



**PENGARUH METODE PENGEMBANAN DAN RASIO PREKURSOR
TERHADAP AKTIVITAS KATALITIK Mo-Ni/ZAA PADA PROSES
HIDRODESULFURISASI TIOFEN**

Skripsi
disajikan sebagai salah satu syarat
untuk memperoleh gelar Sarjana Sains
Program Studi Kimia

PERPUSTAKAAN
UNNES
Oleh

Sovi Nurul Irmawati

4350408020

**JURUSAN KIMIA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG**

2013

PERSETUJUAN PEMBIMBING

Skripsi ini telah disetujui oleh pembimbing untuk diajukan di hadapan sidang Panitia Ujian Skripsi Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Semarang.

Semarang, 13 Februari 2013

Dosen Pembimbing I

Dosen Pembimbing II

Harjito, S.Pd, M.Sc

Drs. Subiyanto Hadisaputro, M.Si

NIP. 197206232005011001

NIP. 195104211975011002

PENGESAHAN

Skripsi yang berjudul

Pengaruh Metode Pengembangan dan Rasio Prekursor Terhadap Aktivitas Katalitik Mo-Ni/ZAA pada Proses Hidrodesulfurisasi Tiofen

disusun oleh

Sovi Nurul Irmawati

4350408020

telah dipertahankan di hadapan Sidang Panitia Ujian Skripsi FMIPA Universitas Negeri Semarang pada tanggal

Panitia:

Ketua

Sekretaris

Prof. Dr. Wiyanto, M.Si.

NIP. 196310121988031001

Dra. Woro Sumarni, M.Si.

NIP. 196507231993032001

Ketua Penguji

Ir. Sri Wahyuni, M.Si.

NIP. 196512281991022001

Anggota Penguji/
Pembimbing Utama

Anggota Penguji/
Pembimbing Pendamping

Harjito, S.Pd, M.Sc

NIP. 197206232005011001

Drs. Subiyanto Hadisaputro, M.Si

NIP. 195104211975011002

PERNYATAAN

Saya menyatakan bahwa skripsi ini bebas plagiat, dan apabila di kemudian hari terbukti terdapat plagiat dalam skripsi ini, maka saya bersedia menerima sanksi sesuai ketentuan peraturan perundang-undangan.



Semarang, 13 Februari 2013

Sovi Nurul Irmawati
4350408020

MOTTO DAN PERSEMBAHAN

MOTTO:

“Berusaha Terus Pantang Menyerah Walaupun Masalah Sulit Diselesaikan”

“Sebuah Kegagalan Menjadikan Pelajaran yang Sangat Berharga Untuk Diri Sendiri”



Skripsi ini kupersembahkan untuk:

Allah SWT Yang Maha Pengasih dan Penyayang

Bapak dan Ibuku tersayang

Adik-adikku di rumah tersayang

Sahabat terbaikku yang selalu memberikan solusi

Teman-teman seperjuangan Kimia Angkatan 2008

Semua orang yang menyayangiku

PRAKATA

Puji syukur kehadiran Allah SWT yang telah melimpahkan rahmat, hidayah, serta karunia-Nya sehingga penulis dapat menyelesaikan penyusunan Skripsi yang berjudul "Pengaruh Metode Pengembanan dan Rasio Prekursor Terhadap Aktivitas Katalitik Mo-Ni/ZAA pada Proses Hidrodesulfurisasi Tiofen". Skripsi ini disusun sebagai syarat untuk mencapai gelar Sarjana Sains Program Studi Kimia di Jurusan Kimia FMIPA Universitas Negeri Semarang.

Dalam penyusunan Skripsi ini, penulis selalu mendapatkan dorongan dan bantuan dari berbagai pihak. Oleh karena itu, dengan terselesaikannya Skripsi ini penulis sampaikan ucapan terima kasih kepada :

1. Rektor Universitas Negeri Semarang.
2. Dekan FMIPA Universitas Negeri Semarang.
3. Ketua Jurusan Kimia FMIPA Universitas Negeri Semarang.
4. Ketua Prodi Kimia FMIPA Universitas Negeri Semarang.
5. Harjito, S.Pd, M.Sc sebagai dosen pembimbing I dan Drs. Subiyanto Hadisaputro, M.Si sebagai dosen pembimbing II yang telah memberikan perhatian, bimbingan, arahan, serta saran kepada penulis selama penyusunan Skripsi.
6. Ir. Sri Wahyuni, M.Si sebagai Penguji yang telah memberikan masukan, arahan, serta saran kepada penulis sehingga dapat menyelesaikan Skripsi ini.

7. Agung Tri Prasetya, S.Si, M.Si sebagai Kepala Laboratorium Kimia Unnes yang telah memberikan izin penelitian.
8. Dosen-dosen Jurusan Kimia FMIPA UNNES atas ilmu yang diberikan selama penulis menempuh studi.
9. Kedua orang tua tersayang atas kasih sayang, nasihat, pengertian, dan motivasi yang diberikan kepada penulis.
10. Teknisi dan Laboran Laboratorium Kimia FMIPA UNNES atas bantuan yang diberikan selama pelaksanaan penelitian.
11. Didy Kurnia Rachman atas do'a, motivasi, nasihat, keceriaan, serta kasih sayang yang diberikan kepada penulis.
12. Sahabat-sahabat terbaikku Puji, Mbak Fitri, Hadad, Brian, Khoirul, Fetty, Riera, Tina, Satrio, Imam atas kebersamaan, dukungan serta motivasinya selama ini.
13. Teman-teman kimia UNNES angkatan 2008 atas kerjasama dan dukungannya.
14. Semua pihak yang tidak dapat penulis sebutkan satu-persatu yang telah membantu dalam penyusunan Skripsi ini.

Semoga Skripsi ini dapat bermanfaat bagi pembaca dan semua pihak yang membutuhkan.

Semarang, 13 Februari 2013

Penulis

ABSTRAK

Irmawati, Sovi N. 2013. Pengaruh Metode Pengembanan dan Rasio Prekursor Terhadap Aktivitas Katalitik Mo-Ni/ZAA pada Proses Hidrodesulfurisasi Tiofen. Skripsi, Jurusan Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Negeri Semarang. Pembimbing Utama Harjito, S.Pd, M.Sc dan Pembimbing Pendamping Drs. Subiyanto Hadisaputro, M.Si.

Kata kunci: Katalis Mo-Ni/ZAA; Hidrodesulfurisasi; Tiofen

Pengaruh metode pengembanan dan rasio prekursor terhadap aktivitas katalitik Mo-Ni/ZAA pada proses hidrodesulfurisasi tiofen telah dipelajari. Penelitian ini bertujuan Mengetahui pengaruh metode pengembanan dan rasio prekursor Mo/Ni katalis Mo-Ni/ZAA terhadap hasil uji aktivitas katalis pada proses hidrodesulfurisasi tiofen. Katalis dipreparasi dengan langkah-langkah meliputi aktivasi perlakuan asam (HF 1%, HCl 6M, dan NH₄Cl 1N), proses kalsinasi, oksidasi, dan reduksi, serta pengembanan logam Mo dan Ni pada zeolit alam aktif (secara koimpregnasi dan impregnasi terpisah). Karakterisasi katalis meliputi penentuan kandungan logam dengan SSA, keasaman dengan metode gravimetri, kristalinitas katalis dengan XRD, dan porositas katalis dengan metode BET. Tiofen:n-Hesan (perbandingan 1:1) diumpankan dalam kolom reaktor *flow fixed bed* yang dioperasikan pada temperatur 350°C, laju alir 40mL/menit selama 1 jam menggunakan katalis Mo-Ni/ZAA Co (1), (2), (3) dan Suk (1), (2), (3). Produk yang dihasilkan dianalisis menggunakan *Gas Chromatography* dan *Gas Chromatography-Mass Spectroscopy*. Hasil analisis menunjukkan tidak ada pengaruh metode pengembanan dan rasio Mo/Ni katalis Mo-Ni/ZAA terhadap hasil uji aktivitas katalis Mo-Ni/ZAA karena % konversi HDS yang diperoleh hampir sama pada masing-masing katalis, sedangkan analisis GC-MS menunjukkan bahwa produk memiliki komposisi senyawa kimia yang terdiri atas 2-propanon, 2-metil pentana, 3-metil pentana, n-heksana, metal-1-siklopentana, dan tiofen.

