

Kinerja Cu/Al₂O₃ sebagai Katalis "Catalytic Converter" untuk Kendaraan Bermotor

M. Nasikin, Widodo W.P., Elisya H., S. Bismo dan Rita A.
Jurusan Teknik Gas dan Petrokimia
Fakultas Teknik Universitas Indonesia, Depok, 16424

LL

Abstrak

Pada penelitian ini, preparasi katalis untuk Catalytic Converter (CC) dilakukan dengan metoda coating dan impregnasi. Hasil preparasi dikarakterisasi dengan FTIR, AAS, dan BET. Bahan katalis yang dipakai adalah Jawa Ballclay (JBC) dan Borneo Ballclay (BBC) sebagai carrier, Al₂O₃ sebagai coating, dan Cu sebagai inti aktif. Preparasi ini menghasilkan loading aktual $\pm 15\%$, dan luas permukaan yang cukup tinggi ($> 200 \text{ m}^2/\text{gr}$). Uji aktivitas katalis untuk meminimisasi CO dan HC dengan menggunakan reaktor alir kontinyu menunjukkan bahwa kemampuan aktivitas katalis berbasis Cu/Al₂O₃ sebagai CC cukup tinggi, yaitu $> 90\%$ pada suhu optimum 400°C.

Pendahuluan

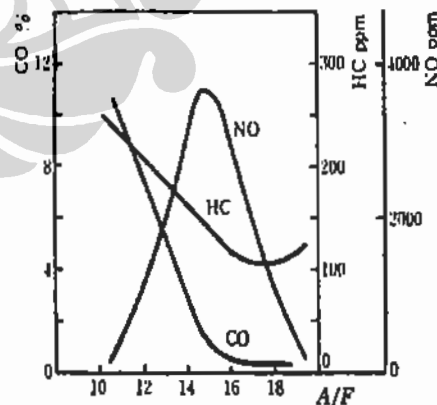
Berdasarkan *United Nation for Enviroment Program* (UNEP), Oktober 1995, tingkat pencemaran udara di Jakarta sudah melebihi baku mutu lingkungan, dan menempatkan Jakarta sebagai kota terburuk ketiga, dalam hal polusi udara, setelah Meksiko dan Bangkok.^[1] Pencemaran udara tersebut sebagian besar merupakan sumbangan dari gas buang kendaraan bermotor (70%).^[2]

Mengingat begitu besarnya resiko gas-gas beracun tersebut bagi kesehatan/keselamatan manusia, maka perlu segera dilakukan usaha untuk meminimisasi gas-gas beracun tersebut, sekaligus mensukseskan Program Langit Biru yang dicanangkan oleh pemerintah.

Salah satu alternatif untuk memperbaiki kualitas gas buang kendaraan bermotor adalah *treatment* gas buang setelah proses pembakaran dengan memasang katalis yang berfungsi sebagai *Catalytic Converter* (CC) pada knalpot kendaraan. Katalis tersebut akan mampu meminimisasi gas-gas beracun hasil pembakaran menjadi bahan yang relatif

tidak berbahaya sebelum dikeluarkan ke udara.

Gas buang kendaraan bermotor mengeluarkan tiga gas beracun utama, yaitu: CO, NO_x dan HC (hidrokarbon sisa pembakaran) dengan konsentrasi berbeda-beda, tergantung kondisi campuran udara/bensin (A/F), seperti ditunjukkan oleh Gambar 1. Konsentrasi CO berkisar antara 0~11%, HC 100~250 ppm dan NO_x 0~3500 ppm.



Gambar 1. Konsentrasi gas buang sebagai fungsi A/F.

Apabila mesin berada pada kondisi A/F = 14,7 (perbandingan A/F = stoikiometri), ke tiga gas pencemar tersebut terbentuk pada kondisi ini. Dengan demikian *three way catalyst* (TWC) diperlukan untuk meminimisasi secara simultan

gas-gas tersebut.

