

PENGARUH RASIO $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ PADA SINTESIS ZSM-5 DAN AKTIVITAS KATALITIKNYA UNTUK REAKSI ESTERIFIKASI

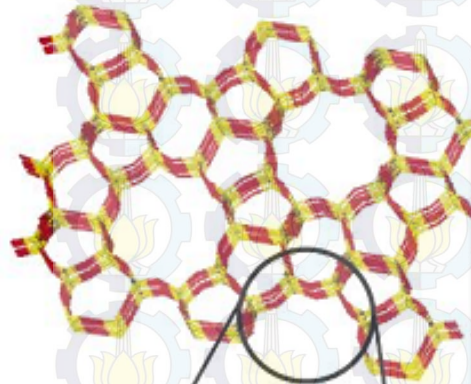
**Ummu Bariyah
1412201003**

**Dosen Pembimbing:
Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc.**

**PROGRAM MAGISTER
BIDANG KEAHLIAN KIMIA NONHAYATI
JURUSAN KIMIA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA**

2014

Latar Belakang

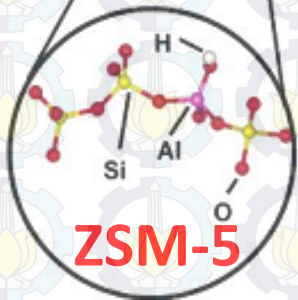


Sifat:

- ✓ Selektif
- ✓ Keasaman tinggi
- ✓ Stabil terhadap panas dan asam (Niwa dkk., 2010)

Katalis
Contoh: alkilasi fenol, isomerisasi silena, dehidroaromatisasi metana dan esterifikasi

(4)



Sintesis

Sumber Si & Al

Mineral alam



Latar Belakang



SiO₂ 57% dan Al₂O₃ 22%
(Prasad dkk., 1991)

**Rustam
(2013)**

← Langsung



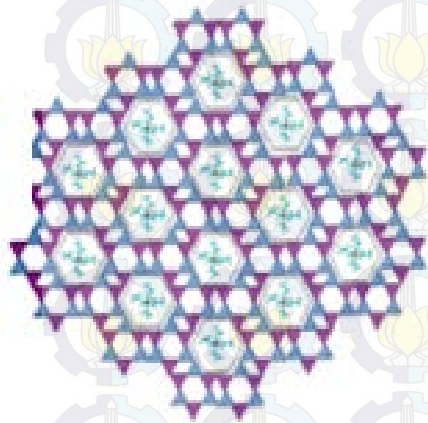
Ludox

→ Kalsinasi
(600 °C)

- Feng dkk. (2009)
- Kovo dkk. (2009)
- Holmes dkk. (2011)
- Pan dkk. (2014)

ZSM-5

Latar Belakang



ZSM-5

Rasio $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$

Fasa & kristalinitas
(Feng dkk., 2009)

Morfologi & ukuran partikel
(Shirazi dkk., 2008)

Keasaman
(Osman dkk., 2013)

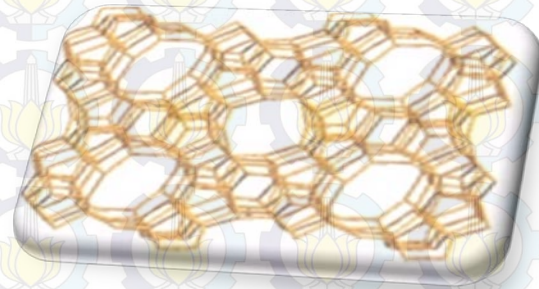
Katalitik
(Chung dkk., 2008)

Perumusan Masalah



Kaolin
&
Ludox

Variasi rasio mol
 $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$

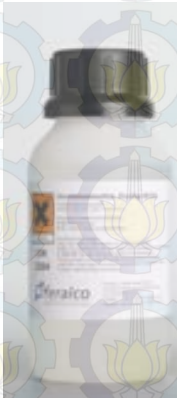


ZSM-5

Karakteristik



Aktivitas
katalitik



Metodologi

Sintesis ZSM-5

Komposisi mol 10 Na₂O: 100 SiO₂: x Al₂O₃: 1800 H₂O: 20 TPABr (x = 1; 1,33; 2; 4)

