

PEMBUATAN DAN KARAKTERISASI KATALIS NIKEL PADA PADATAN PENDUKUNG ZEOLIT

Ahmad Suseno, W. Wijayanto, M. Khanif, R. Hastuti

Laboratorium Kimia Fisik Jurusan Kimia
FMIPA Universitas Diponegoro Semarang 50275

ABSTRAK

Pembuatan katalis Ni-Zeolit telah dilakukan dengan cara pertukaran ion larutan nikel nitrat pada padatan pendukung zeolit alam. Karakterisasi katalis dilakukan dengan AAS yang bertujuan untuk menentukan kandungan logam. Sifat keasaman permukaan padatan katalis ditentukan melalui adsorpsi gas ammonia secara gravimetri dan spektroskopi IR. Kajian dilakukan terhadap hubungan antara beberapa parameter diantaranya konsentrasi larutan ion ammonium, kondisi reduksi pada proses pembuatan katalis. Hasil penelitian menunjukkan bahwa logam Ni berhasil dimasukkan pada padatan zeolit dengan konsentrasi ion amonium 2,0 M dan temperatur reduksi 400°C mampu menukarkan logam nikel terbanyak serta menghasilkan tingkat keasaman katalis tertinggi.

Kata kunci : zeolit, pertukaran ion, keasaman

ABSTRACT

Preparation of Ni-Zeolite catalyst by ion exchange nitrate solution on natural zeolite support has been investigated. Using AAS to determine nickel loading did the characterization of catalyst. The catalyst acidity was conducted by ammonia gas adsorption according gravimetric and spectroscopy IR. It was also studied the relation of some parameters e.g., the ammonium ion concentration and reduction step on the preparation of catalyst. The experimental result indicated that the nickels have been successfully to exchanged in the zeolite. It was concluded that the optimum catalyst acidity was achieved in catalyst with concentration of the ammonium ion 2,0 M, prepared reduction process at 400°C.

Keyword: zeolite, ion exchange, acidity

PENDAHULUAN

Zeolit telah banyak digunakan dalam bidang industri kimia baik sebagai penukar ion, pemisahan gas serta berfungsi sebagai katalis heterogen. Zeolit dapat mengkatalisa beberapa reaksi seperti cracking, isomerisasi dan sintesa hidrokarbon. Peran dan aktivitas zeolit dalam mengkatalisa sangat ditentukan oleh jumlah dan situs asam yang terdapat pada permukaan. Karena kekuatan asam zeolit alam berada pada daerah yang lebar maka selektivitas katalis menjadi rendah. Dengan demikian perlu dilakukan penyeragaman kekuatan asam katalis yang dapat dilakukan dengan cara dealuminasi parsial atau penggantian situs aktif permukaan dengan cara mendispersikan logam aktif ke zeolit (Imelik dkk, 1980; Cervený, L, 1986).

Metoda yang sering digunakan untuk mendistribusikan logam Ni dalam zeolit dilakukan dengan cara impregnasi dan *ion exchange*. Pada metoda *ion exchange*, cara memasukkan kation ke dalam kerangka zeolit dilakukan melalui pertukaran antara kation alkali atau alkali tanah dengan larutan garam logam prekursor. Bila *ion exchange* berlangsung pada zeolit alam, maka dengan cara menukarkan logam alkali atau al-

kali tanah dengan ion Ni²⁺ akan berjalan pada temperatur 180°C. Pada penelitian ini *ion exchange* dilakukan tidak secara langsung tetapi melalui dua tahap. Tahap pertama dilakukan dengan pembentukan NH₄-Zeolit, dilanjutkan tahap berikutnya adalah *ion exchange* logam Ni²⁺ ke dalam NH₄-Zeolit yang berlangsung pada temperatur kamar. Salah satu parameter penting pada pembuatan Ni-Zeolit melalui proses *ion exchange* yaitu konsentrasi ion amonium akan dikaji disamping perlakuan reduksi (Imelik, 1980; Tsitsishvili, G.V., 1992, Naccache, 1984)).

METODA PENELITIAN

Bahan yang digunakan pada penelitian ini meliputi : Zeolit alam asal Bayah, HCl pa, NH₄NO₃ pa, Ni(NO₃)₂ · 6 H₂O, gas N₂, H₂, Amonia 21% dan aquadest. Sedangkan alat-alat yang digunakan yaitu pH meter, Oven vacuum, AAS Perkir Almer 3110, Shimadzu FTIR-820 IPC dan alat-alat gelas. Katalis dibuat dalam 4 tahap yaitu : dealuminasi zeolit, pertukaran ion I, peertukaran ion II dan aktivasi.

Dealuminasi Zeolit

Sebanyak 400 gr zeolit alam asal Bayah berukuran 1 mm ditambah HCl 6 N dididihkan selama 3 jam, se-

lanjutnya dinetralkan dengan aquades dan dikeringkan pada temperatur 100 – 120°C.

