

PREPARASI, MODIFIKASI DAN KARAKTERISASI KATALIS NI-MO/ZEOLIT ALAM DAN MO-NI/ZEOLIT ALAM

Wega Trisunaryanti, Endang Triwahyuni dan Sri Sudiono

*Department of Chemistry, Faculty of Mathematics and Natural Sciences
Gadjah Mada University*

ABSTRACT

Preparations and modifications of Ni-Mo/natural zeolite and Mo-Ni/natural zeolite catalysts as well as their characterizations had been carried out. The preparations of catalysts were carried out by reacting a natural zeolite produced in Wonosari with the precursor of $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ and $\text{Mo}(\text{NH}_4)_7 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$. The modifications were performed by varying the ratio of Ni/Mo whereas the Mo was previously loaded to the zeolite or Mo/Ni ratio whereas the Ni was previously loaded and the total metal content was 1 wt.% based on the zeolite. The aim of this research for the future is to prepare catalysts with high acidity and crystallinity for the conversion of waste plastics fraction to gasoline fraction ($\text{C}_5\text{-C}_{12}$ hydrocarbons).

The characterization of catalysts included determination of metal content using Atomic Adsorption Analysis (AAS), acidity by adsorption of ammonia or pyridine vapour base method, and crystallinity by X-ray Diffraction (XRD). The treatment of catalysts using Ethylene Diamine Tetra Acetic acid (EDTA) was performed to study the metal distribution on the outer or inner surface of the zeolite.

The characterization results showed that the loading of Ni and Mo to the zeolite produced higher acidity catalysts than those of monometal loaded catalysts. The increase of Ni loaded caused the decrease of catalysts acidity, on the other hand, the increase of Mo loaded caused the increase of catalysts acidity. The metals loaded on the zeolite were distributed inside the pore and at outer surface of the zeolite. For all catalyst samples, the acidities determined using ammonia were higher than those of pyridine, and the acidities determined before the EDTA treatment was lower than those after the treatment. The metals loading on the zeolite did not affect its crystallinity. Metal contents of the zeolite before the EDTA treatment were higher than those after the treatment. The relationship between the metal ratios towards the catalyst acidity was varying. The EDTA treatment to the zeolite sample enhanced the crystallinity of the sample. Catalyst samples produced in this research have high acidities and crystallinities, thus promisingly can be used for conversion process of waste plastics to gasoline fraction.

Keywords : *natural zeolite, acidity, Ni-Mo/natural zeolite, Mo-Ni/natural zeolite, crystallinity, EDTA*

1. PENDAHULUAN

Untuk proses konversi fraksi hidrokarbon rantai panjang, poliaromatik maupun polimer, dibutuhkan katalis perengkah yang merupakan katalis heterogen (padatan). Salah satu jenis katalis untuk proses tersebut adalah *metal supported catalyst* yang terdiri dari logam yang diembankan pada pengemban padat seperti silika-alumina, alumina dan zeolit. Zeolit merupakan mineral yang tersusun dari kerangka silika-alumina tetrahedral secara tiga dimensi. Salah satu jenis zeolit yang biasa digunakan sebagai pengemban adalah mordenit. Penulis telah melakukan penelitian terhadap zeolit alam dari Wonosari dan diketahui bahwa zeolit ini merupakan mineral alam dengan komposisi utama mordenit sekitar 70 % [1]. Zeolit alam banyak bercampur dengan materi pengotor (*impurities*) selain zeolit, baik kristalin maupun amorfus [2, 3]. Oleh karena itu, zeolit alam perlu diaktivasi dan dimodifikasi guna meningkatkan karakternya terutama aktivitas katalitiknya. Sebagai katalis, salah satu sifat penting dalam proses konversi sampah plastik menjadi fraksi bensin adalah jumlah situs asam totalnya (keasaman). Keasaman zeolit dapat ditingkatkan dengan cara pengembanan logam-logam transisi yang memiliki orbital *d* belum terisi penuh. Logam-logam ini secara langsung dapat berfungsi sebagai katalis tanpa diembankan terlebih dahulu pada pengemban, tetapi memiliki kelemahan, diantaranya luas permukaan yang relatif kecil, dan selama proses katalitik dapat terjadi penggumpalan [4]. Pengembanan logam-logam tersebut pada zeolit akan mendistribusikannya secara merata pada permukaan pengemban, sehingga menambah luas permukaan spesifik sistem katalis secara keseluruhan. Jenis logam yang biasanya diembankan pada pengemban dan digunakan secara luas pada industri minyak bumi adalah Ni-Mo dan Ni-Pd pada pengemban zeolit-Y [5] atau zeolit sintetis [6]. Sistem katalisnya disebut sebagai katalis *bifunctional*, yaitu melibatkan fungsi logam dan pengembannya sebagai katalis. Logam bimetal yang diembankan masing-masing berperan sebagai katalis (Ni) dan promotor (Mo atau Pd). Katalis seperti ini harganya sangat mahal dan Indonesia sampai saat ini masih mengimpornya dari negara lain. Untuk mengatasi penyediaan katalis yang baik bagi industri pengolahan minyak bumi dan proses-proses konversi lainnya untuk menghasilkan materi baru yang lebih bermanfaat, maka perlu dikembangkan penelitian terhadap preparasi katalis dan modifikasinya. Penulis telah banyak melakukan modifikasi zeolit alam dengan pengembanan logam Ni saja untuk reaksi perengkahan katalitik senyawa hidrokarbondan [2]. demikian pula terhadap zeolit sintetis [3, 7, 8]. Penelitian yang lebih intensif untuk pengembangan metode preparasi dan modifikasi katalis masih perlu dilakukan untuk menghasilkan katalis dari bahan pengemban yang berlimpah di Indonesia (zeolit alam) dan harganya relatif murah.

