

ISSN: 1410 - 1866

JURNAL PENDIDIKAN MATEMATIKA DAN SAINS (JPMS)

JPMS, Edisi 2, Tahun XII. Nopember 2007

DAFTAR ISI (CONTENTS) :

Implementasi Problem Based Learning dengan Peer Lessons pada Pembelajaran Statistika Matematis Guna Meningkatkan Kemandirian Belajar
(Implementation of Problem Based Learning With Peer Lessons in Mathematical Statistics for Increase Self Regulated Learning)

Elly Arliani, Mathilda Susanti, Kana Hidayati, Caturiyati, & Husna Arifah, (67 - 75).

Estimasi Interval untuk Model Tahan Hidup Weibull dengan Data Tersensor Progresif Tipe-II
(Interval Estimation For Weibull Lifetime Model Under Type-II Progressively Censored Data)

Dhoriva Urwatul Wutsqa Dan Kismiantini, (76 - 83).

Pembandingan Profil Distribusi Vertikal ^{137}Cs di Lapisan Tanah Hasil Pengukuran terhadap Simulasi.
(Comparison of ^{137}Cs Vertical Distribution Profile at Soil Layer Obtained by Measurement and Simulation)

Nita Suhartini, (84 - 90).

Model Pembentukan Kompleks Permukaan pada Adsorpsi 9-Aminoakridin oleh Kaolinit
(Surface Complexation Model of the Adsorption of 9-Aminoacridine by Kaolinite)

Jaslin Ikhsan, Endang Widjajanti LFX, & Sunarto, (91 - 99).

Hydrogenasi Nitrobenzena Menggunakan Pd-PdO/Al₂O₃ dan Pd-PdO/C
(Nitrobenzene Hydrogenation Using Pd-PdO/Al₂O₃ and Pd-PdO/C)

Endang W Laksono, AK Prodjosantoso Dan Karim Th, (100 - 107).

Uji Elektroda Platina untuk Deteksi pH secara Potensiometri
(Study of Platinum Electode for the Detection of pH by Potentiometri Method)

Ratu Betta Rudibyani, (108 - 112)

Immobilisasi Flay Ash dan Bottom Ash Proses Pembakaran Batubara untuk Pembuatan Waste Pottery
(The Immobilization of Flay Ash and Bottom Ash on Coal Combustion Process for Making Waste Pottery)

Diananto Prihandoko & Prayitno, (113 - 120).

Korelasi Antara Sifat Fisikokimiawi Pati Campuran dan Kualitas Sohun yang Dihasilkan
(Correlation of Physicochemical Properties of Starch Blends and Their Noodle Quality)

Ch. Lills Suryani, (121 - 129).

Terakreditasi sebagai Jurnal Ilmiah berdasarkan Keputusan Ditjen DIKTI
Depdiknas No. 39/DIKTI/Kep/2004

JURNAL PENDIDIKAN MATEMATIKA DAN SAINS (JPMS)

ISSN: 1410-1866

Terakreditasi sebagai Jurnal Ilmiah
Berdasarkan Keputusan Ditjen DIKTI Depdiknas No. 39/DIKTI/Kep/2004

Visi: Menjadi media komunikasi yang mampu secara nyata memberikan sumbangan terhadap perkembangan bidang Pendidikan MIPA di Indonesia

Misi: Menyebarkan hasil penelitian dan hasil kajian dalam bidang Pendidikan MIPA

Diterbitkan oleh
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Yogyakarta

Dewan Penyunting Pelaksana

Dr. Hari Sutrisno	(Ketua)
Dr. Zuhdan Kun Prasetyo	(Sekretaris)
Dr. Rusgianto H.S	(Anggota)
Dr. Hartono	(Anggota)
Dr. Ariswan	(Anggota)
K.H Sugiyarto, Ph.D	(Anggota)
Dr. Heru Nurcahyo	(Anggota)
Surahman, MSi	(Anggota)

Penyunting Ahli

Prof. Suryanto, D.Ed	(UNY)
Prof. Sugeng Mardiyono, Ph.D	(UNY)
Prof. Dr. Wuryadi	(UNY)
Prof. Dr. Soeparno Darmawidjaja	(UGM)
Prof. Dr. Djoko Marsono	(UGM)
Dr. Yateman Ariyanto	(UGM)
Prof. Dr. Sutarno	(UNS)

Pembantu Pelaksana

Drs. Yudi Sutomo
Drs. Sarjono
Drs. Sarjiman
Tri Haryanto, SE
Eko Marsono, ST

Alamat Dewan Penyunting:

Sekretariat: Gedung Kuliah Baru, Lt.1, FMIPA-UNY
Kampus FMIPA Universitas Negeri Yogyakarta, Karangmalang, Yogyakarta,
Telp. (0274) 586168 psw. 219, Fax. (0274) 540713
Home page: <http://www.uny.ac.id> ; e-mail: jpms@yahoo.co.id

Semua artikel yang dimuat dalam Jurnal Pendidikan Matematika dan Sains sepenuhnya merupakan pendapat dan tanggung jawab penulis, bukan pendapat anggota Dewan Penyunting.

