

# Optimalisasi Pembentukan Inti Aktif Oksida Mn, Ce dan Campuran Keduanya terhadap Suhu Reaksi Dengan Gas Hidrogen

Achmad Hanafi S.<sup>1</sup>, Y.Meliana<sup>1</sup>, Agus Setiabudi<sup>2</sup>, Wuryaningsih S.R.<sup>1</sup>  
(Tim Riset Unggulan Terpadu Internasional)

<sup>1</sup> Pusat Penelitian Kimia LIPI, kawasan Puspitek Serpong 15314  
Tlp 021-7560929, Fax 021-7560549

<sup>2</sup> MIPA - UPI Bandung  
Jl. Dr Setiabudhi 229, Bandung 40154, Tlp/Fax 022-2000579

## ABSTRAK

*Pembentukan inti aktif oksida Mn, Ce dan campuran keduanya dilakukan dengan cara "incipient wetness impregnation" dan kalsinasi. Contoh terkalsinasi pada suhu 500-700°C kemudian di karakterisasi dengan X-ray Diffraction (XRD) dan Temperature Programme Reduction (TPR). Fasa oksida Mn, Ce telah terbentuk sempurna pada suhu 600°C, sedangkan kereaktifan terhadap gas hidrogen untuk campuran oksida (Mn-Ce) lebih tinggi dibanding dengan keadaan tunggal, suhu reduksi dari oksida Mn (447°C), Ce (593°C), dan campuran Mn-Ce (442°C).*

Kata kunci: Cerium Oksida, Mangan Oksida, TPR, XRD

## 1. Pendahuluan

Untuk negara berkembang seperti Indonesia, mesin diesel menjadi alat kendaraan yang cukup populer karena penggunaan bahan bakarnya yang cukup ekonomis dan perawatannya yang sederhana. Namun pembakaran pada mesin diesel dapat menghasilkan partikulat yang dapat mencemari lingkungan dan merusak kesehatan.

Pertambahan jumlah kendaraan bermotor di Indonesia terus meningkat dari tahun ketahun terus meningkat. Hal tersebut akan menyebabkan peningkatan pencemaran udara emisi gas buang yang dihasilkan, antara lain berupa *partikulat matter* (PM) sebagai hasil proses pembakaran tidak sempurna dari bahan bakar.

Salah satu usaha untuk mengurangi produksi bahan tersebut adalah dengan memasang *catalytic filter* pada saluran pembuangan gas kendaraan untuk mengoksidasi karbon menjadi oksida karbon. Telah banyak penelitian tentang penggunaan noble metal (misalnya Pt) dalam mengoksidasi PM secara langsung (*chatta, et al*). Masalah yang dihadapi adalah noble metal ini juga sangat aktif mengkonversi SO<sub>2</sub> menjadi SO<sub>3</sub> yang merupakan racun katalis, selain itu katalis noble metal juga sangat mahal. Untuk menanggulangi hal tersebut, dicarilah katalis non noble metal yang diperkirakan dapat lebih tahan terhadap racun katalis dan harganya lebih ekonomis. Reaksi oksidasi PM akan lebih efektif bila menggunakan NO dibanding dengan O<sub>2</sub>. Dengan demikian katalis non-noble metal yang terseleksi harus mengoksidasi PM

dengan bantuan senyawa NO yang banyak dikandung oleh produksi gas buang kendaraan. Secara teoritis oksida logam transisi cukup efektif untuk fungsi ini, dan oksida logam Mn juga aktif mengoksidasi NO.

Dalam proses oksidasi, jumlah oksigen yang terlibat dalam reaksi harus dalam keadaan berlebihan. Untuk menjamin keadaan tersebut perlu adanya sumber oksigen. CeO<sub>2</sub> telah diteliti merupakan padatan "oksigen reservoir" (*Setiabudi.A, et al*), selain itu dapat pula berfungsi sebagai promotor katalis. Untuk mengidentifikasi fungsi senyawa tersebut maka pada penelitian ini akan dikarakterisasi perubahan fasa dan kemudahan tereduksi serta interaksinya karena pengaruh panas sebagai simulasi perlakuan panas pada preparasi katalis.