Tetapi katalis TWC ini masih sulit diterapkan di Indonesia. Di samping harganya mahal, juga karena masih banyaknya kendaraan yang berusia tua, maka persyaratan A/F = 14,7 sulit dipenuhi. Hal lain, masih adanya TEL dalam bensin juga berakibat TWC tidak dapat bekerja dengan baik. Oleh karena itu, pada saat ini dikembangkan katalis oksidasi untuk mengoksidasi CO dan HC pada gas buang. Katalis oksidasi ini dipakai pada keadaan dengan campuran *lean* sehingga konsentrasi NO_x sangat rendah (lihat Gambar 1).

CC dapat berupa *packed bed converter* dan *monolithic converter*. *Packed bed converter* mempunyai permukaan alumina yang berupa manik-manik, dengan diameter sekitar 3 mm, luas permukaan 100 m²/g, dan diimpregnasi dengan logam mulia yang diletakkan dalam kontainer. Bagian atas dan bawah dari kontainer ini diisolasi untuk meminimisasi *heat loss* ke lingkungan. Sedangkan *monolithic converter* terbuat dari *cordierite* (2MgO.2Al₂O₃.5SiO₃) atau *stainless steel* (Fe-Cr-Al-Y alloy) dengan *coating* alumina setebal 20-50 μm.^[3]

Ada tiga konfigurasi dari katalis *bed* yaitu *pellet bed*, *monolith*, dan *metallic wire meshes*. Katalis yang berbentuk pelet mempunyai diameter sebesar 1/16–3/8 in dan 6–20 *channels/in*, *monolith* berbentuk silinder dengan diameter 3–6 in dan panjang 2–9 in, sedangkan *metallic meshes* mempunyai diameter 0,004–0,03 in.^[4]

Bahan yang digunakan untuk pembuatan CC terdiri atas: *carrier*, keramik *cordierite* (2MgO. 2Al₂O₃.5SiO₃); *support*, alumina; *monolithic support*, keramik *honeycomb* yang tipis, yang terbuat dari *cordierite* (2MgO. 2Al₂O₃.5SiO₃) dengan *coating* alumina setebal 20–50 μm; inti aktif, terdiri dari

0,09 wt% Pt, 0,03 wt% Pd, 0,006 wt% Rh, dan 2,6 wt% Ce pada alumina.^[5]

Pada penelitian ini, pemakaian *cordierite* sebagai *carrier* diganti dengan *clay*, *Borneo Ballclay* (BBC) dan *Jawa Ballclay* (JBC), bahan yang mirip dengan bahan dasar keramik dengan kandungan alumina tinggi. Bahan tersebut banyak dijumpai di dalam negeri sehingga dapat menekan biaya pembuatan konverter.

Sedangkan Cu yang telah diketahui aktif terhadap oksidasi CO, HC, maupun reduksi NO_x dan tahan terhadap sulfur maupun timbal, dapat dipakai sebagai inti aktif logam mulia. Substitusi logam mulia dengan Cu ini akan menurunkan harga CC.^[6]

Oleh karena itu, pada penelitian ini, pengujian dilakukan terhadap kemampuan Cu/Al₂O₃ dengan *carrier* BBC dan JBC dalam mengoksidasi CO dan HC.

Cu-alumina merupakan katalis redoks yang dapat meminimisasi atau mengeliminasi secara simultan gas-gas beracun dalam gas buang kendaraan bermotor: NO_x, SO_x, CO, dan HC (hidrokarbon yang tidak terbakar). Hasil kontak oksigen dengan katalis membentuk lapisan inti aktif [Cu-O-Cu]² di permukaan alumina. Selanjutnya inti aktif ini akan mengoksidasi secara serentak CO, HC, dan NO menjadi CO₂, C_xH_yO, dan NO₂, sedangkan katalis berubah menjadi Cu'. Pada kondisi tersebut, di atas permukaan katalis terjadi reaksi redoks C_xH_yO dan NO₂, menghasilkan N₂, H₂O, dan CO₂. Secara bersamaan terjadi juga reaksi antara SO₂ dan NO₂ yang sedikit akan menurunkan konversi NO_x, menghasilkan SO₃ dan NO. Tetapi dengan menaikkan konsentrasi oksigen di dalam aliran gas, konversi eliminasi NO_x masih bisa dipertahankan.^[7-10]

