

SINTESIS METIL AMINA FASA CAIR DARI AMONIAK DAN METANOL

M. Nasikin dan I. Mangatur^{*)}

Abstrak

Secara umum terdapat tiga jenis amina, yaitu monometil amina (MMA), dimetil amina (DMA) dan trimetil amina (TMA). Pada kondisi reaksi setimbang, TMA diperoleh dengan selektivitas tertinggi, tetapi produk ini kurang diharapkan karena nilai ekonomisnya rendah dan membentuk azeotrop dengan MMA dan DMA. Pada penelitian ini sintesis metil amina dari amoniak dan metanol dilakukan dengan menggunakan katalis heteropoli $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$, $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$, dan Al_2O_3 dengan fasa cair. Katalis garam heteropoli adalah shape selective catalyst pada reaksi fasa gas, pada reaksi fasa cair katalis tersebut juga dapat menekan laju pembentukan TMA. Sebagai reaktor digunakan autoclave dengan suhu reaksi 60 dan 80 °C, serta tekanan 16 bar.

Hasil karakterisasi dengan metode BET menunjukkan luas permukaan katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ semakin meningkat dengan semakin tingginya harga x. Seluruh katalis aktif pada reaksi dan aktivitas katalis semakin meningkat dengan semakin besarnya luas permukaan kecuali untuk katalis Al_2O_3 . Aktivitas katalis berturut-turut ialah $K_{2.5}H_{0.5}PW_{12}O_{40} > (NH_4)_3PW_{12}O_{40} > Al_2O_3 > K_2H_1PW_{12}O_{40} > K_1H_2PW_{12}O_{40} > K_0H_3PW_{12}O_{40}$. Seluruh katalis mampu menekan selektivitas TMA hingga 100%, dan diperoleh selektivitas DMA yang tinggi (98%). Tidak terbentuknya TMA pada reaksi tidak hanya akibat ukuran pori katalis lebih besar dari TMA, namun juga karena perbedaan kebasaaan setiap produk. Tingginya selektivitas DMA disebabkan kebasaaan DMA yang tinggi sehingga teradsorpsi sangat kuat dipermukaan katalis dan menghentikan reaksi lanjut DMA menjadi TMA. Pada katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ penambahan mmol H^+ /mmol metanol dari 2.5 mejadi 5 meningkatkan konversi metanol dari 45 menjadi 47 %, sedangkan peningkatan suhu dari 60 °C menjadi 80 °C meningkatkan konversi metanol dari 36% menjadi 46%.

Kata Kunci : metil amina, methanol, amoniak, reaksi fasa cair

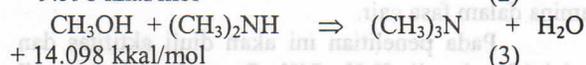
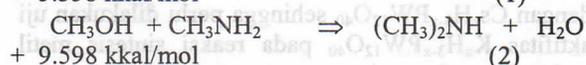
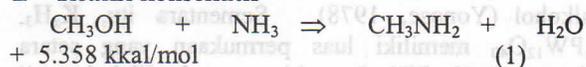
Pendahuluan

Metil amina merupakan senyawa organik yang berupa gas tidak berwarna pada suhu ruang (Ulman, 1989), senyawa ini diperoleh dari hasil penggantian atom hidrogen dari amoniak dengan gugus lain (metil). Secara umum terdapat tiga jenis amina, yaitu primer, sekunder, dan tersier, yang secara berurutan menunjukkan gugus metil yang terdapat pada senyawanya. Ketiga tipe tersebut ialah CH_3NH_2 (MMA), $(CH_3)_2NH$ (DMA) dan $(CH_3)_3N$ (TMA).

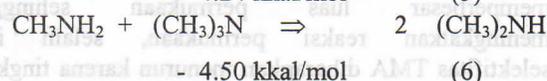
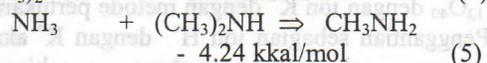
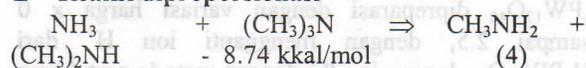
Kebutuhan pasar pada produk metil amina terutama DMA terus meningkat dari tahun ke tahun, persentase kebutuhan pasar dunia untuk produk metil amina ialah 24% MMA, 57% DMA, 19% TMA (Ulman, 1989). Peningkatan kebutuhan metil amina terutama DMA, disebabkan dimetil amina (DMA) merupakan salah satu produk penting yang digunakan sebagai pelarut dalam pembuatan fiber akrilik (Riegel's, 1983).