DAFTAR ISI

	Halaman
HALAMAN JUDUL	i
PERNYATAAN	ii
PERSETUJUAN PEMBIMBING	iii
PENGESAHAN	iv
MOTO DAN PERSEMBAHAN	v
PRAKATA	vi
ABSTRAK	viii
DAFTAR ISI	ix
DAFTAR TABEL	xii
DAFTAR GRAFIK	xiii
DAFTAR GAMBAR	xiv
DAFTAR LAMPIRAN	xv
BAB	
I. PENDAHULUAN	1
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Permasalahan	5
1.3 Tujuan Penelitian	5
1.4 Manfaat Penelitian	6
II. TINJAUAN PUSTAKA	7

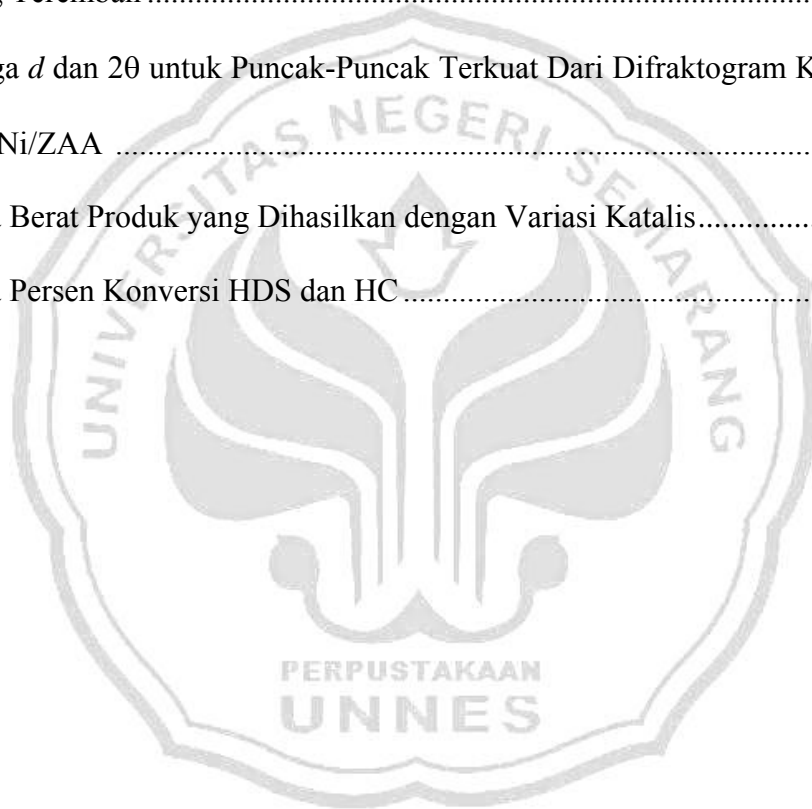
2.1 Tiofen	7
2.2 Hidrodesulfurisasi	9
2.3 Katalis	10
2.3.1 Logam Ni dan Mo	10
2.3.2 Zeolit	13
2.3.3 Metode Pengembangan Mo-Ni/ZAA	16
2.3.4 Variasi Rasio Prekursor Mo/Ni	18
2.4 Penelitian-Penelitian Terkait	20
2.5 Kerangka Berpikir	21
III. METODE PENELITIAN	22
3.1 Lokasi Penelitian	22
3.2 Variabel Penelitian	22
3.2.1 Variabel Bebas	22
3.2.2 Variabel Terikat	22
3.2.3 Variabel Terkendali	23
3.3 Rancangan Penelitian	23
3.3.1 Alat dan Bahan	23
3.3.1.1 Alat Penelitian	23
3.3.1.2 Bahan Penelitian	23
3.3.2 Prosedur Kerja Kerja	24
3.3.2.1 Perlakuan Awal Zeolit Alam	24
3.3.2.2 Aktivasi dengan Perlakuan HF, HCl, dan NH ₄ Cl	24
3.3.2.3 Sintesis Katalis Mo-Ni/ZAA	25
3.3.2.4 Kalsinasi, Oksidasi, dan Reduksi Katalis	26
3.3.2.5 Karakterisasi Katalis	27
3.3.2.6 Uji Aktivitas Katalis	31
IV. HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN	32
4.1 Preparasi Katalis	32
4.1.1 Perlakuan Awal Zeolit Alam	32
4.1.2 Aktivasi Zeolit Alam dengan HF, HCl, Dan NH ₄ Cl	32
4.1.3 Sintesis Katalis Mo-Ni/ZAA	34
4.1.4 Kalsinasi, Oksidasi, dan Reduksi Katalis	35
4.1.5 Karakterisasi Katalis	37

4.1.5.1 Analisis Kandungan Mo dan Ni dalam Katalis Mo-Ni/ZAA	37
4.1.5.2 Keasaman Katalis Mo-Ni/ZAA	39
4.1.5.3 Kristalinitas Katalis Mo-Ni/ZAA	40
4.1.5.4 Luas Permukaan Spesifik, Volume Total Pori, dan Rerata Jejari Pori.....	44
4.2 Uji Aktivitas Katalis	45
V. PENUTUP	51
5.1 Kesimpulan	51
5.2 Saran	52
DAFTAR PUSTAKA	53
LAMPIRAN	55



DAFTAR TABEL

Tabel	Halaman
4.1. Pengaruh Rasio Massa Prekursor Mo/Ni terhadap Rasio Massa Mo/Ni yang Teremban	38
4.2. Harga d dan 2θ untuk Puncak-Puncak Terkuat Dari Difraktogram Katalis Mo-Ni/ZAA	42
4.3. Data Berat Produk yang Dihasilkan dengan Variasi Katalis.....	47
4.4. Data Persen Konversi HDS dan HC	48



DAFTAR GRAFIK

Tabel	Halaman
4.1. Pengaruh metode Pengembanan terhadap Kandungan Logam Mo dan Ni	37
4.2. Keasaman Katalis H-ZAA dan Mo-Ni/ZAA	39
4.3. Hasil Analisis BET Katalis H-ZAA dan Mo-Ni/ZAA	44



DAFTAR GAMBAR

Gambar	Halaman
2.1. Struktur Tiofen	7
2.2. Reaksi Mekanisme HDS Tiofen	8
2.3. Klasifikasi Proses Desulfurisasi dengan Peranan Higrogen.....	9
2.4. <i>Work function</i> (kJ/mol) Logam Transisi sebagai Katalis	13
2.5. (a) Struktur Dasar zeolit (b) Struktur Tiga Dimensi Zeolit	14
2.6. Pembentukan Situs Lewis	15
2.7. Situs Lewis Sebenarnya	15
3.1. Rangkaian Alat Hidrodesulfurisasi Tiofen	31
4.1. Warna Zeolit pada Perendaman HCl 6N	33
4.2. Penguapan Katalis Mo-Ni/ZAA secara Koimpregnasi	35
4.3. Penguapan Katalis Mo-Ni/ZAA secara Impregnasi Terpisah	35
4.4. Perbedaan Warna Katalis Mo-Ni/ZAA yang Diembankan secara Koimpregnasi maupun Impregnasi Terpisah.....	36
4.5. Perbandingan Difraktogram H-ZAA dengan Katalis Mo-Ni/ZAA.....	41
4.6. Senyawa CuS yang terbentuk berwarna hitam	46
4.7. Perbedaan Antara Katalis Awal Dan Kokas	47

DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran	Halaman
1. Diagram Alir Prosedur Penelitian	55
2. Hasil Analisis AAS	60
3. Data dan Perhitungan Keasaman Katalis dengan Basa Amonia.....	61
4. Hasil Analisis XRD H-ZAA dan Mo-Ni/ZAA	62
5. Hasil Analisis BET Katalis H-ZAA dan Mo-Ni/ZAA.....	63
6. Hasil Analisis GC Produk HDS dan HC.....	76
7. Perhitungan % Konversi HDS dan HC.....	93
8. Perhitungan Hasil Uji Signifikasi % Konversi HDS.....	98
9. Hasil Analisis GC-MS Produk HDS.....	99
10. Dokumentasi Penelitian	100

BAB 1

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Minyak bumi merupakan campuran kompleks antara hidrokarbon dan senyawaan organik heteroatom dengan gugus sulfur, oksigen, nitrogen, dan senyawa-senyawa yang mengandung logam terutama nikel, besi, dan tembaga. Senyawa sulfur dalam minyak bumi terdapat dalam bentuk tiofen, fenil merkaptan, dan disulfida. Senyawa-senyawa ini banyak terdapat dalam rantai hidrokarbon panjang atau pada produk distilat pertengahan (*middle distillate*). Senyawa tiofen sering dijumpai dalam bentuk aromatis seperti benzena dengan empat atom C dan satu atom S. Senyawa tiofen merupakan senyawa aromatis paling sederhana diantara senyawa aromatis dengan gugus sulfur lainnya yang terkandung di dalam minyak bumi. Selain itu, senyawa tiofen banyak terdapat di dalam fraksi minyak disel dan FCC (*Fluid Catalytic Cracked*) nafta ringan. Senyawa tiofen kurang reaktif dibandingkan dengan merkaptan dan disulfida sehingga lebih sulit dikonversi dalam proses hidrotreating.