HIDROGENASI NITROBENZENA MENGGUNAKAN Pd-PdO/Al₂O₃ dan Pd-PdO/C

NITROBENZENE HYDROGENATION USING Pd-PdO /Al₂O₃ AND Pd-PdO/C

Endang W Laksono, AK Prodjosantoso dan Karim Th
Jurusan Pendidikan Kimia, FMIPA, UNY
ewxlaksono@yahoo.com

ABSTRAK

Penelitian ini bertujuan untuk membandingkan kemampuan katalis Pd-PdO tereduksi dengan tanpa reduksi pada reaksi hidrogenasi nitrobenzena. Katalis Pd-PdO yang disintesis diimbangkan pada alumina (Pd-PdO)/Al₂O₃) dan karbon (Pd-PdO)/C). Kemampuan katalis ditentukan sebagai aktivitas katalitik, yaitu membandingkan produk yang diharapkan dan produk keseluruhan. Preparasi katalis dilakukan dengan senyawa prekursor ammonium bisoksalatopalatat(II) ((NH₄)₂ [Pd(C₂O₄)]·H₂O). Metode pengembunan yang dipilih adalah impregnasi basah, dengan menggunakan 4 % palladium. Kalsinasi dilakukan selama 2 jam pada suhu 700 °C dibawah aliran gas nitrogen sedangkan reduksi menggunakan gas hidrogen dilakukan pada suhu 400 °C selama 2 jam juga. Karakterisasi dilakukan secara spektrofotometri Infra-merah (FTIR) dan difraksi sinar X (XRD). Produk hasil reaksi ditentukan dengan menggunakan kromatografi gas. Hasil penelitian memperlihatkan bahwa aktivitas katalis Pd-PdO/ Al₂O₃ tak tereduksi lebih besar dibandingkan dengan yang tereduksi untuk waktu reaksi 1,5 jam. Sedangkan aktivitas Pd-PdO/C tereduksi lebih besar dibandingkan dengan yang tak tereduksi bila digunakan untuk reaksi hidrogenasi nitrobenzena selama 2 jam.

Kata Kunci : Katalis hidrogenasi, Pd-PdO/Al₂O₃, Pd-PdO/C, Aktivitas Katalis

ABSTRACT

The goal of this research is to compare the activity of Pd-PdO/Al₂O₃ and Pd-PdO/C after and before reduction as a catalyst on hydrogenation of nitrobenzene. By comparing the expected and total product we can determine the activity of catalyst. The catalyst was prepared using (NH₄)₂[Pd(C₂O₄)]·H₂O precursor containing 4 % Palladium. The precursor was calcinated for 2 hours at 700 °C under nitrogen atmosphere and reduced by hydrogen gases at 400 °C for 2 hours. Catalysts were characterized by FTIR and XRD methods. The results show that the activity of the non reduced Pd-PdO/ Al₂O₃ is greater than the reduced, and the reaction is complete in 1,5 hours. However the activity of the reduced Pd-PdO/C is greater than that the reduced after 2 hours of reaction.

Key words : hydrogenation catalyst, Pd-PdO/Al₂O₃, Pd-PdO/C, activity of catalyst

PENDAHULUAN

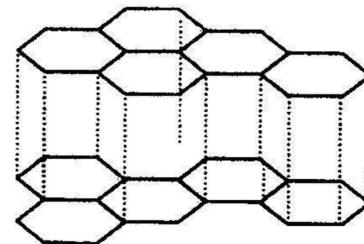
Paladium serta oksidanya telah dikenal luas dapat mengkatalis reaksi hidrogenasi senyawa tak jenuh, seperti alkena dan alkuna, serta senyawa nitro dengan mudah pada temperatur kamar (Hartley, 1991: 58 dan Tanielyan, A.K. and Augustine, R.L, 1994 : 311). Selain itu senyawa organologam dengan inti logam paladium merupakan bahan yang ideal untuk prekursor katalis dalam bentuk senyawa organologam-klorida (Blokhin *et al*, 1995:1241; Ivanov-Emin *et al.*; 1974:1026) seperti misalnya $K_2[PdCl_6]$. Senyawa $K_2[PdCl_6]$ ini mudah untuk disintesis. Namun jika senyawa ini digunakan sebagai prekursor katalis maka ion klorida akan menempel dan menutupi permukaan logam paladium dan atau paladium oksida sehingga menurunkan aktivitas katalisnya (Paulis, *et. al.* 2001: 199).

Salah satu cara untuk meningkatkan aktivitas katalis yang berintikan paladium adalah menggunakan senyawa paladium bebas klorida. Penghilangan klorida dari permukaan logam paladium dan atau paladium oksida ternyata tidak mudah dilakukan karena membutuhkan suatu proses tambahan. Cara yang paling mudah dilakukan untuk mendapatkan katalis paladium bebas klorida adalah digunakannya suatu prekursor senyawa paladium bebas klorida (Projosantoso, 1996).