Metil amina secara komersial disintesis dengan mereaksikan amoniak dan metanol dalam fasa gas dengan menggunakan katalis-katalis asam seperti silika-alumina, alumina, dan zeolit (Ketta, 1977). Sintesis metil amina tersebut memenuhi enam reaksi kesetimbangan bimolekular sebagai berikut (Ulman, 1989):

□ Reaksi konsekutif



□ Reaksi diproporsionasi



Sintesis tersebut menghasilkan produk MMA, DMA, dan TMA, yang secara termodinamika pada kesetimbangan diperoleh produk TMA dengan selektivitas yang tinggi. Namun TMA merupakan produk yang paling tidak diinginkan, karena selain cenderung membentuk azeotrop apabila bercampur dengan kedua produk lainnya sehingga meningkatkan biaya pemisahan, kebutuhan pasar akan produk TMA relatif rendah dibandingkan MMA dan DMA. Oleh karena itu pada sintesis perlu dilakukan upaya untuk

^{*)}Departemen Gas dan Petrokimia Program Studi Teknik Kimia – FTUI
Depok 16424, E-mail:mnasikin@che.ui.edu

menekan selektifitas produk TMA dan meningkatkan selektifitas dua produk lainnya (MMA dan DMA).

Umumnya melalui reaksi re-konversi yakni mereaksikan TMA dengan amoniak, selektifitas TMA dapat diturunkan, namun metode ini kurang efisien karena membutuhkan energi yang cukup besar sehingga kurang ekonomis. Karena itu diperlukan suatu studi untuk menentukan jenis katalis yang mampu memberikan produk MMA dan DMA dengan selektifitas yang tinggi dan mampu menekan selektifitas TMA sekecil mungkin.

Berbagai katalis telah dicoba oleh beberapa peneliti untuk dapat menekan selektifitas TMA, salah satunya ialah *modernite zeolit* yang dimodifikasi ukuran porinya. Penggunaan zeolit tersebut mampu menekan terbentuknya TMA namun kestabilannya masih memerlukan perbaikan (Segawa, 1991).

Asam Heteropoli ($H_3PW_{12}O_{40}$) dan garam alkalinya dilaporkan memiliki aktifitas yang baik dalam reaksi sintesis metil amina dari amoniak dan metanol pada fasa gas dan menghasilkan produk MMA dan DMA yang tinggi dan mampu menekan selektifitas TMA. $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$ pada suhu yang tinggi mampu mencapai selektifitas produk MMA dan DMA sampai 100%, hal ini dimungkinkan karena kekuatan adsorpsi TMA yang jauh lebih kuat terhadap $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$ dibandingkan dengan DMA dan MMA (Nasikin, dkk 1993). Garam $Cs_{2.95}H_{0.05}PW_{12}O_{40}$ dilaporkan memiliki selektifitas MMA dan DMA yang tinggi, dimana TMA tidak terbentuk sampai konversi metanol yang signifikan^[6]. Senyawa heteropoli juga dilaporkan memiliki aktifitas pada reaksi fasa cair untuk mengkonversi alkohol (Yonose, 1978). Sementara itu, $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ memiliki luas permukaan yang setara dengan $Cs_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ sehingga perlu dilakukan uji aktifitas $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ pada reaksi sintesis metil amina dalam fasa cair.

Pada penelitian ini akan diuji aktifitas dan selektifitas katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ pada sintesis metil amina fasa cair dari amoniak dan metanol. $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ dipreparasi dengan variasi harga x 0 sampai 2.5, dengan mengganti ion H^+ dari $H_3PW_{12}O_{40}$ dengan ion K^+ dengan metode pertukaran ion. Penggantian sebagian ion H^+ dengan K^+ akan memperbesar luas permukaan sehingga meningkatkan reaksi permukaan, selain itu selektifitas TMA diharapkan menurun karena tingkat kebasaaan dari DMA yang tinggi dibanding TMA dan MMA, sehingga keasamaan katalis akan cenderung menghasilkan produk dengan tingkat kebasaaan tertinggi yakni DMA.