## 2. Metodologi

Katalis dipreparasi dengan metode "incipient wetness impregnation". Sebanyak 6.2 g Mn(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>.H<sub>2</sub>O (Merck) dilarutkan dalam 15mL air kemudian diimpregnasikan kedalam 18 g penyangga  $\gamma$ -alumina (Merck BET 120-190m<sup>2</sup>/g). Untuk mendapatkan katalis dengan komposisi 10% W/W. Katalis dikeringkan dengan temperatur 100°C sepanjang malam untuk menghilangkan pelarut yang terikat secara fisis. Katalis kemudian dikalsinasi pada temperatur 500°C dan 600°C selama 5 jam. Prosedur ini juga dipreparasi untuk katalis dengan inti aktif Cerium (Ce) menggunakan Ce(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> (Merck) dan kombinasi Ce/Mn dengan

perbandingan berat 1:1. Katalis tersebut kemudian dikarakterisasi dengan menggunakan alat *X-Ray Diffraction (XRD)* dan *Temperature Programme Reduction (TPR)*

### 3. Hasil dan Pembahasan

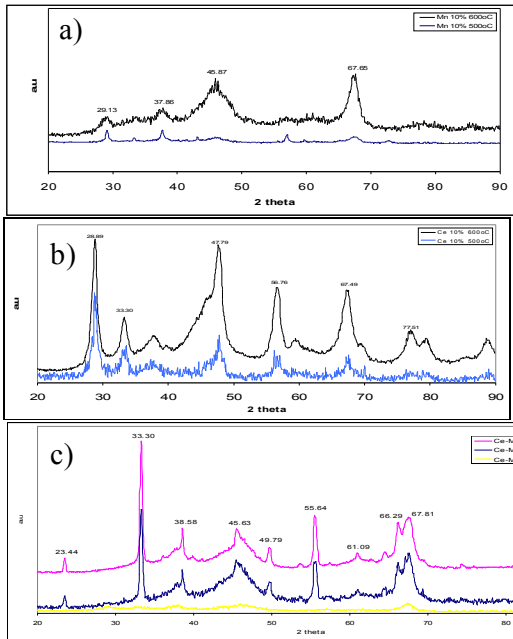
Pada Tabel 1 dari hasil preparasi katalis yang dilakukan di dapat variasi katalis:

Tabel 1. Preparasi katalis

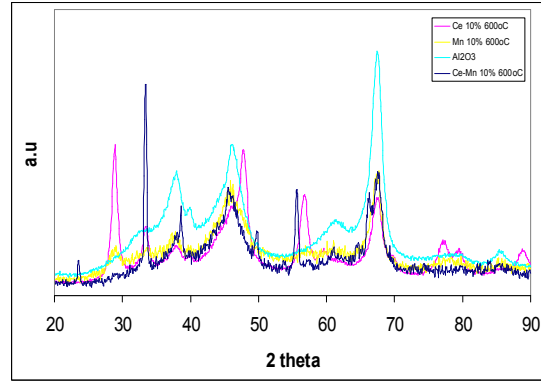
	Katalis	Penyangga	10 %	Kal. 500°C	Kal. 600°C	Kal. 700°C
1.	Mn	$\gamma$ -alumina	√	√	√	-
2.	Ce	$\gamma$ -alumina	√	√	√	-
3.	Mn-Ce	$\gamma$ -alumina	√	√	√	√

Hasil XRD pada rentang sudut  $2\theta$  dari  $20^\circ$  sampai  $90^\circ$  dari contoh katalis tersebut yang dikalsinasi pada temperatur  $500^\circ\text{C}$ ,  $600^\circ\text{C}$  dapat dilihat pada Gambar 1a, b, c, d.

Dari Gambar 1 dapat kita lihat bahwa pada temperatur kalsinasi  $500^\circ\text{C}$  untuk logam Mn, Ce dan Mn-Ce sudah terbentuk kristal amorf yang mengidentifikasi terjadinya logam oksida. Setelah temperatur kalsinasi dinaikkan menjadi  $600^\circ\text{C}$  struktur kristal oksida logamnya semakin jelas terbentuk. Untuk campuran logam Mn-Ce, kalsinasi dilakukan sampai temperatur  $700^\circ\text{C}$  dan struktur yang terbentuk masih tidak berubah. Hal ini mengidentifikasi bahwa struktur oksida logam Mn dan Ce akan terbentuk pada temperatur kalsinasi  $600^\circ\text{C}$ .