Berdasarkan latar belakang di atas, pada penelitian awal dilakukan preparasi dan karakterisasi katalis Ni-Mo/zeolit alam dan Mo-Ni/zeolit alam. Modifikasi dilakukan dengan memvariasi jumlah logam yang diembankan di mana Mo diembankan terlebih dahulu untuk katalis Ni-Mo/zeolit alam dan Ni diembankan lebih dulu untuk katalis Mo-Ni/zeolit alam. Jumlah logam total yang diembankan adalah 1% berdasarkan berat zeolit alam. Metode pengembanan

dilakukan dengan mereaksikan zeolit alam dengan larutan garam prekursor Ni dan Mo. Perlakuan sampel padatan dengan larutan Etilen Diamin Tetra Asetat (EDTA) juga dilakukan untuk mengetahui penyebaran logam-logam yang diimbangkan pada bagian luar permukaan dan dalam rongga pengemban [7]. Karakterisasi sampel padatan katalis meliputi penentuan jumlah logam teremban dengan *Atomic Adsorption Spectroscopy* (AAS). Karakter penting lainnya adalah keasaman katalis, ditentukan dengan adsorpsi uap basa amonia dan piridin pada permukaan katalis dengan metode gravimetri. Analisis kristalinitas padatan dilakukan dengan *X-ray Diffraction* (XRD).

Dengan metode preparasi dan modifikasi katalis berbasis zeolit alam Wonosari, Yogyakarta, diharapkan dapat dihasilkan katalis yang memiliki karakter yang baik (keasaman dan kristalinitas yang tepat) dan selektif untuk digunakan sebagai katalis pada proses hidrorengkah (*hydrocracking*) sampah plastik polipropilen menjadi fraksi bensin yang lebih bermanfaat.

2. METODE PENELITIAN

2.1 Bahan dan Alat yang diperlukan

Bahan: zeolit alam Wonosari yang dibeli dari PT. PRIMA ZEOLITA, Yogyakarta, NH_4Cl , HF, HCl (Merck), $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, $\text{Mo}(\text{NH}_4)_7 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ (Merck), larutan NH_3 25%, Na(EDTA), air bebas ion (*deionized water*), gas nitrogen, hidrogen dan oksigen

Alat-alat: alat-alat gelas, thermometer, pengayak 100 mesh, lumpang porselin, oven, furnace (*Thermolyne-Type-21100 Tube-Furnace*), reaktor kalsinasi dan oksidasi dari bahan stainless steel, timbangan elektrik, desikator, AAS, dan XRD.

2.2 Cara Penelitian

2.2.1 Perlakuan awal zeolit alam

Zeolit alam dari Wonosari dibeli dari PT. PRIMA ZEOLITA, Yogyakarta, direndam dalam air bebas ion sambil diaduk dengan pengaduk magnet selama sehari semalam pada temperatur kamar, disaring dan endapan yang diperoleh dikeringkan dalam oven pada temperatur 100°C selama 24 jam.

2.2.2 Aktivasi zeolit dengan perlakuan HF, HCl dan NH_4Cl

Zeolit alam 5 g direndam dalam 100 mL larutan HF 1 % selama 30 menit, kemudian dicuci dengan akuades dan dikeringkan dalam oven pada temperatur 120°C selama 24 jam. Sampel ini direndam ke dalam 125 mL larutan HCl 6N selama 30 menit pada temperatur 50°C sambil diaduk dengan pengaduk magnet, kemudian disaring dan dicuci berulang kali sampai tidak ada ion Cl^- yang terdeteksi oleh larutan AgNO_3 , dikeringkan pada temperatur 130°C selama 3 jam dalam oven. Sampel ini direndam dalam larutan NH_4Cl 1N pada temperatur 90 selama 1minggu sambil diaduk, kemudian disaring, dicuci, dikeringkan seperti prosedur di atas dan dihaluskan dengan ukuran lolos pengayak 100 mesh. Sampel ini digunakan sebagai katalis dan diberi nama zeolit alam aktif (sampel Z).

2.2.3 Sintesis sampel katalis Ni-Mo/Z dan Mo-Ni/Z

Sampel Z direndam dalam larutan $\text{Mo}(\text{NH}_4)_7 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ dan direfluks pada 40°C selama 6 jam, kemudian disaring dan dicuci berulang kali, dikeringkan dalam oven 120°C (diperoleh sampel Mo/Z). Sampel ini direfluks dengan larutan nikel nitrat pada temperatur 90°C dan waktu yang sama, kemudian disaring dan dicuci berulang kali, dikeringkan dalam oven 120°C (diperoleh sampel Ni-Mo/Z). Jumlah logam total awal yang diimbangkan sebesar 1% b/b terhadap berat sampel Z dan rasio Ni/Mo divariasikan. Katalis Mo-Ni/Z dibuat dengan prosedur yang sama dengan katalis Ni-Mo/Z, tetapi logam Ni diimbangkan terlebih dulu.

2.2.4 Kalsinasi, oksidasi dan reduksi sampel katalis

Sampel-sampel katalis yang diperoleh, dimasukkan dalam reaktor, dikalsinasi pada 500°C sambil dialiri gas nitrogen selama 5 jam, dilanjutkan oksidasi dengan aliran gas oksigen dan reduksi dengan gas hidrogen pada temperatur 400°C selama 2 jam. Proses ini dimaksudkan untuk menghilangkan pengotor-pengotor organik dan air sehingga mulut pori zeolit terbuka dan luas permukaan spesifiknya meningkat. Proses reduksi untuk mereduksi logam-logam yang diimbangkan pada zeolit sehingga bermuatan nol.

3. HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN

Dalam penelitian ini telah dilakukan preparasi dan karakterisasi katalis logam bimetal yang diimbangkan dalam rongga zeolit alam. Zeolit alam diambil dari daerah Wonosari, DIY. Logam yang diimbangkan adalah Mo dan Ni. Preparasi dilakukan dengan metode impregnasi garam Mo atau Ni ke dalam rongga zeolit sehingga diperoleh katalis Mo/Z atau Ni/Z. Selanjutnya ke dalam katalis Mo/Z diimpregnasi lagi dengan logam Ni diperoleh katalis Ni-Mo/Z dan ke dalam sampel Ni/Z diimpregnasi kembali logam Mo untuk memperoleh katalis bimetal Mo-Ni/Z.

Untuk setiap jenis katalis dilakukan variasi rasio berat antara kedua logam yang diimbangkan. Untuk mengetahui kualitas bahan-bahan tersebut sebagai katalis telah dilakukan karakterisasi yang meliputi penentuan distribusi logam dalam zeolit, keasaman dan kristalinitas. Hubungan antara variasi rasio berat ke dua logam dalam katalis dengan karakter katalis tersebut dibahas di bawah ini.

3.1 Katalis Ni-Mo/Z

Logam Mo dalam Mo/Z mempunyai fungsi yang sama dengan logam Pd yaitu sebagai kopro-motor dalam proses katalisis. Pengembangan logam Mo ke dalam zeolit bertujuan untuk meningkatkan keasaman zeolit. Namun harga logam Pd lebih mahal daripada logam Mo, sehingga jika pengembangan logam Mo dapat memberikan peningkatan kualitas katalis maka logam Mo dapat dimanfaatkan sebagai pengganti logam Pd yang mahal. Untuk itu telah dilakukan impregnasi logam Mo ke dalam zeolit, kemudian ke dalam Mo/Z diimpregnasikan logam Ni. Telah dikemukakan bahwa kualitas katalis antara lain ditentukan oleh kualitas dispersi logam dalam zeolit, sedangkan kualitas dispersi

dapat dipengaruhi oleh jumlah logam tersebut. Oleh karenanya, telah dilakukan penentuan distribusi logam Ni dengan jumlah Ni bervariasi sedangkan jumlah Mo tetap dan sebaliknya di dalam Ni-Mo/Z. Kajian pengaruh jumlah logam Ni dalam katalis Ni-Mo/Z dan jumlah logam Mo dalam Ni-Mo/Z terhadap karakter katalis juga dilakukan.

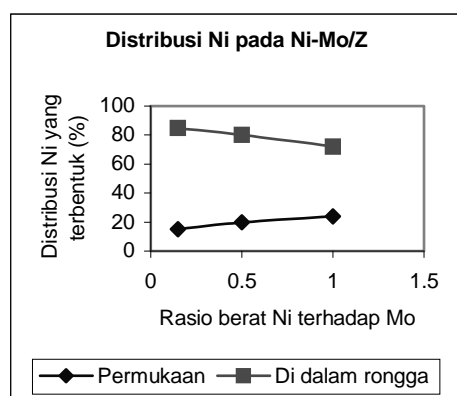
Distribusi logam Ni dalam Ni-Mo/Z dengan jumlah logam Ni yang bervariasi, sedangkan jumlah logam Mo tetap, disajikan dalam Tabel 1 yang juga ditampilkan sebagai kurva sebagaimana terlihat pada Gambar 1. Sementara, Tabel 2 menunjukkan hubungan jumlah logam Mo yang bervariasi dalam Ni-Mo/Z dengan jumlah logam Ni tetap, yang juga disajikan sebagai kurva atau Gambar 2.

Tabel 1. Hubungan jumlah logam Ni dalam Ni-Mo/Z dengan distribusinya

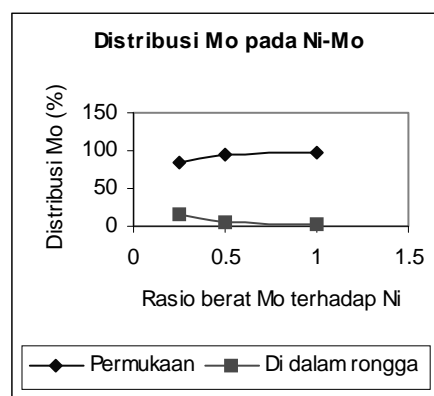
Kode Sampel	Rasio berat Ni/Mo	Distribusi logam Ni dalam Ni-Mo/Z					
		Total		Permukaan		Rongga	
		mg/g	% relatif	mg/g	% relatif	mg/g	% relatif
Ni ₁ -Mo ₀ /Z	0,25 :1	1,544	100	0,232	15,00	1,312	85,00
Ni ₂ -Mo ₀ /Z	0,5 :1	1,773	100	0,3531	19,91	1,42	80,09
Ni ₃ -Mo ₀ /Z	1 :1	3,261	100	0,776	23,80	2,485	71,60

Tabel 2 Hubungan jumlah logam Mo dengan distribusinya dalam Ni-Mo/Z

Kode Sampel	Rasio berat Ni/Mo	Distribusi logam Mo dalam Ni-Pd/Zeolit					
		Total		Permukaan		Rongga	
		mg/g	% relatif	mg/g	% relatif	mg/g	% relatif
Ni-Mo ₁ /Z	1 : 0,25	2,436	100	2,026	83,17	0,410	16,83
Ni-Mo ₂ /Z	1 : 0,5	2,797	100	2,762	98,75	0,035	1,25
Ni-Mo ₃ /Z	1 :1	3,542	100	3,416	96,44	0,126	3,56