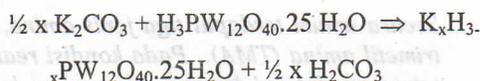
Metode Penelitian

Penelitian dilakukan dalam lima lima tahap, yaitu :

- Preparasi katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$.
- Karakterisasi BET katalis utama $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ dan katalis pembanding lainnya.

- Uji aktivitas katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$
- Uji aktivitas katalis-katalis pembanding
- Karakterisasi FTIR katalis $K_2H_1PW_{12}O_{40}$

Preparasi Katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ untuk nilai $x = 0, 1, 2,$ dan 2.5 dan $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$ dilakukan dengan menggunakan metode pertukaran ion sesuai reaksi berikut :



Langkah-langkah preparasi ialah sebagai berikut :

1. Menimbang reaktan $H_3PW_{12}O_{40}$ dan K_2CO_3 masing-masing sebanyak 2.467 gr dan 0.005 gr.
2. Melarutkan reaktan $H_3PW_{12}O_{40}$ dan K_2CO_3 masing-masing dalam aquadest sampai jenuh
3. Menitrasi larutan $H_3PW_{12}O_{40}$ dengan larutan K_2CO_3 , disertai pengadukan dengan menggunakan strirer. Selama titrasi akan terbentuk larutan suspensi berwarna putih.
4. Larutan putih keruh yang terbentuk kemudian diuapkan sampai kering dengan menggunakan *boiling-water bath* ($T = 100^\circ C$) disertai pengadukan. Serbuk kemudian dimasukkan dalam oven ($T = 100^\circ C \pm 2$ jam)
5. Padatan kemudian ditumbuk/digerus hingga berbentuk serbuk halus, kemudian disimpan didalam desikator
6. Langkah 1 sampai dengan langkah 7 diulangi untuk harga x yang berbeda.
7. Untuk preparasi katalis garam $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$ sebanyak 3 gr langkah 1-6 diulangi untuk reaktan $H_3PW_{12}O_{40}$ dan $(NH_4)_2CO_3$ sebanyak 2.948 gr dan 0.1474 gr.

Pengujian reaksi sintesis metil amina fasa cair dengan menggunakan amoniak dan metanol sebagai reaktannya dilakukan untuk menguji aktivitas katalis utama garam heteropoli $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$. Reaksi dilakukan didalam unit reaktor *autoclave*, sedangkan produk reaksi dianalisa menggunakan *Gas Chromatograph* (GC)

Prosedur uji aktivitas untuk katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ dapat diuraikan sebagai berikut :

1. Masukkan metanol dan larutan amoniak 25% kedalam reaktor batch (*autoclave*) sebanyak masing-masing 3 ml dan 16.67 ml.
2. Timbang katalis garam heteropoli $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ kemudian masukan kedalam reaktor.
3. Isi reaktor dengan udara tekan 16 bar (± 2 menit).
4. Atur temperatur *hotplate* sebesar $150^\circ C$, sehingga temperatur didalam reaktor $80^\circ C$.
5. Lakukan reaksi selama 8 jam dengan interval pengambilan sampel tiap 2 jam.
6. Ambil sampel pada jam ke-2, 4, 6, dan 8 sebanyak ± 2 ml kedalam tabung reaksi lalu tutup dengan *wrapping plastic*.

7. Sampel kemudian di sentrifuge selama ± 3 menit untuk mengendapkan padatan.
8. Ambil sampel dengan menggunakan *syring liquid* sebanyak 1 mikroliter lalu injeksikan ke injektor pada gas kromatograf (GC).

Hasil Penelitian dan Pembahasan

Hasil penelitian menunjukkan bahwa katalis garam heteropoli $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$, $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$, dan Al_2O_3 adalah katalis yang aktif pada reaksi sintesis metil amina fasa cair dari amoniak dan metanol. *Yield* produk yang dihasilkan sangat ditentukan oleh kemampuan adsorpsi katalis terhadap reaktan (amoniak dan metanol) dan kondisi operasinya.

Luas permukaan katalis

Dari karakterisasi BET, diperoleh data luas permukaan dan ukuran pori seperti terlihat pada Tabel 1. Tabel 1 menunjukkan bahwa kandungan ion kalium didalam katalis heteropoli meningkatkan luas permukaan secara signifikan. Hal ini karena garam heteropoli memiliki struktur berpori yang berpengaruh terhadap luas permukaan.

