

Sintesis dan Karakterisasi Material Mesopori Ni/MCM-41 dan Pengaruh Penambahan Logam Nikela Terhadap Tingkat Keasaman Material

Soenandar M. T. Tengker

Lembaga Penelitian dan Pengabdian Masyarakat Universitas Negeri Manado

Email : soenandartengker@unima.ac.id

ABSTRAK

Sintesis MCM-41 telah dilakukan mulai dari tahap pelarutan cetyltrimethylammonium bromide (CTAB) sebagai cetakan pori, kemudian ditambahkan tetramethylammonium hydroxide (TMAOH) untuk meningkatkan stabilitas material. Proses kristalisasi dilakukan dengan menambahkan natrium silikat dan natrium aluminat tetes demi tetes ke dalam larutan. Selanjutnya dilakukan proses hidrotermal pada suhu 90oC selama 36 jam, kemudian dicuci, dikeringkan dan dikalsinasi pada suhu 540oC. Katalis Ni/MCM-41 dibuat dengan cara mencampur padatan MCM-41 hasil sintesis ke dalam larutan NiCl₂.6 H₂O 0,5 M. Campuran disaring dan dicuci menggunakan akuades, kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu 80 oC selama 24 jam. Hasil padatan setelah kalsinasi merupakan material mesopori Ni/MCM-41. Material dikarakterisasi menggunakan XRD dan FTIR. Hasil Penelitian menunjukkan bahwa penambahan ion H⁺ pada MCM-41 menjadi Ni/MCM-41 dapat meningkatkan tingkat keasaman material sehingga sangat baik digunakan sebagai bahan katalis.

Kata Kunci : MCM-41, Ni/MCM-41, katalis, mesopori

ABSTRACT

The synthesis of MCM-41 has been carried out starting from the dissolution of cetyltrimethylammonium bromide (CTAB) as a pore mold, then adding tetramethylammonium hydroxide (TMAOH) to increase the stability of the material. The crystallization process is carried out by adding sodium silicate and sodium aluminate dropwise into solution. Then the hydrothermal process is carried out at 90oC for 36 hours, then washed, dried and calcined at 540oC. Ni / MCM-41 catalyst was prepared by mixing the MCM-41 solids synthesized into a 0.5 M NiCl₂.6 H₂O solution. The mixture was filtered and washed using distilled water, then dried in an oven at 80 oC for 24 hours. The resulting solid after calcination is a mesoporous Ni / MCM-41 material. The material was characterized using XRD and FTIR. The results showed that the addition of H⁺ ions to MCM-41 to Ni / MCM-41 can increase the acidity of the material so that it is best used as a catalyst material.

Keywords: MCM-41, Ni / MCM-41, catalyst, mesoporous

PENDAHULUAN

Perkembangan material mesopori yang pesat menjadi perhatian peneliti, terutama sejak ditemukannya anggota keluarga M41S dari silikat atau aluminosilikat mesopori oleh peneliti dari Mobil Oil Corporation pada tahun 1992. Padatan mesopori yang disintesis adalah material mesopori MCM-41 (*Mobil Composition of Matter*) yang memiliki keseragaman penataan pori dan bentuk heksagonal yang teratur (Beck *et al.*,

1992). MCM-41 memiliki ukuran pori yang cukup besar, memungkinkan pemasukkan langsung kompleks logam dan senyawa-senyawa organologam ke dalam pori tersebut. Adanya ion logam seperti Aluminium (Al) dalam struktur MCM-41 akan meningkatkan keasaman material ini. Keasaman material mesopori akan meningkat dengan meningkatnya kandungan aluminium pada kerangka kristal material (Twaiq *et al.*, 2003). Logam tersebut akan menjadi situs asam

Lewis dan berperan sebagai situs aktif pada proses katalisis.

Penelitian lanjutan dilakukan tentang pengaruh penambahan logam atau ion pada material mesopori MCM-41 yang sebelumnya ditambahkan logam Aluminium. Ion yang dipakai pada penelitian ini adalah ion hidrogen yang merupakan situs asam H^+ yang kiranya dapat menambah atau meningkatkan aktivitas katalitik material mesopori MCM-41 menjadi material mesopori H-MCM-41.