Penelitian

Preparasi dan Karakterisasi Katalis

Preparasi katalis

Katalis Cu/Al₂O₃ dengan *carrier* BBC dan JBC dipreparasi melalui beberapa tahap, yaitu:

- Preparasi BBC dan JBC; BBC yang berupa gumpalan dihaluskan dan diayak untuk mendapatkan pelet berdiameter rata-rata 0,9 mm. Butiran (pelet) ini kemudian dikalsinasi dengan udara terbuka pada 1000°C selama 1 jam. Preparasi JBC dilakukan dengan cara yang sama.
- *Coating* Al₂O₃; pada bahan BBC dilakukan *coating* dengan Al₂O₃ setebal ~50 µm. Al₂O₃ sebagai bahan awal dilarutkan dalam larutan KOH 2 M dengan jumlah Al₂O₃ tertentu untuk mendapatkan ketebalan *coating* ~50 µm. Pelet BBC kemudian dimasukkan dalam larutan Al(OH)₃ dan Al(OH)₃ diendapkan pada permukaan BBC dengan menguapkan air pada 100°C (*waterbath*) sambil dilakukan pengadukan. Kalsinasi pada 400°C selama 1 jam dilakukan untuk mendapatkan γ Al₂O₃. Perlakuan yang sama dilakukan pada JBC.
- Impregnasi Cu; impregnasi Cu dilakukan pada permukaan Al₂O₃. Bahan dasar yang dipakai adalah Cu(NO₃)₂. Setelah proses impregnasi, Cu/Al₂O₃ dikalsinasi pada 400°C selama 1 jam.

Karakterisasi katalis

Keberhasilan *coating* dianalisis dengan FTIR (*Fourier Transformation Infra Red*). Sampel uji FTIR dibuat berbentuk pelet dengan KBr. Sedangkan untuk mengetahui *loading* Cu di permukaan katalis, dilakukan analisis dengan AAS (*Atomic Absorption Spectrophotometri*). Luas permukaan katalis dihitung dengan metode BET menggunakan sistem vakum (*autosorb*).

Uji Aktivitas Katalis

Uji aktivitas katalis menggunakan reaktor alir kontinyu yang dihubungkan langsung dengan Gas Chromatography sebagai alat analisis. Uji aktivitas katalis dilakukan terhadap 2 macam gas: CO

dan n-oktana (mewakili hidrokarbon).

Uji aktivitas katalis terhadap gas CO

Uji aktivitas katalis terhadap gas CO dilakukan pada suhu reaksi 300, 400, dan 500°C; konsentrasi CO dalam umpan 10.000 ppm; konsentrasi oksigen dalam umpan 20.000 ppm; laju alir total 100 cc/menit (*balance Nitrogen*); dan berat katalis 0,5 g, W/F = 0,005 g-kat/menit.cc.

Uji aktivitas katalis terhadap gas HC

Uji aktivitas katalis terhadap gas HC dilakukan pada suhu reaksi 300, 400, dan 500°C; konsentrasi HC dalam umpan 50.000 ppm; konsentrasi oksigen dalam umpan 30.000 ppm; laju alir total 30 cc/menit (*balance Nitrogen*); dan berat katalis: 0,5 g, W/F = 0,17 g-kat/menit.cc.