Tabel 1. Luas permukaan katalis (Metode BET)

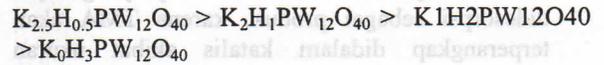
Katalis	Luas Area (m ² /g)	Diameter pori (Å)
$K_0H_3PW_{12}O_{40}$	8.107	7.556
$K_1H_2PW_{12}O_{40}$	26.43	9.219
$K_2H_1PW_{12}O_{40}$	77.54	9.568
$K_{2.5}H_{0.5}PW_{12}O_{40}$	94.47	9.456
$(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$	53.54	9.773
Al_2O_3	187	7.412

Pengaruh Waktu Reaksi Terhadap Produk dengan Katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$

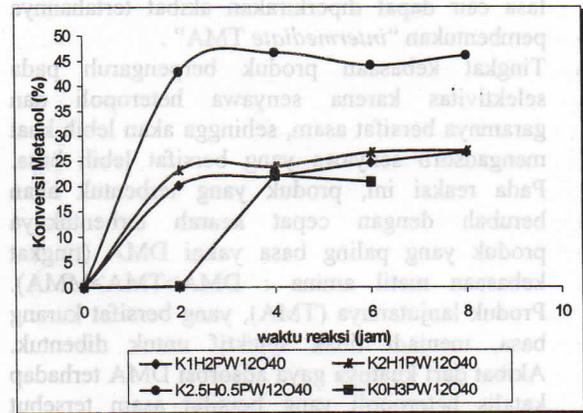
Pengaruh waktu reaksi terhadap konversi methanol diuji selama 8 jam reaksi. Gambar 1 menunjukkan aktivitas masing-masing katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$. Pada Gambar 1 terlihat bahwa laju reaksi sintesis metil amina relatif cepat, sehingga setelah jam ke-4 seluruh reaksi telah mencapai kesetimbangan. Dari Gambar 1 juga terlihat hubungan antara peningkatan kandungan kation ion K^+ (harga x) pada katalis terhadap aktivitas katalis. Semakin banyak kandungan ion K^+ maka konversi metanol akan semakin meningkat. Seperti telah dijelaskan sebelumnya, luas permukaan katalis meningkat dengan bertambahnya harga x (ion K^+). Peningkatan luas permukaan menyebabkan kenaikan konversi metanol yang setara dengan peningkatan aktivitas.

Struktur katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ yang rigid membuat reaksi hanya terjadi di permukaan katalis sehingga luas permukaan katalis menjadi faktor yang signifikan terhadap konversi yang dihasilkan.

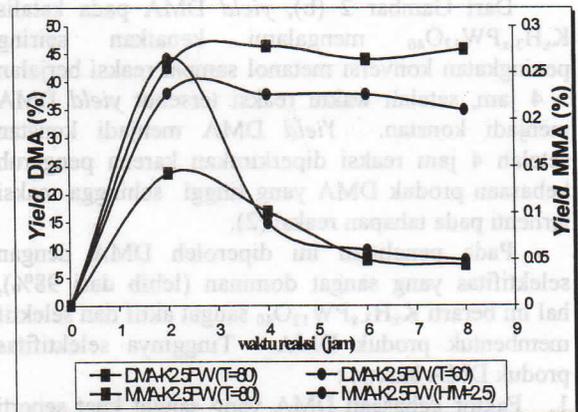
Berdasarkan aktivitasnya, katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ dapat diperbandingkan sebagai berikut :



Semakin tidak aktif →



Gambar 1. Pengaruh waktu reaksi terhadap konversi Metanol dengan katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ ($T = 80^\circ C$, mmol H^+ / mmol MeOH = 5)



Gambar 2. Pengaruh waktu reaksi terhadap Yield MMA dan DMA dengan katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ ($T = 80^\circ C$, mmol H^+ / mmol MeOH = 5)

Pada penelitian ini, sintesis metil amina dari amoniak dan metanol menghasilkan dua produk, yakni MMA dan DMA, sedang produk ketiga yakni TMA tidak terbentuk, seperti terlihat pada Gambar 2.