METODE

Bahan Penelitian

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah cetyltrimetilamonium bromida (CTAB), tetrametilamonium hidroksida (TMAOH), larutan natrium silikat (Na_2SiO_3), natrium aluminat ($Na_2Al_2O_4$) dan Nickel klorida ($NiCl_2 \cdot 6 H_2O$). Selain bahan kimia di atas, bahan lain yang digunakan adalah akuades.

Alat Penelitian

Peralatan laboratorium yang digunakan dalam penelitian ini adalah seperangkat alat gelas kualitas *pyrex*, thermometer 150 °C, lumpang porselen, neraca porselen, kertas saring, kertas pH Merck, penyaring Buchner, pengaduk magnet, *hot plate* dan *stirrer* merek stuart, timbangan digital, oven merek Mermett, *autoclave* dan *furnace* merek Carbolite. Selain peralatan di atas, penelitian ini juga menggunakan beberapa instrumen analisis untuk karakterisasi produk yang dihasilkan yaitu XRD dan spektrofotometer Infra Merah (FTIR)

Prosedur Penelitian

Sintesis MCM-41

MCM-41 disintesis dengan melarutkan surfaktan CTAB sebanyak

5,79 g dalam 50 ml akuades yang sudah dipanaskan sampai suhu 40 °C dalam gelas piala berbahan PET sambil dilakukan pengadukan. Kemudian ditambahkan TMAOH sebanyak 2,85 g sampai larutan bercampur dan suhu tetap dijaga 40 °C. Larutan terus diaduk dan tambahkan 0,7325 g garam K_2SO_4 sampai terlarut. Setelah larutan homogen, larutan didinginkan sampai suhu ruangan (28 °C) selama 1 jam. Natrium silikat (Na_2SiO_3) sebanyak 5,63 g ditambahkan tetes demi tetes disertai dengan pengadukan, lalu tambahkan $Na_2Al_2O_4$ 0,076 g yang telah dilarutkan dalam 5 ml akuades tetes demi tetes dan diaduk sampai larutan homogen. Kondisi pH larutan diatur menjadi 10 dengan menambahkan H_2SO_4 50 % secara perlahan.

Larutan yang terbentuk dipindahkan ke dalam teflon autoklave dan dipanaskan dalam oven pada suhu 90 °C selama 36 jam. Larutan kemudian di saring menggunakan kertas saring dan dicuci dengan menggunakan akuades. Padatan yang dihasilkan kemudian dikeringkan dalam oven dengan suhu 80 °C selama 24 jam lalu dikalsinasi pada suhu 540 °C selama 6 jam dengan kenaikan suhu konstan 1 °C/30 detik.

Pembuatan Katalis Ni/MCM-41

Katalis Ni/MCM-41 dibuat dengan cara mencampur sebanyak 5 g padatan MCM-41 hasil sintesis ke dalam 100 ml larutan $NiCl_2 \cdot 6 H_2O$ 0,5 M, kemudian diaduk secara perlahan selama 4 jam pada suhu ruangan. Campuran larutan kemudian disaring menggunakan kertas saring Whatman dan dicuci menggunakan akuades, kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu 80 °C selama 24 jam untuk mendapatkan padatan katalis Ni/MCM-41, padatan yang diperoleh, selanjutnya dikalsinasi

menggunakan tungku pada suhu 540 °C selama 4 jam dengan kenaikan suhu 1 °C/30 detik. Padatan hasil sintesis kemudian dikarakterisasi dan diuji tingkat keasamannya.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Sintesis MCM-41

Surfaktan CTAB dalam proses sintesis bertindak sebagai pengarah pembentukan struktur heksagonal material mesopori MCM-41 berdasarkan bentuk misel surfaktan. Interaksi surfaktan menyebabkan perubahan bentuk misel dari bentuk sferis menjadi bentuk silindris. Proses pelarutan CTAB yang dilakukan dengan pengadukan dan pemanasan bertujuan untuk meningkatkan kelarutan dari surfaktan CTAB sehingga surfaktan akan semakin mudah beragregasi membentuk misel silindris pada proses pendinginan yang selanjutnya berguna sebagai cetakan material mesopori MCM-41 dengan struktur heksagonal.