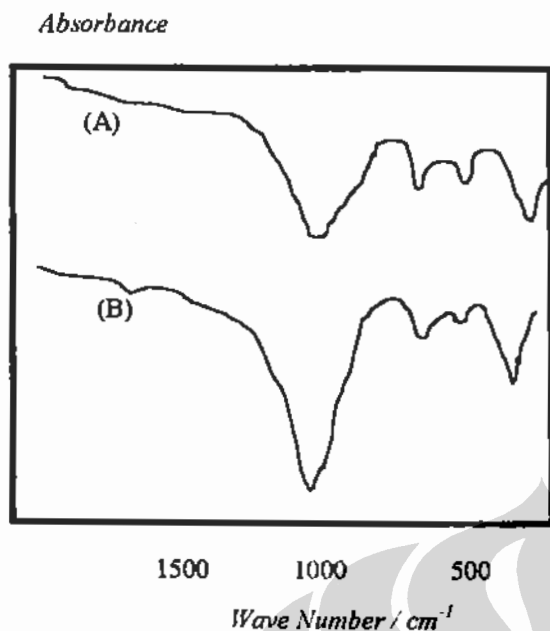
Gas Chromatography

Konsentrasi gas sebelum dan sesudah keluar reaktor dianalisis dengan GC, dengan jenis kolom *Gaschropack* 54,2 mm x 2 m; suhu kolom 100°C; dan laju alir gas *carrier* 20 cc/menit.

Hasil Penelitian dan Pembahasan

Coating Al₂O₃

Gambar 2 menunjukkan spektra IR dari CC jenis BBC sebelum dan sesudah *coating*. Mengingat *clay* adalah mineral yang terdiri atas alumina dan silika, maka keberadaan alumina dan silika akan ditunjukkan dengan munculnya *peak* pada daerah 500~1.100 cm⁻¹. Seperti terlihat pada Gambar 2, terdapat *peak* yang cukup signifikan pada 500 dan 1.100 cm⁻¹. *Peak* pada 500 cm⁻¹ menunjukkan adanya ikatan O-Si-O, yang menandakan adanya senyawa silika pada *clay*. Sedangkan *peak* pada 1.100 cm⁻¹ menunjukkan adanya ikatan O-Al-O yang merupakan indikasi adanya senyawa alumina.

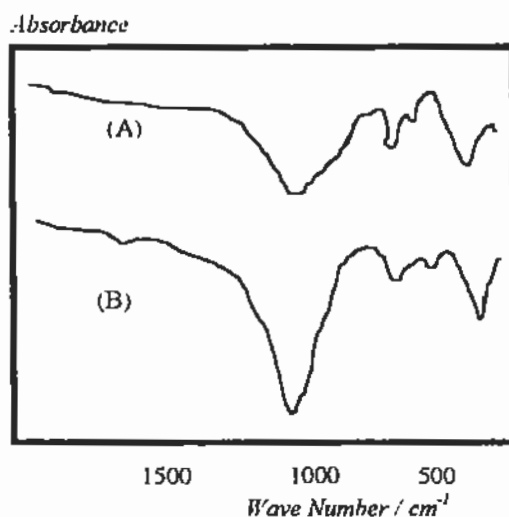


Gambar 2. Spektra FT-IR: a) JBC; b) JBC setelah *coating*

Apabila dilakukan perbandingan terhadap *peak* untuk *clay* sebelum dan sesudah proses *coating*, relatif terhadap *peak transmittance* silika (pada 500 cm^{-1}), maka akan terlihat penambahan tinggi *peak transmittance* dari alumina (pada 100 cm^{-1}). Hal ini menunjukkan secara kualitatif bahwa terjadi penambahan jumlah alumina di permukaan *carrier* karena proses *coating*.

Keberhasilan proses *coating* ini juga terjadi pada JBC, yang menunjukkan indikasi penambahan *transmittance* alumina dibandingkan terhadap *carrier* sebelum *coating* seperti ditunjukkan pada Gambar 3.

Adanya *peak* pada $500\text{--}100\text{ cm}^{-1}$, mengindikasikan bahwa JBC maupun BBC merupakan mineral dengan senyawa penyusun yang sama, yaitu silika dan alumina.



Gambar 3. Spektra FT-IR: a) BBC; b) BBC setelah *coating*

Loading Cu

Adanya alumina hasil *coating* pada permukaan *carrier* dapat dianalisis dengan FT-IR, sebaliknya keberadaan Cu di permukaan alumina tidak dapat dianalisis dengan FT-IR. Spektra FT-IR sebelum dan sesudah impregnasi Cu (tidak ditunjukkan pada laporan ini), tidak dapat menunjukkan perubahan yang mengindikasikan adanya Cu yang terimpregnasi. Hal ini disebabkan karena berimpitnya *peak* Cu dengan *peak* alumina pada sekitar 1.100 cm^{-1} . Oleh karena itu, analisis adanya Cu di permukaan *carrier* selanjutnya dilakukan dengan menggunakan metode AAS.

