

SINTESIS DAN KARAKTERISASI PADATAN SILIKA-ALUMINA DENGAN VARIASI SUHU KALSINASI SEBAGAI PENDUKUNG KATALIS CAMPURAN OKSIDA LOGAM Cu/Zn

SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION OF SILICA-ALUMINA WITH CALCINATION TEMPERATURE VARIATION AS MATRIX Cu/Zn MIXED METAL OXIDE CATALYST

M. Nur Kholilur Rohman* dan Dina Kartika Maharani

*Department of Chemistry, Faculty of Mathematics and Natural Sciences
State University of Surabaya*

Jl. Ketintang Surabaya (60231), Telp. 031-8298761

*Corresponding author, email: choliel19@yahoo.com

Abstrak. Telah dilakukan sintesis dan karakterisasi padatan silika-alumina sebagai pendukung katalis campuran oksida logam Cu/Zn untuk konversi gas buang CO. Padatan silika-alumina dipreparasi dengan metode sol-gel dan dikalsinasi pada suhu 550, 650 dan 750 °C. Katalis campuran oksida logam Cu/Zn/SA disintesis dengan metode impregnasi. Padatan pendukung hasil sintesis dikarakterisasi dengan XRD dan FTIR serta katalis Cu/Zn/SA dianalisa dengan XRD, FTIR, dan BET. Hasil difraksi sinar-X padatan pendukung menunjukkan SA 750 memiliki kristalinitas yang lebih baik dibandingkan SA 550 dan SA 650. Analisa gugus fungsional menunjukkan silika-alumina didominasi oleh gugus OH, Si-OH dan Al-OH. Hasil difraksi sinar-X ketiga padatan silika-alumina setelah impregnasi menunjukkan puncak utama karakteristik CuO pada 2θ 35,5° dan 38,7° serta puncak karakteristik ZnO pada 2θ 68°. Hasil analisa dengan metode BET menunjukkan luas permukaan spesifik padatan katalis Cu/Zn dengan pendukung silika-alumina 550, 650, dan 750 berturut-turut adalah 136,070; 136,713; dan 104,819 m²/g. Hasil analisa dengan FTIR pada katalis Cu/Zn/SA750 menunjukkan pita vibrasi ulur oksida logam M-O yang sangat dominan, yang berarti bahwa oksida logam CuO dan ZnO yang terbentuk pada padatan silika-alumina terdapat dalam jumlah yang tinggi.

Kata kunci : Sintesis, silika-alumina, oksida logam

Abstract. Synthesis and characterization of a silica-alumina as matrix of Cu/Zn mixed metal oxide catalyst for the conversion of CO exhaust gases has been done. The solid silica-alumina was prepared by sol-gel method and calcined at 550, 650, and 750 oC. The Cu/Zn/SA mixed metal oxide catalyst was synthesized by impregnation method. The solid support synthesis results were characterized by XRD and FTIR, and the Cu/Zn/SA catalyst was analyzed by XRD, FTIR, and BET. The results of X-ray diffraction showed solid support SA 750 has better crystallinity than the SA 550 and SA 650. The functional group analysis showed silica-alumina was dominated by -OH, Si-OH and Al-OH groups. The results of X-ray diffraction of silica-alumina solid third after impregnation showed a major peak characteristic of CuO at 2θ 35,5o and 38,7o and the peak characteristic of ZnO at 2θ 68o. The results of the analysis with BET method showed that specific surface area of the catalyst Cu/Zn with matrix silica-alumina 550, 650, and 750 were 136.070; 136.713; and 104.819 m²/g, respectively. The results of the FTIR analysis on a mixed metal oxides Cu/Zn/SA750 showed stretching vibration bands of metal oxide M-O has much dominant, which means that the metal oxides of CuO and ZnO are formed on silica-alumina solids present in high quantities.

Keywords: *Synthesis, silica-alumina, metal oxide*

PENDAHULUAN

Dewasa ini pencemaran lingkungan menjadi salah satu pusat perhatian masyarakat luas, khususnya ilmuwan. Pencemaran lingkungan dapat merusak ekosistem dan berkembangnya ragam bibit penyakit yang merugikan kehidupan manusia. Salah satu pencemaran lingkungan yang sangat merusak ekosistem adalah pencemaran udara.