Gambar 1. Proses pelarutan CTAB

Sumber silikat dan aluminat dalam penelitian ini masing-masing berasal dari larutan sodium silikat (Na_2SiO_3) dan sodium aluminat ($\text{Na}_2\text{Al}_2\text{O}_4$) yang ditambahkan ke dalam larutan dengan cara diteteskan tetes demi tetes disertai pengadukan secara perlahan. Larutan

sodium silikat yang diteteskan ke dalam larutan berinteraksi membentuk lembaran-lembaran berwarna putih yang akan larut secara perlahan melalui proses pengadukan. Larutan aluminat dibuat dengan melarutkan $\text{Na}_2\text{Al}_2\text{O}_4$ dalam akuades yang selanjutnya diteteskan dalam campuran larutan. Campuran larutan setelah penetesan silikat mengalami perubahan warna dari larutan bening menjadi larutan keruh. Larutan aluminat kemudian di teteskan ke dalam campuran larutan yang disertai dengan proses pengadukan. Proses pelarutan aluminat merupakan proses yang sama dengan pelarutan silikat, tetapi pelarutan aluminat membutuhkan waktu yang lebih lama dibandingkan pelarutan silikat. Hal ini disebabkan karena aluminat yang ditambahkan akan berinteraksi dengan silikat yang sudah melapisi misel silindris dalam proses pembentukan pori. Perubahan warna larutan dari tidak berwarna menjadi berwarna putih terjadi setelah aluminat selesai ditambahkan.



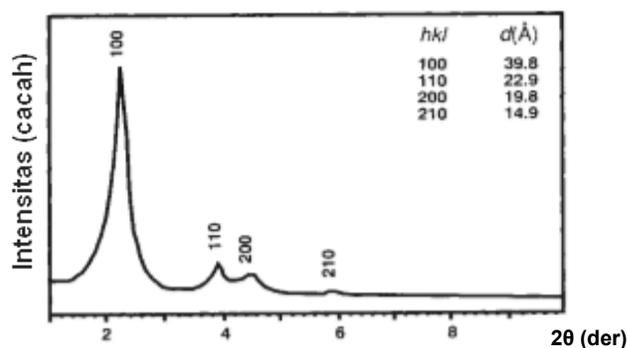
Gambar 2. (kiri) Larutan hasil setelah penambahan Larutan Silikat dan Larutan Aluminat; (kanan) *autoclave*

Campuran larutan kemudian dipindahkan ke dalam *autoclave* dan merupakan reaktor sistem tertutup rapat. Reaktor yang digunakan dalam proses hidrotermal ini harus reaktor yang tertutup rapat, agar laju penguapan dan laju kondensasi reaksi yang terjadi dalam reaktor saat proses hidrotermal menjadi seimbang dan material mesopori MCM-41 bisa terbentuk.