Pertukaran Ion I

Sejumlah zeolit yang telah terdealuminasi ditambahkan 100 ml NH₄NO₃ dengan variasi konsentrasi 0,0 M; 0,5 M; 1,0 M; 2,0 dan 3,0 M dan dikocok dengan orbital shaker.

Pertukaran Ion II

Zeolit yang telah mengalami proses pertukaran tahap I selanjutnya ditambahkan larutan Ni (NO₃)₂ 6H₂O sebanyak 2% b/b (2000 rpm). Setelah dikeringkan katalis dibuat pellet dengan diameter 6 mm.

Aktivasi Katalis

Katalis selanjutnya dikalsinasi pada temperatur 450°C dengan dialiri gas N₂ selama 6 jam kemudian direduksi dengan dialiri H₂, pada temperatur yang divariasi.

Karakterisasi Katalis

Padatan katalis hasil aktivasi kemudian dianalisis dengan spektroskopi IR untuk menentukan sifat keasaman dengan adsorpsi gas amonia dan jumlah keasaman ditentukan secara gravimetric yang dinyatakan dalam satuan mmol/gr. Adapun kandungan logam Ni yang berhasil dimasukkan zeolit ditentukan dengan AAS.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil analisa kadar logam nikel meningkat dengan semakin besarnya konsentrasi ion ammonium (Tabel 1). Meskipun demikian pada konsentrasi 3,0 justru terjadi penurunan kadar Ni. Fenomena tersebut dapat dijelaskan bahwa penggunaan NH₄NO₃ selain mampu berfungsi sebagai penukar ion, juga menyebabkan terjadinya pengurangan kandungan Al pada kerangka zeolit. Berkurangnya kandungan Al tentu saja akan berpengaruh terhadap jumlah kation penyeimbang yang dapat dipertukarkan, sehingga jumlah logam Ni yang masuk ke dalam akan berkurang.

Tabel 1. Kadar logam Ni dalam katalis Ni-Zeolit

Nama Sampel	Konsentrasi ion NH ₄ ⁺	Kadar Ni pada Katalis (ppm)
ZA	-	-
ZS	0,0	2931,631
ZN1	0,5	2839,818
ZN2	1,0	2941,108
ZN3	2,0	3186,898
ZN4	3,0	2997,105

Tabel 2. Adsorpsi gas NH₃ pada katalis Ni-Zeolit

Nama Sampel	Kadar Ni pada Katalis (ppm)	Keasaman (mmol/gr)
ZA	-	0,7921
ZS	2931,631	0,8653
ZN1	2839,818	0,9523
ZN2	2941,108	0,9775
ZN3	3186,898	1,0679
ZN4	2997,105	0,4012

Hubungan antara kadar Ni dengan keasaman juga menunjukkan (Tabel 2.) bahwa keasaman katalis meningkat seiring dengan semakin besarnya kadar Ni. Nilai keasaman tertinggi dicapai oleh atalis ZN3 dengan kadar Ni tertinggi. Hal ini menunjukkan bahwa logam aktif mempunyai sifat aktif mengadsorpsi amonia, sehingga jumlah amonia yang teradsorpsi lebih banyak dibandingkan dengan zeolit alam yang hanya memiliki situs asam Lewis dan asam Bronsted. Dengan adanya logam aktif akan muncul muatan positif parsial pada permukaan logam karena distribusi elektron cenderung tertarik oleh atom oksigen dalam kerangka zeolit. Muatan parsial positif ini dapat menarik pasangan bebas dari basa untuk membentuk asam konjugatnya.

Tabel 3. Kadar logam Ni dalam katalis Ni-Zeolit

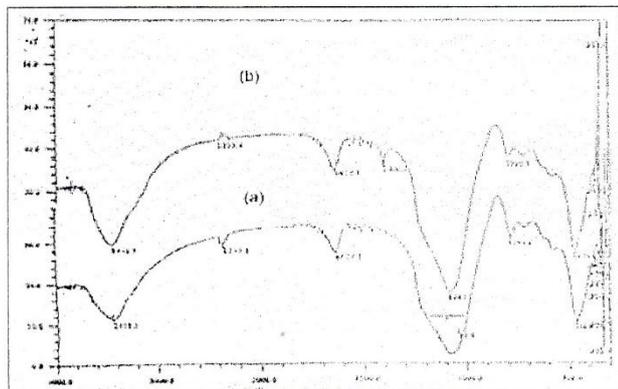
Nama Sampel	Keasaman sebelum reduksi (mmol/gr)	Keasaman sesudah reduksi (mmol/gr)
ZN3-300	1,0679	3,779
ZN3-350	1,0679	3,616
ZN3-400	1,0679	4,350
ZN3-450	1,0679	2,862

Dari Tabel 3. terlihat pengaruh pasangan temperatur reduksi terhadap keasaman katalis Ni-Zeolit. Keasaman meningkat dan mencapai maksimum pada temperatur 400 °C. Hal ini menunjukkan bahwa prosentase nikel yang tereduksi menjadi aktif meningkat dengan kenaikan temperatur reduksi.

