

Studi Pengaruh Rasio Logam Prekursor Mo/Ni terhadap Karakter Keasaman dan Morfologi Katalis K-Ni-Mo/ZAA

Kasimir Sarifudin

Program Studi Pendidikan Kimia, Universitas Nusa Cendana Kupang, Indonesia

*E-mail: kasimir_sarifudin@staf.undana.ac.id

ARTICLE INFO

Article history

Received: Nov 02, 2021

Revised: Nov 20, 2021

Accepted: Dec 14, 2021

Keywords

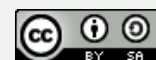
Rasio Mo/Ni, kopresipitasi, keasaman dan morfologi permukaan

ABSTRACT

Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui keasaman dan morfologi karakter katalis K-Ni-Mo/ZAA pada berbagai rasio logam prekursor Mo/Ni. Tahapan penelitian meliputi aktivasi zeolit alam Ende-Flores secara hidrotermal dan aktivasi kimia menggunakan HF, HCl, dan NH₄Cl. Proses sintesis katalis menggunakan metode kopresipitasi. Nikel nitrat heksahidrat dan Amonium molibdat tetrahidrat sebagai prekursor. Sebagai zat pereduksi menggunakan natrium borohidrida. Variasi rasio atom logam prekursor Mo/Ni adalah 0; 0,3; 0,6, 1. Aktivasi katalis melalui proses kalsinasi dalam atmosfer nitrogen. Penentuan keasaman total menggunakan metode gravimetri uap piridin, gugus fungsi diuji menggunakan instrumen FT-IR. Morfologi permukaan katalis dipelajari menggunakan mikroskop elektron transmisi (TEM). Hasil penelitian menunjukkan bahwa dengan memvariasikan rasio logam prekursor Mo/Ni mengakibatkan katalis memiliki keasaman total yang berbeda, pola spektrum FT-IR, dan morfologi permukaan yang berbeda. Keasaman permukaan katalis meningkat dari ZA, ZAA, dan K-Ni/ZAA, kemudian menurun pada rasio 0,3, 0,6, dan 1. Katalis K-Ni/ZAA memiliki keasaman tertinggi. Hasil karakterisasi katalis menggunakan TEM menunjukkan bahwa citra permukaan katalis bervariasi pada berbagai rasio logam prekursor Mo/Ni. Semakin banyak jumlah logam Mo yang terdispersi pada permukaan ZAA, distribusi partikel logam pada permukaan katalis tidak merata, dan munculnya agregasi partikel.

This study intended to determine the acidity and morphology of the K-Ni-Mo/ZAA catalyst characters at different ratios of Mo/Ni precursor metals. The research steps include hydrothermal activation of Ende-Flores natural zeolite, chemical activation using HF, HCl, and NH₄Cl. Catalyst synthesis process using the coprecipitation method. The Nickel nitrate hexahydrate and Ammonium molybdate tetrahydrate as precursors. As a reducing agent using sodium borohydride. The variation of the atomic ratio of the precursor metal Mo/Ni is 0; 0.3; 0.6, 1. Activation of the catalyst through the calcination process in a nitrogen atmosphere. Determination of total acidity using the pyridine vapor gravimetric method, the functional groups tested using the FT-IR instrument. The surface morphology of the catalyst was studied using transmission electron microscopy (TEM). This research showed that the varying ratio of the precursor metal Mo/Ni resulted in the catalyst having different total acidity, FT-IR spectra patterns, and different surface morphology. The surface acidity of the catalyst increased from ZA, ZAA, and K-Ni/ZAA, then decreased at a ratio of 0.3, 0.6, and 1. The K-Ni/ZAA catalyst has the highest acidity. Results of catalysts characterization using TEM showed that the surface image of the catalyst varied at different ratios of Mo/Ni precursor metals. The more amount of Mo metal dispersed on the ZAA surface, the distribution of metal particles on the catalyst surface was not uniformly, and the appearance of particle aggregation.

This is an open access article under the [CC-BY-SA](https://creativecommons.org/licenses/by-sa/4.0/) license.



How to Cite: Sarifudin, K. (2021). Studi pengaruh rasio logam prekursor Mo/Ni terhadap karakter keasaman dan morfologi Katalis K-Ni-Mo/ZAA. *Haumeni Journal of Education*, 1(2), 160-170.

PENDAHULUAN

Katalis heterogen menjadi kebutuhan yang penting dalam berbagai industri. Pada industri minyak bumi, lebih dari 80% produk yang dihasilkan melalui proses menggunakan katalis padat (Fatimah, 2002). Proses kimia yang menggunakan katalis cenderung lebih ekonomis. Katalis yang banyak digunakan secara umum dalam bidang industri adalah katalis dalam bentuk logam-pengemban. Logam pengemban yang digunakan adalah dalam bentuk logam ganda. Penggunaan katalis logam tunggal tidak efisien, karena tidak cukup menyediakan situs asam dan luas permukaan yang sesuai dengan fraksi berat hidrokarbon. Logam bimetal akan saling melengkapi proses katalis (Satterfield, 1990).