Senyawa kompleks ammonium bisoksalatopalladat(II) $((NH_4)_2[Pd(C_2O_4)_2])$ merupakan senyawa kompleks bebas klorida yang relatif mudah disintesis dan dapat terurai dalam pemanasan pada temperatur relatif rendah menghasilkan logam paladium dan atau paladium oksida, sehingga memenuhi syarat untuk digunakan sebagai prekursor katalis bebas klorida (Blokhin, *et. al.* 1995 : 1241). Katalis yang dihasilkan merupakan campuran Pd-PdO dan melalui proses reduksi sebagian PdO diubah menjadi Pd. Logam Pd umum dipakai sebagai katalis hidrogenasi. Namun bila Pd sebagai katalis akan diimbangkan pada alumina atau karbon, masih perlu dikaji apakah proses reduksi akan meningkatkan aktivitas katalitiknya, sehingga perlu diteliti bagaimana pengaruh reduksi senyawa Pd-PdO terhadap kemampuan katalitiknya sebagai katalis hidrogenasi.

Aktivitas katalis juga dapat ditingkatkan dengan cara memperluas permukaan katalis. Campbell (1988) menyatakan bahwa pendistribusian partikel katalis Pd pada permukaan pengemban seperti karbon dan alumina dapat memenuhi kebutuhan tersebut. Pada katalis yang diimbangkan, aktivitas katalis tidak hanya ditentukan oleh keberadaan logam, karena situs aktif yang telah dimiliki oleh pengemban juga dapat berperan sebagai pendorong aktivitas katalitik. Endang W dkk (2004: 23) melaporkan bahwa aktivitas Pd-PdO/ C lebih besar dibandingkan Pd-PdO/SiO₂; ini berarti pengemban ikut berperan dalam reaksi katalitik.

Karbon (C_γ) yang digunakan sebagai pengemban adalah arang aktif yang mempunyai pori yang terbuka lebar. Struktur dasar arang aktif dapat dilihat pada Gambar 1. Pada gambar terlihat bahwa arang tersusun oleh plat- plat datar yang

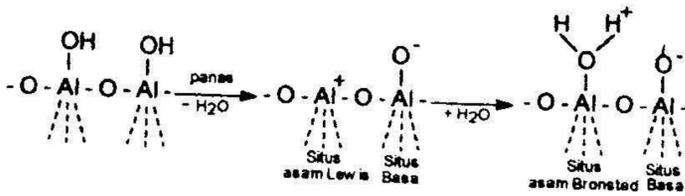


Gambar 1. Struktur arang grafit

atom karbonnya tersusun dalam kisi heksagon. Setiap atom karbon terikat secara kovalen dengan atom karbon lainnya, sehingga atom karbon akan dikelilingi oleh mepat atom karbon lainnya. Plat- plat ini bertumpuk membentuk kristal dengan pori antara 4 – 6 Å dan luas permukaan sekitar 100 m²/gram, sehingga dapat berfungsi sebagai pengemban.

Alumina merupakan bahan pengemban yang mempunyai luas permukaan antara 100 – 600 m²/ gram. Senyawa alumina mempunyai situs asam dan basa Lewis. Karakter asam Lewis yaitu akseptor pasangan elektron diperlihatkan oleh Al³⁺, sedangkan situs

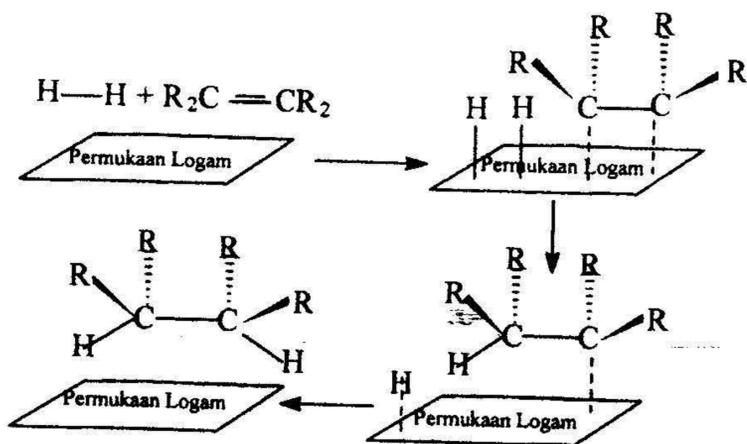
basa Lewis yaitu donor pasangan elektron diperlihatkan oleh OH^- , seperti pada Gambar 2. Kekuatan asam pada situs Lewis bergantung pada ion Al^{3+} (Darsi Setyowati, 2001:6).