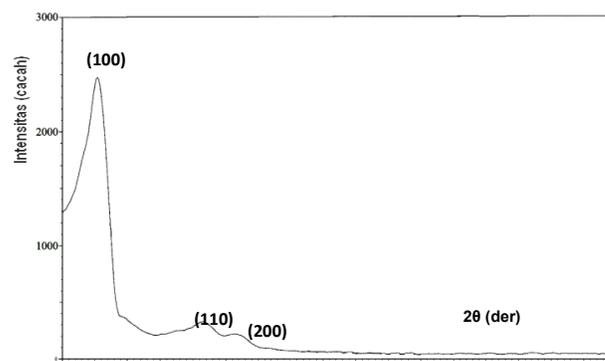
Proses hidrotermal dilakukan dalam oven pada suhu 90 °C selama 36 jam. Perlakuan ini dimaksudkan agar terjadi proses penataan ulang struktur mesopori MCM-41 sehingga mendapatkan material hasil sintesis dengan keteraturan pori yang seragam. Padatan material mesopori MCM-41 yang diperoleh setelah proses hidrotermal kemudian disaring menggunakan kertas saring Whatman 46 dan dicuci menggunakan aquades sampai pH netral. Pencucian padatan material mesopori MCM-41 hasil sintesis bertujuan untuk menghilangkan sifat basa material akibat proses sintesis yang terjadi pada suasana basa. Padatan hasil sintesis yang sudah dicuci kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu 80 °C selama 24 jam agar supaya padatan material mesopori MCM-41 hasil sintesis bebas dari kandungan air. Padatan hasil sintesis (gambar 4.4) merupakan padatan material yang memiliki sifat mudah menyerap air, sehingga proses penyimpanan material dilakukan dalam toples yang diisi dengan silika gel yang dapat menyerap kandungan air. Padatan material mesopori MCM-41 hasil sintesis kemudian dikalsinasi menggunakan tungku pada suhu 540 °C selama 5 jam. Pemanasan suhu tinggi ini bertujuan untuk menghilangkan surfaktan CTAB yang berperan sebagai cetakan pembentukan pori heksagonal MCM-41. Pada suhu tinggi surfaktan CTAB mengalami proses pembakaran.

Karakterisasi Menggunakan XRD

Metode ini dapat memberikan informasi mengenai kristanilitas suatu mineral tertentu yang mempunyai pola difraksi yang karakteristik. Melalui difraktogram dapat diperoleh data berupa sudut difraksi (2θ), jarak antar bidang (d) dan intensitas puncak. Pola difraksi sinar-X material MCM-41 memiliki karakteristik adanya tiga sampai lima puncak yang muncul pada sudut 2θ antara 2 - 5°. Puncak-puncak yang muncul pada difraktogram material MCM-41 yang disintesis oleh Kresge *et al.* (1992) diindekskan pada bidang (100), (110), (200) dan (210) menurut sistem kristal heksagonal Gambar 1.



Gambar 1. Difraktogram MCM-41 (Kresge *et al.*, 1992)



Gambar 2 Pola difraksi sinar-X material mesopori MCM-41 hasil sintesis

Difraksi sinar-X material MCM-41 ditunjukkan pada Gambar 2. Pola difraksi sinar-X yang dihasilkan intensitas puncak

yang tajam. Data yang ditunjukkan dari pola difraksi material MCM-41 yang dihasilkan terlihat 3 puncak yang muncul pada sudut 2θ kecil antara $2 - 5^\circ$ berturut-turut dan dapat diindeks menurut sistem kristal heksagonal (Tabel 1) dengan bidang kristal (100), (110) dan (200). Puncak-puncak yang muncul pada sudut 2θ kecil dan dapat diindeks sebagai bidang kristal sistem heksagonal memberikan bukti bahwa padatan hasil sintesis merupakan material mesopori MCM-41 seperti yang ditunjukkan pada hasil penelitian Kresge et al., 1992(Gambar 1).

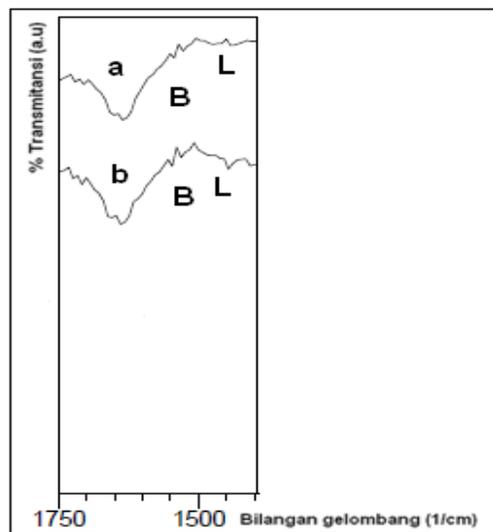
Katalis Ni/MCM-41

Material Ni/MCM-41 yang mengalami pertukaran ion Na^+ dengan logam Nikel dari NiCl_2 . Dalam proses perengkahan katalitik, dibutuhkan katalis yang memiliki tingkat keasaman yang tinggi. Keterlibatan Logam Ni pada katalis identik dengan sifat keasaman Brønsted. Logam Ni yang terkandung dalam material MCM-41 hasil sintesis dapat meningkatkan tingkat keasaman material tersebut sehingga dapat meningkatkan aktivitas katalitiknya sebagai katalis dalam proses perengkahan.