Sebagian besar polutan udara yaitu 75% berasal dari gas buangan hasil pembakaran bahan bakar fosil yang tidak sempurna pada sistem transportasi, baik motor ataupun mobil [1]. Pencemaran udara saat ini menampakkan kondisi yang sangat memprihatinkan dan salah satu polutan utama udara yang dihasilkan dari emisi gas buang kendaraan bermotor adalah karbon monoksida.

Karbon monoksida (CO) merupakan sumber polusi dengan komposisi terbesar yang

mencapai 60% [1]. Karbon monoksida dapat menyebabkan pengurangan kadar oksigen dalam darah sehingga mengakibatkan pusing, gangguan berpikir, penurunan reflek, gangguan jantung bahkan kematian [2]. Upaya untuk mengurangi gas karbon monoksida yang berasal dari emisi gas buang kendaraan bermotor dapat dilakukan dengan melengkapi knalpot kendaraan bermotor dengan material *catalytic converter* yang bekerja dengan prinsip oksidasi sehingga gas karbon monoksida dapat diubah menjadi gas karbon dioksida yang tidak berbahaya.

Dalam merancang sebuah katalis pada *catalytic converter*, luas permukaan yang besar harus diupayakan bagi penyebaran inti aktif untuk mendapatkan katalis dengan aktivitas dan selektivitas yang tinggi. Selain itu stabilitas katalis juga harus diperhatikan, dimana partikel harus memiliki sifat fisik dan mekanik yang baik sehingga tidak mudah mengalami perubahan akibat pemanasan yang tinggi [3]. Untuk memberikan kestabilan dan kekuatan mekanik katalis pada *catalytic converter* harus diberi bahan pendukung yang tahan terhadap pertumbuhan kristal akibat panas, dimana pendukung harus memiliki titik lebur yang tinggi melebihi titik lebur dari inti aktif. Salah satu bahan pendukung yang memiliki keaktifan, stabilitas, dan luas permukaan yang tinggi adalah silika-alumina ($\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$).

Silika-alumina merupakan padatan paduan silika dan alumina yang memiliki porositas tinggi dengan diameter pori berukuran mikro sehingga memiliki luas permukaan yang tinggi. Luas permukaan yang besar pada silika-alumina sangat menguntungkan dalam penggunaannya sebagai bahan pendukung katalis. Situs asam yang terdapat pada permukaan silika-alumina mampu berinteraksi dengan logam transisi seperti platinum, titania, dan logam transisi lain. Terbentuknya asam Bronsted pada padatan silika-alumina disebabkan oleh adanya koordinasi aluminium tetrahedral dan oktahedral pada jaringan silika-alumina amorf [4].

Silika-alumina dapat disintesis dengan metode sol-gel. Keuntungan metode sol gel diantaranya yaitu relatif mudah dilakukan, tidak memerlukan waktu yang lama dan memiliki homogenitas yang tinggi [5]. Metode sol-gel juga lebih unggul dibandingkan dengan metode lainnya karena untuk mendapatkan komposit padat yang homogen dengan cara pembentukan suspensi koloid yang berbentuk gel melalui proses gelasi sol pada suhu ruang [6].

Katalis oksida logam yang biasa digunakan untuk *catalytic converter* diantaranya adalah oksida tembaga CuO dan CoO. Oksida ini merupakan oksida semikonduktor yang merupakan jenis komponen aktif yang banyak digunakan pada reaksi katalitik. Kemampuan sebagai donor elektron dan akseptor yang dimiliki semikonduktor merupakan salah satu aktivasi bagi berlangsungnya reaksi redoks [3]. Tembaga sebagai katalis digunakan

secara luas karena memiliki aktivitas dan selektivitas yang tinggi untuk reaksi oksidasi/reduksi.

Katalis oksida Cu merupakan katalis paling aktif dalam mengoksidasi CO dibandingkan dengan katalis oksida Mn, Fe, Co, dan Ni dengan pendukung yang sama yaitu alumina [7]. Namun tembaga (Cu) mudah terdeaktivasi pada suhu tinggi sehingga perlu ditambahkan promotor seperti ZnO untuk menurunkan *sintering* Cu. Logam Zn dalam katalis oksida Cu/ZnO dikenal untuk membuat situs aktif pada antarmuka Cu-ZnOx melalui migrasi spesies ZnO ke permukaan tembaga [8]. Zn berfungsi untuk menjaga sisi aktif dari katalis logam aktif sehingga tidak mudah terjadi *sintering*.