Gambar 2. Struktur alumina

Reaksi hidrogenasi bersifat eksoterm, tetapi reaksi ini tidak berjalan spontan karena membutuhkan energi aktivasi yang besar. Pemanasan yang diberikan tidak dapat mensuplai energi yang cukup untuk membawa molekul ke keadaan transisi, sehingga diperlukan suatu katalis untuk memperlancar reaksi.

Reaksi katalitik hidrogenasi terjadi karena permukaan logam mengadsorpsi hidrogen, kemudian ikatan sigma H_2 terputuskan dan membentuk ikatan logam-hidrogen (kemisorpsi)



Gambar 3. Proses reaksi hidrogenasi menggunakan katalis logam

Gambar 3 merupakan simulasi reaksi hidrogenasi alkuna. Alkuna teradsorpsi pada permukaan logam, melalui ikatan $-\pi$ yang berinteraksi dengan orbital kosong dari molekul alkuna tersebut. Kemudian molekul alkuna bergerak di atas permukaan logam untuk kemudian dapat berinteraksi dengan hidrogen untuk menghasilkan produk hidrogenasi. Efek keseluruhan katalis tersebut adalah menyediakan suatu permukaan supaya reaksi dapat terjadi dengan melemahkan ikatan-ikatan hidrogen dan alkuna. Akibatnya ialah penurunan energi aktivasi reaksi tersebut. Jadi,

suatu katalis tidak mengubah energi pereaksi dan produk. ΔH reaksi tidak diubah oleh kerja katalitik, hanya energi aktivasi yang berubah.

Artikel ini ingin mengungkap aktivitas katalitik Pd-PdO yang diimbangkan pada Alumina (Al_2O_3) dan karbon (C) sebagai katalis pada reaksi hidrogenasi nitrobenzena. Aktivitas katalitik ditentukan dengan cara mengkarakterisasi hasil reaksi menggunakan metode kromatografi gas. Aktivitas katalitik dinyatakan sebagai perbandingan banyaknya senyawa yang dihasilkan dengan pereaksi.

METODE PENELITIAN

Preparasi katalis dilakukan menggunakan senyawa prekursor ammonium bisoksalatopaladat(II), $(\text{NH}_4)_2[\text{Pd}(\text{C}_2\text{O}_4)] \cdot \text{H}_2\text{O}$. Metode pengembangan yang dipilih adalah impregnasi basah, dengan menggunakan 4 % palladium. Hasil preparasi dikalsinasi selama 2 jam pada suhu 700°C dibawah aliran gas nitrogen untuk mendekomposisi senyawa $(\text{NH}_4)_2[\text{Pd}(\text{C}_2\text{O}_4)_2] \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ menjadi Pd dan PdO. Sedangkan reduksi dibawah aliran gas hidrogen dilakukan pada suhu 400°C selama 2 jam. Perlakuan ini bertujuan mereduksi senyawa PdO menjadi Pd.

Karakterisasi katalis hasil preparasi dilakukan dengan menggunakan difraksi sinar X *Shimadzu XRD-6000* dengan sumber radiasi Cu. Pola difraksi hasil karakterisasi senyawa prekursor maupun katalis Pd-PdO dibandingkan dengan JCPDS Pd dan PdO. Sedangkan karakterisasi dengan spektroskopi infra-merah *Shimadzu - FTIR 8100* dilakukan dengan metode pelet KBr. Karakterisasi ini digunakan untuk mengetahui gugus fungsi katalis, katalis teremban sebelum maupun setelah kalsinasi.

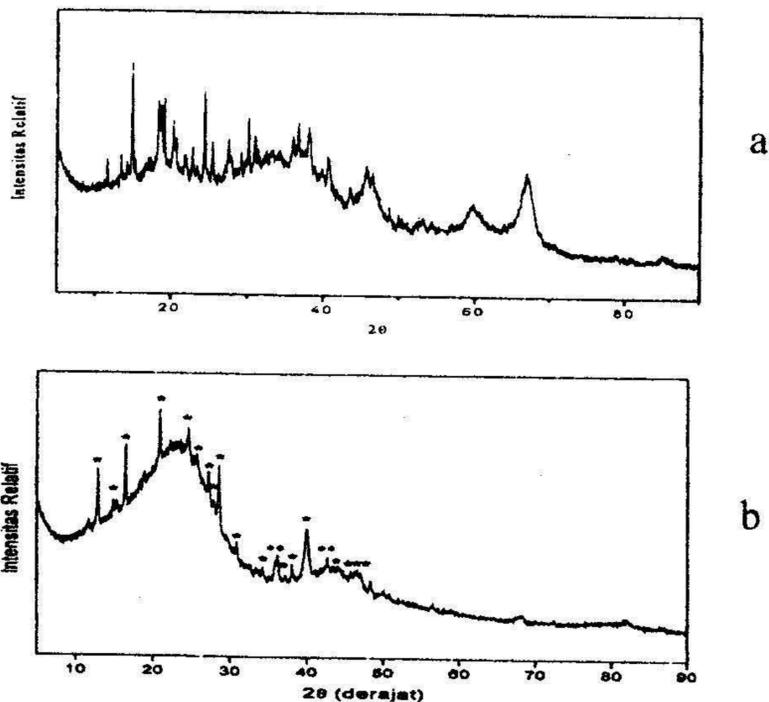
Aktivitas katalis pada reaksi hidrogenasi diuji dengan cara menggunakan katalis tersebut pada reaksi hidrogenasi senyawa nitrobenzena, dengan rasio katalis dan pereaksi 0,01 b/v. Nitrobenzena yang digunakan adalah 5%