Akua DM + NaOH
+ kaolin + ludox

Diaduk
2 jam

Campuran
kental putih

+

TPABr

Diaduk
6 jam

Campuran
kental putih

Diaging 12 jam

Padatan
putih

Dicuci sampai pH netral

Disaring

Campuran
padatan dan air

Dihidrotermal
175 °C, 12 jam

Campuran
kental putih

Dikeringkan di oven
105 °C, 12 jam

Serbuk putih

dikarakterisasi

XRD

IR

SEM

Metodologi

Pertukaran kation



Metodologi

Reaksi esterifikasi

Minyak kemiri sunan
+ metanol + katalis

Dipanaskan 60 °C

t = 15, 30, 60, 120 menit

Hasil
esterifikasi

disentrifuge

Hasil
memisah

% konversi
ALB

dititrasi

Hasil
esterifikasi

metanol +
air + Katalis



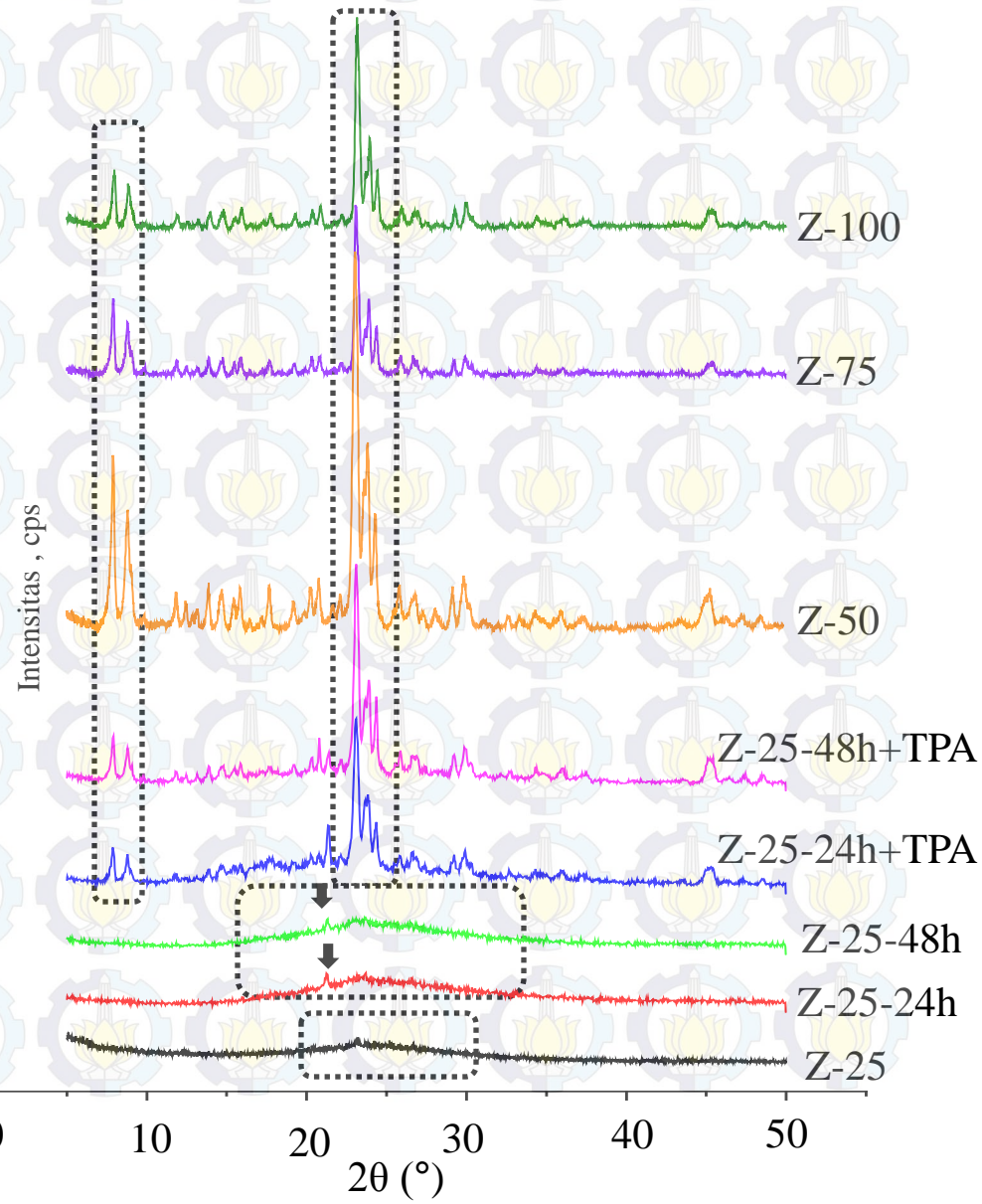
Hasil dan Pembahasan

❖ Pola difraksi sinar-X dari sampel hasil sintesis dengan variasi rasio $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 25, 50, 75, 100

$2\theta = 7,9; 8,8; 23,1; 23,9; 24,4$

$2\theta = 15-35^\circ$ & $2\theta = 21,28^\circ$

$2\theta = 20-30^\circ$



➤ **Kristalinitas relatif ZSM-5 dengan variasi rasio mol SiO₂/Al₂O₃**

2θ (°)	Zeolit				
	Z-25- 24h+TPA	Z-25- 48h+TPA	Z-50	Z-75	Z-100
7,9	471	459,95	1624,08	763,40	579,66
8,8	400	344,04	1110,64	525,10	438,14
23,08	1781	2142,58	3535,46	1710,37	2128,85
23,9	1011	959,55	1743,98	754,37	905,28
24,36	729	791,90	1076,96	479,37	574,01
Jumlah intensitas relatif	4392	4698,02	9091,12	4232,61	4625,94
Kristalinitas relatif (%)	48,31	51,68	100	46,56	50,88

$$\% \text{ Kristalinitas} = \frac{\text{total intensitas puncak karakteristik sampel}}{\text{total intensitas puncak karakteristik tertinggi}} \times 100 \%$$

(Rayalu dkk., 2005)

Pengaruh rasio mol $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ terhadap fasa dan kristalinitas dari ZSM-5