Gambar 1. Hubungan jumlah logam Ni dengan distribusinya dalam katalis



Gambar 2 Hubungan jumlah logam Mo dengan distribusinya dalam katalis

Tabel 1 dan 2 serta Gambar 1 dan 2 juga memperlihatkan bahwa Ni dan Mo dalam katalis Ni-Mo/Z selain berada di dalam rongga zeolit juga ada yang menempati permukaan luar. Jumlah logam Ni yang terletak di dalam rongga lebih besar daripada yang berada di permukaan luar. Sebaliknya, jumlah logam Mo yang mengisi rongga zeolit lebih sedikit daripada yang ada di permukaan luar. Ini karena ukuran logam Mo relatif lebih besar daripada ukuran logam Ni lebih sulit memasuki rongga zeolit. Kenaikkan jumlah Ni maupun jumlah Mo tampak memberikan prosentase jumlah yang di dalam rongga semakin kecil. Semakin banyak logam yang diimpregnasikan maka semakin banyak pula yang tidak tertampung ke dalam zeolit karena melebihi kapasitas zeolit yang terbatas. Hal ini akan memberikan dispersi yang kurang baik, yang akan berpengaruh pada keasamannya.

3.1.1 Pengaruh jumlah logam Ni dan Mo dalam Ni-Mo/Zeolit terhadap keasaman katalis

Pengaruh jumlah logam Ni dalam Ni-Mo/Z maupun pengaruh jumlah logam Mo dalam Ni-Mo/Z terhadap keasaman katalis total, permukaan dan dalam rongga zeolit disajikan dalam Tabel 3. Hubungan antara jumlah logam Ni dan Mo dalam Ni-Mo/zeolit dengan keasaman katalis disajikan dalam Gambar 3 dan 4.

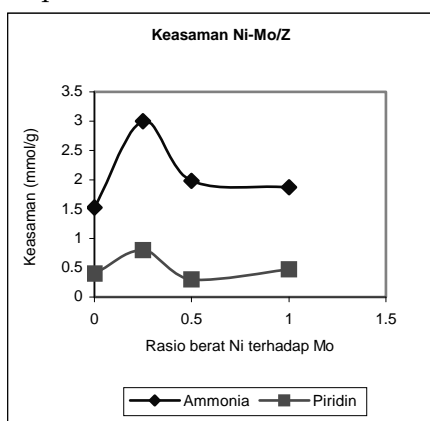
Tabel 3. Hubungan antara jumlah logam Ni dan Mo dalam Ni-Mo/Z terhadap keasaman katalis

Sampel	Rasio Ni/Mo dalam Ni-Mo/Zeolit	Keasaman (mmol/g)		
		Ammonia/ Total	Piridin/ permukaan	Dalam rongga zeolit
Z	0 : 0	0,927	0,266	0,661
Mo/Z	0 : 1	1,530	0,370	4,424
Ni ₁ -Mo/Z	0,25 : 1	3,197	0,443	0,585
Ni ₂ -Mo/Z	0,5 : 1	1,977	0,298	0,631
Ni ₃ -Mo/Z	1 : 1	1,870	0,472	0,410
Ni /Z	1 : 0	1,429	0,314	1,115
Ni-Mo ₁ /Z	1 : 0,5	1,870	0,472	1,398
Ni-Mo ₂ /Z	1 : 0,75	1,836	0,684	1,152
Ni-Mo ₃ /Z	1 : 1	2,728	0,483	2,245

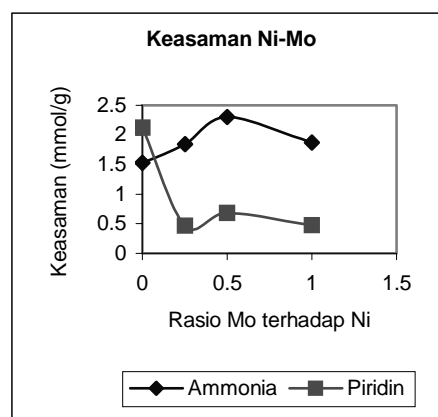
Tabel 4, Gambar 3 dan 4 menunjukkan bahwa pengembanan Mo ke dalam zeolit dapat meningkatkan keasaman baik total, permukaan maupun keasaman di dalam rongga. Hal ini mengindikasikan bahwa logam Mo dapat terdispersi cukup baik di dalam zeolit. Penambahan logam Ni dalam Mo/Z memberikan keasaman

yang lebih tinggi. Semakin banyak jumlah logam Ni dalam katalis Ni-Mo/zeolit, ternyata menyebabkan penurunan keasaman, meskipun masih lebih tinggi daripada sebelum penambahan Ni. Seperti yang telah dikemukakan sebelumnya bahwa, kenaikan jumlah logam Ni meningkatkan jumlah yang ada di permukaan atau yang menutupi rongga zeolit. Akibatnya situs asam yang tertutupi juga semakin banyak.

Sebaliknya, kenaikan jumlah logam Mo ternyata meningkatkan keasaman, meskipun jumlah yang ada di permukaan luar atau menutup rongga semakin banyak. Hal ini karena jumlah Mo yang diimpregnasikan relatif rendah sehingga meskipun jumlah yang ada di permukaan luar juga besar namun dispersinya cukup baik.