dalam isopropil alkohol. Reaksi dilakukan dalam reaktor yang dialiri gas hidrogen dengan kecepatan alir 12 ml / menit dengan pengadukan kontinyu selama variasi waktu tertentu. Hasil reaksi dianalisis dengan kromatografi gas Shimatzu GC-14B.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Karakterisasi Katalis Pd-PdO teremban dengan XRD

Difraktogram hasil karakterisasi katalis Pd-PdO hasil preparasi impregnasi dengan alumina dan karbon dapat dilihat pada Gambar 4 dan diringkas seperti dalam Tabel 1.



Gambar.4. Difraktogram Pd-PdO/Al₂O₃ (a) dan Pd-PdO/C (b)

Tabel 1. Harga *d* untuk Katalis Hasil Impregnasi

Pd-PdO/C			Pd-PdO/Al ₂ O ₃		
2θ ⁰	<i>d</i> (Å)	%	2θ ⁰	<i>d</i> (Å)	(%)
28,51	3,12	97	28,59	3,12	4
30,83	2,89	20	30,95	2,87	34
35,66	2,51	20	35,54	2,52	9
38,02	2,36	24	37,55	2,39	25
39,94	2,25	88	39,77	2,26	17
41,00	2,20	12	40,63	2,21	35
42,59	2,12	33	42,47	2,12	4
43,31	2,09	21	43,57	2,08	17

Sedangkan informasi hasil karakterisasi katalis terembankan pada alumina dan karbon

yang diaktifkan dengan cara mereduksi dalam gas hidrogen, dirangkum dalam Tabel 2.

Tabel 2. Harga *d* untuk Katalis teremban tereduksi

Pd-PdO/C			Pd-PdO/Al ₂ O ₃		
2θ ⁰	<i>d</i> (Å)	%	2θ ⁰	<i>d</i> (Å)	(%)
35,86	2,5	20	36,09	2,48	24
39,90*	2,25	100	40,13*	2,24	100
46,45*	1,95	40	46,65*	1,95	34
60,58 [#]	1,52	5	60,74 [#]	1,52	6
67,93*	1,37	19	68,08*	1,37	10
72,59 [#]	1,30	4	72,77 [#]	1,30	4
81,94*	1,12	6	82,13*	1,12	14

Keterangan : 2θ* untuk Pd dan 2θ[#] untuk PdO

Tabel.3 memperlihatkan katalis teremban pada alumina dan karbon tak tereduksi, artinya setelah proses pengembanan tidak dilanjutkan dengan reduksi di bawah aliran gas hidrogen (2θ* untuk spesi Pd dan 2θ[#] untuk spesi PdO) (Au-Yeung, *et al.* 1999:215)

Tabel 3. Harga *d* untuk Katalis teremban tak tereduksi

Pd-PdO/C			Pd-PdO/Al ₂ O ₃		
2θ ⁰	<i>d</i> (Å)	%	2θ ⁰	<i>d</i> (Å)	(%)
23,84	3,72	3	22,86	3,88	9
--	--	--	33,78 [#]	2,65	100
39,95*	2,25	100	--	--	--
41,74 [#]	2,16	10	41,87 [#]	2,15	13
46,50*	1,95	46	--	--	--
--	--	--	54,67 [#]	1,67	21
60,62 [#]	1,52	5	60,25 [#]	1,53	23
67,98*	1,37	22	70,32*	1,33	5
72,63 [#]	1,30	5	71,32 [#]	1,32	15
81,96*	1,17	22	--	--	--

Bila data pada Tabel 2 dan Tabel.3 dibandingkan tampak bahwa baik direduksi maupun tidak kandungan PdO dalam katalis teremban tetap ada, hanya porsi kandungan PdO pada katalis tereduksi lebih kecil, sekitar 4-5 %. Sedangkan pada katalis tak tereduksi 10 % .

Pola difraksi sinar-X untuk katalis hasil impregnasi menunjukkan bahwa prekursor telah terdispersi pada pengemban alumina. Hal tersebut didasari munculnya puncak pada difraktogram senyawa kristalin $(\text{NH}_4)_2[\text{Pd}(\text{C}_2\text{O}_4)_2]$ yang telah terdispersi pada pengemban karena selalu muncul puncak disekitar $66,9^\circ$ dan $25,4^\circ$ dengan $d = 1,39 \text{ \AA}$ dan $3,49 \text{ \AA}$ yang merupakan karakteristik alumina (Herdianita, *et al.* 1999 : 41).