Sampel	Komposisi gel sintesis		Waktu kristalisasi	Fasa	Kristalinitas relatif (%)
	$\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$	TPABr/ SiO_2			
Z-25	25	0,2	12	Amorf	-
Z-25-24h	25	0,2	24	Amorf	-
Z-25-48h	25	0,2	48	Amorf	-
Z-25-24h+TPA	25	0,3	24	Amorf, gismondin, ZSM-5	48,31
Z-25-48h+TPA	25	0,3	48	ZSM-5	51,68
Z-50	50	0,2	12	ZSM-5	100
Z-75	75	0,2	12	ZSM-5	46,56
Z-100	100	0,2	12	ZSM-5	50,88

Komposisi $\text{Na}_2\text{O}/\text{SiO}_2 = 0,1$; $\text{H}_2\text{O}/\text{SiO}_2 = 18$ dan suhu kristalisasi $175\text{ }^\circ\text{C}$

❖ Spektra absorpsi FTIR dari sampel hasil sintesis dengan variasi rasio mol $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$

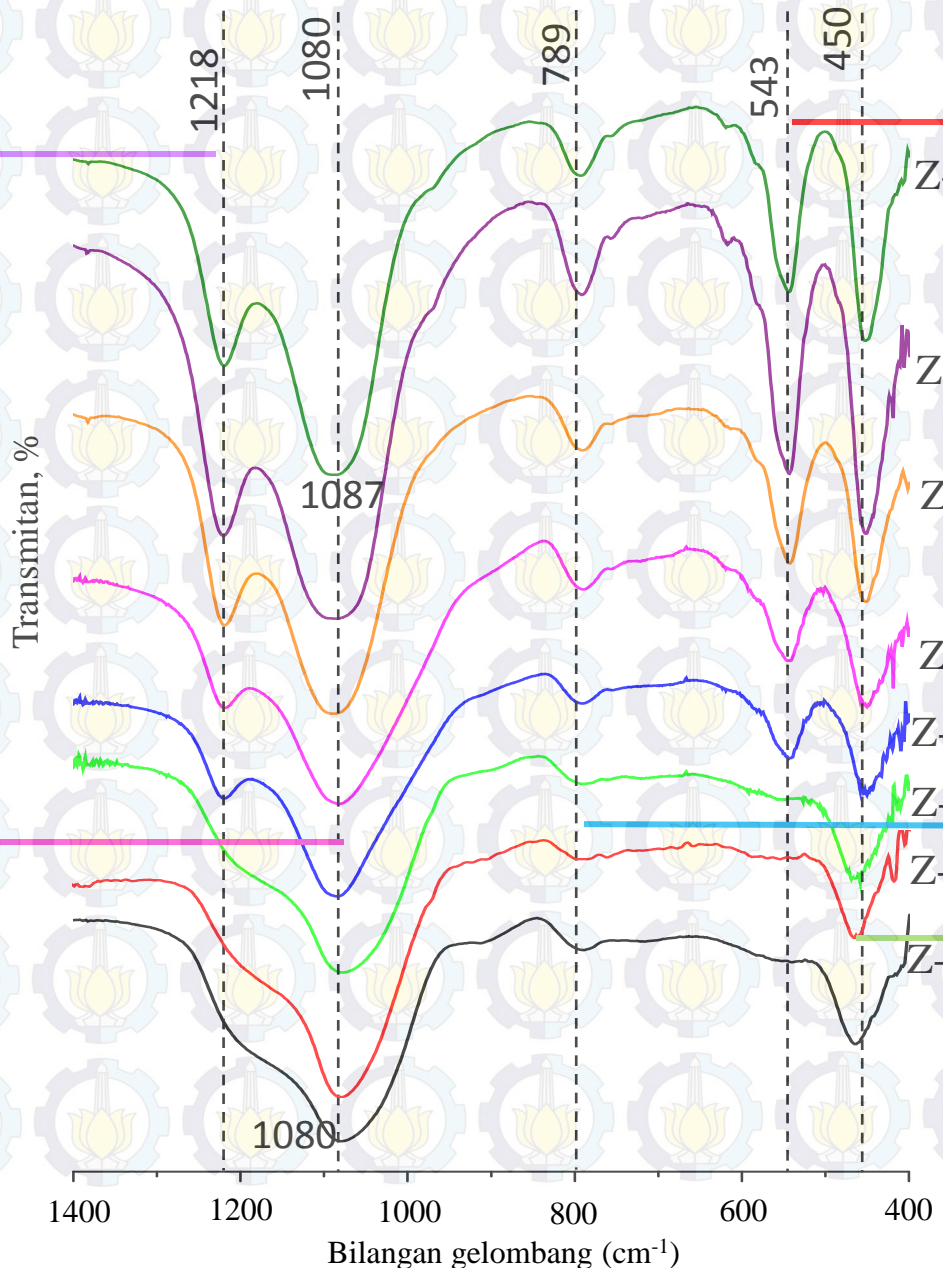
Ulur asimetri eksternal T-O-T

Ulur asimetri internal T-O-T

MFI

Ulur simetri T-O-T

Vibrasi tekuk T-O



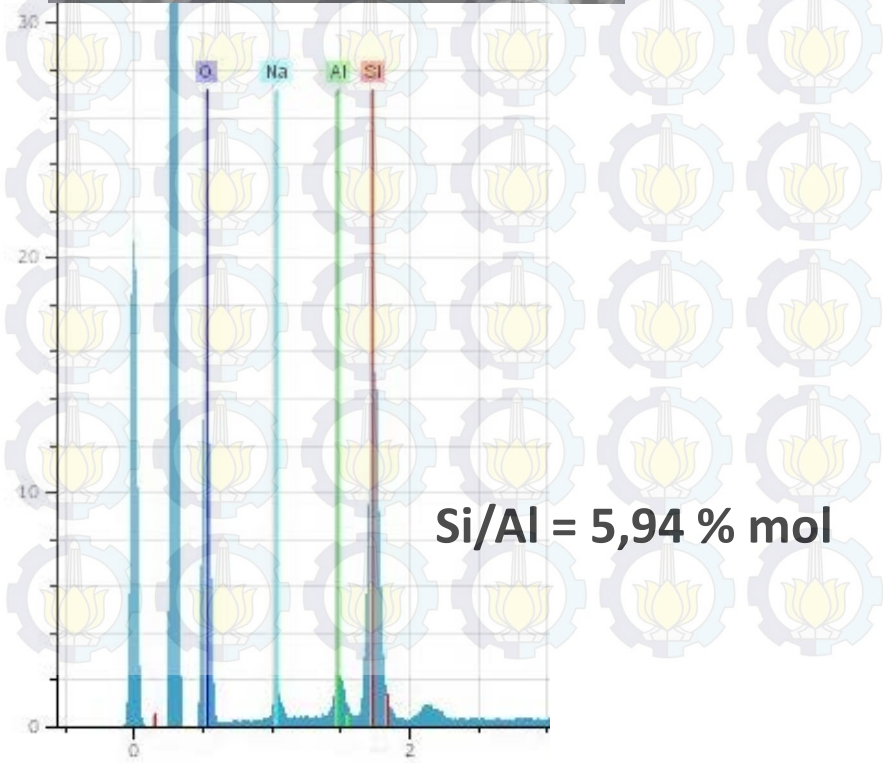
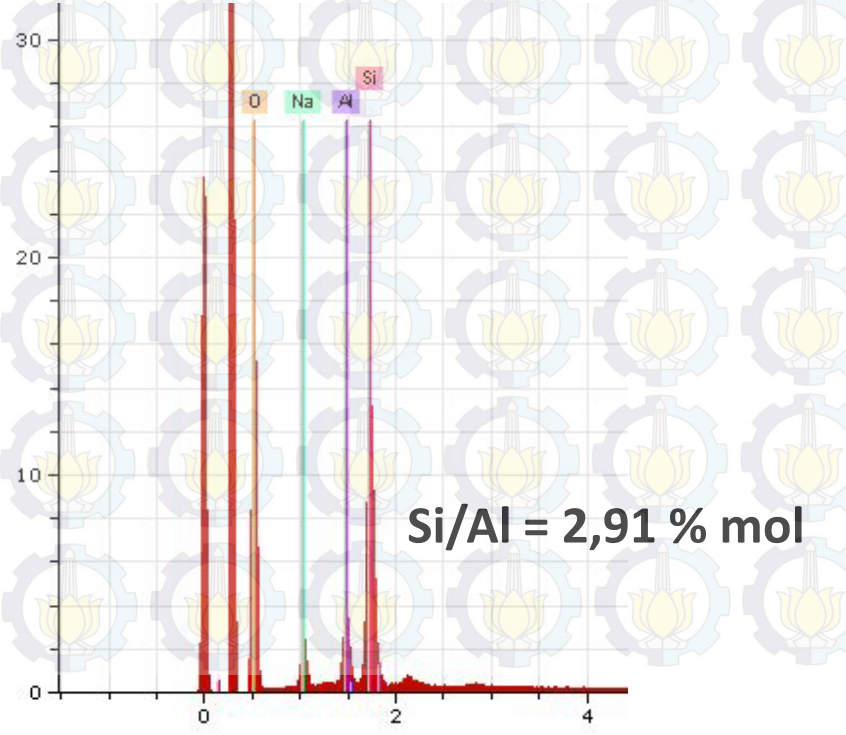
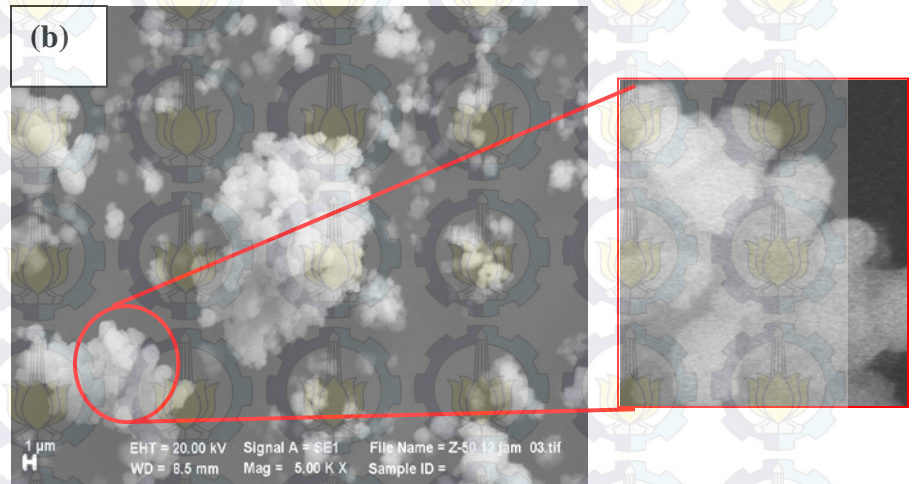
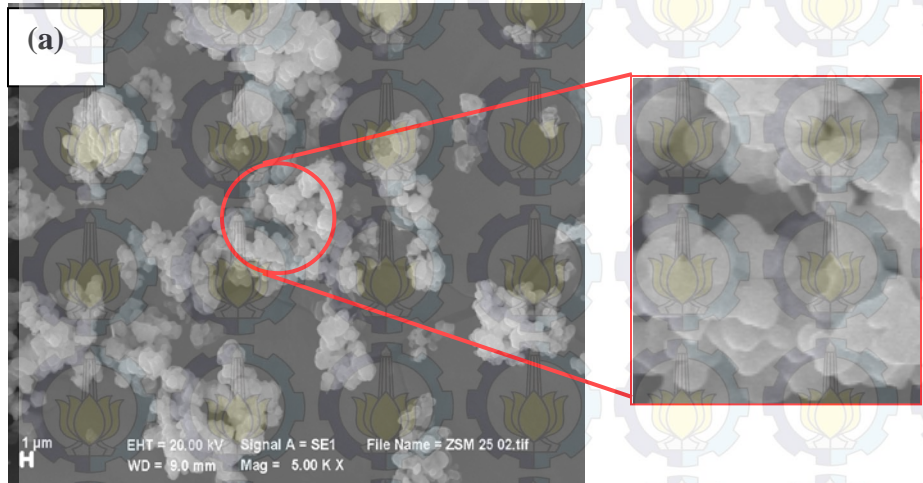
➤ Rasio area A_{543}/A_{450} dari sampel ZSM-5 dengan variasi rasio $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$

