of the Total Environment*, 461–462. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2013.05.041>.
- Rogozhnikov, D. A., Shoppert, A. A., Dizer, O. A., Karimov, K. A., & Rusalev, R. E. (2019). Leaching kinetics of sulfides from refractory gold concentrates by nitric acid. *Metals*, 9(4). <https://doi.org/10.3390/met9040465>.
- Setiawan, H., Petrus, H. T. B. M., & Perdana, I. (2019). Reaction kinetics modeling for lithium and cobalt recovery from spent lithium-ion batteries using acetic acid. *International Journal of Minerals, Metallurgy and Materials*, 26(1), 98–107. <https://doi.org/10.1007/s12613-019-1713-0>.
- Sposato, C., Catizzone, E., Blasi, A., Forte, M., Romanelli, A., Morgana, M., Braccio, G., Giordano, G., & Migliori, M. (2021). Towards the circular economy of rare earth elements: Lanthanum leaching from spent FCC catalyst by acids. *Processes*, 9(8). <https://doi.org/10.3390/pr9081369>.
- Wang, T., Ren, J., Ravindra, A. V, Lv, Y., & Le, T. (2022). Kinetics of Ni, V and Fe Leaching from a Spent Catalyst in Microwave-Assisted Acid Activation Process. *Molecules*, 27(7), 2078. <https://doi.org/10.3390/molecules27072078>.
- Wanta, K. C., Astuti, W., Perdana, I., & Petrus, H. T. B. M. (2020). Kinetic study in atmospheric pressure organic acid leaching: Shrinking core model versus lump model. *Minerals*, 10(7), 1–10. <https://doi.org/10.3390/min10070613>.
- Wanta, K. C., Astuti, W., Petrus, H. T. B. M., & Perdana, I. (2022). Product Diffusion-Controlled Leaching of Nickel Laterite using Low Concentration Citric Acid Leachant at Atmospheric Condition. *International Journal of Technology*, 13(2), 410. <https://doi.org/10.14716/ijtech.v13i2.4641>.
- Wanta, K. C., Petrus, H. T. B. M., Perdana, I., & Astuti, W. (2017). Uji Validitas Model Shrinking Core terhadap Pengaruh Konsentrasi Asam Sitrat dalam Proses Leaching Nikel Laterit. *Jurnal Rekayasa Proses*, 11(1), 30–35.
- Wiecka, Z., Rzelewska-Piekut, M., Cierpiszewski, R., Staszak, K., & Regel-Rosocka, M. (2020). Hydrometallurgical recovery of cobalt(II) from spent industrial catalysts. *Catalysts*, 10(1). <https://doi.org/10.3390/catal10010061>.
- Wu, W., Wang, C., Bao, W., & Li, H. (2018). Selective reduction leaching of vanadium and iron by oxalic acid from spent V2O5-WO3/TiO2 catalyst. *Hydrometallurgy*, 179, 52–59. <https://doi.org/10.1016/j.hydromet.2018.05.021>.
- Yaraş, A., & Arslanoğlu, H. (2020). Extraction of selected metals from spent hydrodesulfurization catalyst using alkali leaching agent. *Separation Science and Technology*, 55(11), 2037–2048. <https://doi.org/10.1080/01496395.2019.1673412>.
- Zhang, D., Liu, Y., Hu, Q., Ke, X., Yuan, S., Liu, S., Ji, X., & Hu, J. (2020). Sustainable recovery of nickel, molybdenum, and vanadium from spent hydroprocessing catalysts by an integrated selective route. *Journal of Cleaner Production*, 252, 1–9. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2019.119763>.