Sulfur dalam senyawa tiofen tidak diinginkan karena dapat menyebabkan korosi pada peralatan proses pengolahan minyak bumi, dapat meracuni katalis dalam proses pengolahan katalitik (deaktivasi katalis), menghasilkan produk samping pembakaran berupa gas buang yang beracun (sulfur dioksida, SO₂), dan menimbulkan

polusi udara serta hujan asam karena itu senyawa sulfur dalam minyak bumi perlu direduksi salah satunya dengan proses hidrosulfurisasi.

Pada proses hidrosulfurisasi, tiofen dikonversi menjadi H_2S dan hidrokarbon jenuh. Senyawa H_2S yang terbentuk akan terencerkan oleh produk samping hidrokarbon ringan karena berwujud gas, sehingga dapat berpisah langsung dari cairan distilat menengah yang diolah dan bisa langsung dikirim ke unit pereduksi H_2S . Pada kondisi yang semakin tinggi, proses hidrosulfurisasi tidak dapat berjalan secara optimum sehingga menyebabkan reaksi samping yang tidak diinginkan. Kondisi ini terjadi jika tekanan hidrogen tinggi, menyebabkan jumlah senyawa olefin yang terbentuk semakin banyak dan menurunnya bilangan oktan. Sedangkan tingginya temperatur, menyebabkan pembentukan kokas semakin meningkat dan terjadi deaktivasi katalis.

Untuk menjaga kondisi proses tetap optimum, maka dibutuhkan katalis yang mempunyai aktivitas baik. Katalis dapat berasal dari logam yang mempunyai fase aktif pada proses hidrosulfurisasi. Logam yang biasa digunakan sebagai katalis merupakan logam dari golongan transisi yaitu Ni, Mo, Co, Ti, Pd, atau Pt. Diantara logam-logam tersebut yang paling baik digunakan dalam proses katalitik yaitu logam Pt dan Pd tetapi harganya relatif mahal sehingga digunakan logam Ni yang harganya lebih murah. Selain itu, logam Ni mempunyai sifat yang hampir mirip dengan logam Pt dan Pd sehingga aktivitasnya sebagai katalis juga baik dalam mengadsorpsi reaktan. Apabila dengan katalis saja belum cukup membentuk interaksi dengan molekul reaktan, maka perlu ditambahkan promotor seperti logam Mo. Logam ini

berfungsi sebagai penstabil dan memperkuat kinerja katalis. Aktivitas dan selektivitas katalis logam akan meningkat jika logam Ni dan Mo dipadukan, tetapi memiliki kelemahan, diantaranya luas permukaan relatif kecil, dan selama proses katalitik dapat terjadi penggumpalan sehingga perlu didispersikan ke dalam suatu bahan pengemban.

Salah satu bahan pengemban yang sudah banyak digunakan adalah zeolit. Menurut Satterfield, sebagaimana dikutip oleh Witanto *et al.* (2010), zeolit mempunyai aktivitas dan stabilitas termal yang tinggi. Zeolit sering digunakan sebagai adsorben, sifat spesifik dari zeolit banyak dimanfaatkan sebagai penukar ion dan dikembangkan sebagai pengemban atau sebagai bahan dasar katalis. Menurut Hegedus, sebagaimana dikutip oleh Witanto *et al.* (2010), logam yang diembankan ke dalam zeolit akan menyebabkan luas permukaan logam relatif besar, yang pada akhirnya akan memperbesar luas kontak antara katalis dan reaktan, sehingga reaksi berjalan cepat.

Katalis logam yang diembankan tersebut dinamakan sebagai katalis sistem logam-pengemban. Penelitian katalis sistem logam-pengemban sudah dilakukan oleh Radionsono (2005), sebagaimana dikutip dalam penelitian Witanto *et al.* (2010). Zeolit alam diaktivasi dengan menggunakan larutan asam HF 1% dan HCl 6 N. Logam Ni dan Mo diimpregnasikan pada zeolit sehingga menghasilkan katalis Ni-Mo/Zeolit. Radionsono juga melakukan variasi Ni/zeolit Nb₂O₅ dan Ni-Mo/zeolit Nb₂O₅.

Penelitian lain juga dilakukan oleh Maryani (2004) dan Yusnani (2008). Logam Ni dan Mo diimbangkan pada zeolit alam aktif maupun zeolit-Y yang sudah diaktivasi secara impregnasi terpisah dan koimpregnasi, ternyata diperoleh karakter katalis terbaik pada impregnasi terpisah dengan mengembangkan logam Ni terlebih dahulu, kemudian diikuti dengan logam Mo. Penelitian Trisunaryanti *et al.* (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. Hasil penelitian Nugrahaningtyas *et al.* (2005) menunjukkan bahwa katalis logam ganda Ni-Mo dengan pengemban zeolit alam terbukti mampu memberikan sifat katalitik terbaik dibandingkan dengan katalis Mo/zeolit alam maupun Ni/Zeolit alam saja. Efek sinergis dari komponen penyusun katalis tersebut mampu menghilangkan sulfur dan nitrogen dalam tir batubara.

Hasil penelitian tersebut dapat disimpulkan bahwa aktivitas katalis sistem logam-pengemban dalam suatu proses dipengaruhi oleh perbandingan prekursor dan metode pengembanan logam yang digunakan. Mengacu pada penelitian tersebut, maka dalam penelitian ini akan dipelajari pengaruh variasi rasio prekursor Mo/Ni pada katalis Mo-Ni/ZAA menggunakan metode impregnasi terpisah maupun koimpregnasi yang digunakan dalam proses hidrodeshidrosulfurisasi tiofen.

1.2 Permasalahan

Berdasarkan uraian latar belakang diatas, maka dirumuskan permasalahan sebagai berikut :

- a. Manakah rasio prekursor Mo/Ni yang mempunyai karakter terbaik pada katalis Mo-Ni/ZAA?
- b. Bagaimanakah perbedaan karakter katalis Mo-Ni/ZAA yang dihasilkan pada metode pengembunan logam Ni dan Mo secara koimpregnasi dan impregnasi terpisah?
- c. Bagaimanakah pengaruh metode pengembunan dan rasio prekursor Mo/Ni katalis Mo-Ni/ZAA terhadap hasil uji aktivitas katalis pada proses hidrodessulfurisasi tiofen?

1.3 Tujuan Penelitian

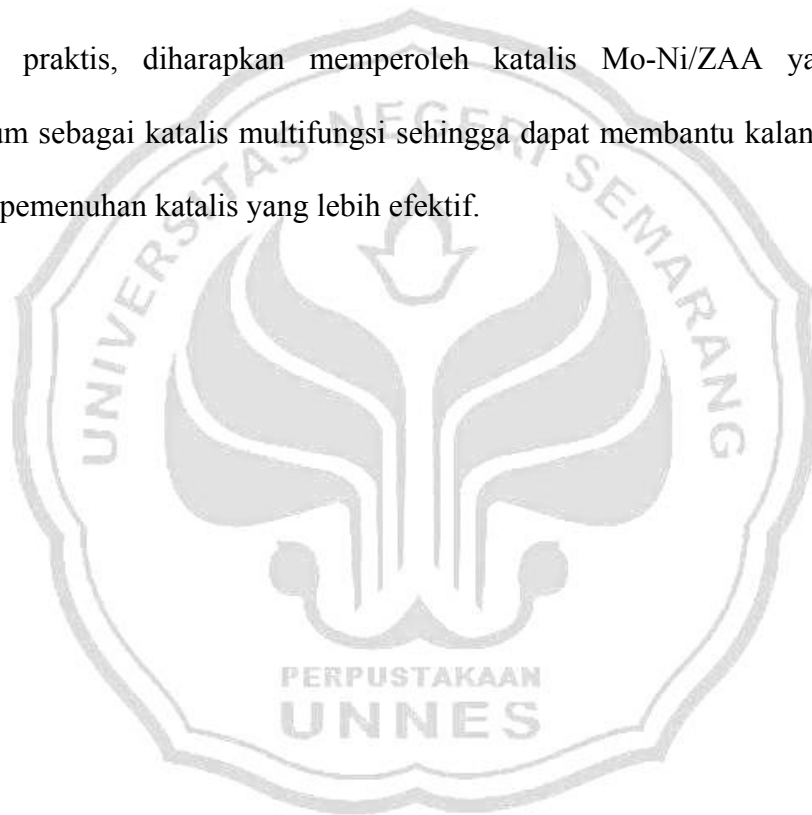
Tujuan yang ingin dicapai dalam penelitian ini, adalah :

- a. Menentukan rasio prekursor Mo/Ni yang mempunyai karakter terbaik pada katalis Mo-Ni/ZAA.
- b. Mengetahui perbedaan karakter katalis Mo-Ni/ZAA yang dihasilkan pada metode pengembunan logam Ni dan Mo secara koimpregnasi dan impregnasi terpisah.
- c. Mengetahui pengaruh metode pengembunan dan rasio prekursor Mo/Ni katalis Mo-Ni/ZAA terhadap hasil uji aktivitas katalis pada proses hidrodessulfurisasi tiofen.