Aktivitas katalitik suatu katalis dalam mengkatalisis suatu proses sangat spesifik, tergantung pada karakter katalis itu sendiri. Karakter dan aktivitas katalis logam dapat dipengaruhi oleh jenis dan komposisi pengemban yang digunakan, metode preparasi katalis, jenis dan komposisi logam. Komposisi katalis logam modern biasanya terdiri dari logam aktif, seperti Pt, Pd dan Ni, yang dikombinasikan dengan logam lain yang kurang aktif seperti Ru dan Au. Logam kedua dapat meningkatkan kinerja katalis berupa mempromosikan untuk terjadinya reaksi yang diinginkan, mencegah terjadinya reaksi samping yang tidak diinginkan, atau memperpanjang umur katalis. Adanya logam lain yang secara katalitik tidak aktif (misalnya Ce, Mo, W) yang didispersikan pada permukaan katalis dapat berperan sebagai promotor untuk meningkatkan efektifitas katalis (Braunstein & Rose, 1988). Jenis logam yang biasanya didispersikan pada pengemban γ -alumina untuk digunakan pada industri minyak bumi adalah Ni-Mo dan Ni-Pd (Nomura et al., 1997). Selain γ -alumina sering juga menggunakan zeolit sintesis (Sawa, Niwa & Murakami, 1990).

Jenis bahan yang paling sering digunakan sebagai pengemban katalis logam adalah alumina dan zeolit sintetis, sedangkan zeolit alam sejauh ini belum banyak dikembangkan. Hasil investigasi Dinas Pertambangan dan Energi NTT (1993) tentang pemetaan makro bahan galian golongan C, di kabupaten Ende propinsi NTT terdapat kandungan zeolit alam yang melimpah, lebih dari 5 juta ton, dengan komponen utama zeolit jenis mordenit. Zeolit golongan mordenit mempunyai struktur unit 5-1 dari TO_4 berikatan satu sama lain membentuk deretan rantai yang saling bergabung membentuk dua kanal utama, yang satu membentuk jendela yang dibatasi oleh 12 oksigen satunya lagi membentuk jendela dengan batas 8 oksigen yang dikenal dengan nama cincin 12 (S12R) dan 8 (S8R). Mordenit mempunyai ukuran pori sekitar 7 Å, sehingga cukup besar untuk dimasuki suatu senyawa berukuran sama.

Penggunaan zeolit alam secara langsung tanpa melalui modifikasi atau aktivasi melalui perlakuan-perlakuan tertentu, sangat tidak efektif. Proses aktivasi dengan perlakuan asam seperti HCl dapat meningkatkan keasaman mordenit (Sawa, Niwa & Murakami, 1990), dan menghilangkan pengotor dari kerangka zeolit alam (Trisunaryanti et al., 1996).

Pengaruh rasio logam Ni dan Mo yang didispersikan ke permukaan zeolit alam Ende-Flores menggunakan metode kopresipitasi sejauh ini belum pernah dilakukan. Peluang penggunaan zeolite alam sebagai pendukung katalis logam sangat besar, sehingga kajian pengaruh rasio atom logam Mo/Ni yang didispersikan ke permukaan zeolit alam dipandang perlu. Hasil penelitian Sarifudin, (2009)

menunjukkan bahwa pengaruh perlakuan HF, HCl, NH₄Cl, pada proses modifikasi zeolit alam Ende-Flores (ZAEF) terjadi peningkatan kristalinitas sampai 165,57% dan meningkatkan rasio Si/Al menyebabkan keasaman permukaan yang menggambarkan pusat aktif meningkat.

Menurut Tanabe (1970), keasaman padatan dalam katalis memegang peranan penting pada proses reaksi termasuk perengkahan hidrokarbon, isomerisasi, polimerisasi dan hidrasi olefin. Keasaman merupakan salah satu sifat penting pada suatu padatan yang digunakan sebagai katalis. Beberapa padatan seperti oksida logam, alumina dan zeolit menunjukkan karakter keasaman karena memiliki gugus fungsional permukaan yang spesifik dan terlokalisasi pada bagian-bagian tertentu. Penelitian Trisuaryanti, Triyono & Febrina (2003) menunjukkan bahwa variasi rasio Mo/Ni: 0/1, 1/0, 1/1, 2/1, dan 3/1 masing-masing memberikan pengaruh pada karakter katalis yaitu menurunkan harga luas permukaan spesifik dan volume pori total, dan menaikkan harga rerata jejari pori dan keasaman.

Analisis morfologi permukaan katalis menggunakan TEM bertujuan untuk mendapatkan gambar atau image struktur permukaan padatan katalis pada tingkatan mikro dengan resolusi yang tinggi. Gambar yang didapatkan menunjukkan interaksi antara elektron dengan sampel yang kemudian ditransmisikan dan ditangkap oleh sebuah layar. Hasil penelitian Da Cunha, Sarifudin dan Neolaka (2017) tentang pengaruh rasio atom Ce/Ni terhadap karakter katalis Ni-Ce/ZAAEF yang disintesis menggunakan metode koimpregnasi menunjukkan bahwa dispersi logam Ni dan Ce di permukaan ZAAEF tidak merata. Jumlah atom Ce yang terlalu banyak, rasio atom Ce/Ni tinggi, menyebabkan ukuran agregat partikel logam di permukaan ZAAEF meningkat. Selain itu rasio Ce/Ni tinggi menyebabkan meningkatnya grain size dan tertutupnya pusat aktif asam.