Karakterisasi menggunakan FTIR dan uji keasaman katalis Ni/MCM-41

Situs asam yang terkandung pada material Ni/MCM-41 adalah situs asam Brønsted (B) dan situs asam Lewis (L). Menurut Chen *et al.* (1996), adsorpsi piridin memiliki karakteristik dengan munculnya serapan pada daerah bilangan gelombang 1540 cm^{-1} untuk situs asam Brønsted dan serapan pada daerah bilangan gelombang 1450 cm^{-1} untuk situs asam Lewis. Katalis MCM-41 diubah menjadi katalis Ni/MCM-41 untuk meningkatkan tingkat keasaman material

tersebut. Gambar 1 menunjukkan spektra inframerah untuk katalis MCM-41 dan Ni/MCM-41 yang telah diuji tingkat keasamannya melalui proses gravimetri menggunakan piridin.



Gambar 1 Spektra inframerah hasil uji keasaman (a) MCM-41 dan (b) Ni/MCM-41

Tabel 1 Keasaman material katalis Ni/MCM-41 menggunakan absorpsi basa

Jenis katalis	Keasaman Material	
	Amoniak (mmol gram ⁻¹)	Piridin (mmol gram ⁻¹)
MCM-41	0,8429	0,7407
Ni/MCM-41	1,4788	3,7497

PENUTUP

Kesimpulan Dan Saran

Kesimpulan yang dapat diambil adalah Material katalis mesopori MCM-41 yang telah dibuat menjadi Ni/MCM-41 dengan metode pertukaran logam Ni dapat menambah tingkat keasaman material katalis dan tingkat keasaman Brønsted lebih tinggi dibandingkan tingkat keasaman Lewis pada material mesopori Ni/MCM-41.

Sedangkan Saran dalam penelitian ini yaitu perlu dilakukan penelitian lebih lanjut tentang katalis Ni/MCM-41 untuk lebih meningkatkan aktivitasnya sebagai katalis dalam proses perengkahan agar dapat meningkatkan produk hasil perengkahan dan perlu dilakukan perbandingan metode yang digunakan dalam peningkatan tingkat keasaman material Ni/MCM-41 untuk kegunaannya sebagai katalis.

Catalysts with Various Si/Al Ratios, *Microporous and Mesoporous Materials*, 64, pp. 95-107.

DAFTAR PUSTAKA

- Beck, J. S., Vartuli, J. C., Roth, W. J., Leonowicz, M. E., Kresge, C. T., Schmitt, K. D., Chu, C. T. W., Olson, D. H., dan Sheppard, E. W., 1992, A new family of mesoporous molecular sieves prepared with liquid crystal templates, *Journal of the American Chemical Society*, 114(27), pp.10834-10843.
- Chen, X., Huang, L., Ding, G, dan Li, Q., 1996, Characterization and Catalytic Performance of Mesoporous Molecular Sieves AL-MCM-41 Materials, *Catalysis Letters*, 44, pp. 123-128.
- Kresge, C.T., Leonowicz, M. E., Roth, W.J., Vartuli, J. C., dan Beck, J. S., 1992, Ordered Mesoporous Molecular Sieves Synthesized By A Liquid-Crystal Template Mechanism, *Letters to Nature*, 359(nature), pp.710-712.
- Twaiq, F. A., Mohamed, A. R., dan Bhatia, S., 2003, Liquid Hydrocarbon Fuels from Palm Oil by Catalytic Cracking over Aluminosilicate Mesoporous