1.4 Manfaat Penelitian

Manfaat yang ingin dicapai dalam penelitian ini, adalah :

- a. Mengetahui pengaruh variasi rasio prekursor Mo/Ni pada katalis Mo-Ni/ZAA menggunakan metode pengembunan secara koimpregnasi dan impregnasi terpisah pada proses hidrodessulfurisasi tiofen.
- b. Secara praktis, diharapkan memperoleh katalis Mo-Ni/ZAA yang bekerja optimum sebagai katalis multifungsi sehingga dapat membantu kalangan industri dalam pemenuhan katalis yang lebih efektif.



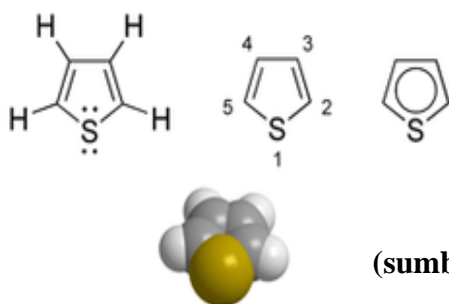
BAB 2

TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Tiofen

Tiofen merupakan senyawa sulfur yang terkandung dalam minyak bumi. Tiofen berupa cairan tidak berwarna, tidak larut dalam air, larut dalam alkohol dan eter, berbau tajam dan sangat mudah terbakar (titik didih:84°C, titik beku:-1°C), merupakan senyawa aromatik heterosiklik terdiri dari empat atom karbon dan satu atom belerang dalam cincin bersegi lima. Uap tiofen yang bercampur dengan udara dapat meledak (batas ledakan, % vol di udara: 1,5-12,5) (Wang *et al.*, 2009).

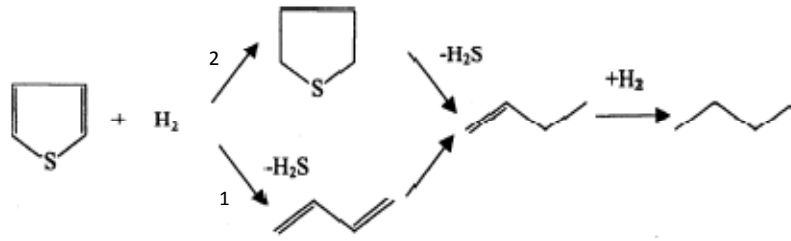
Sifat fisik dari tiofen mirip dengan benzena dan biasanya digunakan untuk sintesis organik. Jika terhirup dalam jangka pendek akan mengakibatkan batuk, pusing, sakit tenggorokan dan mengiritasi mata dan kulit. Tiofen dapat bereaksi keras dengan bahan pengoksidasi, termasuk asam nitrat pekat. Jika tiofen terdekomposisi pada pemanasan dan pembakaran, menghasilkan asap beracun dan membuat perih (terbentuk oksida belerang). Spesies SO_x adalah senyawa yang dihasilkan pada pembakaran tiofen dan langsung mengarah ke hujan asam (Wang *et al.*, 2009).



Gambar 2.1. Struktur Tiofen
(sumber: <http://pl.wikipedia.org/wiki/Tiofen>)

Senyawa tiofen merupakan senyawa aromatis yang paling sederhana diantara senyawa aromatis dengan gugus sulfur lainnya yang terkandung didalam minyak bumi. Selain itu senyawa tiofen banyak terdapat di dalam fraksi minyak disel sebesar 30-50 ppm dan FCC (*Fluid Catalytic Cracked*) nafta ringan. Senyawa tiofen kurang reaktif dibandingkan dengan merkaptan dan disulfide, oleh karena itu lebih sulit dikonversi dalam proses hidrotreating. Senyawa tiofen di dalam bahan bakar dapat menyebabkan korosi pada mesin kendaraan.

Senyawa tiofen sering digunakan sebagai bahan penelitian pada proses hidrodesulfurisasi (HDS). Mekanisme reaksi hidrodesulfurisasi senyawa tiofen berlangsung melalui dua jalur reaksi seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2 dibawah ini:



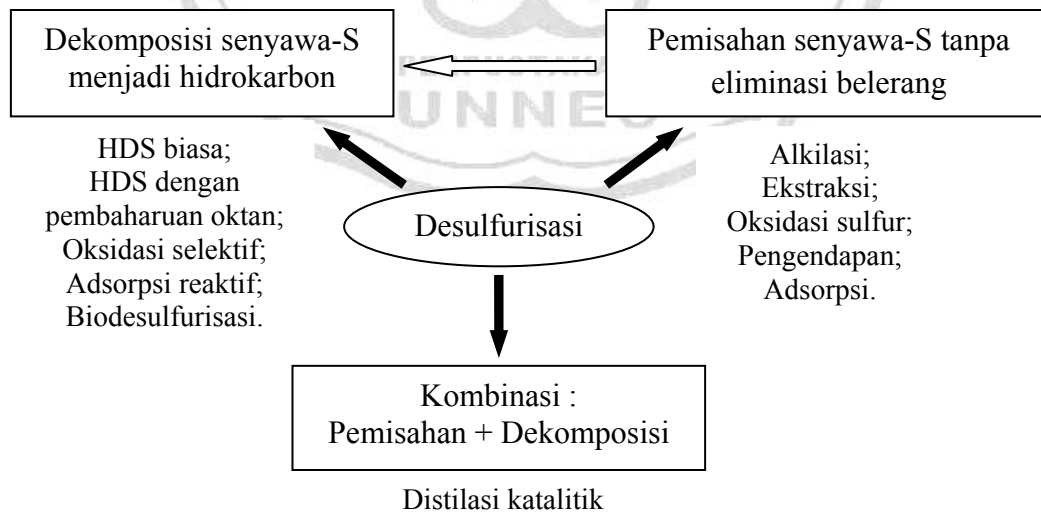
Gambar 2.2. Reaksi Mekanisme HDS Tiofen (Babich *et al.*, 2003)

Pada jalur pertama (*hydrogenolysis*) atom sulfur langsung direduksi dari senyawa membentuk 1,3-butadiena, sedangkan pada jalur yang kedua (hidrogenasi) cincin aromatik terhidrogenasi membentuk tetrahidrotiofen dan kemudian sulfur direduksi. Kedua jalur reaksi tersebut secara parallel menggunakan situs aktif yang berbeda dari permukaan katalis. Jalur pra-reaksi (*hydrogenolysis* dan hidrogenasi) yang mendominasi tergantung pada sifat dari senyawa sulfur, kondisi reaksi, dan katalis yang digunakan (Babich *et al.*, 2003).

2.2 Hidrodesulfurisasi

Baru-baru ini penerapan proses desulfurisasi dievaluasi oleh negara-negara maju dengan mempertimbangkan persyaratan produksi bahan bakar. Efisiensi proses desulfurisasi ini menjadi kunci awal bagi negara-negara maju untuk memproduksi bahan bakar non sulfur dan ramah lingkungan. Ada beberapa pendekatan umum untuk mengklasifikasikan proses desulfurisasi, diantaranya proses desulfurisasi diklasifikasikan secara kimia-fisika. Proses kimia-fisika merupakan proses reduksi senyawa sulfur yang berada dalam senyawa organosulfur dengan peranan hidrogen atau sifat-sifat proses yang digunakan.

Berdasarkan proses kimia-fisika tersebut, proses dapat dibagi menjadi tiga kelompok tergantung pada senyawa sulfur yaitu dapat didekomposisi, dapat terpisah dari aliran kilang minyak tanpa eliminasi, dapat dilakukan dengan cara keduanya (terpisah dan didekomposisi).



Gambar 2.3. Klasifikasi proses desulfurisasi dengan peranan hidrogen (Babich *et al.*, 2003)

Pada proses dekomposisi, terbentuk gas atau padatan produk sulfur dan hidrokarbon yang diperoleh tetap didalam aliran kilang minyak. Secara konvensional contoh khas dari proses ini yaitu Hidrodesulfurisasi (HDS). Pada proses pemisahan sulfur tanpa eliminasi, senyawa organosulfur hanya dipisahkan dari aliran kilang minyak yaitu mengubah senyawa organosulfur ke dalam senyawa lain yang dapat lebih mudah dipisahkan dari aliran kilang minyak. Sedangkan pada proses kombinasi (dekomposisi dan pemisahan), senyawa organosulfur dipisahkan dari aliran kilang minyak dan secara bersamaan didekomposisi didalam reaktor tunggal bukan didalam serangkaian reaksi pada tempat pemisahan. Contoh dalam proses ini yaitu distalasi katalitik (Babich *et al.*, 2003).

Katalitik HDS minyak mentah pada aliran kilang minyak dilakukan pada suhu tinggi dan tekanan parsial hidrogen untuk mengubah senyawa organosulfur menjadi hidrogen sulfida (H_2S) dan hidrokarbon (Babich *et al.*, 2003).