Dalam proses sintesis suatu katalis, untuk menghasilkan katalis yang memiliki karakter yang diinginkan, perlu menggunakan suatu metode yang tepat. Biasanya metode yang digunakan dalam sintesis katalis logam-pengemban adalah impregnasi, presipitasi, sol-gel, physical mixing, *wash-coating*, dan *pelleting*. Metode kopresipitasi merupakan metode yang dipandang efektif dan cukup sederhana bila dibandingkan dengan metode yang lain. Metode ini menghasilkan distribusi ukuran butir yang relatif sama dan dapat dilakukan pada kondisi lingkungan normal. Selain dari itu, keuntungan dari metode kopresipitasi yaitu melibatkan langkah-langkah yang sederhana dan dapat menghemat waktu, komposisi dan ukuran partikel dapat dengan mudah dikontrol, terdapat beberapa kemungkinan untuk memodifikasi keadaan permukaan partikel dan homogenitas secara keseluruhan dan konversi tinggi pada saat uji reaksi dengan biaya produksi yang rendah (Nasikin, Eliyanti & Arto, 2004). Metode kopresipitasi yang diterapkan dalam penelitian ini yaitu mereduksi ion logam Ni dan Mo menggunakan reduktor NaBH₄ sehingga tidak diperlukan lagi proses aktivasi katalis melalui tahap reduksi menggunakan gas hidrogen.

METODE

Penelitian ini merupakan penelitian eksperimental laboratorium, mengkaji kaitan antara rasio atom logam precursor Mo/Ni dengan sifat katalis yang dihasilkan. Dalam penelitian ini sifat katalis yang

dikaji adalah keasaman permukaan, pola spektra FT-IR yang menggambarkan gugus fungsi yang terdapat dalam bahan katalis dan morfologi permukaan katalis yang diperoleh dari hasil uji menggunakan instrumen *Transmission Electron Microscopy*. Data keasaman permukaan katalis merupakan data kuantitatif kemudian diolah menggunakan grafik untuk melihat keterkaitan antara rasio logam prekursor Mo/Ni dengan keasaman total permukaan. Data spektra IR dan morfologi permukaan merupakan data kualitatif berupa gambar kemudian dianalisis secara kualitatif.

Alat dan Bahan

Alat: Alat-alat gelas, termometer, pengayak 140-200 mesh, lumpang porselin dan penggerus, oven (Fisher scientific), furnace kolom (Kasimir Furnice), pengaduk magnet, kertas saring, desikator, timbangan digital (Denver), pompa air, reaktor kalsinasi, neraca analitik, oven vakum (Precision Scientific Inc.), corong buncher, pompa vakum, evaporator (Jencons LTD), Thermocontrol 1200 °C (NUX Hanyoung-HY 2000), termocouple, regulator listrik, flow meter, kawat pemanas nikelin, pipa stainless steel dan valve, selang silikon, Fourier Transform Spectroscopy Infra Red (FT-IR) dan Transmission Electron Microscopy (TEM).

Bahan: Zeolit Alam dari Ende-Flores NTT, NH_4Cl (Merck), $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ (Merck), HF (Merck), HCl (Merck), $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2\cdot 9\text{H}_2\text{O}$ (Merck), NaBH_4 (Merck), isopropil alkohol (Merck), AgNO_3 (Merck), K_2CO_3 (Merck), air bebas ion, Piridin (Merck), Amoniak (Merck), gas nitrogen (Samator gas).

Prosedur Penelitian

Aktivasi Zeolit Alam Ende-Flores

Zeolit alam Ende-Flores NTT disortir, dipilih yang berwarna hijau cerah dan bersih, digerus sampai halus dan diayak hingga lolos ayakan 140-200 mesh, lalu ditimbang sebanyak 1000 gram. Zeolit kemudian diaktivasi secara hydrothermal dengan cara ZAEF tersebut dimasukkan ke dalam pressure cooking dan dicampur dengan air bebas ion. Zeolit tersebut kemudian dipanaskan selama 1 jam sampai mendidih pada suhu 100-110 °C. Kemudian didiamkan selama 24 jam. Selanjutnya disaring, padatan yang diperoleh dipindahkan ke dalam wadah plastik, kemudian ditambahkan air bebas ion hingga mencapai setengah wadah plastik tersebut dan diaduk menggunakan wise stirer selama 1 jam, kemudian disaring. Padatan yang diperoleh dimasukkan ke dalam tabung hydrothermal dan ditambahkan 750 mL air bebas ion, lalu dipanaskan selama 1 jam pada suhu sekitar 150 °C, kemudian didiamkan selama 24 jam. Sampel ZA yang telah didiamkan tersebut dikeluarkan dari dalam tabung dan disaring. Padatan ZA dipindahkan ke dalam wadah plastik dan dicuci berulang kali menggunakan air bebas ion sampai bersih. Selanjutnya dikeringkan dalam oven pada suhu 120 °C selama 6 jam.

Aktivasi Zeolit menggunakan HF, HCl dan NH_4Cl

Sejumlah zeolit alam yang bersih hasil aktivasi secara hydrothermal direndam dalam 2000 mL larutan HF 1 % selama 1 jam sambil diaduk. Selanjutnya sampel tersebut disaring dan ditambahkan air bebas ion dan didiamkan selama 24 jam, kemudian dicuci dengan air bebas ion sampai bersih, lalu dikeringkan dalam oven selama 6 jam pada suhu 120 °C. Zeolit yang telah kering setelah aktivasi dengan