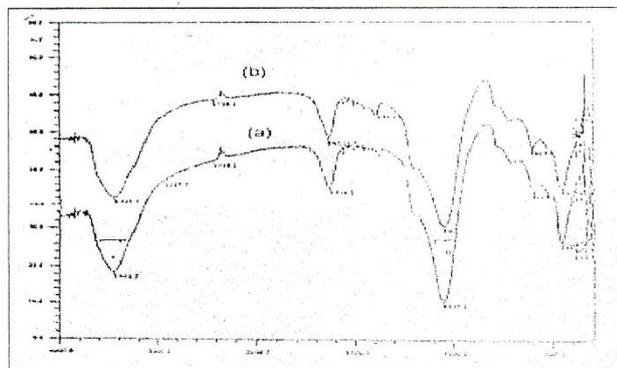


Dari persamaan di atas menunjukkan sistem bersifat endoterm dan reaksi tidak spontan oleh karenanya dengan menaikkan energi (termal) diharapkan reaksi dapat berjalan, sehingga prosentase logam yang tereduksi dan keasaman total katalis meningkat (Bartholomew, 1976). Sementara prosentase logam tereduksi meningkat sejalan dengan naiknya temperatur reduksi. Keadaan ini secara tidak langsung akan membuat ukuran kristal bertambah sehingga mengakibatkan terjadinya proses sintering

yang dapat menurunkan luas permukaan logam dan keasaman total katalis.



Gambar 1. Spektra FTIR Zeolit alam (ZA) (a) sebelum (b) sesudah mengadsorpsi gas NH_3



Gambar 2. Spektra FTIR Ni-Zeolit (ZN3) (a) sebelum (b) sesudah mengadsorpsi gas NH_3

Analisis spektra FTIR menunjukkan adanya pita hidroksil pada frekuensi $3448,5 \text{ cm}^{-1}$. Pita hidroksil dipertegas kembali dengan adanya serapan yang tajam pada frekuensi $1629,7 \text{ cm}^{-1}$. Fenomena ini terjadi karena zeolit alam dan katalis Ni-Zeolit sangat mudah menyerap uap air yang berada di lingkungan. Spektra FTIR zeolit alam sebelum dan sesudah mengadsorpsi NH_3 dapat dilihat pada Gambar 1.a dan 1.b. Hasil analisa spektra FTIR pada zeolit alam, terdapat serapan yang tajam pada frekuensi 1055 cm^{-1}

menunjukkan asimetri stretching Si-O-Al. Zeolit alam mengadsorpsi NH_3 pada frekuensi $1384,8 \text{ cm}^{-1}$.

Sebagaimana ditunjukkan pada Gambar 2.a dan 2.b, dimana spektra FTIR pada katalis Ni-Zeolit sebelum dan sesudah mengadsorpsi NH_3 di daerah $1400,2 \text{ cm}^{-1}$ yang berarti terjadi pergeseran yang cukup besar, hal tersebut dimungkinkan karena adanya perbedaan mendasar antara situs-situs aktif yang berperan dalam zeolit berbeda dengan situs-situs aktif pada katalis Ni-Zeolit. Dari spektra tersebut secara beruntun terjadi pergeseran asimetri stretching dari frekuensi 1055 cm^{-1} menuju $1085,8 \text{ cm}^{-1}$ yang mengidentifikasi adanya pengurangan atom Al dari kerangka.

KESIMPULAN

Variasi konsentrasi ion amonium berpengaruh terhadap jumlah logam Ni yang masuk ke dalam zeolit alam secara *ion exchange*. Dilain pihak jumlah Ni yang masuk pada zeolit mampu meningkatkan keasaman katalis Ni-Zeolit dengan perlakuan reduksi yang mencapai optimal pada temperatur $400 \text{ }^\circ\text{C}$ sebagaimana diperlihatkan pada spektra FTIR berdasarkan adanya serapan basa NH_3 pada frekuensi $1400,2 \text{ cm}^{-1}$.

PUSTAKA ACUAN

1. Naccache, C. and Y.B. , Taarif, *Transition metal exchanged Zeolites: Physical and Catalytic Properties*, Institut de recherches sur la Catalyse, zeolite, saint and Technology, Martnus Nijhoff Publisher, 1984, pp 373-375
2. Cerveny, L., *Studies in Surface science and Catalytic Hydrogenation*, vol 27, Elsevier Scientific Publishing, 1986, pp 411, 418-419
3. Tsitsishvili, G.V., *Natural Zeolites*, Ellis Horwood, New York, 1992, pp 16-19.
4. Emelik, B., *Catalysis by Zeolite, Proceeding of an International Symposium*, Elsevier Scientific Publishing Co, New York, 1980
5. Bartholomew, S.H., ang Farrauto, R.L., *Chemistry of Nickle Alumina*, *J.Catal*, 45, pp 19-27, 1976.