Tidak terbentuknya TMA pada reaksi menunjukkan bahwa katalis-katalis tersebut merupakan *selective catalyst* dengan menghasilkan produk MMA dan DMA. Tidak terbentuknya TMA karena:

1. TMA memiliki ukuran diameter molekul yang terbesar dibandingkan MMA dan DMA. Pada saat reaktan masuk ke pori-pori katalis KPW yang

rigid, reaksi hanya terjadi pada permukaan pori katalis dan menghasilkan produk metil amina. Namun hanya MMA dan DMA saja yang dapat didesorpsi sebagai produk, karena TMA akan terperangkap didalam katalis akibat ukuran molekulnya yang besar. Mengingat ukuran pori katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ lebih besar dari diameter TMA, maka tidak terbentuknya TMA pada reaksi fasa cair dapat diperkirakan akibat tertahannya pembentukan "intermediate TMA".

2. Tingkat kebasahan produk berpengaruh pada selektivitas karena senyawa heteropoli dan garamnya bersifat asam, sehingga akan lebih kuat mengadsorb senyawa yang bersifat lebih basa. Pada reaksi ini, produk yang terbentuk akan berubah dengan cepat kearah terbentuknya produk yang paling basa yakni DMA (tingkat kebasahan metil amina : $DMA > TMA > MMA$). Produk lanjutannya (TMA), yang bersifat kurang basa, menjadi tidak selektif untuk dibentuk. Akibat dari kuatnya gaya adsorpsi DMA terhadap katalis heteropoli yang bersifat asam tersebut menyebabkan katalis tidak mampu menyerap reaktan untuk menghasilkan produk TMA sebagaimana teori reaksi konsekutif. Hal ini yang menyebabkan tidak diperolehnya TMA pada reaksi ($MMA \Rightarrow DMA \Rightarrow TMA$).

Dari Gambar 2 (b), *yield* DMA pada katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ mengalami kenaikan seiring peningkatan konversi metanol sampai reaksi berjalan ± 4 jam, setelah waktu reaksi tersebut *yield* DMA menjadi konstan. *Yield* DMA menjadi konstan setelah 4 jam reaksi diperkirakan karena pengaruh kebasahan produk DMA yang tinggi sehingga reaksi terhenti pada tahapan reaksi (2).

Pada penelitian ini diperoleh DMA dengan selektivitas yang sangat dominan (lebih dari 98%), hal ini berarti $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ sangat aktif dan selektif membentuk produk DMA. Tingginya selektivitas produk DMA karena :

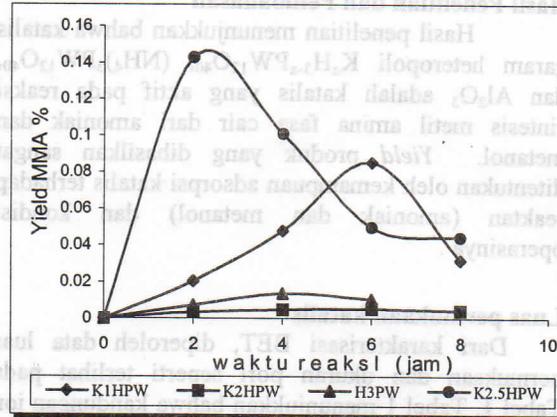
1. Faktor kebasahan DMA yang sangat kuat seperti yang sudah dijelaskan sebelumnya.
2. MMA akan mengalami reaksi konsekutif seperti pada reaksi (2), untuk menghasilkan DMA. Hal inilah yang menyebabkan MMA diperoleh dengan tingkat *yield* yang sangat rendah. Fenomena ini dapat dilihat pada Gambar 3 (a).

Dari Gambar 3 (a) terlihat bahwa untuk seluruh katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ diperoleh *yield* MMA yang sangat rendah dan terus menurun selama waktu reaksi. Pada Gambar 3 (a) terlihat setelah jam ke dua terjadi penurunan *yield* MMA yang diikuti kenaikan *yield* DMA, seperti terlihat pada Gambar 3 (b).