Oleh karena itu dalam penelitian ini akan dilakukan Sintesis dan Karakterisasi Padatan Silika-Alumina dengan Variasi Suhu Kalsinasi Sebagai Pendukung Katalis Campuran Oksida Logam Cu/Zn, sehingga dimungkinkan untuk mendapatkan padatan pendukung yang baik bagi penyebaran inti aktif katalis serta mendapatkan katalis dengan kristalinitas dan luas permukaan yang tinggi.

METODE PENELITIAN

Bahan

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah $\text{CuCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, $\text{ZnCl}_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$, natrium silikat, $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, asam asetat, amonia, dan air demineralisasi.

Alat

Alat-alat yang digunakan pada penelitian antara lain ; Spektrofotometer FTIR, XRD, Chamber surface area tipe 1200 NOVA dengan metode BET, SSA, pH meter, neraca analitik, tanur, oven, cawan porselin, ayakan 200 mesh, alu dan lumpang, magnetic stirrer, spatula, gelas kimia, gelas ukur, labu ukur, erlenmeyer, dan pipet tetes.

PROSEDUR PENELITIAN

Sintesis Padatan Pendukung Silika-alumina

Delapan gram $\text{AlCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ dilarutkan dalam 100 mL air deionisasi dan ditambahkan 10 mL asam asetat 99% untuk membuat Larutan I. Sebuah larutan natrium silikat encer 8% SiO_2 (Larutan II) dibuat dengan mengencerkan 27,6 mL larutan natrium silikat pekat dengan 100 mL air deionisasi. Larutan natrium silikat (Larutan II) secara bertahap tetes demi tetes ditambahkan ke dalam larutan aluminium (Larutan I) dengan pengadukan untuk mempersiapkan Larutan III. PH akhir dari Larutan III adalah 2,2.

Larutan ammonia 8% (Larutan IV) ditambahkan secara bertahap tetes demi tetes pada Larutan III yang mengandung sol silika dan alumina dengan pengadukan. Penambahan larutan amonia secara terus menerus sampai pH campuran mencapai 8,0. Bubur gel *diaging* pada suhu kamar selama 2-3 jam. Gel silika-alumina yang terbentuk

disaring untuk menghasilkan endapan gel. Endapan dicuci dengan air deionisasi beberapa kali. Endapan akhir dikeringkan pada suhu 120 °C semalam. Padatan kering silika-alumina dihancurkan dan dikalsinasi pada suhu 550, 650, dan 750 °C selama 2 jam untuk aktivasi.

Sntesis Katalis Cu/Zn/ SiO₂-Al₂O₃

Tiga gram silika-alumina (Kalsinasi 550, 650, dan 750 °C) masing-masing direndam dalam larutan CuCl₂ 15% sambil diaduk konstan selama 30 menit dan didekantasi. Padatan dicuci beberapa kali dengan air demineralisasi dan dibiarkan selama 24 jam dalam desikator. Larutan sisa impregnasi diuji dengan AAS. Setelah itu endapan dikeringkan pada suhu 120 °C selama 2 jam dan dikalsinasi pada suhu 600 °C selama 4 jam. Hasil yang didapat direndam dengan larutan ZnCl₂ 10% sambil diaduk konstan selama 30 menit dan didekantasi. Padatan dicuci beberapa kali dengan air demineralisasi dan dibiarkan 24 jam dalam desikator. Larutan sisa impregnasi diuji dengan AAS. Setelah itu endapan dikeringkan pada suhu 120 °C selama 2 jam dan dikalsinasi pada suhu 300 °C selama 4 jam.

Uji karakteristik dengan XRD

Cuplikan hasil kalsinasi diambil sebanyak 0,5 gram, kemudian dihaluskan sampai ukuran butiran 170 mesh dan ditempatkan pada suatu lempengan. Lempengan tersebut kemudian disinari dengan sinar-X primer CuK α 1 ($\lambda = 1,54 \text{ \AA}$). Spektrum direkam pada daerah $2\theta = 5 - 90^\circ$.

Uji karakteristik dengan FTIR

Sejumlah sampel katalis oksida logam Cu/Cr_xO_y/ γ -Al₂O₃ masing-masing dicampur dengan 250 mg KBr kering untuk dibuat menjadi pelet. Pelet yang didapat kemudian dianalisis dengan spektrofotometer inframerah.

