

Analisis pengaruh penambahan ion H⁺ pada sintesis material mesopori Al-MCM-41 menjadi H-MCM-41

Soenandar Tengker^{*a}, Iip Izul Falah^b

^a Jurusan Kimia Universitas Negeri Manado, Tondano, Minahasa, 95618, Indonesia

^b Departemen Kimia Universitas Gadjah Mada, Bulaksumur, Yogyakarta, 55281, Indonesia

INFO ARTIKEL

Diterima 13 Maret 2018

Disetujui 23 Maret 2018

Key word:

Al-MCM-41

H-MCM-41

Kata kunci:

Al-MCM-41

H-MCM-41

*e-mail:

soenandarmilienttengker@unima.ac.id

*Telp:

(+62) 85256544641

ABSTRACT

The synthesis of mesoporous Al-MCM-41 material made into H-MCM-41 has been done by mixing 5 grams of Al-MCM-41 synthesis into 100 ml of 0.5 M NH₄Cl solution, then filtered and washed and dried in an oven at temperature 80 °C for 24 hours. The acid sites contained in the mesoporous material of H-MCM-41 are the Brønsted acid sites (B) and Lewis acid sites (L). The mesoporous material of H-MCM-41 synthesis shows morphological form of hexagonal pore such as honeycomb. It also makes clear that CTAB as a pore structure steering agent has succeeded in forming a hexagonal phase pore from mesoporous H-MCM-41 synthesized material. The size of the pore diameter of the mesoporous material of H-MCM-41 synthesis was 2.88 Å measured using a measuring ruler based on the scale of the resulting image analysis using TEM.

ABSTRAK

Sintesis material mesopori Al-MCM-41 dibuat menjadi H-MCM-41 telah dilakukan dengan cara mencampur sebanyak 5 gram Al-MCM-41 hasil sintesis ke dalam 100 ml larutan NH₄Cl 0,5 M, kemudian disaring dan dicuci serta dikeringkan dalam oven pada suhu 80 °C selama 24 jam. Situs asam yang terkandung pada material mesopori H-MCM-41 adalah situs asam Brønsted (B) dan situs asam Lewis (L). Material mesopori H-MCM-41 hasil sintesis menunjukkan bentuk morfologi berupa pori heksagonal seperti sarang lebah (honeycomb). Hal ini juga memperjelas bahwa CTAB sebagai bahan pengarah struktur pori telah berhasil membentuk pori fasa heksagonal dari material mesopori H-MCM-41 hasil sintesis. Ukuran diameter pori dari material mesopori H-MCM-41 hasil sintesis adalah 2,88 Å diukur menggunakan mistar ukur berdasarkan skala gambar hasil analisis menggunakan TEM.

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 [1]. 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 mesopori ini. Keasaman material mesopori akan meningkat dengan meningkatnya kandungan aluminium pada kerangka kristal material mesopori [2]. Logam tersebut akan menjadi situs asam Lewis dan berperan sebagai situs aktif pada proses katalisis.

Penelitian sintesis MCM-41 yang telah dilakukan dengan menambahkan garam anorganik K₂SO₄ dan menghasilkan material

mesopori dengan tingkat kristanilitas yang meningkat [3]. Penelitian lanjutan dilakukan tentang pengaruh penambahan logam atau ion pada material mesopori MCM-41 yang sebelumnya ditambahkan logam Aluminium menjadi Al-MCM-41. Ion yang dipakai pada penelitian ini adalah ion hidrogen yang merupakan situs asam H^+ yang kiranya dapat menambah atau meningkatkan aktivitas katalitik material mesopori Al-MCM-41 menjadi material mesopori H-MCM-41.

Bahan dan Metode

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini yaitu cetyltrimethylammonium bromide (CTAB), natrium silikat (Na_2SiO_3), natrium aluminat ($Na_2Al_2O_4$) sebagai sumber alumina, tetramethylammonium hydroksida (TMAOH), asam sulfat 98 % (H_2SO_4), garam kalium sulfat (K_2SO_4), dan amonium klorida (NH_4Cl). Selain bahan kimia di atas, bahan lain yang digunakan adalah akuades.