Katalis teremban alumina dan karbon yang tereduksi terdominasi oleh bentuk logamnya, yaitu Pd (111), Pd (200), dan Pd (220) pada kedudukan 2θ di sekitar: 39° ; 46° ; dan 67° , sesuai dengan kartu JCPDS no. 37-0643, dan terbentuk sedikit spesi PdO (200) dan PdO (210) pada kedudukan 2θ : 60° dan 68° , sesuai dengan penelitian Waser *et al.* (1953 :)

Karakterisasi Katalis Pd-PdO teremban dengan FTIR

Katalis Pd-PdO teremban dipreparasi dengan menggunakan impregnasi basah melalui perendaman dengan bahan pengemban dalam larutan prekursor $(\text{NH}_4)_2[\text{Pd}(\text{C}_2\text{O}_4)_2]$. Hasil impregnasi berupa kristal warna kuning. Secara ringkas informasi spektrum IR oleh tiap gugus fungsi diperlihatkan pada Tabel 4.

Tabel 4. Informasi spektrum IR katalis hasil impregnasi dan kalsinasi

Vibrasi	Bilangan Gelombang (cm^{-1})	
	Pd-PdO/C	Pd-PdO/ Al_2O_3
—O—H	3420,1544	3442,7 ; 1629,7
—N—H		3328,9, 1317
—C=O	1636	1718,5
Al-O	--	1118,6
-C-	1213	--
—O—C=O	482	518,8
+ Pd—O—		

(Fujita, F., *et al.* 1962: 324)

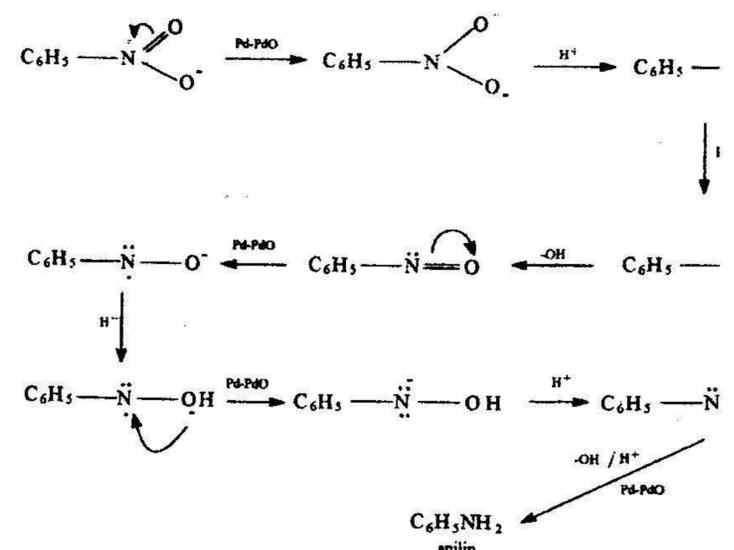
Spektrum IR untuk katalis terimpregnasi maupun tereduksi, baik yang teremban alumina maupun karbon tidak menunjukkan perbedaan yang berarti pada bilangan gelombang gugus fungsi. Hasil karakterisasi menggunakan IR diidentifikasi secara kualitatif dengan membandingkannya dengan pola IR dan difraksi sinar-X dari pengemban. Penggunaan IR untuk karakterisasi

sangat terbatas dan tidak dapat memberikan informasi detail, terutama untuk ikatan logam-ligan. Hal tersebut berkaitan dengan keterbatasan alat, dimana hanya dapat merekam spektrum pada kisaran bilangan gelombang 400 cm^{-1} sampai 4000 cm^{-1} , sedangkan informasi tentang struktur dan ikatan yang berwujud vibrasi logam-ligan terjadi pada kisaran bilangan gelombang antara 200 cm^{-1} sampai 400 cm^{-1} .

Aktivitas Katalis dalam Reaksi Hidrogenasi Nitrobenzena

Reaksi hidrogenasi dilakukan pada 5% nitrobenzen dalam pelarut isopropanol, dengan volume 10 mL dan katalis 0,1 gram. Pada temperatur kamar gas hidrogen dialirkan dengan kecepatan 1 mL/menit disertai pengadukan dengan kecepatan maksimal.

Reaksi hidrogenasi nitrobenzena menghasilkan produk utama anilin dan produk samping (konversi). Reaksi yang terjadi adalah sebagai berikut :



Setiap zat memiliki waktu retensi yang berbeda, sehingga secara kualitatif dengan menggunakan GC dapat diperlihatkan antara produk hidrogenasi dan pereaksinya. Hidrogenasi nitrobenzena dimaksudkan untuk menghasilkan anilin, akan tetapi tidak menutup kemungkinan terjadinya produk antara yang cukup stabil pada pelarut isopropanol. Tabel. 5 memperlihatkan waktu retensi yang diperoleh dari kromatografi GC.