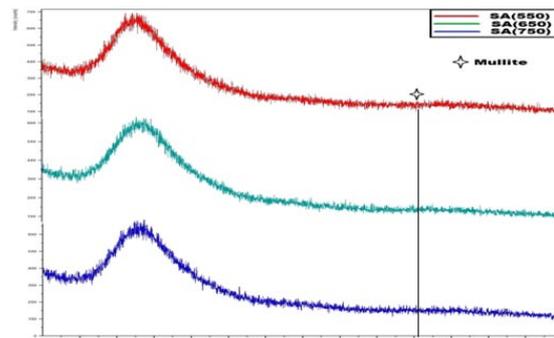
Uji karakteristik dengan BET

Padatan hasil kalsinasi sebesar 0,3 gram dimasukkan ke dalam tempat sampel. Sampel hasil variasi suhu kalsinasi diadsorpsi dengan nitrogen cair pada suhu 77,4 K. Proses adsorpsi dilakukan pada daerah tekanan uap relatif, p/p^0 , 0,04-0,25. Jumlah berat (gram) nitrogen yang teradsorpsi digunakan untuk menentukan luas permukaan spesifik sampel.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Analisa XRD Padatan Pendukung

Hasil analisa padatan silika-alumina dengan variasi suhu kalsinasi 550, 650, dan 750 °C dengan menggunakan XRD ditunjukkan pada gambar 1.



Gambar 1. Difraktogram SA(550), SA(650), dan SA(750)

Padatan pendukung silika-alumina yang dikalsinasi pada suhu 550 dan 650 °C tidak menunjukkan adanya puncak karakterisasi fasa-fasa yang terbentuk. Berdasarkan informasi tersebut menunjukkan bahwa silika-alumina yang dikalsinasi pada suhu 550 dan 650 °C dalam penelitian ini adalah berbentuk amorf dan memiliki kehomogenan yang tinggi pada seluruh partikel. Hasil difraktogram pada padatan silika-alumina dengan suhu kalsinasi 750 °C menunjukkan puncak karakteristik yang dominan dari 2SiO₂.3Al₂O₃ (*mullite*) pada 2θ 62.16° dengan intensitas 100%. Puncak karakteristik ini sesuai dengan kartu standar JCPDS No. 01-0613. Hal ini menunjukkan bahwa kristalinitas padatan pendukung silika-alumina yang dikalsinasi pada suhu 750 °C lebih baik daripada padatan silika-alumina dengan suhu kalsinasi 550 dan 650 °C.

Analisa Padatan Pendukung dengan FTIR

Spektrum FTIR pada Gambar 2 menunjukkan pita serapan pada 3467,98 cm⁻¹ yang merupakan vibrasi ulur gugus -OH pada padatan SA 750. Pita serapan baru gugus -OH juga muncul pada 3571 cm⁻¹. Hal ini menunjukkan peningkatan jumlah gugus -OH pada permukaan padatan SA 750 akibat proses hidrasi dari padatan silika-alumina akibat banyaknya kandungan Al. Indikasi adanya gugus OH yang terserap pada padatan silika-alumina diperkuat oleh pita serapan pada 1651,28 cm⁻¹ yang menunjukkan vibrasi tekuk H-O-H dari molekul H₂O. Pita serapan pada 1086,96 cm⁻¹ menunjukkan vibrasi ulur asimetri O-Al-O dari AlO₄ tetrahedral serta menunjukkan kombinasi dari vibrasi ulur Si-O-Si dan hubungan Si-O-Al dengan transmitan yang tinggi. Hal ini menunjukkan keasaman yang tinggi pada padatan silika-alumina akibat tingginya kandungan Al koordinasi tetrahedral. Situs asam Bronsted silika-alumina amorf disebabkan oleh kehadiran koordinasi Al tetrahedral dan octahedral [4].

Pita serapan baru pada 1400,41 cm⁻¹ yang juga menunjukkan vibrasi ulur asimetri O-Si-OH atau O-Al-OH. Vibrasi ulur simetris Si-O-Al juga ditunjukkan pada bilangan gelombang 798,85 cm⁻¹

1 yaitu sebesar 81,58% menunjukkan tingginya kandungan oksida logam CuO dan ZnO yang terbentuk pada padatan pendukung SA 750.