2.3 Katalis

2.3.1 Logam Ni dan Mo

Reduksi senyawa sulfur tiofen yang terkandung di dalam minyak bumi pada proses hidrodesulfurisasi membutuhkan suatu katalis supaya proses pemanasan tidak memerlukan temperatur yang terlalu tinggi dan proses dapat berjalan optimum. Katalis yang digunakan umumnya berasal dari logam transisi.

Ciri-ciri dari logam transisi adalah ketidaklengkapan isi dari orbital-*d* yang dapat menentukan sifat-sifat kimianya. Adanya sifat katalisis logam transisi disebabkan oleh kemudahan terjadinya transisi menghasilkan orbital-*d* kosong dan terjadinya transisi dari orbital *s* ke orbital-*d* yang mengakibatkan adanya elektron pada *s* dan *d* tidak berpasangan sehingga atom dari unsur-unsur transisi dapat membentuk ikatan kovalen (Triyono, 2002).

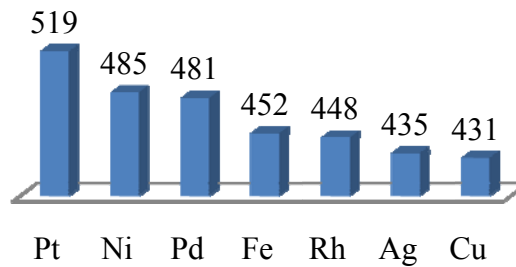
Logam transisi yang sering digunakan dalam proses katalisis antara lain logam Ni dan Mo. Logam Ni dan Mo dalam proses katalisis mempunyai fungsi sangat baik untuk mengatomkan atau mengaktifkan molekul-molekul diatomik atau poliatomik dan kemudian memberikan atom-atom atau molekul-molekul aktif tersebut ke molekul reaktan yang lain (Triyono, 2002).

Nikel (Ni) adalah logam dengan nomor atom 28, berat atom 58,69. Nikel merupakan logam transisi (golongan VIII B) yang mempunyai ciri fisik yaitu warna keperakan atau berupa logam hitam yang piroforik, feromagnetik, larut dalam HNO₃ encer, dan dipasifkan dalam HNO₃ pekat. Logam Ni mempunyai elektron terluar pada orbital-*d* dengan konfigurasi elektron [Ar] 3*d*⁸ 4*s*². Kemampuan logam Ni dalam mengadsorpsi reaktan berkaitan dengan adanya karakteristik orbital-*d* yang memiliki elektron tidak berpasangan sehingga logam Ni biasanya dijadikan sebagai katalis logam. Pada mekanisme reaksi yang menggunakan katalis padatan, terjadi adsorpsi molekul-molekul reaktan pada permukaan padatan logam yang memiliki elektron tidak berpasangan pada orbital-*d* dan merupakan dasar yang tepat dalam reaksi katalitik permukaan logam (Yusnani, 2008).

Selain logam nikel, logam transisi lainnya yang biasa digunakan sebagai katalis adalah Molibdenum (Mo). Logam Mo merupakan unsur transisi golongan VIB yang mempunyai sifat logam relatif inert atau sedikit bereaksi dengan larutan asam dan alkali. Logam Mo mempunyai konfigurasi elektron $[\text{Kr}] 4d^5 5s^1$. Konfigurasi elektron logam Mo menunjukkan adanya orbital-*d* dan orbital-*s* setengah penuh sehingga terdapat elektron-elektron yang belum berpasangan. Logam Mo dapat digunakan untuk mengkatalisis reaksi sintesis ammonia menjadi $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ (Yusnani, 2008).

Selain itu, logam Mo juga dapat digunakan untuk mengkatalisis reaksi hidrogenasi karena logam Mo dapat mengadsorpsi hidrogen. Logam Mo yang digunakan dalam reaksi katalitik umumnya digunakan dalam bentuk logam murni, atau dikombinasikan dengan logam lain dan pengemban. Kombinasi logam yang sering digunakan dalam preparasi katalis adalah dengan logam Ni (Yusnani, 2008).

Dalam kombinasi logam ini, Ni berfungsi sebagai katalis karena sifat katalitik Ni hampir sama dengan Pt walaupun nilai *work function* Ni dibawah Pt sesuai dengan Gambar 2.4., namun Ni memiliki harga jauh lebih murah sehingga logam Ni banyak digunakan untuk *hydrotreating* maupun hidrodessulfurisasi. Sedangkan Mo berfungsi sebagai promotor yaitu meningkatkan kinerja dari katalis Ni dalam proses hidrodessulfurisasi. Logam Ni dan Mo yang diembankan pada zeolit diharapkan akan terdistribusi merata di dalam maupun di luar pori sehingga reaktan yang terdifusi oleh katalis lebih banyak yang berakibat pada peningkatan jumlah produk yang dihasilkan.



Gambar 2.4. Work function (kJ/mol) logam transisi sebagai katalis (Triyono, 2002)

2.3.2 Zeolit

Zeolit alam banyak ditemukan di alam dan bercampur dengan materi pengotor, baik yang bersifat kristalin maupun amorpous. Nama zeolit berasal dari kata “zein” yang berarti mendidih dan “lithos” yang artinya batuan, disebut demikian karena mineral ini mempunyai sifat mendidih atau mengembang apabila dipanaskan. Hal ini menggambarkan perilaku mineral yang dengan cepat melepaskan air bila dipanaskan sehingga kelihatan seolah-olah mendidih. Zeolit merupakan kristal berongga yang terbentuk oleh jaringan silika alumina tetrahedral tiga dimensi dan mempunyai struktur yang relatif teratur dengan rongga yang di dalamnya terisi oleh ion alkali atau alkali tanah sebagai penyeimbang muatannya. Rongga-rongga tersebut merupakan suatu sistem saluran yang didalamnya terisi oleh molekul air (Rini dan Fendi, 2010). Rumus empiris zeolit alam adalah



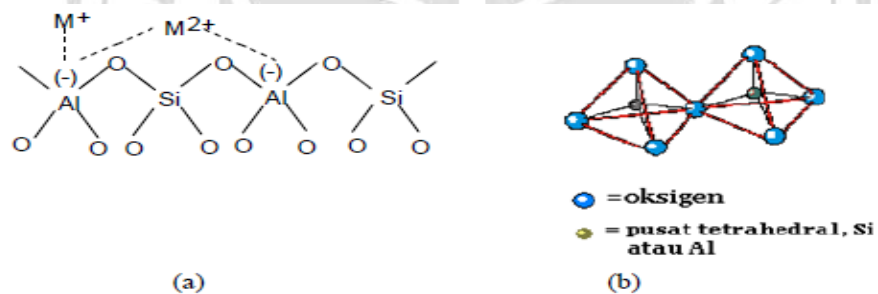
dengan, M = Kation alkali atau alkali tanah

n = Valensi logam alkali

x = Konstanta (2-10)

$$y = \text{Konstanta (2-7)}$$

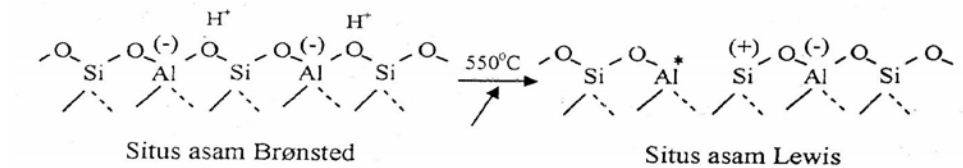
Ion Na^+ dan K^+ merupakan kation yang dapat dipertukarkan, sedangkan kation Al^{3+} dan Si^{2+} merupakan kation yang dengan oksigen akan membentuk struktur tetrahedron pada zeolit. Molekul-molekul air yang terdapat dalam zeolit merupakan molekul yang mudah lepas. Komponen utama pembangun struktur zeolit adalah bangun primer $(\text{SiO}_4)^4-$ yang mampu membentuk struktur tiga dimensi. Muatan listrik yang dimiliki oleh kerangka zeolit baik yang terdapat dipermukaan maupun didalam pori menyebabkan zeolit dapat berperan sebagai penukar kation, penyerap, dan katalis. Struktur kimia zeolit yang terdiri dari silika alumina terhidrat yang mengandung kation dapat dipertukarkan terlihat pada Gambar 2.5. dibawah ini :



Gambar 2.5. (a) Struktur dasar zeolit (b) Struktur tiga dimensi zeolit (Fatimah, 2005)

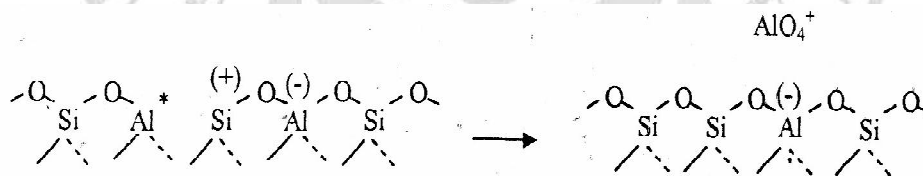
Menurut Dyer sebagaimana yang dikutip oleh Yusnani (2008), kemampuan zeolit sebagai katalis berkaitan dengan ketersediaan pusat-pusat aktif berupa gugus fungsi asam Bronsted maupun Lewis. Perbandingan kedua jenis asam ini bergantung pada proses aktivasi zeolit dan kondisi reaksi. Pusat-pusat aktif tersebut akan mengikat molekul-molekul basa secara kimiawi. Gugus Lewis terjadi melalui proses

dehidroksilasi dari dua gugus hidroksi akibat pemanasan pada temperatur tinggi, di atas 550°C , seperti disajikan pada Gambar 2.6. dibawah:



**Gambar 2.6. Pembentukan Situs Lewis
(Dyer dikutip oleh Yusnani, 2008)**

Menurut Dyer sebagaimana dikutip oleh Yusnani (2008), situs Lewis tersebut belum stabil, karena masih ada uap air dan dapat distabilkan dengan mengeluarkan Al dari kerangka membentuk situs Lewis sebenarnya, seperti disajikan pada Gambar 2.7.