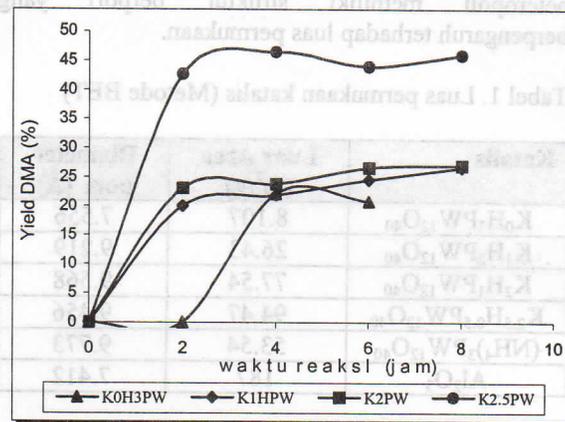
Pengaruh temperatur reaksi terhadap aktivitas katalis

Gambar 3. menunjukkan pengaruh temperatur reaksi terhadap *yield* MMA dan DMA pada katalis $K_{2,5}H_{0,5}PW_{12}O_{40}$. Dari Gambar 4 terlihat

bahwa semakin tinggi temperatur reaksi maka aktivitas katalis akan semakin tinggi yang ditunjukkan dengan lebih tingginya *yield* DMA. Hal ini disebabkan secara kinetika kimia laju reaksi akan semakin cepat dengan semakin tingginya temperatur reaksi.



[a]

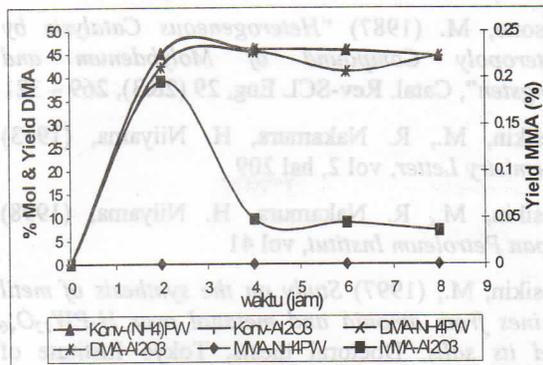


[b]

Gambar 3. a. Pengaruh waktu reaksi terhadap *yield* MMA ($K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$)
b. Pengaruh waktu reaksi terhadap *yield* DMA ($K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$)

Dari Gambar 4. terlihat bahwa pada temperatur reaksi yang lebih rendah diperoleh *yield* MMA yang lebih tinggi. Hal ini mengindikasikan bahwa DMA akan lebih sulit terbentuk pada temperatur yang lebih rendah, karena reaksi disproporsionasi MMA menjadi DMA (Reaksi 6) berlangsung secara endotermis. Apabila temperatur reaksi lebih rendah, maka kalor yang dibutuhkan pada reaksi disproporsionasi akan berkurang, sehingga lebih sedikit MMA yang terkonversi menjadi DMA

Pengaruh Waktu Reaksi Terhadap Mol Produk dengan Katalis Al_2O_3 dan $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$.



Gambar 4. Profil hasil reaksi katalis $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$ dan Al_2O_3

Pada penelitian ini sebagai katalis pembanding digunakan $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$ (NH_4PW) dan Al_2O_3 . Alumina (Al_2O_3) dikenal memiliki luas permukaan yang relatif besar, hal ini ditunjukkan oleh hasil analisis dengan metode BET yang memperoleh luas permukaan sebesar $187\text{ m}^2/\text{g}$. Katalis ini merupakan tipe katalis konvensional, dimana reaksi hanya terjadi di permukaan saja. Aktifitas kedua katalis pada reaksi sintesis metil amina fasa cair dari amoniak dan metanol dapat dilihat pada Gambar 4.

Seperti terlihat pada Gambar 4, kedua katalis pembanding yang digunakan memberikan profil hasil yang hampir sama dengan profil hasil reaksi katalis utama $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$. NH_4PW memiliki konversi metanol maksimum 46%, dan 45% untuk alumina. Hasil ini menunjukkan kedua katalis aktif dalam reaksi, dan keduanya memberikan produk yang sama yakni MMA dan DMA sedang TMA tidak terbentuk.