Gambar 3. Hubungan antara jumlah logam Ni dalam Ni-Mo/zeolit dengan keasaman katalis



Gambar 4. Hubungan antara jumlah logam Mo dalam Ni-Mo/Z dengan keasaman katalis

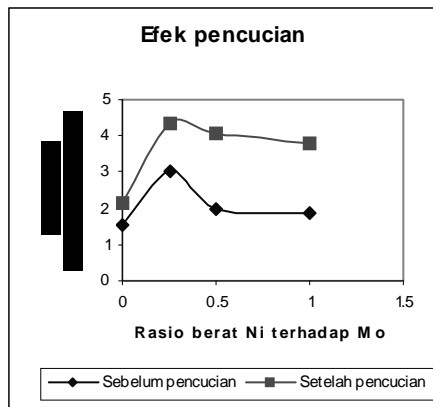
3.1.2 Efek perlakuan EDTA pada Ni-Mo/Z terhadap keasaman katalis

Perlakuan EDTA/pencucian terhadap katalis Ni-Mo/zeolit juga dilakukan dan efeknya terhadap keasaman katalis tersebut juga diamati, seperti yang disajikan dalam Tabel 5.

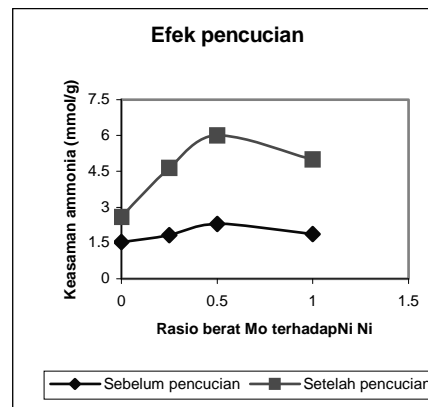
Tabel 5 Efek perlakuan EDTA pada Ni-Mo/Z dengan terhadap keasaman

Rasio Ni/Mo	Keasaman ammonia (mmol/g)		Keasaman piridin (mmol/g)		Keasaman dalam rongga (mmol/g)	
	Sebelum	Setelah	Sebelum	Setelah	Sebelum	Setelah
0 : 0	0,927	-	0,266	-	0,661	-
0 : 1	1,530	2,122	0,370	0,978	1,160	1,144
0,3 : 1	3,197	4,337	0,443	0,666	2,754	3,671
0,6 : 1	1,977	4,077	0,298	1,066	1,679	3,011
1 : 1	1,870	4,653	0,472	0,597	1,398	4,056
1 : 0	1,429	2,594	0,314	0,658	1,115	1,936

1 : 0,5	1,870	4,653	0,472	0,597	1,398	4,056
1 : 0,75	1,836	9,737	0,684	0,668	1,152	9,069
1 : 1	2,728	7,970	0,483	1,075	2,245	6,895



Gambar 5. Efek pencucian Ni dalam Ni-Mo/Z dengan larutan EDTA terhadap keasaman katalis



Gambar 6. Efek pencucian Mo dalam Ni-Mo/zeolit dengan larutan EDTA terhadap keasaman katalis

Fenomena efek pencucian pada katalis Ni-Mo/Z dalam Tabel 5 dan Gambar 5-6 menunjukkan bahwa pencucian dengan EDTA dapat melarutkan logam Ni maupun Mo yang ada di permukaan luar, yang menutupi situs asam pada zeolit.

3.2 Katalis Mo-Ni/zeolit

Katalis ini juga dibuat dengan tujuan untuk melihat efek jika Ni yang berukuran lebih kecil diimbangkan ke dalam zeolit lebih dulu, kemudian diikuti logam Mo. Dalam katalis Mo-Ni/Z ini hanya pengaruh jumlah Ni terhadap distribusi maupun keasaman saja yang dipelajari.

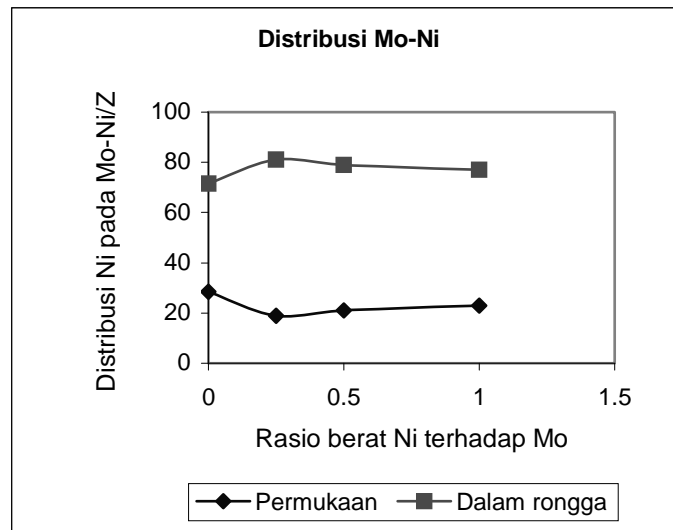
3.2.1 Distribusi Ni dalam Mo-Ni/zeolit

Pengaruh jumlah Ni, dimana jumlah Mo tetap, dalam Mo-Ni/zeolit dengan distribusinya dalam katalis tersebut ditunjukkan oleh Tabel 6. Hubungan jumlah dengan distribusi Ni dalam Mo-Ni/zeolit ditampilkan pada Gambar 7.

Tabel 6. Hubungan jumlah dengan distribusi Ni dalam Mo-Ni/zeolit.