**Gambar 2.7. Situs Lewis Sebenarnya
(Dyer dikutip oleh Yusnani, 2008)**

Menurut Setiadi dan Pertiwi (2007), zeolit merupakan katalis yang cukup efektif digunakan pada proses *cracking*, *isomerization*, dan *hydrocarbon alkylation*. Peran zeolit sebagai katalis berdasarkan pada tiga sifatnya, yaitu:

- a. Penyaring molekul, sifat sebagai penyaring molekul yang dimiliki oleh zeolit dapat dimanfaatkan untuk menyeleksi reaktan, hasil antara dan produk akhir yang terlibat dalam proses katalitik oleh katalis zeolit.
- b. Pusat asam, adanya pusat asam pada zeolit dapat memberikan medium yang kondusif (lebih reaktif) untuk proses katalitik.

Untuk memaksimalkan ukuran pori-pori zeolit maka zeolit perlu diaktivasi. Aktivasi zeolit dilakukan untuk menghilangkan pengotor yang menutupi rongga yang menyebabkan daya tukar ion dan kapasitas adsorpsi menjadi tidak optimal. Aktivasi dapat dilakukan dengan dua cara: (1) Aktivasi secara kimia bertujuan melarutkan pengotor yang menutupi permukaan dan gugus fungsi yang ada pada zeolit. Pengotor yang bersifat asam akan dilarutkan oleh larutan pencuci yang asam, dan pengotor yang bersifat basa akan larut dengan larutan pencuci yang basa; (2) Disisi lain, aktivasi dengan pemanasan dilakukan untuk menghilangkan air yang terikat secara fisika serta menguraikan senyawa-senyawa organik yang terperangkap dalam pori zeolit (Firdaus, 2009).

Zeolit memiliki karakter-karakter yang perlu dimodifikasi dan salah satu karakter tersebut adalah keasaman dari zeolit. Keasaman zeolit dapat ditingkatkan dengan cara dealuminasi maupun dengan menambahkan logam atau oksida logam tertentu. Zeolit dipakai sebagai pengemban karena struktur kristal zeolit memiliki stabilitas termal dan luas permukaan yang tinggi dan dapat dibuat dalam berbagai bentuk yang diinginkan. Menurut Hegedus sebagaimana dikutip oleh Witanto *et al.* (2010), logam-logam yang diembankan ke dalam zeolit akan menyebabkan luas permukaan relatif besar, yang pada akhirnya akan memperbesar luas kontak antara katalis dengan reaktan, sehingga reaksi berjalan cepat.

2.3.3 Metode Pengembanan Katalis Mo-Ni/ZAA

Katalis Mo-Ni/ZAA yang digunakan dalam proses hidrodessulfurisasi tiofen menggunakan sistem katalis logam-pengemban, logam sebagai komponen aktif

terdispersi pada permukaan pengemban. Karena terdispersi pada permukaan maka mempunyai luas permukaan komponen aktif yang tinggi. Metode yang digunakan untuk mendispersikan logam pada pengemban akan mempengaruhi tingkat dispersi maupun kuat interaksi antara logam dengan pengemban (Triyono, 2002).

Cara yang paling umum digunakan adalah impregnasi basah yakni dengan menggunakan larutan garam untuk merendam pengemban sehingga terjadi pertukaran antara kation atau anion didalam larutan dengan anion atau kation didalam pengemban. Bilamana didalam pengemban tidak mengandung kation ataupun anion maka proses dispersi diawali oleh deposisi prekursor logam pada permukaan pengemban yang kemudian terdispersi dan diubah menjadi bentuk logamnya oleh tahapan-tahapan setelah impregnasi (Triyono, 2002).

Tahapan-tahapan tersebut adalah: 1) pengeringan larutan yang dimaksudkan untuk menghasilkan pengendapan partikel-partikel kecil garam pada permukaan katalis sebagai akibat dari dekomposisi prekursor kompleks logam, 2) kalsinasi yang berfungsi untuk memperbaiki dispersi logam, 3) reduksi untuk merubah ion logam menjadi atom logam. Bilamana ligan di dalam larutan kompleks logam cukup kuat sehingga sulit dihilangkan maka diantara tahapan kalsinasi dan reduksi dilakukan proses oksidasi. Pemanasan atau pengeringan dilakukan pada temperatur diatas titik didih pelarut, kalsinasi dilakukan pada temperatur antara 400-700°C dibawah aliran gas nitrogen, reduksi dilakukan pada temperatur antara 300-500°C dibawah aliran gas hidrogen, sedangkan oksidasi dilakukan pada temperatur antara 400-500°C dibawah aliran gas oksigen (Triyono, 2002).

Menurut Yusnani (2008), katalis logam-pengemban juga dapat dibuat dengan cara koimpregnasi yaitu kedua garam logam dimasukkan dalam waktu yang sama atau dengan impregnasi terpisah yaitu garam logam pertama dimasukkan kemudian diikuti garam logam kedua. Dalam koimpregnasi, letak dan sifat logam dalam pengemban tergantung pada jenis garam prekursor yang digunakan dan kecenderungan untuk membentuk paduan dua komponen.

Penelitian Maryani (2004), pengaruh cara pengembanan logam Ni dan Mo pada zeolit alam aktif terhadap karakter katalis bimetal menunjukkan bahwa kandungan logam dan keasaman total yang paling tinggi pada Mo-Ni/ZAA yaitu 7,716% dan 2,935 mmol/gram serta peningkatan luas permukaan yang paling tinggi (21,031%).

2.3.4 Variasi Rasio Prekursor Mo/Ni

Menurut Trisunaryanti *et al.* (2003), variasi rasio Mo/Ni terhadap aktivitas dan karakter katalis logam-pengemban belum banyak diteliti. Trisunaryanti *et al.* (2003), telah melakukan preparasi katalis Ni-Mo/Modernit dengan variasi rasio Mo/Ni dan karakteristiknya untuk konversi asam stearat. Preparasi katalis Ni-Mo/Modernit menggunakan metode impregnasi terpisah dengan variasi rasio Mo/Ni yang digunakan 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. Pada uji aktivitas katalis dengan *reactor flow* menghasilkan konversi asam stearat sebagai berikut: 34,52%, 65,10%, 80,10%, 86,42% dan 95,72% dihasilkan secara berurutan oleh katalis Ni1-

Mo₃/Mor, Mo/Mor, Ni/Mor, Ni₁-Mo₂/Mor dan Ni₁-Mo₁/Mor. Hasil uji aktivitas terbaik ditunjukkan oleh katalis Ni₁-Mo₁/Mor dengan Mo/Ni: 1/1.

Yusnani (2008), telah meneliti pengaruh konsentrasi prekursor logam Ni (NiO) serta perbandingan efektivitas antara metode koimpregnasi dan impregnasi terpisah pada pengembanan logam Ni (NiO) dan Mo (MoO₃) dalam zeolit-Y untuk menghasilkan katalis dengan karakter yang baik. Hasil penelitian Yusnani (2008) menunjukkan bahwa variasi konsentrasi prekursor logam Ni (NiO) dan cara pengembanan logam Ni dan Mo pada zeolit-Y menghasilkan katalis dengan karakter yang berbeda. Konsentrasi (b/b) prekursor logam Ni sebesar 2% mempunyai karakter yang lebih baik daripada konsentrasi yang lain. Cara pengembanan logam Ni dan Mo secara impregnasi terpisah mempunyai karakter yang lebih baik daripada koimpregnasi, serta metode paling efektif adalah dengan mengembankan logam Ni terlebih dahulu baru kemudian diikuti dengan mengembankan logam Mo (Mo-Ni/Zeolit-Y).