Metode BET menunjukkan bahwa luas permukaan Al_2O_3 jauh lebih besar dari katalis NH_4PW (lihat Tabel 1), namun kedua katalis memiliki aktivitas yang relatif sama. Hal ini dikarenakan pada NH_4PW terjadi reaksi didalam *bulk* katalisnya. Pada reaksi dengan NH_4PW dan Al_2O_3 tidak dihasilkan produk TMA, hal ini sesuai dengan fenomena yang terjadi pada penggunaan katalis utama $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ seperti telah dijelaskan sebelumnya. Fenomena tidak terbentuknya TMA dengan katalis NH_4PW ini juga dilaporkan oleh Nasikin, dkk. dalam reaksi fasa gas (Shanon, 1999).

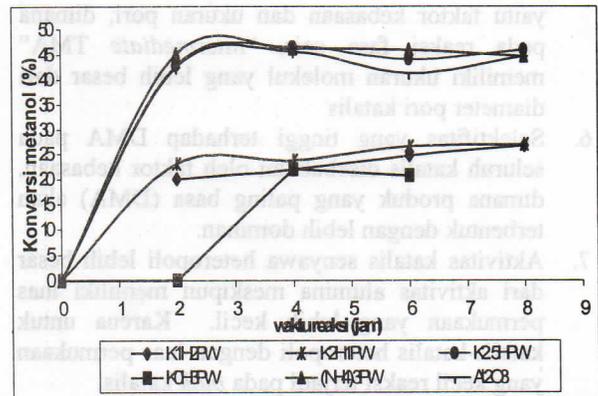
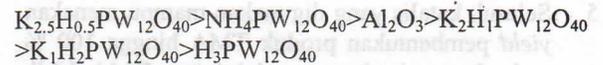
Dari hasil analisa data diperoleh tingkat yield MMA pada kedua katalis sangat kecil dan terus menurun seiring dengan waktu. Rendahnya yield MMA terutama pada NH_4PW dikarenakan NH_4PW lebih aktif dari alumina.

Perbandingan aktifitas $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$, $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$, dan Al_2O_3 .

Profil konversi metanol pada sintesis metil amina fasa cair dengan menggunakan katalis K_xH_3 .

$xPW_{12}O_{40}$ dan katalis pembanding $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$ dan Al_2O_3 dengan kondisi operasi $T = 80\text{ }^\circ\text{C}$ dan $P = 16$ bar dapat dilihat pada Gambar 5. Gambar 5 menampilkan profil aktifitas dari masing-masing katalis yang digunakan pada penelitian ini, dimana aktifitas katalis ditunjukkan dengan konversi dari reaktan (metanol).

Dengan kondisi operasi yang sama maka untuk seluruh katalis berdasarkan aktivitasnya dapat dituliskan sebagai berikut :



Gambar 5. Pengaruh waktu reaksi terhadap konversi metanol pada katalis

Aktivitas katalis kecuali pada Al_2O_3 sebanding dengan luas permukaan katalis (Tabel 1). Hal ini menunjukkan luas permukaan merupakan faktor utama yang menentukan aktivitas katalis. Sedangkan untuk Al_2O_3 rendahnya aktivitas katalis meskipun luas permukaannya besar dikarenakan pada katalis Al_2O_3 memiliki kekuatan asam yang lebih rendah dibandingkan dengan senyawa heteropoli. Nasikin dkk, juga melaporkan bahwa alumina merupakan katalis asam yang relatif kurang kuat jika dibandingkan dengan garam heteropoli sehingga aktivitasnya pada reaksi alkilasi menjadi lebih rendah (Nasikin, 1997)

Pada penelitian ini seluruh katalis yang digunakan pada reaksi sintesis metil amina fasa cair dari amoniak dan metanol tidak menghasilkan TMA dikarenakan faktor kebasahan dan perbedaan ukuran pori.

Kesimpulan

1. Luas permukaan dan aktivitas katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$ meningkat dengan bertambahnya harga x (kation K^+).
2. Katalis $K_xH_{3-x}PW_{12}O_{40}$, $(NH_4)_3PW_{12}O_{40}$ dan Al_2O_3 aktif dalam sintesis metil amina fasa cair