Tabel 3.1 menunjukkan hasil impregnasi Cu dipermukaan alumina pada JBC dan BBC.

Tabel 3.1. Loading Cu

Jenis <i>carrier</i>	Loading Cu teoritis %berat thd Al_2O_3	Loading Cu aktual %berat thd Al_2O_3 (AAS)
BC	20	14,32
BBC	20	15,60

Tabel 3.1 menunjukkan penurunan *loading* aktual dibandingkan *loading* teoritis sebesar sekitar 25%. Penurunan ini disebabkan oleh karena terjadinya kehilangan Cu selama proses impregnasi yang mempunyai beberapa tahap termasuk penguapan dan pencucian. Tabel 3.1 juga mengindikasikan bahwa kedua jenis *clay* mempunyai tingkat keberhasilan yang sama dalam proses impregnasi Cu.

Loading 15% berat Cu ini merupakan sebuah harga yang cukup tinggi seperti dijelaskan pada beberapa laporan terdahulu bahwa *loading* sekitar 15% berat dapat mengkonversi CO, HC dan NO_x sampai hampir sempurna. Oleh karena itu, tahap *coating* dan *loading* pada penelitian ini diharapkan dapat memberikan hasil preparasi yang cukup representatif untuk diuji pada tahap selanjutnya.

Luas Permukaan Catalytic Converter

Salah satu penentu aktivitas katalis adalah luas permukaan. Luas permukaan yang besar akan mendispersikan inti aktif dengan baik sehingga menaikkan aktivitasnya. Pada penelitian ini, alumina (Al₂O₃) dipakai sebagai *support* yang *coating* di atas *carrier* karena alumina dalam bentuk γ -alumina dapat memiliki luas permukaan yang besar (~400 m²/g). Analisis terhadap luas permukaan kedua jenis CC (JBC dan BBC) dilakukan dengan metode BET.

Tabel 3.2 menunjukkan luas permukaan masing-masing CC.

Tabel 3.2 Luas Permukaan CC

Jenis carrier	Luas permukaan Setelah coating Al ₂ O ₃ , m ² /g	Luas permukaan setelah impregnasi Cu, m ² /g
JBC	460	398
BBC	214	221

Tabel 3.2 mengindikasikan bahwa luas permukaan CC cukup tinggi untuk diaplikasikan sebagai katalis, mengingat katalis dengan luas permukaan sekitar 100 m²/g saja sudah cukup menunjukkan aktivitas yang baik. Namun bila dibandingkan dengan luas permukaan maksimum alumina (sekitar 400 m²/g), luas permukaan kedua CC tersebut masih relatif rendah, oleh karena itu masih terdapat kemungkinan untuk pengembangan selanjutnya dengan metode-metode tertentu untuk menaikkan luas permukaan CC ini.

Tabel 3.2 juga menunjukkan bahwa alumina dipermukaan JBC memiliki luas permukaan yang tinggi dibanding BBC. Hal ini disebabkan oleh karena luas permukaan mula-mula JBC lebih besar daripada luas permukaan mula-mula BBC karena kedua jenis *clay* tersebut mempunyai ukuran pori yang berbeda. Di samping itu, perbedaan ukuran pori ini juga menyebabkan perbedaan luas permukaan kedua CC setelah di-impregnasi dengan Cu. Ukuran pori yang lebih besar (BBC) memungkinkan Cu ter-impregnasi merata sampai pada bagian dalam pori, sehingga penambahan butiran di permukaan alumina akan menaikkan luas permukaan. Sebaliknya ukuran pori yang kecil (JBC), menyebabkan impregnasi Cu menutup sebagian pori dan menurunkan luas permukaan.