Nugrahaningtyas *et al.* (2009), telah melakukan preparasi dan karakterisasi katalis Ni-Mo/Zeolit Alam Aktif menggunakan metode koimpregnasi dan impregnasi terpisah dengan variasi konsentrasi NiO 2%-8% dan konsentrasi MoO₃ tetap. Hasil penelitian Nugrahaningtyas (2009) menunjukkan bahwa penambahan NiO pada metode koimpregnasi meningkatkan keasaman katalis, sedangkan metode impregnasi terpisah tidak meningkatkan keasaman. Aktivitas katalis terbaik dihasilkan dengan metode impregnasi terpisah dengan pengembanan Ni 2% (b/b) diikuti dengan Mo.

2.4 Penelitian-penelitian Terkait

Perhatian pemerintah baru-baru ini lebih mengarah kepada proses desulfurisasi bensin untuk memenuhi peraturan perlindungan lingkungan. Pemerintah Federal AS dan parlemen Eropa mengumumkan tingkat pengurangan sulfur yang akan dikurangi menjadi di bawah 10 ppm pada tahun 2010 (Wang *et al.*, 2009). Hasil Penelitian Wang *et al.* (2009) menunjukkan efisiensi total desulfurisasi dari tiofen dengan ozon mendekati 100%, dapat diperoleh dengan katalitik reaksi oksidasi $\text{SO}_4^{2-}/\text{ZrO}_2$. Selain itu, masih banyak terdapat penelitian-penelitian yang dilakukan untuk mengkaji proses hidrodesulfurisasi tiofen pada minyak bumi.

Nugrahaningtyas *et al.* (2010), telah melakukan preparasi dan karakterisasi katalis CoMo/USY untuk mengkaji reaksi hidrodesulfurisasi tiofen. Hasil penelitian menunjukkan bahwa kondisi reaksi optimum diperoleh pada reaksi HDS dengan laju alir hidrogen 5 mL/menit dan temperatur 350°C. Aktivitas katalis pada kondisi optimum tersebut adalah sebesar 2,119 % v/v. Adapun selektivitas produk etana, propilena, isobutena, transbutena, dan *cis*-butena pada kondisi optimum reaksi HDS tiofen berturut-turut sebesar 0,164; 0,167; 0,542; 0,74 dan 0,506 % v/v.

Menurut Musta (2011), reaksi hidrodesulfurisasi tiofen menggunakan katalis CoMo/HY menunjukkan bahwa konversi produk gas maksimum tercapai pada suhu 350°C sebesar 82,07% (b/b) dengan konstanta laju reaksi (k) sebesar 49,56 menit⁻¹.

2.5 Kerangka Berpikir

Tiofen merupakan senyawa dengan gugus sulfur yang terkandung dalam minyak bumi. Gugus sulfur dalam tiofen tidak diinginkan karena dapat meracuni katalis perengkahan, maka perlu direduksi. Pada kondisi yang semakin tinggi, proses hidrosulfurisasi tidak dapat berjalan secara optimum sehingga menyebabkan reaksi samping yang tidak diinginkan. Untuk menjaga kondisi proses tetap optimum, maka dibutuhkan katalis yang mempunyai aktivitas yang baik. Katalis dapat berasal dari logam yang mempunyai fase aktif. Aktivitas dan selektivitas katalis akan meningkat jika didispersikan ke dalam suatu pengemban. Katalis yang diembankan dapat menyebabkan luas permukaan logam meningkat. Pengembanan katalis dapat ditempuh dengan metode (i) koimpregnasi, memungkinkan terjadinya kompetisi antar logam prekursor yang diembankan, sehingga jumlah logam yang teremban sedikit dan tidak dapat terdispersi secara merata; (ii) impregnasi terpisah, memungkinkan logam yang teremban dapat terdispersi secara merata, sehingga karakter katalis yang dihasilkan lebih baik daripada katalis dengan metode koimpregnasi. Perbedaan urutan pengembanan katalis dengan variasi prekursor logam juga dapat menghasilkan katalis dengan karakter yang berbeda. Hal tersebut dipengaruhi oleh ukuran logam yang diembankan. Berdasarkan uraian, pengembanan katalis Mo-Ni/ZAA menggunakan metode koimpregnasi dan impregnasi terpisah, dan variasi rasio prekursor diperkirakan akan diperoleh rasio optimum yang menunjukkan aktivitas katalitik Mo-Ni/ZAA terbaik pada proses hidrosulfurisasi tiofen.

BAB 3

METODE PENELITIAN

3.1 Lokasi Penelitian

Penelitian ini dilakukan di Laboratorium Kimia Universitas Negeri Semarang. Preparasi dan uji aktivitas katalis dilakukan di Laboratorium Kimia Fisik Universitas Negeri Semarang. Uji karakteristik katalis dilakukan di Laboratorium Instrumen dan Analitik Universitas Negeri Semarang, serta Laboratorium Anorganik Universitas Gadjah Mada, sedangkan uji terhadap produk hidrodeshulfurisasi dengan *Gas Chromatography (GC)* di Laboratorium Instrumen Universitas Negeri Semarang dan dengan *Gas Chromatography Mass Spectra (GC-MS)* di Laboratorium IPA Terpadu UII Yogyakarta.

3.2 Variabel Penelitian

3.2.1 Variabel Bebas

Variabel bebas yang digunakan dalam penelitian ini (i) rasio prekursor; (ii) metode pengembunan logam.

3.2.2 Variabel Terikat

Variabel terikat dalam penelitian ini, karakteristik padatan katalis Mo-Ni/ZAA yang meliputi (i) kandungan logam bimetal Mo-Ni, (ii) jumlah situs asam, (iii) kristalinitas katalis, (iv) porositas katalis, (v) hasil uji aktivitas katalis.

3.2.3 Variabel Terkendali

Variabel terkontrol dalam penelitian ini adalah umpan tiofen:n-heksan (1:1), proses kalsinasi, oksidasi, reduksi, jenis gas pembawa, temperatur reaktor 350°C, laju alir gas pembawa (40 mL/menit) pada tekanan 1 atm, rasio feed-katalis, ukuran reaktor, massa katalis.

3.3 Rancangan Penelitian

3.3.1 Alat dan Bahan

3.3.1.1 Alat Penelitian

Alat-alat yang digunakan yaitu alat-alat gelas, termometer, pengayak 100 mesh, lumpang porselin, hot plate, oven GCA Corp, furnace, reaktor kalsinasi dan oksidasi, neraca analitik Mettler Toledo, desikator, mixer, Spektrofotometer Serapan Atom (SSA) Perkin Elmer, Gas Sorption Analyzer NOVA 1200C, XRD Shimadzu XRD-6000, GC Agilent 6820, GC-MS Shimadzu QP-2010s.

3.3.1.2 Bahan Penelitian

Bahan-bahan yang digunakan yaitu Zeolit Alam (PT. Prima Zeolita), NH_4Cl 1 N (E. Merck), HF 1% (E. Merck), HCl 6 N (E. Merck), $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ p.a (E. Merck), $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ p.a (E. Merck), NH_3 25% (E. Merck), $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 1 M, $\text{Ag}(\text{NO}_3)$ 0,1 M, Tiofen, n-heksan, Gas Hidrogen (PT. Samator Gas), Gas Oksigen (PT. Samator Gas), Gas Nitrogen (PT. Samator Gas), Air Bebas Ion (*Deionized Water*).

3.3.2 Prosedur Kerja

3.3.2.1 *Perlakuan Awal Zeolit Alam*

750 gram Zeolit alam dari PT. Prima Zeolita, Yogyakarta, direndam dalam 1 liter air bebas ion (sampai terendam) sambil diaduk dengan pengaduk magnet selama 24 jam pada temperatur kamar (25°C). Setelah itu, campuran disaring dan endapan yang diperoleh dikeringkan dalam oven pada temperatur 120°C selama 24 jam dan dihaluskan. Diberi nama sampel ZA.

3.3.2.2 *Aktivasi Zeolit dengan Perlakuan HF, HCl, dan NH₄Cl*

3.3.2.2.1 Perlakuan dengan HF 1 %

Sampel ZA yang diperoleh dari preparasi zeolit alam direndam dalam 1 liter larutan HF 1% (sampai terendam) selama 30 menit, disaring dengan kertas saring kemudian dicuci dengan air bebas ion dan diulang sebanyak 3 kali. Setelah itu, dikeringkan dalam oven pada temperatur 120°C selama 24 jam dan dihaluskan. Penambahan HF ini bertujuan untuk memutuskan ikatan Si yang berada diluar kerangka zeolit.

3.3.2.2.2 Perlakuan dengan HCl 6 N

Sampel ZA kering (setelah perlakuan HF 1%), direndam dalam 750 mL larutan HCl 6N (sampai terendam) selama 30 menit pada temperatur 50°C sambil diaduk dengan pengaduk magnet. Penambahan HCl ini bertujuan untuk dealuminasi zeolit dan melarutkan logam-logam Fe yang berada di dalam zeolit. Kemudian sampel disaring dengan kertas saring dan dicuci dengan air bebas ion berulang kali

sampai tidak ada ion Cl^- yang terdeteksi oleh larutan AgNO_3 . Setelah itu, Sampel ZA dikeringkan pada temperatur 120°C selama 3 jam dalam oven dan dihaluskan.