Sintesis Al-MCM-41

Ditimbang sebanyak 2,4 gram surfaktan CTAB kemudian dilarutkan ke dalam 50 ml akuades pada suhu $40\text{ }^\circ\text{C}$ sambil diaduk dengan bantuan pengaduk magnet selama 30 menit. Setelah itu larutan didinginkan kemudian ditambahkan 3 ml larutan TMAOH tetes demi tetes sampai larutan menjadi homogen. Selanjutnya ditambahkan 0,73 gram garam K_2SO_4 ke dalam larutan sambil diaduk selama 60 menit. Kemudian 4,2 gram Na_2SiO_3 ditambahkan ke dalam larutan dan diaduk sampai larutan menjadi homogen dan dibiarkan selama 10 menit. Selanjutnya 0,052 gram Natrium Aluminat ($Na_2Al_2O_4$) yang dilarutkan dalam 5 ml akuades ditambahkan ke dalam larutan, lalu diaduk selama 60 menit. Setelah itu, pH larutan diatur menjadi pH 10 dengan menambahkan larutan H_2SO_4 50 %. Kemudian larutan dipindahkan dari gelas PET ke autoclave dan masukkan ke dalam oven dengan suhu $90\text{ }^\circ\text{C}$ selama 36 jam. Setelah 36 jam, larutan kemudian didinginkan dan disaring menggunakan penyaring Buchner dan selanjutnya dilakukan pencucian endapan menggunakan akuades hingga pH menjadi pH 7 dan dikeringkan dalam oven dengan suhu

$80\text{ }^\circ\text{C}$ selama 24 jam. Setelah dikeringkan selanjutnya diperoleh padatan hasil Al-MCM-41 hasil sintesis. Untuk menghilangkan CTAB, padatan hasil sintesis selanjutnya dikalsinasi menggunakan furnace dengan suhu $540\text{ }^\circ\text{C}$ selama 6 jam.

Pembuatan material mesopori H-MCM-41

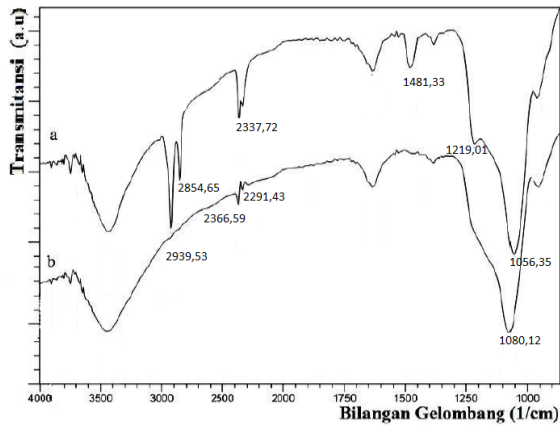
Material mesopori H-MCM-41 dibuat dengan cara mencampur sebanyak 5 gram Al-MCM-41 hasil sintesis ke dalam 100 ml larutan NH_4Cl 0,5 M, kemudian diaduk secara perlahan selama 4 jam pada suhu ruangan. Campuran larutan kemudian disaring menggunakan kertas saring Whatman dan dicuci menggunakan akuades, kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu $80\text{ }^\circ\text{C}$ selama 24 jam untuk mendapatkan padatan katalis H-MCM-41, padatan yang diperoleh, selanjutnya dikalsinasi menggunakan tungku pada suhu $540\text{ }^\circ\text{C}$ selama 4 jam dengan kenaikan suhu $2\text{ }^\circ\text{C}/60$ detik. Padatan hasil sintesis selanjutnya diuji tingkat keasamannya menggunakan metode gravimetri kemudian dikarakterisasi menggunakan FTIR dan TEM.

Hasil dan Pembahasan

Karakterisasi FTIR

Karakterisasi menggunakan FTIR atau spektroskopi infra merah dilakukan untuk mengetahui gugus-gugus fungsi yang terdapat pada material mesopori Al-MCM-41 hasil sintesis. Gambar 1 di bawah ini menunjukkan spektrum infra merah sebelum dilakukan kalsinasi dan setelah dilakukan kalsinasi.