Hasil analisa luas permukaan Cu/Zn/SA

Hasil luas permukaan spesifik campuran oksida logam Cu/Zn/SA dengan menggunakan metode BET ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Luas permukaan spesifik padatan Cu/Zn/SA (550, 650, dan 750)

Sampel	Luas permukaan
Cu/Zn/SA550	136,070 m ² /g
Cu/Zn/SA650	136,713 m ² /g
Cu/Zn/SA750	104,819 m ² /g

Padatan Cu/Zn/SA(650) menunjukkan luas permukaan spesifik yang paling besar. Hal ini disebabkan oleh kristal CuO dan ZnO yang terbentuk pada padatan pendukung SA 650 memiliki rentang ukuran kristal yang tidak terlalu besar, derajat kristalinitas CuO dan ZnO pada pendukung SA 650 juga paling tinggi yang menunjukkan struktur atom yang lebih tertata dan kerapatan partikel elektron yang tinggi. Hal ini menunjukkan bahwa padatan SA 650 merupakan padatan yang paling baik dalam penggunaannya sebagai pendukung katalis campuran oksida logam Cu/Zn. Luas permukaan yang besar memungkinkan penyebaran inti aktif yang lebih banyak sehingga aktivitas katalis akan meningkat dan produk yang dihasilkan juga akan meningkat.

KESIMPULAN

1. Padatan pendukung SA 750 memiliki kristalinitas yang lebih baik dibandingkan dengan padatan pendukung SA 550 dan SA 650.
2. Katalis campuran oksida logam Cu/Zn dengan pendukung SA 650 yang dianalisa menggunakan XRD memiliki kristalinitas yang lebih baik dibandingkan dengan Cu/Zn dengan pendukung SA 550 dan SA 750. Analisa menggunakan BET menunjukkan luas permukaan spesifik pada padatan Cu/Zn/SA(650) adalah yang paling besar. Hal ini memungkinkan penyebaran komponen aktif yang lebih baik pada padatan SA 650. Karakterisasi gugus fungsional padatan Cu/Zn/SA750 menunjukkan bahwa padatan didominasi oleh gugus fungsional oksida logam CuO dan ZnO.

DAFTAR PUSTAKA

1. Anwar, Chairil dan Maizar, Rahman. 2011. Oksidasi Katalitik Karbon Monoksida Pada Katalis Pt-Zeolit Alam Berpromotor Serium. *Lembaran Publikasi Minyak Dan Gas Bumi. Vol. 45. No. 2, Agustus: 159-164.*
2. Abdullah, Hairus. 2012. *Pembuatan dan Karakterisasi serta Aplikasi Katalik Konverter untuk Filter Gas Buang Kendaraan Bermotor Berbahan Bakar Premium.* Tesis. Medan: Universitas Sumatera Utara.
3. Nasikin, Mohammad dan Bambang Heru Susanto. 2010. *Katalis Heterogen.* Jakarta: Universitas Indonesia Press.
4. Poduval, G. P. 2011. *On the role of acidity in amorphous silica-alumina based catalysts (Sub: On the Nature of the Sulfur Tolerance of ASA-Suported NiMo(W) sulfide and Pt hydrogenation catalys).* Eindhoven : Technische Universiteit Eindhoven
5. Sriyanti, Taslimah, Nuryono dan Narsito. (2005). Sintesis Bahan Hibrida Amino-Silika Dari Abu Sekam Padi Melalui Proses Sol-Gel. Jurusan Kimia FMIPA Universitas Diponegoro. Semarang. *Vol: 8. No: JKSA.*
6. Ni, Siyu., Lee Chou., and Jiang Chang. (2007). Preparation and characterization of forsterite (Mg₂SiO₄) bioceramics. *Ceramics International* 33, 83-88.
7. Ferrandon, Magali. 2001. *Mixed Metal Oxide - Noble Metal Catalysts for Total Oxidation of Volatile Organic Compounds and Carbon Monoxide.* Stockholm: Department of Chemical Engineering and Technology Royal Institute of Technology (Thesis)
8. Mucherie, Stephanie Catillon, *et. al.* 2007. Preparation of Coimpregnated Cu-Zn/SiO₂ Catalysts: Influence of the Drying Step on Metallic Particle Size and on Cu⁰-Zn^{II} Interactions. *J. Phys. Chem. C*, 111, 11619-11626.
9. Nakamoto, K.. (1997). *Infrared and Raman Spectra of Inorganic and Coordination Compounds.* 5th Edition, John Willey & Sons, Inc.. Canada. Nasikin, Mohammad dan Bambang Heru Susanto. 2010. *Katalis Heterogen.* Jakarta: Universitas Indonesia Press.