Sampel	Rasio Mo/Ni	Distribusi Ni dalam katalis Mo-Ni/zeolit					
		Total		Permukaan		Di dalam rongga	
		mg/g	%	mg/g	%	mg/g	%
Ni/Z	0:1	4,652	100	1,321	28,40	3,331	71,60
Mo- Ni ₁ /Z	1: 0,25	1,542	100	0,293	19,00	1,249	81,00
Mo- Ni ₂ /Z	1 :0,50	1,771	100	0,123	6,56	1,650	76,20

Mo- Ni ₃ /Z	1 : 1	3,261	100	0,776	23,80	0,776	71,60
------------------------	-------	-------	-----	-------	-------	-------	-------



Gambar 7. Hubungan jumlah dengan distribusi Ni dalam Mo-Ni/zeolit

Data dalam Tabel 6 dan Gambar 7 memperlihatkan kecenderungan yang sama dengan data-data yang telah dikemukakan sebelumnya, yaitu bahwa Ni dalam katalis Mo-Ni/Z selain dapat menempati rongga zeolit juga ada yang berada di permukaan luar. Kenaikkan jumlah Ni memberikan penurunan prosentasi yang ada di dalam rongga.

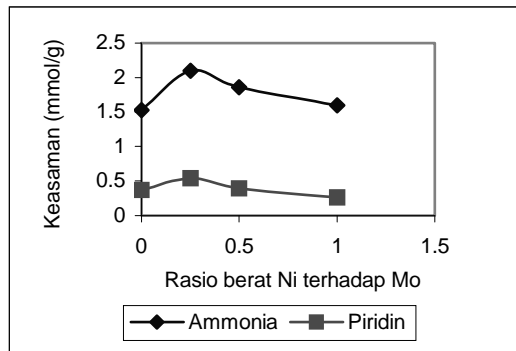
3.2.2 Pengaruh jumlah Ni dalam katalis Mo-Ni/zeolit terhadap keasamannya

Pengaruh jumlah Ni dalam katalis Mo-Ni/Z terhadap keasamannya disajikan dalam Tabel 7 dan Gambar 8. Data dalam Tabel 7 dan Gambar 8 memperlihatkan bahwa kenaikan jumlah Ni menyebabkan penurunan keasaman. Penjelasan serupa dengan yang telah dikemukakan sebelumnya.

Tabel 7. Pengaruh jumlah Ni dalam Mo-Ni/Z terhadap keasaman

Sampel	Rasio Mo/Ni dalam Mo-Ni/Zeolit	Keasaman (mmol/g)		
		Ammonia/ Total	Piridin/ permukaan	Dalam rongga zeolit
Z	-	0,927	0,266	0,661
Mo/Z	1 : 0	1,530	0,370	1,16
Ni ₁ -Mo/Z	1:0,25	2,4	0,54	1,86
Ni ₂ -Mo/Z	1:0,5	1,977	0,39	1,61

Ni ₃ - Mo/Z	1:1	1,60	0,26	1,34
---------------------------	-----	------	------	------



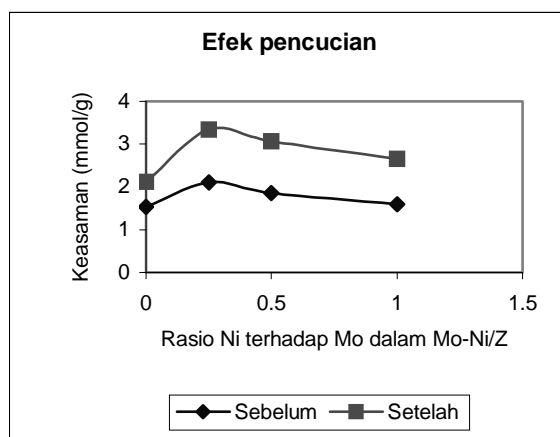
Gambar 8. Pengaruh jumlah Ni dalam Mo-Ni/Z terhadap keasaman katalis

3.2.3 Efek perlakuan EDTA pada Mo-Ni/zeolit terhadap keasamannya

Efek perlakuan EDTA pada katalis Mo-Ni/zeolit terhadap keasaman katalis tersebut telah diamati dan hasilnya disajikan dalam Tabel 8 dan Gambar 9. Dari Tabel 8 dan Gambar 9 dapat dilihat bahwa perlakuan EDTA dapat meningkatkan keasaman, fenomena yang sama dengan katalis yang lain yang telah dikemukakan sebelumnya.