Sampel	Area		Rasio A_{543}/A_{450}
	543 (cm^{-1})	450 (cm^{-1})	
Z-25-24h+TPA	1,937	3,328	0,582
Z-25-48h+TPA	2,463	3,818	0,645
Z-50	2,170	3,080	0,704
Z-75	2,032	3,569	0,569
Z-100	1,722	2,647	0,651

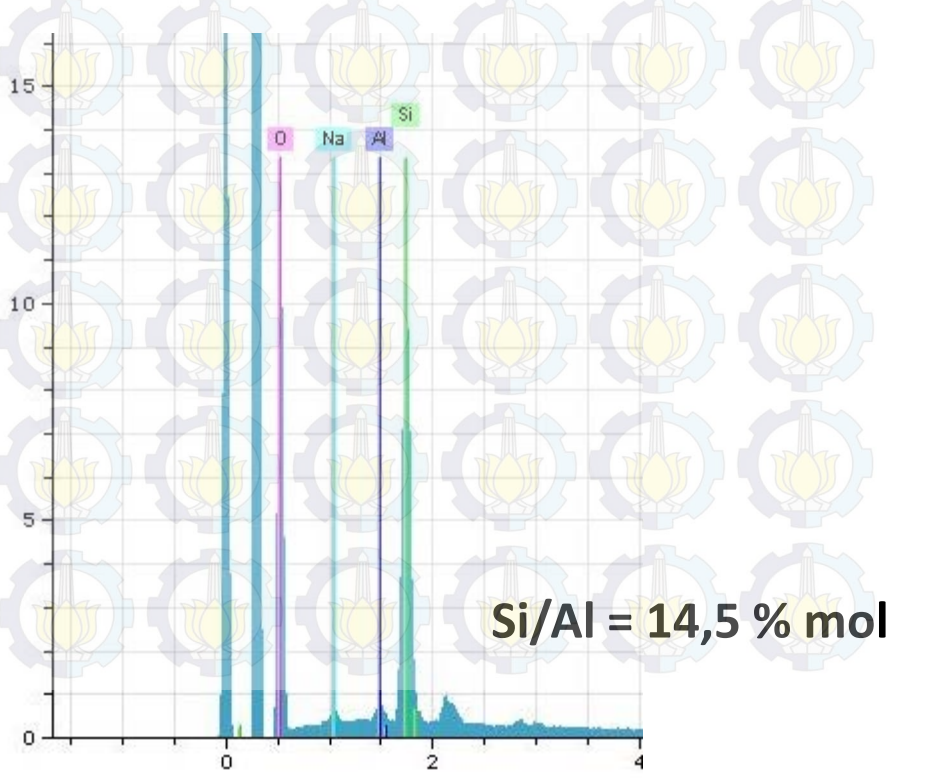