HF kemudian dibagi ke dalam dua beaker glass 1000 mL dan ditambahkan HCl 6 N sampai volume 800 mL, lalu diaduk menggunakan magnetic stirrer selama 1 jam. Setelah itu sampel tersebut disaring dan dicuci menggunakan air bebas ion sampai bersih dan dikeringkan dalam oven pada suhu 120 °C selama 6 jam. Diperoleh sampel zeolit alam setelah aktivasi menggunakan HCl. Masing-masing sample zeolite hasil aktivasi menggunakan HCl ditempatkan dalam beaker glass 1000 mL lalu ditambahkan NH₄Cl 1 N sampai volume 800 mL kemudian diaduk menggunakan magnetic stirrer pada suhu 60 °C selama 6 jam. Kemudian sampel tersebut disaring dan dicuci berulang kali sampai tidak ada ion Cl⁻ yang terdeteksi menggunakan larutan AgNO₃, dikeringkan pada suhu 120 °C selama 6 jam lalu ditimbang. Sampel zeolit tersebut digunakan sebagai pengemban katalis dan diberi nama zeolit alam aktif (ZAA).

Sintesis Katalis K-Ni-Mo/ZAA menggunakan Metode Kopresipitasi

Sebanyak 40gram ZAA dicampur dalam 20 mM larutan Ni (NO₃)₂.9H₂O, 20mM (NH₄)₆Mo₇O₂₄.4H₂O dan 0,1 M K₂CO₃ dalam isopropil alkohol-air (1:3 v/v) kemudian direfluks pada suhu 50 °C selama 6 jam. Suspensi yang terbentuk dipanaskan sampai 80 °C dan pH diatur 8,5 menggunakan larutan 0,5 M Na₂CO₃. Kemudian reduktor Natrium Borohidrat ditambahkan berlebih dan dibiarkan bereaksi selama 2 jam. Suspensi yang diperoleh disaring, dan dikeringkan dengan kondisi vakum pada 90 °C untuk memperoleh padatan katalis yang mengandung total logam Ni dan Mo yang terdeposit sebanyak 2% dari massa ZAA. Komposisi Ni dan Mo divariasi seperti pada tabel 1 dan 2 di bawah ini.

Tabel 1. Variasi Komposisi Ni dan Mo dalam Katalis K-Ni-Mo/ZAA

Deskripsi	Mo : Ni (Rasio Atom)	Nama Katalis
2 wt% Ni	0	Ni/ZAA
1,34 wt% + 0,66 wt% Mo	0,3	Ni-Mo _{0,3} /ZAA
1,009 wt%Ni + 0,991wt% Mo	0,6	Ni-Mo _{0,6} /ZAA
0,759 wt% + 1,241 wt% Mo	1	Ni-Mo ₁ /ZA

Tabel 2. Jumlah logam dan massa prekursor yang digunakan

No.	Nama katalis	Massa Ni (gram)	Massa Mo (gram)	Massa Ni(NO ₃) ₂ .9H ₂ O (gram)	Massa (NH ₄) ₆ Mo ₇ O ₂₄ .4H ₂ O (gram)	Massa total ZAA (gram)
1	Ni/ZAA	0,800	-	4,7002	-	40
2	Ni-Mo _{0,3} /ZAA	0,536	0,264	3,1491	0,4858	40
3	Ni-Mo _{0,6} /ZAA	0,404	0,396	2,3736	0,7287	40
4	Ni-Mo ₁ /ZAA	0,304	0,496	1,7837	0,9127	40

Aktivasi Katalis

Semua katalis K-Ni-Mo/ZAA yang telah disintesis kemudian dimasukkan dalam reaktor dan diaktivasi dengan cara dikalsinasi pada suhu 500 °C sambil dialiri gas nitrogen selama 2 jam.

Karakterisasi Katalis

Penentuan Keasaman Total Permukaan Katalis

Keasaman katalis ditentukan dengan metode gravimetri uap piridin yang teradsorpsi. Mula-mula ditimbang krus porselin kosong, W_0 kemudian diisi dengan 0,1 g katalis dan dipanaskan dalam oven pada suhu 120 °C selama 2 jam. Sampel katalis beserta krus dimasukkan dalam desikator hingga dingin kemudian ditimbang untuk mendapat berat sampel yang sebenarnya, W_1 . Sampel dimasukkan ke dalam desikator kemudian divakumkan. Uap piridin dialirkan ke dalam desikator, proses ini dibiarkan selama 24 jam. Sampel ini diambil dan dibiarkan dalam udara terbuka selama 1 jam untuk menguapkan basa yang tidak teradsorpsi. Krus dan sampel katalis ditimbang sebagai W_2 , kemudian ditentukan berat basa piridin yang teradsorpsi pada katalis. Keasaman katalis, K_{kat} (mmol/gram) dihitung dengan persamaan:

$$K_{kat} = \frac{(W_2 - W_1)1000}{(W_1 - W_0)M_b} \quad (1)$$

K_{kat} adalah keasaman katalis (mmol/gram) dan M_b adalah berat molekul basa.