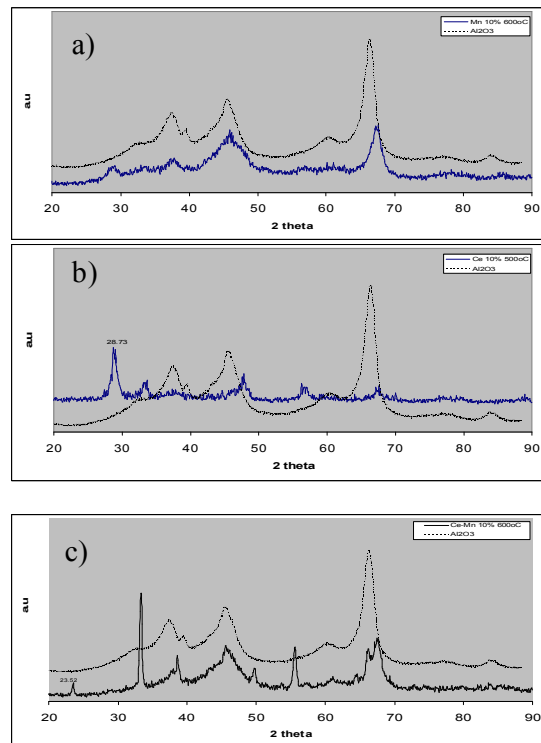


Gambar 1. XRD katalis pada kalsinasi  $500\text{-}700^\circ\text{C}$ ; a)katalis Mn, b) katalis Ce, c) katalis campuran Mn-Ce



Gambar 2. Hasil XRD pada  $600^\circ\text{C}$  untuk inti aktif Mn, Ce, Mn-Ce dibandingkan  $\gamma$ -alumina

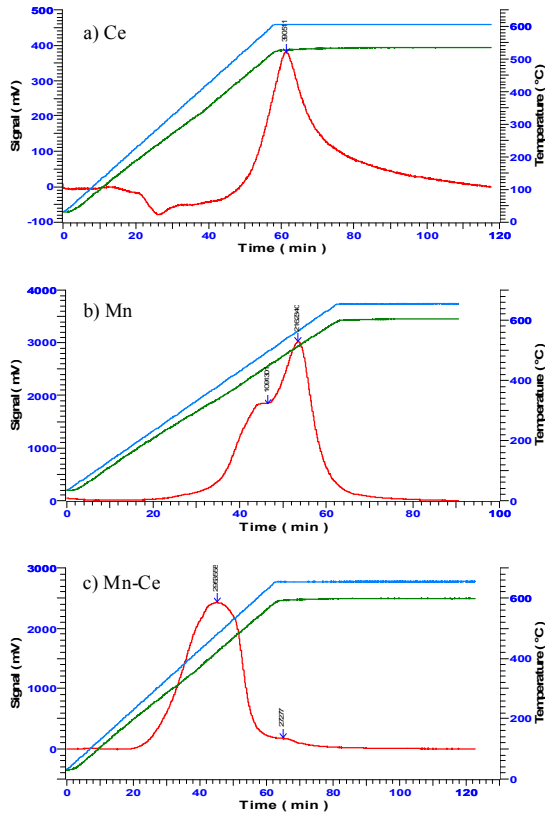
Dari gambar 2 dapat kita lihat oksida struktur kristal yang terbentuk diidentifikasi dengan adanya puncak yang berbeda jika dibandingkan dengan pola  $\gamma$ -alumina yang juga dikalsinasi pada temperatur yang sama



Gambar 3. XRD pada  $600^\circ\text{C}$  dibandingkan dengan  $\gamma$ -alumina; a)katalis Mn, b) katalis Ce, c) katalis campuran Mn-Ce.

Gambar 3. Hasil XRD logam Ce, Mn, Ce-Mn, dan  $\text{Al}_2\text{O}_3$  pada kalsinasi  $600^\circ\text{C}$

Pada Gambar 3 dapat kita lihat bagaimana perbandingan hasil XRD untuk logam Ce, Mn dan campuran keduanya.