Spektrum inframerah pada Gambar 1 di atas memberikan informasi mengenai karakter ikatan penyusun material mesopori MCM-41 yang merupakan ikatan T-O dimana T = Si atau Al. Ikatan T-O di dalam polimer tersebut memberikan spektrum khas pada daerah inframerah tengah yaitu pada $1250\text{-}300\text{ cm}^{-1}$ [4]. Pada daerah bilangan gelombang $1056,35\text{ cm}^{-1}$ sebelum kalsinasi dan $1080,12\text{ cm}^{-1}$ setelah kalsinasi menunjukkan ikatan T-O-T (T=Si/Al). Pada bilangan gelombang $964,41\text{ cm}^{-1}$ sebelum kalsinasi dan $956,69\text{ cm}^{-1}$ setelah kalsinasi menunjukkan ikatan T-O-R dimana T=Si dan R=Al/H.



Gambar 1. Al-MCM-41 (a) sebelum kalsinasi (b) setelah kalsinasi

Bilangan gelombang 1219,01 cm^{-1} pada material mesopori Al-MCM-41 sebelum kalsinasi merupakan ikatan C-N dari surfaktan CTAB dengan intensitas sedang, adanya ikatan ini berarti pada Al-MCM-41 sebelum kalsinasi masih terdapat surfaktan CTAB yang merupakan senyawa alkil ammonium sehingga memiliki ikatan C-N. Ikatan ini tidak muncul pada spektrum Al-MCM-41 setelah kalsinasi, menandakan bahwa *template* CTAB telah hilang selama proses kalsinasi. Pernyataan didukung oleh puncak pada bilangan gelombang 2939,53 cm^{-1} untuk Al-MCM-41 sebelum kalsinasi. Bilangan gelombang ini merupakan ikatan C-H sp^3 yang terdapat pada surfaktan CTAB yang merupakan senyawa alkil ammonium. Setelah dikalsinasi maka puncak tidak muncul lagi pada spektrum, hal ini menandakan bahwa Al-MCM-41 setelah kalsinasi sudah tidak mengandung surfaktan yang memiliki ikatan C-H sp^3 . Hal ini menunjukkan bahwa surfaktan sebagai tempat cetakan pori material mesopori Al-MCM-41 telah hilang setelah dilakukan proses kalsinasi.

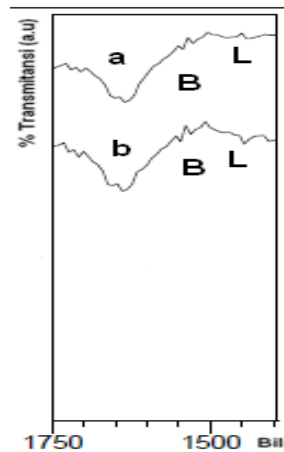
Material mesopori H-MCM-41

Material mesopori MCM-41 yang mengalami pertukaran ion Na^+ dengan NH_4^+ merupakan bahan material mesopori katalis H-MCM-41. Dalam proses perengkahan katalitik, dibutuhkan katalis yang memiliki tingkat keasaman yang tinggi. Keterlibatan ion H^+ pada katalis identik dengan sifat keasaman Brønsted. Kation H^+ yang terkandung dalam material mesopori MCM-41 hasil sintesis dapat meningkatkan tingkat keasaman material

mesopori tersebut sehingga dapat meningkatkan aktivitas katalitiknya sebagai katalis dalam proses perengkahan.

Uji keasaman katalis H-MCM-41

Situs asam yang terkandung pada material mesopori H-MCM-41 adalah situs asam Brønsted (**B**) dan situs asamLewis (**L**). 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 [5]. Material mesopori Al-MCM-41 diubah menjadi H-MCM-41 untuk meningkatkan tingkat keasaman material mesopori tersebut. Gambar 2 menunjukkan spektrum inframerah untuk katalis Al-MCM-41 dan H-MCM-41 yang telah diuji tingkat keasamannya melalui proses gravimetri menggunakan piridin.