Aktivitas Catalytic Converter

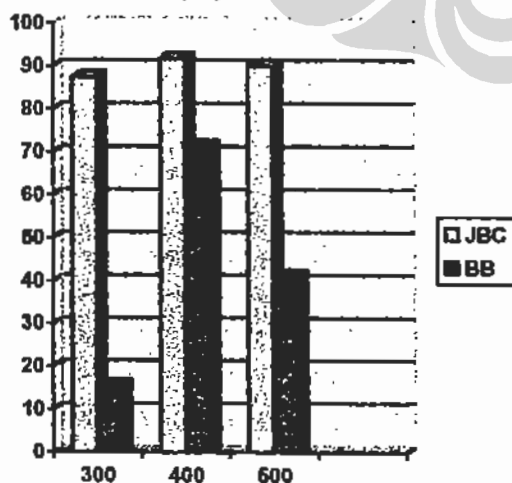
Aktivitas katalis dapat ditunjukkan oleh kemampuan katalis untuk mengkonversi reaktan yang dikehendaki. Pada penelitian ini, aktivitas CC (JBC dan BBC) diuji terhadap gas CO dan gas n-oktana (sebagai gas sintesis yang mewakili HC). Uji yang dilakukan ialah mengetahui kemampuan aktivitas CC mengkonversi kedua gas tersebut secara independen pada suhu 300, 400 dan 500°C, serta W/F yang besarnya setara dengan kondisi pada gas keluaran kendaraan bermotor. Pengujian terhadap 3 suhu ini dimaksudkan pula untuk mengetahui suhu operasi yang optimum.

Aktivitas terhadap CO

Gambar 4 menunjukkan aktivitas CC (JBC dan BBC) untuk mengkonversi CO menjadi CO₂. Pada Gambar 4 ini terlihat bahwa BBC menunjukkan aktivitas yang lebih baik daripada JBC. Di samping konversi CO yang lebih tinggi (maksimum 91,84%), JBC juga mampu mengkonversi CO jauh lebih tinggi dibanding BBC pada suhu rendah (300°C). Aktivitas yang baik pada suhu rendah ini akan sangat mendukung usaha untuk mengatasi masalah *cold start* pada emisi gas buang kendaraan, yaitu ketidakmampuan CC saat ini untuk mengkonversi gas beracun ketika suhu mesin masih dingin.

Konversi sebesar 91,84% ini memungkinkan penggunaan BBC sebagai CC kendaraan bermotor, mengingat konsentrasi CO pada gas buang rata-rata 12.000 ppm, dan kadar ini harus diturunkan menjadi 1.200 ppm (konversi ±90%) agar memenuhi ketentuan yang ada. Sedangkan untuk JBC, meskipun masih mungkin untuk dipakai sebagai CC pada kendaraan bermotor, hanya saja mengingat aktivitas optimum JBC tercapai pada suhu 400°C, tentunya diperlukan kontrol suhu operasi kendaraan dalam penggunaannya.

Konversi HC (%)



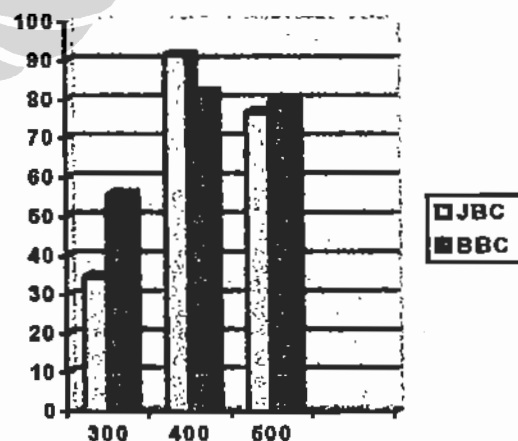
Gambar 4. Aktivitas CC terhadap CO

Gambar 4 juga menunjukkan bahwa kedua CC mempunyai daerah kerja yang sama, yaitu pada suhu 400°C, dimana konversi CO menunjukkan harga maksimum. Dari Gambar 4 ini juga dapat disimpulkan bahwa kenaikan suhu operasi di atas 400°C akan menurunkan aktivitas katalis. Hal ini dikarenakan reaksi oksidasi CO adalah reaksi eksotermis sehingga kenaikan suhu di daerah yang mendekati kesetimbangan akan menurunkan konversi. Oleh karena itu, pada aplikasinya diharapkan CC dapat diletakkan pada knalpot kendaraan bermotor di daerah yang bersuhu sekitar 400°C.