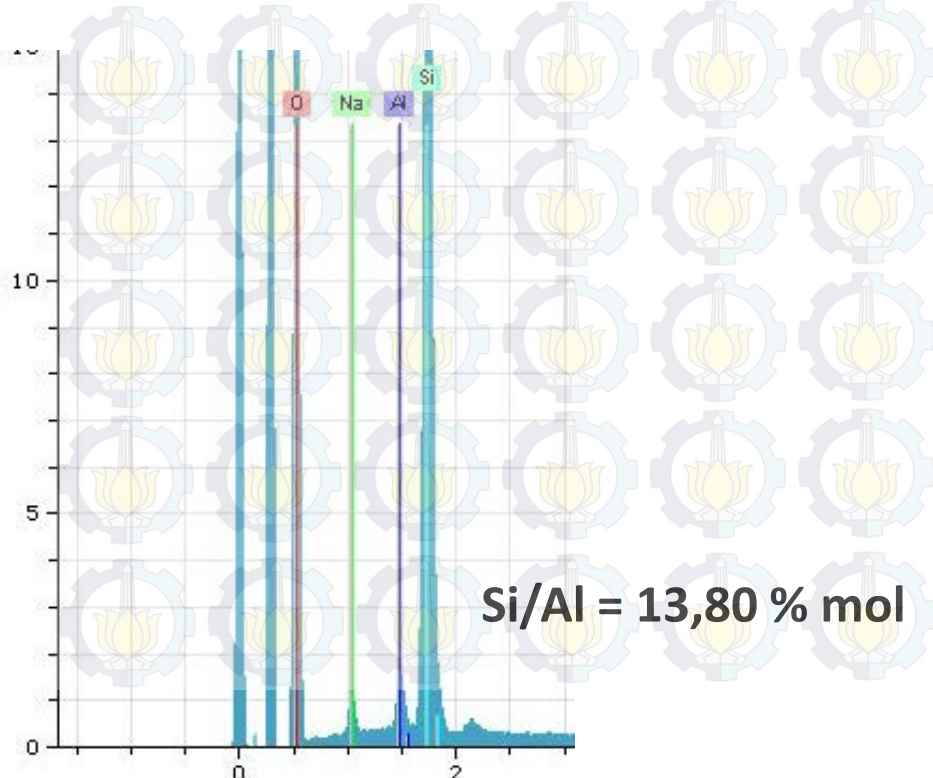
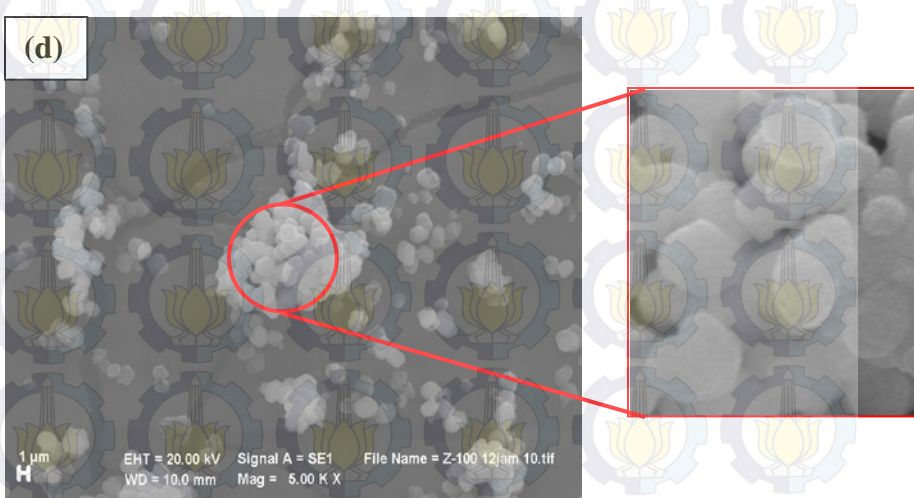
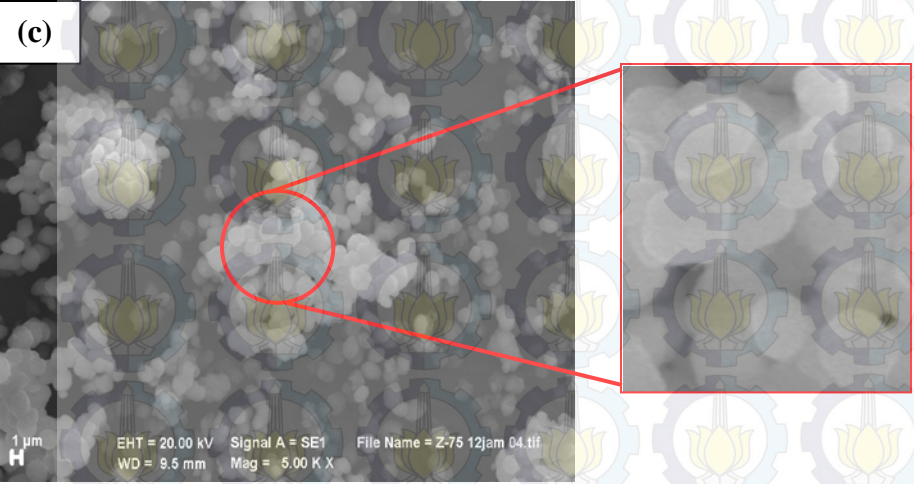
A_{543}/A_{450} = Absorbansi pita daerah 543 cm^{-1} : absorbansi pita daerah 450 cm^{-1}

(Jansen dkk., 1984)