Gambar 2. Spektrum inframerah hasil uji keasaman (a) Al-MCM-41 dan (b) H-MCM-41

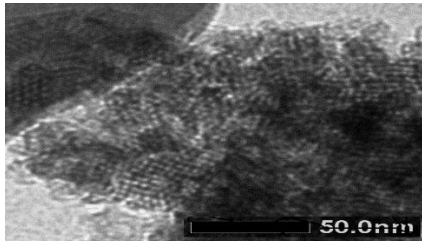
Tabel 1. Keasaman material mesopori katalis H-MCM-41 menggunakan absorpsi basa

Jenis katalis	Keasaman Material mesopori (mmol gram^{-1})	
	Amoniak	Piridin
MCM-41	0,8429	0,7407
H-MCM-41	1,4788	3,7497

Karakterisasi TEM

Karakterisasi menggunakan TEM (*transmission electron microscopy*) dilakukan

untuk mengetahui bentuk morfologi dari material mesopori yang disintesis [3].



Gambar 3. Foto TEM Material mesopori H-MCM-41

Morfologi dari material mesopori mesopori MCM-41 berbentuk heksagonal [1]. Pada gambar 3 di atas menunjukkan bentuk morfologi dari material mesopori H-MCM-41 hasil sintesis. Dapat dilihat bahwa material mesopori H-MCM-41 hasil sintesis menunjukkan bentuk morfologi berupa pori heksagonal seperti sarang lebah (honeycomb). Hal ini juga memperjelas bahwa CTAB sebagai bahan pengarah struktur pori telah berhasil membentuk pori fasa heksagonal dari material mesopori H-MCM-41 hasil sintesis. Ukuran diameter pori dari material mesopori H-MCM-41 hasil sintesis adalah 2,88 Å diukur menggunakan mistar ukur berdasarkan skala gambar hasil analisis menggunakan TEM.

Ucapan terimakasih

Terima kasih kepada Prof. Dr. Iip Izul Falah yang terus membantu saya dalam melaksanakan penelitian ini sehingga penelitian ini bisa terlaksana dan menghasilkan produk lanjutan dari material mesopori MCM-41 hasil penelitian sebelumnya.

Kesimpulan

Kesimpulan yang dapat diambil adalah Sintesis material mesopori Al-MCM-41 yang telah dibuat menjadi H-MCM-41 dengan metode penambahan ion H⁺ dapat menambah tingkat keasaman material mesopori dan tingkat keasaman Brønsted lebih tinggi dibandingkan tingkat keasaman Lewis pada material mesopori H-MCM-41. Karakterisasi menggunakan FTIR dan TEM pada material mesopori Al-MCM-41 dan H-MCM-41

menunjukkan bahwa material mesopori hasil sintesis sesuai dengan karakteristik material mesopori MCM-41 pada penelitian-penelitian terdahulu.

Daftar Pustaka

1. Beck, J. S.; Vartuli, J.; Roth, W. J.; Leonowicz, M.; Kresge, C.; Schmitt, K.; Chu, C.; Olson, D. H.; Sheppard, E.; McCullen, S., A new family of mesoporous molecular sieves prepared with liquid crystal templates. *Journal of the American Chemical Society* **1992**, *114*, (27), 10834-10843.
2. Twaiq, F. A.; Mohamed, A. R.; Bhatia, S., Liquid hydrocarbon fuels from palm oil by catalytic cracking over aluminosilicate mesoporous catalysts with various Si/Al ratios. *Microporous and Mesoporous Materials* **2003**, *64*, (1), 95-107.
3. Tengker, S. M. T.; Falah, I. I., Sintesis dan karakterisasi material mesopori MCM-41 menggunakan TMAOH dan garam anorganik K₂SO₄. *Fullerene Journal of Chemistry* **2017**, *2*, (2), 61-65.
4. Sutarno, S.; Arryanto, Y.; Wigati, S., The influence of Si/Al mole ratio of precursor solution on the structural properties of MCM-41 from fly ash. *Indonesian Journal of Chemistry* **2010**, *3*, (2), 126-134.
5. Chen, X.; Huang, L.; Ding, G.; Li, Q., Characterization and catalytic performance of mesoporous molecular sieves Al-MCM-41 materials. *Catalysis letters* **1997**, *44*, (1-2), 123-128.