Aktivitas terhadap HC

Gambar 5 menunjukkan aktivitas CC terhadap HC. Sedikit berbeda dengan aktivitas terhadap CO, aktivitas terhadap HC ini baik JBC maupun BBC tidak memiliki perbedaan aktivitas yang signifikan. Demikian juga terhadap aktivitasnya pada suhu rendah. Walaupun demikian, Gambar 5 tersebut mengindikasikan suhu optimum yang sama dengan suhu optimum konversi CO, yaitu pada 400°C, dan kecenderungan yang sama yaitu menurunnya konversi di atas suhu 400°C. Gambar 5 juga menunjukkan bahwa JBC mempunyai aktivitas yang lebih baik dibandingkan dengan BBC.

Konversi HC (%)



Gambar 5. Aktivitas CC terhadap HC

JBC mempunyai aktivitas yang lebih tinggi dibandingkan dengan BBC, baik terhadap CO

maupun terhadap HC pada suhu optimum(400°C),walaupun luas permukaan dan juga *loading* JBC lebih rendah dibandingkan dengan BBC. Hal ini disebabkan oleh karena ukuran pori JBC yang lebih besar sehingga mampu mengakomodasi ukuran CO maupun HC untuk masuk dan dikonversikan diseluruh permukaan JBC. Perbedaan ukuran ini sesuai dengan analisis terhadap luas permukaan yang telah dijelaskan sebelumnya.

Kesimpulan

Kesimpulan yang dapat diambil dari penelitian ini adalah bahwa *Jawa Ballclay* (JBC) dan *Borneo Ballclay* (BBC) dapat digunakan sebagai *carrier* CC, karena luas permukaan yang besar (>200 m²/gr) dan ketahanan panas yang tinggi (~1000°C). Permukaan JBC dan BBC berhasil dilakukan *coating* dengan Al₂O₃. Sedangkan impregnasi Cu (inti aktif katalis) pada permukaan alumina didapatkan dengan *loading* ±15%. Kemampuan aktivitas katalis berbasis Cu/Al₂O₃ sebagai CC untuk meminimisasi CO dan HC cukup tinggi yaitu >90% pada suhu optimum 400°C.

Saran

Mengingat uji aktivitas pada penelitian ini baru menggunakan katalis berbentuk pelet, maka pada penelitian selanjutnya pengujian dilakukan pada *Catalytic Converter monolith* yang telah di-*coating* dan di-impregnasi. Ketahanan terhadap guncangan dan stabilitas katalis juga perlu diuji pada tahap penelitian selanjutnya.

Daftar Pustaka

1. Pemanfaatan "Catalytic Converter" untuk Kendaraan Bermotor di Indonesia, Pusat Penelitian Sains dan Teknologi, Lembaga Penelitian Universitas Indonesia, 1997.

2. Zaim Saidi, "Persepsi Masyarakat tentang Pencemaran Udara di Jakarta", Seminar Warga Jakarta dan Peranannya dalam Menurunkan Pencemaran Udara Akibat Kendaraan Bermotor, 1997.
3. Anderson, J.R., and Boudart, M., "Catalysis Science and Technology", Springer-Verlag, 1984.
4. Amor, J.N., "Enviromental Catalysis", ACS Symposium Series 552, 1994.
5. Becker, E.R., and Pereira, C.J., "Computer-Aided Design of Catalysts", Marcel Dekker Inc., 1993.
6. Ibid No.1.
7. M. Iwamoto, Chemistry Letters (1990), p. 1967.
8. J. Sarkany, Chemistry Letters (1990), p. 1967.
9. K.K.C. Kharas, Applied Catalysis, B2 (1993), p. 207.
10. E. Xue, Applied Catalysis, B2 (1993), p. 183.