Analisis Gugus Fungsional dan Morfologi Permukaan

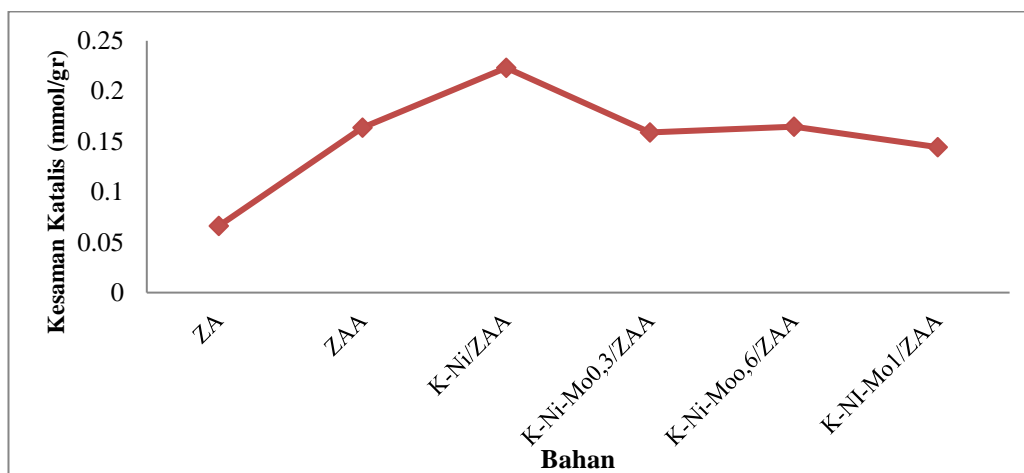
Analisis gugus fungsional yang terdapat dalam bahan katalis menggunakan FT-IR, pola spectra FT-IR yang diperoleh kemudian dianalisis secara kualitatif berdasarkan pita yang muncul pada bilangan gelombang tertentu. Morfologi permukaan katalis dianalisis menggunakan TEM. Gambar TEM yang diperoleh kemudian dianalisis secara kualitatif untuk mengkaji citra permukaan setiap katalis dan membandingkan morfologi berdasarkan rasio Mo/Ni pada saat sintesis katalis.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Aktivasi zeolite alam menggunakan proses hidrotermal yaitu memanaskan zeolite alam dalam medium air pada suhu tinggi dimaksudkan untuk meningkatkan kelarutan pengotor organik dan anorganik yang dapat larut dalam dalam air. Proses hydrothermal akan meningkatkan efektifitas proses aktivasi selanjutnya karena bagian permukaan zeolite yang sebelumnya tertutup oleh pengotor dapat kontak langsung dengan activator HF, HCl dan N_4HCl . Aktivasi menggunakan HF 1% dimaksudkan untuk melarutkan silica dan alumina yang berada di luar kerangka yang menutupi pori-pori pada permukaan katalis. Aktivasi menggunakan HCl bertujuan untuk menukarkan kation Fe^{3+} , Na^+ , Ca^{2+} dan Mg^{2+} yang biasanya terdapat dalam zeolite alam dengan ion H^+ sehingga terbentuk H-ZA. Interaksi antara H-ZA dengan NH_4Cl memungkinkan terikatnya ion ammonium pada permukaan zeolite alam sehingga pada proses pemanasan atau kalsinasi terjadi pelepasan gas NH_3 , sedangkan H^+ tetap terikat pada permukaan zeolite sehingga dapat menciptakan pusat aktif asam.

Uji keasaman permukaan katalis menggunakan metode gravimetri uap piridin. Keasaman katalis yang ditentukan ialah keasaman permukaan yang diperoleh melalui pengukuran jumlah milimol basa piridin yang teradsorpsi pada permukaan katalis, jumlah basa piridin dari fasa gas yang diadsorpsi oleh permukaan katalis ekuivalen dengan jumlah asam pada permukaan katalis yang menyerap basa tersebut. Digunakannya gas piridin karena bersifat basa dan dapat berinteraksi dengan pusat aktif asam dalam

zeolit alam, zeolit alam aktif dan katalis. Ditematkannya logam transisi seperti molibden dan nikel dimaksudkan agar dapat meningkatkan keasaman katalis yang disebabkan adanya orbital *d* yang belum terisi penuh dan bertindak sebagai asam *Lewis*. Katalis dengan keasaman yang besar diharapkan akan memiliki aktivitas dan selektivitas katalitik yang tinggi. Keasaman yang terukur merupakan keasaman permukaan katalis karena ukuran molekul piridin besar sehingga tidak mampu menjangkau pusat aktif asam dalam pori-pori katalis yang berukuran lebih kecil. Pengaruh rasio logam prekursor Mo/Ni dalam katalis K-Ni-Mo/ZAA terhadap keasaman katalis disajikan pada gambar 1 di bawah ini.