Gambar 4. Profil TPR untuk a) katalis oksida Ce, b) katalis oksida Mn, c) katalis oksida Mn-Ce

Profil TPR (gambar 4.) untuk Ce Oksida terlihat hanya berupa puncak tunggal. Kenaikan maksimum laju reduksinya di dapat pada temperatur 527°C, tetapi profil TPR ini bukan merupakan puncak yang simetris, reduksi dapat terjadi sampai mencapai temperatur 600°C. Untuk profil TPR Mn oksida terdapat dua puncak yang tidak terpisah. Puncak utama mempunyai temperatur reduksi yang lebih tinggi. Laju reduksi maksimum terdapat pada temperatur 515°C, tetapi profil TPR Mn oksida juga memperlihatkan *peak* lain pada temperatur 447°C, reduksi Mn oksida sendiri dapat terjadi sampai temperatur 660°C.

Untuk profil campuran dari Ce oksida dan Mn oksida menunjukkan dua puncak reduksi pada temperatur 422°C dan 593°C. Puncak utamanya mempunyai temperatur reduksi yang lebih rendah,

dan luas puncak yang simetris juga dominan. Reduksi sendiri dapat terjadi sampai temperatur 600°C.

Hasil dari TPR yang memperlihatkan posisi temperatur reduksi dari logam Mn (447°C) lebih rendah dibandingkan logam Ce (527°C), sedangkan campuran logam Ce-Mn (422°C) memperlihatkan temperatur reduksi yang lebih rendah lagi dari temperatur reduksi masing-masing logam. Hal tersebut menunjukkan bahwa CeO<sub>2</sub> disini bersifat sebagai “oxygen reservoir”. Oksida yang terbentuk dalam reaksi disini berupa fase non-stoikiometri, CeO<sub>2-x</sub>, molekul ini dapat menaikkan konsentrasi ionisasi oksigen (Vo<sup>++</sup>) pada permukaan. Pada kenyataannya dibutuhkan kontribusi entalpi pembentukan Vo<sup>++</sup> yang besar di dalam suatu oksida untuk menimbulkan dua elektron guna membentuk ikatan konduksi oksida. Dalam katalis, fase ini akan membuat katalis menjadi lebih aktif karena ikatan konduksi yang terbentuk lebih tinggi dari tingkat Fermi dari logam, dan entalpi pembentukan “doubly ionized vacancy” harus direduksi dengan diikuti elektron-elektron untuk bergerak ke tingkat logam Fermi. Dimana temperatur reduksi dari logam Mn akan menjadi berkurang (Setiabudi.A, et al) .

#### 4. Kesimpulan

Percobaan telah dilakukan terhadap logam Mn, Ce dan campuran keduanya. Katalis dianalisis dengan XRD dan TPR dengan hasil sebagai berikut:

- Fasa oksida Mn, Ce telah terbentuk sempurna pada suhu 600°C.
- Campuran oksida Ce-Mn dapat memberikan reaksi terhadap gas H<sub>2</sub> pada suhu yang lebih rendah dibandingkan bila digunakan secara tunggal logam Mn (447°C), Ce (593°C). Sedangkan bila kedua logam dicampurkan hanya dibutuhkan temperatur 442°C.

#### 5. Ucapan terima kasih

Terima kasih kepada program RUTI (Riset Unggulan Terpadu Internasional) yang telah membiayai penelitian ini. Juga kepada Fauzan Aulia AMD atas bantuannya dalam kelancaran penelitian ini.

#### Daftar Pustaka

- [1] Anderson, J.R. & K.C. Pratt. 1985. Introduction to Characterization and Testing of Catalyst. Academic Press. Sydney.
- [2] Chatta, et al. 2001. Diesel catalyst made from a mixture of particles: platinum on alumina and manganese-zirconium oxide. United States Patent
- [3] Foger. K. 1991. Dispersed Metal Catalysts. In: Catalytic Science and Technology. Vol.6. ed. S. Yoshida, N. Takezawa and T. One. Kadansha, Tokyo.
- [4] Setiabudi, A. 2004. CeO<sub>2</sub> catalysed soot oxidation the role of active oxygen to accelerate the oxidation conversion. Applied Catalysis B: Environmental 51(2004) 9-19

- [5] Setiawan, A.H. 1995. Studi Tentang Spesies Logam Ni dari beberapa Katalis Prekursor Ni/SiO<sub>2</sub> terkalsinasi dengan TPR dan XRD. Dalam: JKTI Vol. 6.
- [6] Ullman. Catalysis and Catalysts. In: Encyclopedia of Industrial Chemistry. Vol. A5.