- dari metanol dan amoniak pada $T = 80\text{ }^{\circ}\text{C}$ dan $P = 16\text{ bar}$.
- 3.2. Aktifitas katalis berdasarkan tingkat konversi metanol yang dihasilkannya secara berturut ialah : $\text{K}_{2,5}\text{H}_{0,5}\text{PW}_{12}\text{O}_{40} > (\text{NH}_4)_3\text{PW}_{12}\text{O}_{40} > \text{Al}_2\text{O}_3 > \text{K}_2\text{H}_1\text{PW}_{12}\text{O}_{40} > \text{K}_1\text{H}_2\text{PW}_{12}\text{O}_{40} > \text{K}_0\text{H}_3\text{PW}_{12}\text{O}_{40}$.
 4. Pada seluruh katalis *yield* produk MMA akan semakin berkurang dengan bertambahnya waktu reaksi, yang diakibatkan oleh terkonversinya MMA menjadi DMA secara konsekutif dan disproporsionasi.
 5. Seluruh katalis yang digunakan mampu menekan *yield* pembentukan produk TMA hingga 100 % pada fasa cair dengan selektivitas DMA lebih besar dari 98%. Hal ini disebabkan dua faktor, yaitu faktor kebasaaan dan ukuran pori, dimana pada reaksi fasa cair, "intermediate TMA" memiliki ukuran molekul yang lebih besar dari diameter pori katalis
 6. Selektifitas yang tinggi terhadap DMA pada seluruh katalis disebabkan oleh faktor kebasaaan, dimana produk yang paling basa (DMA) akan terbentuk dengan lebih dominan.
 7. Aktivitas katalis senyawa heteropoli lebih besar dari aktivitas alumina meskipun memiliki luas permukaan yang lebih kecil. Karena untuk katalis-katalis heteropoli dengan luas permukaan yang kecil reaksi terjadi pada *bulk* katalis.

Daftar Pustaka

Mc.Ketta, J.,J., *Encyclopedia of Process and Design*, (1977) vol 3, hal 143

Misono, M. (1987) "Heterogeneous Catalysis by Heteropoly Compound of Molybdenum and Tungsten", *Catal. Rev-SCL Eng*, 29 (2&3), 269 – 321

Nasikin, M., R. Nakamura, H. Niiyama, (1993) *Chemistry Letter*, vol 2, hal 209

Nasikin, M., R. Nakamura, H. Niiyama, (1998) *Japan Petroleum Institut*, vol 41

Nasikin, M., (1997) *Study on the synthesis of metil amines from amonia and metanol over $\text{H}_3\text{PW}_{12}\text{O}_{40}$ and its salts*, Doctoral thesis, Tokyo Institute of Technology

Riegel's (1983), *Handbook of Industrial Chemistry*, hal. 1110 – 1111

Segawa, (1991), *Journal of Catalysis*, vol 131, 1991.

Shanon (1999), *Journal of Catalysis*, vol 115.

Yonose, (1978), *Chemtech*, vol 8, 1978.

Ulman (1989), *Encyclopedia of Industrial Chemistry*, vol. A16

Gambar 2. Pengaruh waktu reaksi terhadap konversi metanol pada katalis

Aktivitas katalis kovalen pada Al_2O_3 sebanding dengan luas permukaan katalis (Tabel 1). Hal ini menunjukkan luas permukaan merupakan faktor utama yang menentukan aktivitas katalis. Sedangkan untuk Al_2O_3 , rendahnya aktivitas katalis meskipun luas permukaannya besar dikarenakan pada katalis Al_2O_3 memiliki kebasaaan asam yang lebih rendah dibandingkan dengan senyawa heteropoli. Nasikin (1997).

Pada penelitian ini seluruh katalis yang digunakan pada reaksi sintesis metil amina fasa cair dari metanol dan metanol tidak menghasilkan TMA dikarenakan faktor kebasaaan dan perbedaan ukuran pori.

Kesimpulan

1. Luas permukaan dan aktivitas katalis $\text{K}_2\text{H}_1\text{PW}_{12}\text{O}_{40}$ meningkat dengan bertambahnya x (kation K^+).
2. Katalis $\text{K}_2\text{H}_1\text{PW}_{12}\text{O}_{40}$ (NH_4) $\text{PW}_{12}\text{O}_{40}$ dan Al_2O_3 aktif dalam sintesis metil amina fasa cair

Profil konversi metanol pada sintesis metil amina fasa cair dengan menggunakan katalis $\text{K}_2\text{H}_1\text{PW}_{12}\text{O}_{40}$ dan Al_2O_3 .

Perbandingan aktivitas $\text{K}_2\text{H}_1\text{PW}_{12}\text{O}_{40}$ dan Al_2O_3 .