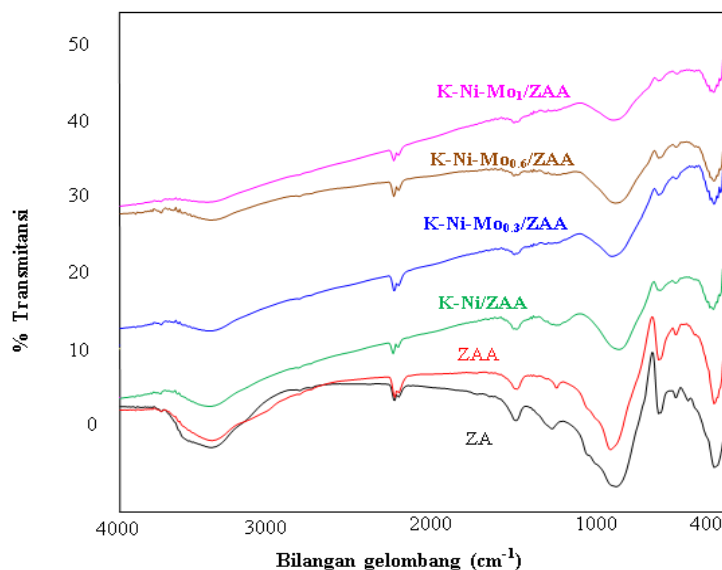


Gambar 1. Grafik pengaruh rasio logam prekursor Mo/Ni terhadap keasaman katalis

Berdasarkan gambar 1 di atas, terlihat bahwa zeolit alam tanpa aktivasi memiliki tingkat keasaman paling rendah yakni 0,0661 mmol/gram. Nilai keasaman yang rendah pada zeolit alam disebabkan oleh masih banyaknya jumlah pengotor yang terkandung dalam kerangka zeolit. Zeolit alam yang telah melewati proses aktivasi secara hidrotermal dan secara kimia menggunakan HF, HCl dan NH_4Cl memiliki tingkat keasaman lebih tinggi dibandingkan zeolit alam. Nilai keasaman ZAA yang lebih tinggi menunjukkan bahwa proses aktivasi yang telah dilakukan berhasil menghilangkan pengotor dan zeolit menjadi lebih bersifat asam.

Keasaman katalis K-Ni/ZAA paling tinggi dibandingkan dengan katalis yang lain, hal ini karena adanya logam Ni pada permukaan ZAA menciptakan pusat aktif asam baru. Katalis dengan rasio 0,3, 0,6 dan 1 memiliki nilai keasaman yang lebih rendah dibandingkan dengan katalis K-Ni/ZAA. Hal ini disebabkan semakin banyak logam Mo yang diimbangkan pada ZAA, kemungkinan untuk menutup pori pada ZAA semakin besar karena ukuran logam Mo yang lebih besar dari Ni. Jumlah logam Mo lebih banyak dapat menutupi pori-pori zeolit sebelum logam Ni terdispersi pada padatan zeolit. Hal ini akan menyebabkan dispersi logam yang rendah dan berpengaruh pada keasaman.

Uji FT-IR dilakukan untuk mengidentifikasi gugus fungsi yang terdapat dalam sampel. Analisis FT-IR dilakukan pada panjang gelombang 4000 - 400 cm^{-1} .

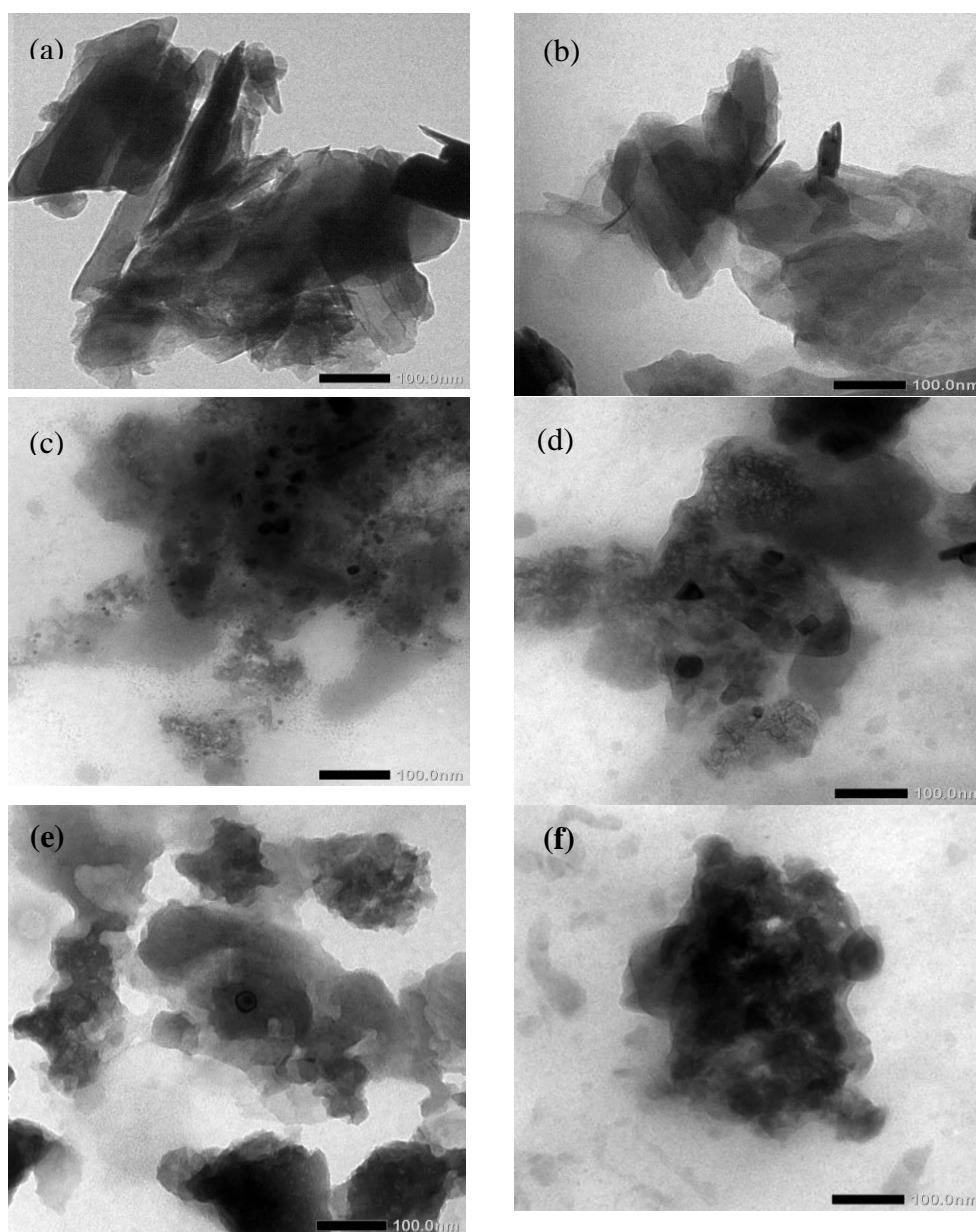


Gambar 2. Perbandingan Spektra IR pada ZAF, ZAAF, K-Ni/ZAA, K-Ni-Mo_{0,3}/ZAA, K-Ni-Mo_{0,6}/ZAA dan K-Ni-Mo₁/ZAA