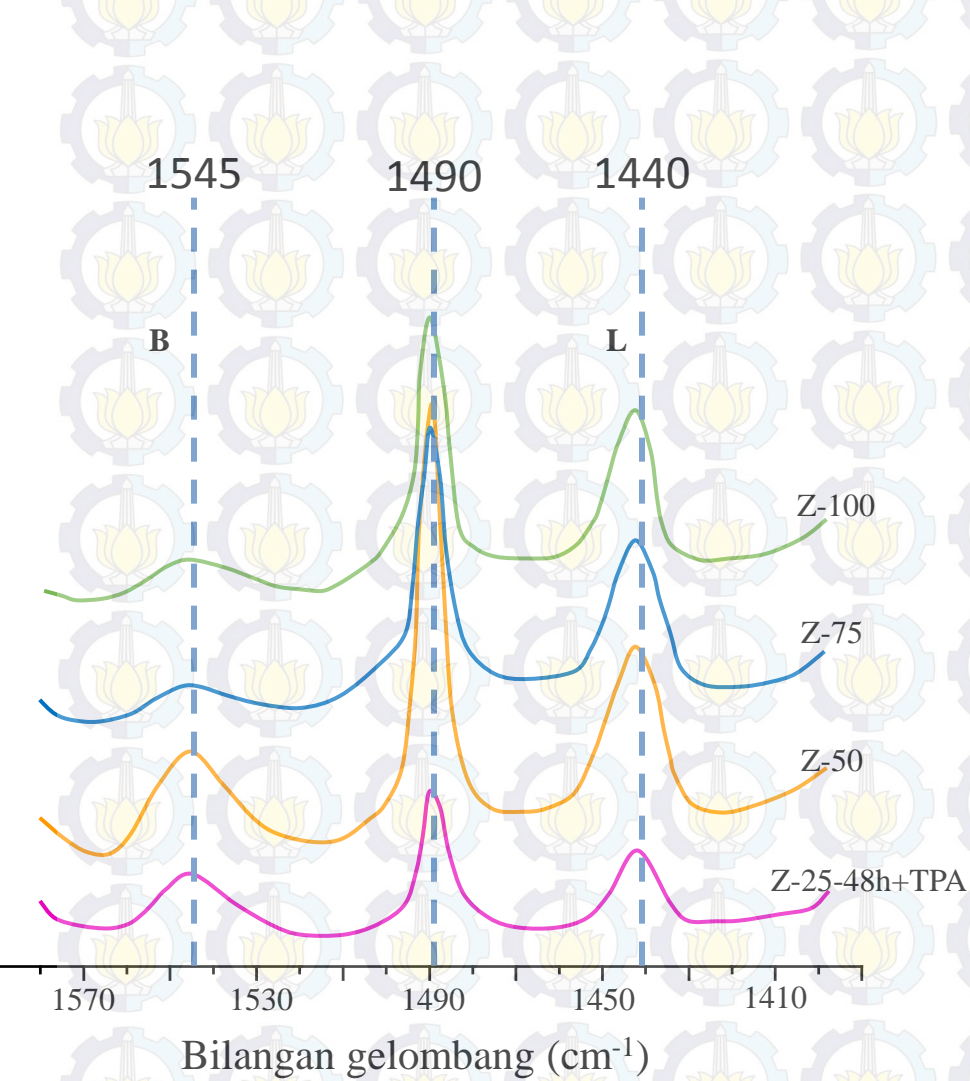
❖ SEM-EDX dari sampel (a) Z-25-48h+TPA dan (b) Z-50



❖ SEM-EDX dari sampel (c) Z-75 dan (d) Z-100



❖ **Spektra inframerah piridin untuk sampel ZSM-5 dengan variasi rasio mol SiO₂/Al₂O₃**



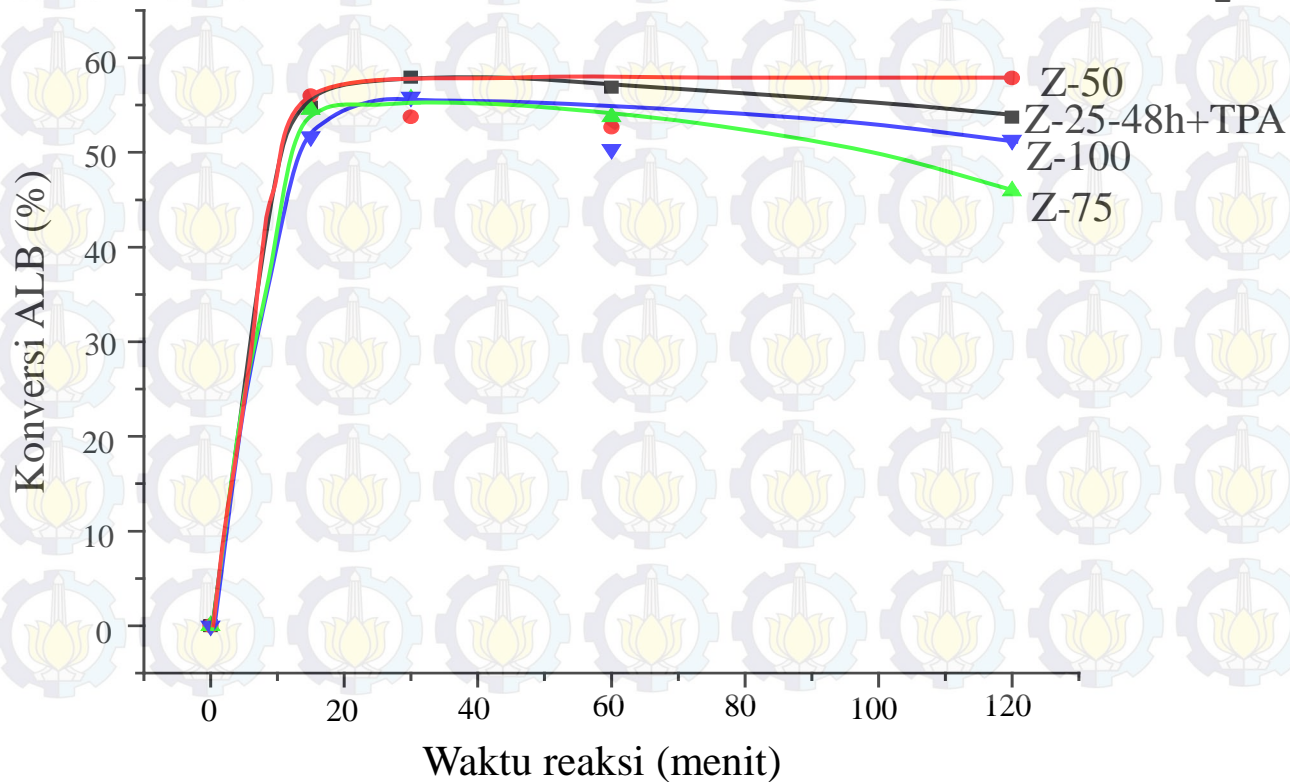
Sampel	Keasaman (mmol/g)	
	Lewis (L)	Brønsted (B)
Z-25-48h+TPA	0,6948	0,7248
Z-50	0,9533	0,8809
Z-75	0,9467	0,5278
Z-100	0,9146	0,5751