Tabel 8. Pengaruh perlakuan EDTA pada Mo-Ni/Z terhadap keasaman

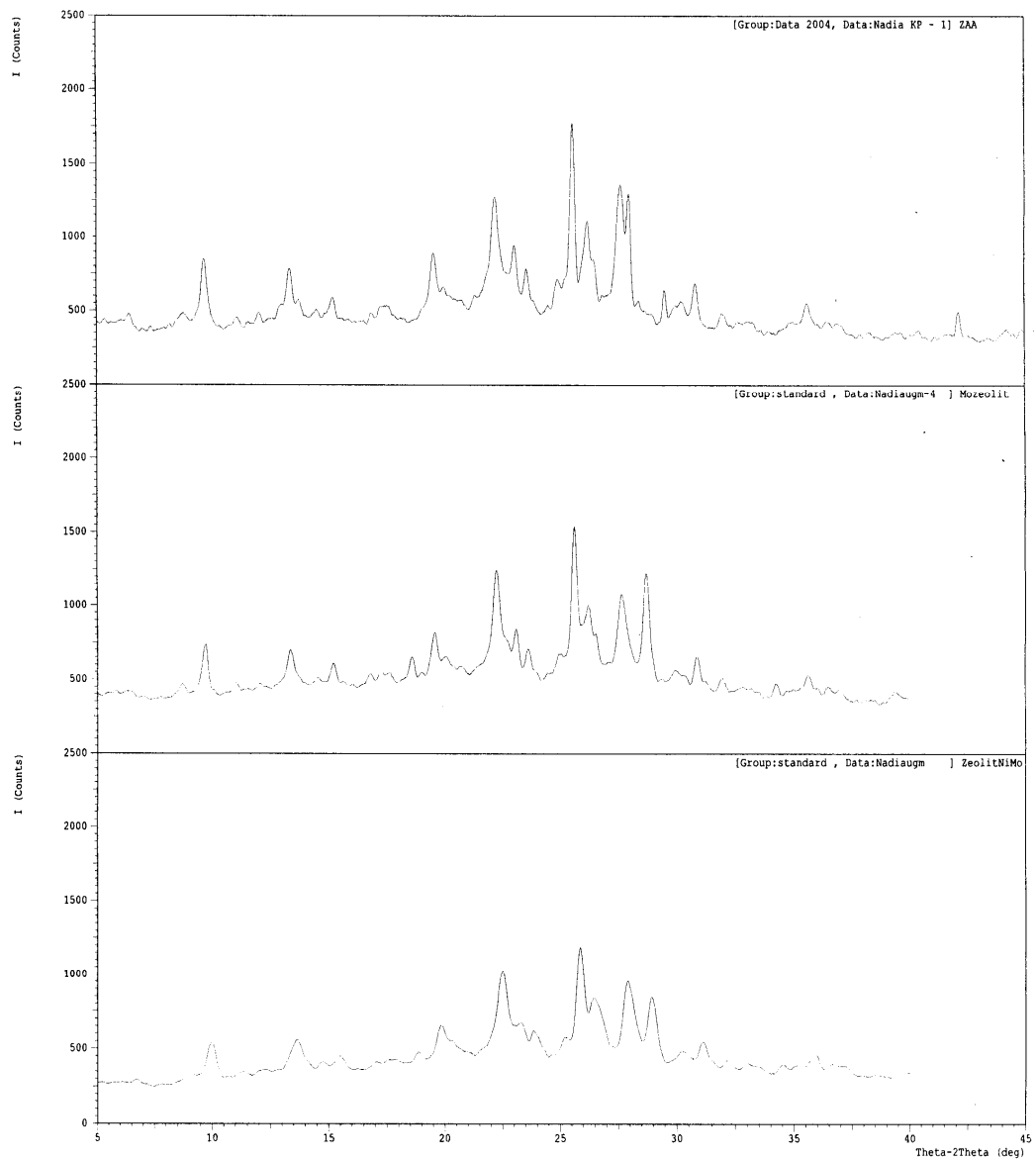
Rasio Ni/Mo	Keasaman ammonia (mmol/g)		Keasaman piridin (mmol/g)	
	Sebelum	Setelah	Sebelum	Setelah
1 : 0	1,530	2,122	0,370	0,478
1: 0,25	2,4	3,337	0,54	0,666
1: 0,5	1,977	3,077	0,39	0,45
1: 1	1,60	2,653	0,26	0,39



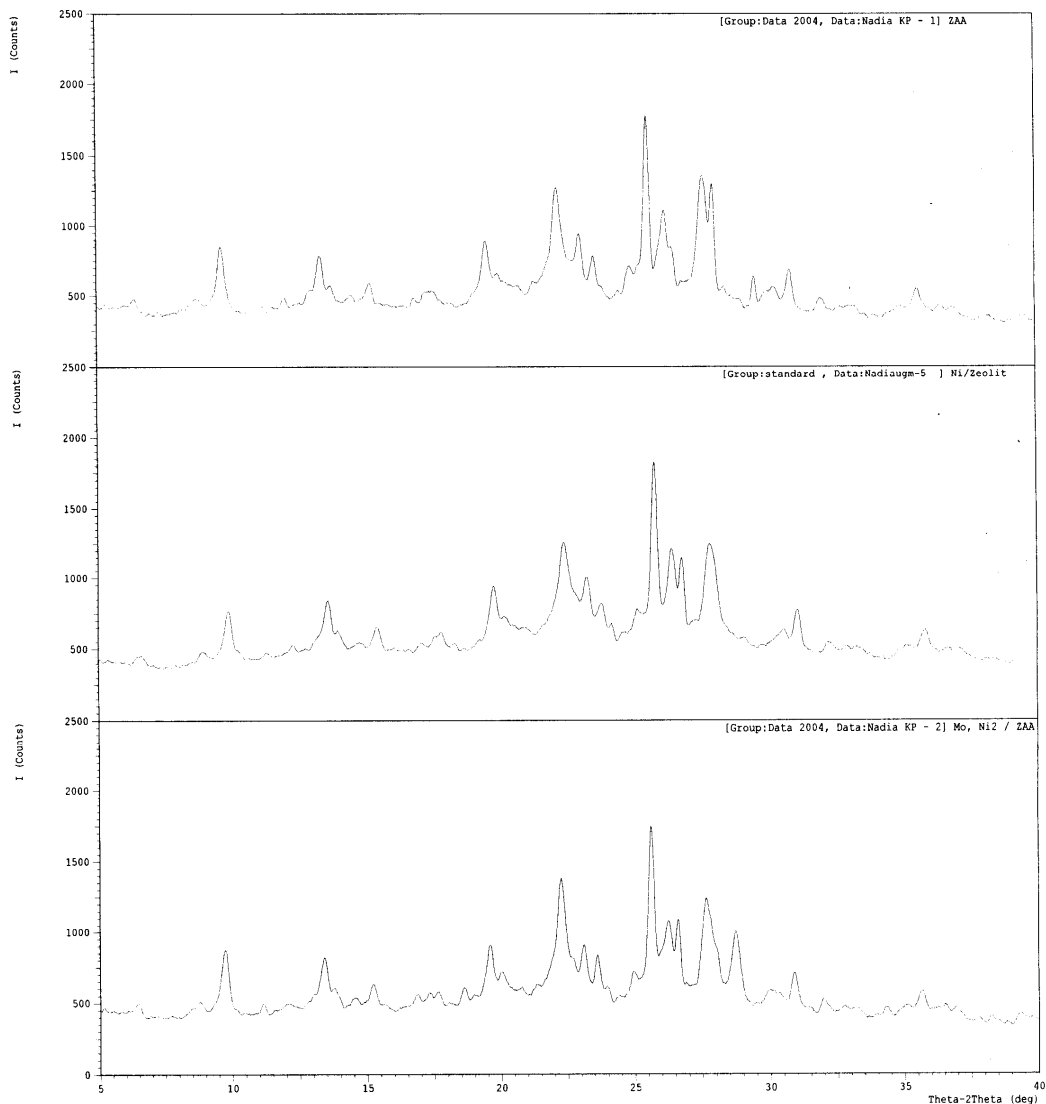
Gambar 9. Pengaruh Ni dalam Mo-Ni/zeolit sebelum dan sesudah perlakuan EDTA terhadap keasaman