Berdasarkan gambar 2 di atas, terdapat beberapa perbedaan antara spektra dari keenam bahan. ZA sebelum diaktifasi memiliki bilangan gelombang vibrasi rentangan asimetris 1041,56 cm⁻¹, sedangkan pada kelima sampel lain telah terjadi pergeseran bilangan gelombang akibat berkurangnya atom Al dalam kerangka menjadi Al luar kerangka akibat terjadinya dealuminasi. Hal ini sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Witanto, Trisunaryanti dan Triyono (2010), dealuminasi dapat menyebabkan lepasnya alumina dari struktur kerangka tetrahedral zeolit, sehingga secara kualitatif terjadinya dealuminasi dapat ditentukan dengan mengamati pergeseran bilangan gelombang spektra FT-IR akibat vibrasi rentangan asimetris gugus TO₄ (T = Si atau Al) pada bilangan gelombang 1000-1100 cm⁻¹. Pita ini berhubungan dengan pergerakan dari cincin tetrahedral yang menyebabkan terjadinya pembukaan pori pada zeolit. Semakin banyak jumlah pori yang terbuka maka serapan energi yang dibutuhkan untuk bervibrasi semakin kecil, energi ini berbanding lurus dengan bilangan gelombang. Hasil interpretasi terhadap spektra FT-IR membuktikan bahwa semakin banyak logam yang diimbangkan menimbulkan serapan vibrasi pori terbuka dan mengalami peningkatan intensitas. Keenam spektra menunjukkan adanya kemiripan, yaitu adanya serapan pada daerah yang menunjukkan adanya ikatan T-O, adanya regangan asimetri, adanya regangan simetri, gugus -OH terhidrasi dan adanya pembukaan pori. Dalam keenam spektra yang dihasilkan menunjukkan adanya serapan pada daerah sekitar 500-650 cm⁻¹ yang menunjukkan adanya cincin ganda (Sriatun, 2004). Selain itu dapat dilihat tingkat intensitas karena adanya beberapa gugus fungsi seperti gugus -OH terisolasi, -OH terhidrasi, molekul air terhidrasi, regangan asimetris T-O, regangan simetris T-O, ikatan T-O dan pembukaan pori. Pada sampel ZAF dan ZAAF terlihat tingkat intensitas yang lemah karena puncak pada gugus fungsi tersebut semakin lebar, sedangkan pada keempat sampel katalis dengan variasi logam prekursor Mo/Ni 0; 0,3; 0,6 dan 1 terlihat peningkatan intensitas dikarenakan pita yang semakin tajam. Semakin

tinggi rasio logam maka tingkat intensitasnya semakin tinggi, hal ini menandakan semakin banyak logam yang diimbangkan pada pori zeolit, menyebabkan makin banyaknya gugus fungsi yang timbul sebagai akibat makin banyaknya interaksi antara logam Ni dan Mo pada ZAA.

Analisis morfologi menggunakan TEM dilakukan untuk mendapatkan gambar atau image struktur katalis pada tingkatan mikro dengan resolusi yang tinggi. Hasil foto TEM yang diperoleh ini hanya bagian tertentu saja dari sampel katalis yang secara umum mewakili keseluruhan permukaan sampel katalis. Mikrograf dari zeolit alam, zeolit alam aktif dan katalis K-Ni-Mo/ZAA dengan perbandingan variasi logam prekursor yang berbeda antara logam Co dan Mo disajikan pada gambar 3.



Gambar 3. Foto TEM dengan scale bar 100 nm (a) ZA, (b) ZAA, (c) K-Ni/ZAA, (d) K-Ni-Mo_{0,3}/ZAA, (e) K-Ni-Mo_{0,6}/ZAA, (f) K-Ni-Mo₁/ZAA

Berdasarkan gambar 3(a) yang merupakan mikrograf dari ZA terlihat adanya keteraturan susunan kristal pada zeolit alam yang ditandai dengan warna kelabu hingga kehitaman yang cukup merata.

Gambar 3(b) merupakan mikrograf dari ZAA menunjukkan struktur yang hampir sama namun terlihat adanya bagian yang nampak lebih terang pada sebagian besar permukaan. Hal ini menunjukkan bahwa zat pengotor berupa logam anorganik yang semula terdapat pada permukaan zeolit alam telah berhasil dihilangkan sebagai akibat dari proses aktivasi. Berdasarkan gambar 3(c) terlihat adanya warna kelabu kehitaman yang merata pada permukaan katalis. Hal ini menandakan bahwa logam Ni sudah terdispersi secara baik dalam pori-pori zeolit. Berbeda dengan tiga katalis dengan rasio logam Mo/Ni 0,3; 0,6 dan 1, seperti pada gambar 3(d), 3(e) dan 3(f) tingkat pendispersian logam semakin menurun ditandai dengan penyebaran logam yang diperkirakan logam Ni dan Mo yang tidak merata dan membentuk agregasi partikel. Dapat dilihat bahwa semakin tinggi rasio logam Mo/Ni maka area logam yang terdispersi dengan baik semakin berkurang, sedangkan jumlah logam yang bergerombol semakin banyak. Hal ini sesuai dengan analisis keasaman dimana nilai keasaman tertinggi terdapat pada katalis K-Ni/ZAA, sedangkan pada ketiga rasio lainnya, nilai keasaman menurun.

SIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian yang telah dilakukan dapat disimpulkan bahwa rasio logam prekursor Mo/Ni yang diimbangkan pada ZAA berpengaruh terhadap karakter keasaman katalis, pola spectra FT-IR dan morfologi permukaan katalis. Keasaman permukaan katalis meningkat dari ZA, ZAA, dan K-Ni/ZAA, kemudian menurun pada rasio 0,3, 0,6, dan 1. Katalis K-Ni/ZAA memiliki keasaman tertinggi, disusul katalis K-Ni-Mo_{0,3}/ZAA. Pola spectra FT-IR yang dimiliki masing-masing katalis menunjukkan adanya perubahan regangan vibrasi Si-O atau Al-O, vibrasi simetri O-Si-O dan O-Al-O, pita vibrasi eksternal Si-O dan Al-O, vibrasi asimetri O-Si-O dan O-Al-O, yang menunjukkan pergeseran pori akibat adanya logam Ni dan Mo serta K. Meningkatnya rasio Mo/Ni menyebabkan berkurangnya intensitas karena adanya vibrasi overlap asimetri dan simetri H-O-H. Citra permukaan katalis bervariasi pada berbagai rasio logam prekursor Mo/Ni. Semakin banyak jumlah logam Mo yang terdispersi pada permukaan ZAA, distribusi partikel logam pada permukaan katalis tidak merata, dan munculnya agregasi partikel.

DAFTAR PUSTAKA

- Braunstein, P., & Rose, J. (1988). *Heterometallic Clusters in Catalysis: Stereochemistry of Organometallic and Inorganic Compounds*, 3. Amsterdam: Elsevier
- Da Cunha, T., Sarifudin, K. & Neolaka, Y.A.B. (2017). Kajian Pengaruh Rasio Atom Ce/Ni Prekursor terhadap Karakter Katalis Ni-Ce/ZAAEF. *Prosiding Seminar Nasional dan Rapat Tahunan MIPANet 2017. Sains untuk Kehidupan*, 449-460. Manado: Universitas Sam Ratulangi
- Dinas Pertambangan dan Energi NTT. (1993). *Laporan Akhir Pemetaan Makro Bahan Galian Golongan C Tahun 1992-1993*. Kupang: Dinas Pertambangan dan Energi NTT
- Fatimah, I. (2002). Optimasi Laju Alir Gas H dan Perbandingan Berat Katalis Terhadap Umpan Serta Kajian Kinetika pada Hydrocracking Isopropil Benzene Menggunakan Katalis Ni/Zeolit Y. *Logika*, 7(8), 40-50
- Nasikin, M., Eliyanti, A. & Arto D. (2004). Karakterisasi Katalis CuO/ZnO/Al₂O₃ dengan Temperature Programmed Desorption (TPD). *Jurnal Teknologi*, 18(2), 120 – 126.
- Nomura, M., Trisunaryanti, W., Shiba, R., Muroi, M., & Miura, M. (1997). Effect of the Addition of light Hydrocarbon Solvent on the Catalytic Hydro-treatment of Petroleum Heavy Fraction,

- Symposia Advenus in Catalyst and Processes for Heavy Oil Conversion. *American Chemical Society*, 42, 355-358
- Sarifudin, K. (2009). Effect of HF, HCl, NH₄Cl Treatments, Impregnation of Ni and Mo Metals towards Crystallinity of Ende-Flores Natural Zeolite. *Media Sains*, 7(2), 12-16.
- Satterfield, C. N. (1990). *Heterogeneous Catalyst in Practice*. Boston: Mc Graw-Hill Book Company
- Sawa, M., Niwa, M. & Murakami, Y. (1990). Relationship between Acid and Framework Aluminium Content in Mordenite. *Zeolites*, 10(6), 532-538.
- Tanabe, K. (1970). *Solid Acid and Bases: Their Catalytic Properties*. Japan: Kodansha Scientific Books
- Trisunaryanti, W., Shiba, R., Miura, M., Nomura, M., Nishiyama, N., & Matsukata, M. (1996). Characterization and Modification of Indonesian Natural Zeolite and Their Properties for Hydrocracking of a Paraffin. *Journal of The Japan Petroleum Institute*, 39(1), 20-25.
- Trisunaryanti, W., Triyono & Febriana, D. (2003). Preparation of Ni-Mo/Mordenite Catalysts Under The Variation of Mo/Ni Ratio and Their Characterizations for Stearic Acid Conversion. *Indonesian Journal of Chemistry*, 3(2), 80-90
- Witanto, E., Trisunaryanti, W. & Triyono (2010). Preparasi dan Karakterisasi Katalis Ni-Mo/Zeolit Alam Aktif. Prosiding Seminar Nasional VI SDM Teknologi Nuklir Yogyakarta.