Sampel	Brønsted (mmol/g)	Kristalinitas (%)
Z-25-48h+TPA	0,7248	51,68
Z-50	0,8809	100
Z-75	0,5278	46,56
Z-100	0,5751	50,88

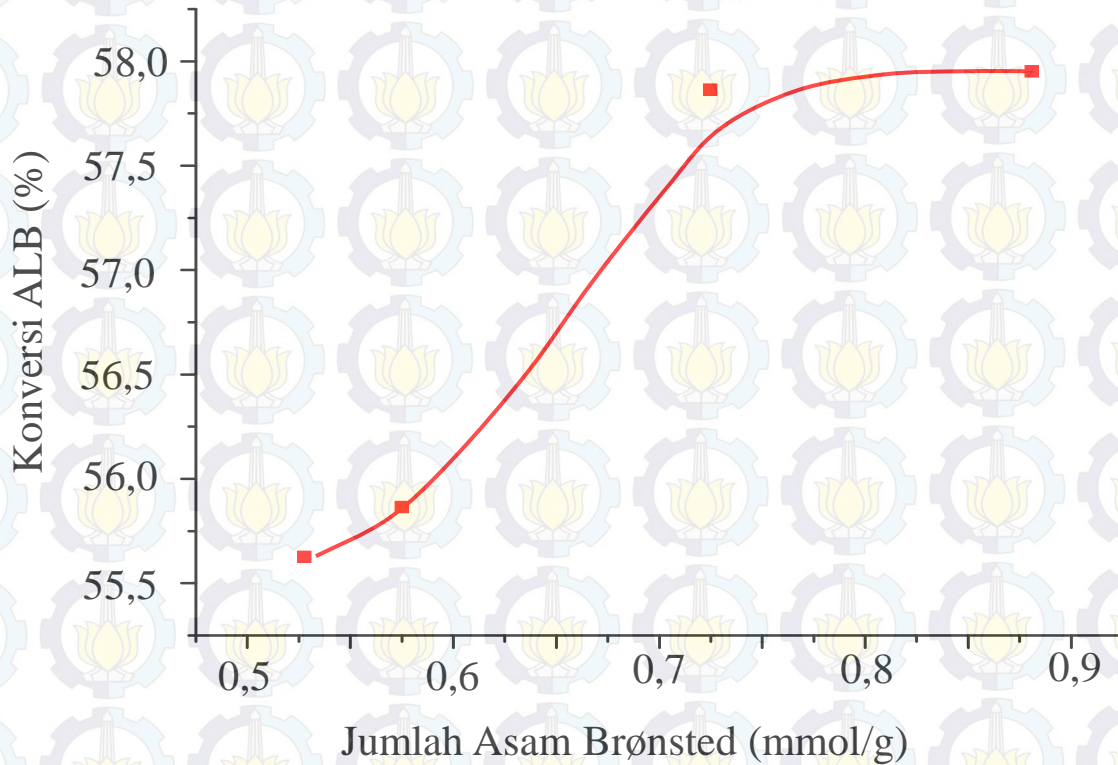
❖ Aktivitas Katalitik



➤ Konversi ALB dengan katalis ZSM-5 variasi rasio mol $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$



➤ Hubungan keasaman katalis ZSM-5 dengan konversi ALB



Kesimpulan

- ZSM-5 telah berhasil disintesis dari kaolin tanpa pra-perlakuan dan ludox dengan variasi rasio mol $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 25-100, dan ZSM-5 yang memiliki rasio mol $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3 = 25$ dapat terbentuk dengan penggunaan templat yang lebih besar yaitu $\text{TPABr}/\text{SiO}_2 = 0,3$ dan waktu kristalisasi yang lebih lama yaitu 48 jam.
- Semua sampel ZSM-5 memiliki morfologi yang serupa yaitu *spherical* yang bergabung membentuk aglomerasi dengan ukuran partikel sekitar 1-2 μm .
- ZSM-5 dengan rasio mol $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ 50 memiliki kristalinitas tertinggi yaitu 100% dan jumlah sisi asam Brønsted = 0,88 mmol/g.
- Besarnya konversi asam lemak bebas pada minyak kemiri sunan = 57,95%.



TERIMA KASIH