Tabel. 5 Waktu retensi dari zat-zat standar

Nama senyawa	Waktu retensi (menit)
Isopropil alkohol	2,3-3,8
Nitrobenzen	7,1-9,8
Anilin	5,3-7,8

Perbedaan waktu retensi yang terjadi adalah dikarenakan selisih waktu pengukuran. Pembentukan zat antara pada reaksi hidrogenasi nitrobenzena diperlihatkan oleh reaksi berikut : (Finar : 2002)

Profil GC hasil reaksi hidrogenasi katalitik oleh katalis hasil preparasi menunjukkan kecenderungan kenaikan produk untuk setiap kenaikan waktu. Menurut Endang W *et al.* (2004: 23) hasil hidrogenasi benar-benar disebabkan oleh katalis hasil preparasi baik dalam bentuk oksida paladium maupun logamnya. Konsentrasi hasil reaksi adalah sebanding dengan persen area yang terdeteksi pada GC yang disajikan dalam bentuk tabel yang dapat dilihat secara terinci dalam Tabel 6 untuk katalis tereduksi dan Tabel.7 untuk katalis tak tereduksi. Proses hidrogenasi dilakukan selama 3 jam.

Tabel 6. Aktivitas katalis tereduksi tiap waktu

Waktu Reaksi (jam)	Hasil (% area)		Aktivitas (%)	
	Katalis teremban pada			
	Al ₂ O ₃	C	Al ₂ O ₃	C
0,5	0	0,25	0	7,68
1	0	1,17	0	35,46
1,5	0,86	7,49	21,33	69,80
2	1,53	2,32	66,52	100
3	2,48	--	100	--

Tabel 7. Aktivitas katalis tak tereduksi tiap waktu

Waktu Reaksi (jam)	Hasil (% area)		Aktivitas (%)	
	Katalis teremban pada			
	Al ₂ O ₃	C	Al ₂ O ₃	C
0,5	0,54	0,21	0,20	0,32
1	1,59	10,8	81,95	21,28
1,5	3,21	32,81	100	56,71
2	2,37	55,63	100	100

Tabel 6. memperlihatkan bahwa reaksi hidrogenasi berlangsung sempurna setelah 2 jam untuk yang menggunakan katalis teremban pada karbon tereduksi. Sedangkan

untuk reaksi hidrogenasi menggunakan pengemban silika konversi berjalan sempurna setelah 3 jam. Dengan kata lain katalis Pd-PdO/C tereduksi mempunyai aktivitas lebih tinggi dibandingkan dengan katalis Pd-PdO/Al₂O₃ reduksi. Sebaliknya dari Tabel.7 terlihat bahwa aktivitas katalis Pd-PdO/Al₂O₃ tak tereduksi lebih besar dibandingkan Pd-PdO/C tak tereduksi. Untuk katalis Pd-PdO/C tereduksi maupun tak tereduksi ternyata tidak ada perbedaan aktivitas, reaksi berjalan sempurna untuk waktu 2 jam. Namun untuk katalis Pd-PdO/Al₂O₃ proses reduksi berpengaruh terhadap aktivitas katalis. Ternyata tanpa reduksi aktivitas katalis Pd-PdO/Al₂O₃ lebih besar dibandingkan yang tereduksi.

Tanpa reduksi, pengembanan katalis Pd-PdO pada alumina ternyata lebih menguntungkan dibandingkan dengan pengembanan pada karbon. Alumina mempunyai situs asam Lewis yaitu aluminium terkoordinat dan sekaligus situs basa berupa atom oksigen bermuatan negatif, kemungkinan salah satu situs ini terikat dengan Pd dan situs yang lain tetap terbuka, sehingga keaktifan katalis Pd-PdO/Al₂O₃ menjadi lebih besar. Proses reduksi kemungkinan mengubah posisi atau jumlah situs aktif pengemban, sehingga menyebabkan proses katalitik menjadi lebih lambat. Berbeda dengan karbon, karbon merupakan pengemban yang netral atau tanpa situs aktif, meskipun mempunyai pori antar lapis yang cukup luas. Sehingga baik melalui reduksi maupun tidak kemampuan katalitik Pd-PdO/C tidak berubah. Hidrogen yang digunakan dalam proses hidrogenasi akan terjebak dalam pori dan keluar pada saat proses katalitik berlangsung.

Kemungkinan yang lain adalah PdO juga merupakan katalis hidrogenasi yang kuat. Hal ini didukung dengan pengamatan terhadap katalis yang teremban pada karbon ternyata proses reduksi relatif tidak mempengaruhi reaksi hidrogenasi, hasil yang diberikan relatif hampir sama. Namun jika mengamati

proses hidrogenasi tiap waktu, maka nampaknya pada tahap pertama logam Pd akan memulai reaksi terlebih dahulu, kemudian diikuti oleh PdO sebagai katalis. Argumen ini tentu saja masih perlu ditindak lanjuti dengan penelitian yang lebih khusus.