3.3 Pengaruh pengembunan logam Ni dan Ni-Mo terhadap kristalinitas

Pengaruh pengembunan logam Ni dan Ni-Mo terhadap kristalinitas sampel katalis sebelum dan setelah perlakuan EDTA diamati dengan XRD, dengan hasil kromatogram seperti ditunjukkan pada Gambar 10 dan 11.



Gambar 10. Pengaruh penambahan Mo dan Ni-Mo terhadap kristalinitas
 (a) sampel Z, (b) sampel Ni/Z, (c) sampel Ni-Mo/Z



Gambar 11. Pengaruh perlakuan sampel Ni-Mo/Z oleh EDTA terhadap kristalinitas (a) sampel Z, (b) sampel Ni/Z, (c) sampel Ni-Mo/Z

Dari gambar 10-11 terlihat bahwa pengembangan logam pada zeolit alam (sampel Z) tidak merusak kristalinitasnya. Setelah perlakuan EDTA ternyata terjadi peningkatan intensitas puncak-puncak utama dan

TEKNOIN, Vol. 10, No. 4, Desember 2005, 269-282 281

penurunan/penghilangan puncak pengotor pada kromatogram, yang berarti terjadi peningkatan kristalinitas sampel. Hal ini membuktikan bahwa perlakuan sampel katalis dengan EDTA dapat menghilangkan fasa amorphus non-framework sehingga karakter kristal lebih murni/lebih menonjol.

4. SIMPULAN

- a. Dalam katalis Ni-Mo/zeolit dan Mo-Ni/zeolit, ditemukan bahwa logam-logam Ni dan Mo terdistribusi di dalam dan luar rongga zeolit..
- b. Katalis Ni-Mo/zeolit maupun Mo-Ni/zeolit mempunyai keasaman yang lebih tinggi daripada katalis logam tunggalnya.
- c. Kenaikkan jumlah Ni dalam Ni-Mo/zeolit maupun Mo-Ni/zeolit menyebabkan terjadinya penurunan keasaman, sebaliknya peningkatan jumlah Mo meningkatkan keasaman katalis.
- d. Pengembangan logam Ni, Mo dan Ni-Mo tidak merusak kristalinitas zeolit, di mana setelah perlakuan EDTA karakter kristal lebih murni.
- e. Nilai keasaman dari semua katalis hasil preparasi menunjukkan bahwa katalis tersebut berkualitas baik, sehingga layak diterapkan untuk proses hidrorengkah.

PUSTAKA

- [1] Trisunaryanti, W., bambang, S., dan Nazarudin (2000) *Determination of an Indonesian natural Zeolite by Acids and Hydrothermal*, Prosiding Seminar Nasional FMIPA-UGM, Yogyakarta
- [2] Trisunaryanti, W., Shiba, R., Miura, M., Nomura, M., Nishiyama, N., dan Matsukata, M. (1996) Characterization and Modification of Indonesian Natural Zeolite and Their properties fo Hydrocracking of a paraffin, *Journal of The Japan Petroleum Institute*, Vol. 39, No.1, 20-25
- [3] Triwahyuni, E. (2000) Synthesis of iron oxide nanoparticles in zeolite structure, 2nd Pasific Basin Conference on Adsorption Science and Technology, Brisbane, Australia
- [4] Augustine, J.R., 1990, *Heterogeneous Catalysis For The Synthetic hemist*, 1st ed., Marcel Decker, Inc., New York
- [5] Miyatani, Y., Yasuda, S., Su, Y., Kaneda, K., Murata, S., dan Nomura, M. (1999) *Hydrocracking of Heavy Petroleum Oils over Transition Metal-loaded Y-Type Zeolites*, *Journal of The Japan Petroleum Institute*, Vo.42, No.4, 246-251
- [6] Sawa, M., Niwa, M. dan Murakami, W. (1990) *Relationship Between Acid Amount and Framwork Aluminum Content in Mordenite*, *ZEOLITES*, Vol. 10, 532-538
- [7] Triwahyuni, E. (2003) *Types and distribution of the iron species formed in the zeolite structure*, 7th Eurasia Chemical Conference, Karachi, Pakistan
- [8] Triwahyuni, E. (2003) *Synthesis of iron oxide photocatalyst in zeolite pores by ion exchange*, *Journal of ion exchange*, 14, Japan Association of Ion Exchange