Proses hidrogenasi terjadi melalui dua proses, yaitu fisorpsi dan kimisorpsi. Proses fisorpsi sangat bergantung pada energi aktivasi awal. Pengadukan dengan kecepatan maksimal dilakukan supaya fase gas hidrogen lebih mudah bereaksi dengan fase cair (Triyono; 2002), setelah itu proses kimisorpsi bekerja memecah ikatan dan membentuk ikatan baru.

Khusus untuk proses kimisorpsi bentuk logam dari katalis akan sangat menentukan. Orbital kosong dari logam dapat memfasilitasi terjadinya pemutusan dan pembentukan ikatan baru, terutama dengan atom H dari gas hidrogen. Atom H akan berjalan menuju pusat aktif pada logam melalui mekanisme *spill over* (Gadgil, *et al.* 1994 :309 dan Kulshrestha, S.K. and Sasikala, R., 1994: 118).

SIMPULAN

Hasil penelitian memperlihatkan bahwa Pd-PdO/C tereduksi mempunyai aktivitas katalitik untuk reaksi hidrogenasi nitrobenzena lebih besar daripada yang teremban pada alumina tereduksi. Sebaliknya aktivitas Pd-PdO/ Al₂O₃ tak tereduksi lebih besar dibandingkan Pd-PdO/C tak tereduksi. Aktivitas 100 % tercapai untuk katalis Pd-PdO/C tereduksi setelah 2 jam dan Pd-PdO/ Al₂O₃ tak tereduksi setelah 1,5 jam. Bila dilihat dari hasil secara keseluruhan aktivitas Pd-PdO/ Al₂O₃ tak tereduksi adalah yang paling besar.

DAFTAR PUSTAKA

- Au-Yeung, J., Bell, A.T., & Iglesia, E. (1999). The dynamics of oxygen exchange with zirconia-supported PdO. *Journal of Catalyst*. 185, 213-218.
- Blokhin, A.I., Solov'ev L. A., Blokhina M.L., Yakimov I.S., & Kirik S.D. (1995). Preparation, structure, and thermal properties of Na₂[Pd(C₂O₄)₂].2H₂O. *Russian Journal of Inorganic Chemistry*. 40, 1241.
- Campbell, I. M. (1988). *Catalyst at surfaces*. London: Chapman and Hall.
- Darsi Setyowati (2001). Mempelajari pengaruh pelarut dalam preparasi dan karakterisasi katalis Ni/ γ - alumina untuk konversi benzena. . *Thesis*. S₂ Yogyakarta: FMIPA UGM.
- Endang W, AK Prodjosantoso, Karim Th. (2004), Aktivitas Pd-PdO teremban silika dan karbon sebagai katalis reaksi hidrogenasi nitrobenzena. *Prosiding SemNas Penelitian, Pendidikan dan Penerapan MIPA*, Yogyakarta
- Finar, I.L. (2002). *Chemistry Vol. I: the fundamental principles. Sixth Edition*. London.
- Fujita, F., Martell, A.E., & Nakamoto, K. (1962). Infrared spectra of metal chelate compounds. vi. a normal coordinate treatment of oxalato metal complexes. *The Journal Chemical Physics*. 36, 324.
- Gadgil, M.M., Sasikala, R. & Kukhreshtha, S.K. (1994). CO Oxidation over Pd/SnO₂ catalyst. *J. Molec. Catal.* 87, 297-310.
- Hartley, F.R. (1991). *Chemistry of the platinum group metals*. Amsterdam: Elsevier.
- Herdianita, N.R., Ong H.L., Subroto, E.A., & Priadi, B. (1999). Pengukuran kristalinitas silika menggunakan metode difraktometer sinar-X. *Prosiding* . ITB, 31 : 41.
- Ivanov-Emin, B.N. (1974). Preparation and physicochemical properties of sodium tetrahydroxopalladate(ii). *russian Journal of Inorganic Chemistry*. 19, 1026.

- Kulshrestha, S.K. & Sasikala, R. (1994). Pd/SnO₂ and Pt/SnO₂ catalyst : spill over effects. *Indian Journal of Chemistry*. 33A : 115-119.
- Paulis, M., Peyrard, H., dan Montes, M., (2001). Influence of chlorine on the activity and stability of Pt/Al₂O₃ catalysts in the complete oxidation of toluene. *Journal of Catalysts*. 199, 30-40.
- Prodjosantoso, A.K. (1996). The structure and properties of oxalate materials : precursor for catalyst. *Thesis Master of Science* . University of Sidney.
- Tanielyan, A.K. & Augustine, R.L. (1994). Acetoxylation of toluene catalyzed by supported Pd-Sn catalysis. *Journal of Molecular Catalysis*. 87:311-328.
- Triyono. (2002). *Kimia katalis*. Yogyakarta: Jurusan Kimia FMIPA UGM.
- Waser, J., Levy, Henry, A., & Peterson, S.W. (1953). The Structure of PdO. *Jurnal of Cryst*, 6 : 661.