3.3.2.2.3 Perlakuan dengan NH_4Cl 1 N

Sampel ZA kering (setelah perlakuan HCl 6N), direndam dalam 500 mL larutan NH_4Cl 1N (sampai terendam) pada temperatur 90°C selama 3 jam perhari dalam 1 minggu (7 hari) sambil diaduk, kemudian disaring dengan kertas saring dan dicuci dengan air bebas ion, dikeringkan pada temperatur 120°C selama 3 jam dalam oven. Sampel dihaluskan dengan ukuran lolos pengayak 100 mesh. Penambahan NH_4Cl bertujuan untuk menggantikan kation-kation penyeimbang didalam zeolit (Na^+ , Ca^+ diganti dengan NH_4^+). Sampel ini diberi nama zeolit alam aktif (sampel ZAA).

3.3.2.3 Sintesis sampel katalis Mo-Ni/ZAA

3.3.2.3.1 Preparasi Katalis secara Koimpregnasi

Sampel ZAA 30 gram direndam dalam larutan *Nikel (II) Nitrat Hexahidrat* ($\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ p.a) (0,7398 gram dilarutkan dalam aquademin 50 mL), kemudian ditambah larutan *Amonium Hepta Molibdat* ($(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ p.a) (1,9312 gram dilarutkan dalam aquademin 50 mL), direfluk pada temperatur 60°C selama 5 jam. Kemudian sampel diuapkan memakai *hotplate* sambil diaduk sampai kering pada suhu 60°C selama 3 jam. Sampel katalis dihaluskan dan diberi nama sampel Co (1). Metode merujuk pada prosedur Nugrahaningtyas (2009). Ulangi cara diatas untuk sampel Co (2) dan (3) dengan massa *Nikel (II) Nitrat Hexahidrat* berturut-turut

0,4932 gram, 0,2959 gram, dan massa *Amonium Hepta Molibdat* berturut-turut 2,575 gram, 3,09 gram.

3.3.2.3.2 Preparasi Katalis secara Impregnasi Terpisah

Sampel ZAA 30 gram direndam dalam larutan *Nikel (II) Nitrat Hexahidrat* ($\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ p.a) (0,7398 gram dilarutkan dalam aquademin 50 mL), direfluk pada temperatur 60°C selama 5 jam. Kemudian sampel diuapkan memakai *hotplate* sambil diaduk sampai kering pada suhu 60°C selama 3 jam. Sampel yang telah kering tersebut kemudian direndam dalam *Amonium Hepta Molibdat* ($(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ p.a) (1,9312 gram dilarutkan dalam aquademin 50 mL), direfluk pada temperatur 60°C selama 5 jam. Kemudian sampel diuapkan memakai *hotplate* sambil diaduk sampai kering pada suhu 60°C selama 3 jam. Sampel katalis dihaluskan dan diberi nama sampel Suk (1). Metode merujuk pada prosedur Trisunaryanti (2005). Ulangi cara diatas untuk sampel Suk (2) dan (3) dengan massa *Nikel (II) Nitrat Hexahidrat* berturut-turut 0,4932 gram, 0,2959 gram, dan massa *Amonium Hepta Molibdat* berturut-turut 2,575 gram, 3,09 gram.

3.3.2.4 *Kalsinasi, Oksidasi, dan Reduksi Katalis*

Sampel katalis Co (1), (2), (3) dan Suk (1), (2), (3) yang diperoleh, dimasukkan dalam reaktor, dikalsinasi pada temperatur 500°C sambil dialiri gas nitrogen selama 5 jam. Sampel kemudian dioksidasi dengan aliran gas oksigen 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) dan reduksi dengan gas hidrogen pada temperatur

400°C selama 2 jam (proses reduksi untuk mereduksi logam-logam yang diimbangkan pada zeolit sehingga bermuatan nol) sesuai prosedur Trisunaryanti (2005).

3.3.2.5 Karakterisasi Katalis

Sampel yang diperoleh kemudian dilakukan karakterisasi meliputi penentuan jumlah situs asam total menggunakan metode gravimetri, analisis kandungan logam dengan Spektrofotometer Serapan Atom (SSA), dan kristalinitas dengan *X-ray Diffraction (XRD)*, *Gas Sorption Analyzer NOVA 1200C*.

3.3.2.5.1 Analisis Keasaman Padatan

Jumlah situs asam katalis ditentukan secara kuantitatif dengan metode gravimetri menggunakan NH₃ sebagai basa adsorbatnya. Mula-mula ditimbang krus proselin kosong, W_0 kemudian diisi dengan sejumlah gram sampel katalis dan dipanaskan dalam oven pada temperatur 120°C selama 1,5 jam. Krus proselin beserta isinya ditimbang untuk mendapatkan berat padatan katalis sebenarnya, W_1 kemudian dimasukkan ke dalam desikator dan divakumkan. Setelah desikator vakum, uap basa adsorbat dialirkan ke dalam desikator hingga jenuh dan dibiarkan selama 24 jam. Desikator dibuka dan dibiarkan selama 1,5 jam untuk menguapkan basa yang tidak teradsorpsi atau teradsorpsi sangat lemah. Krus proselin dan isi kemudian ditimbang sebagai W_2 , untuk menentukan berat basa yang teradsorpsi pada padatan katalis.

Keasaman katalis (K_{kat}) dihitung dengan persamaan:

$$K_{kat} = \frac{(W_2 - W_1) \times 1000}{(W_1 - W_0) \times M_b} \quad (2)$$

dengan, K_{kat} adalah jumlah situs asam katalis (mmol/g).

W_0 adalah berat porselin kosong.

W_1 adalah berat porselin setelah diberi sampel dan dipanaskan.

W_2 adalah berat porselin setelah dialiri NH_3 .

M_b adalah massa rumus molekul basa adsorbat.

Banyaknya jumlah uap NH_3 yang teradsorpsi menunjukkan banyaknya jumlah asam total zeolit.

3.3.2.5.2 Analisis Kandungan Logam Ni dan Mo dalam Katalis

Analisis kandungan logam Ni dan Mo yang terdapat didalam katalis menggunakan alat SSA. Analisis dilakukan secara berurutan terhadap larutan blanko, standar, dan cuplikan. Penyiapan standar dilakukan dengan cara mengencerkan larutan standar Ni 1000 ppm dan larutan standar Mo 1000 ppm. Larutan standar Ni dan Mo tersebut dibuat standar larutan dengan konsentrasi 2, 4, 6, 8, dan 10 ppm. Penyiapan larutan cuplikan yaitu dengan menimbang 1 g sampel kemudian dimasukkan ke dalam krus porselin yang sudah dibasahi dengan aquaregia. Ke dalam krus porselin ditambahkan sedikit demi sedikit 8 mL larutan HF 48%, selanjutnya ditambahkan 2 mL aquaregia. Campuran ini kemudian dibiarkan selama 12 jam dan setelah itu dipanaskan pada temperatur 90°C selama 2 jam di dalam oven, setelah dingin ditambahkan larutan H_3BO_3 10%. Larutan kemudian dipindahkan ke dalam labu ukur plastik 100 mL, lalu ditambahkan aquabides sampai tanda batas. Satu mL larutan cuplikan diencerkan lagi sebanyak 100 kali. Hal sama dilakukan pada sampel yang lainnya, kemudian masing-masing sampel ditentukan absorbansinya dengan SSA.

3.3.2.5.3 Analisis Kristalinitas Katalis

Untuk mengetahui kristalinitas katalis digunakan instrumen XRD. Analisis XRD, kristal katalis mendifraksi sinar-X yang dikirimkan dari sumber dan diterima oleh detektor. Pola difraksi diplotkan berdasarkan intensitas puncak yang menyatakan peta parameter kisi kristal atau indeks *Miller (hkl)* sebagai fungsi 2θ , dengan θ menyatakan sudut difraksi berdasarkan persamaan *Bragg* :

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (3)$$

dengan, d adalah jarak antar bidang kristal dengan indeks *Miller (hkl)*, θ adalah sudut *Bragg*, n adalah bilangan bulat, dan λ adalah panjang gelombang.

3.3.2.5.4 Analisis Luas Permukaan, Volume Total Pori, dan Rerata Jari-Jari Pori

Luas permukaan, volume total pori, dan distribusi rerata jari-jari pori didasarkan pada fenomena adsorpsi molekul gas di permukaan zat padat yang berlangsung pada temperatur konstan. Alat yang digunakan adalah *Gas Sorption Analyzer NOVA 1200C*. Sampel ditimbang dan dimasukkan ke dalam wadah sampel. Sampel dipanaskan pada temperatur 200°C dengan dilakukan pengusiran gas-gas lain menggunakan gas nitrogen selama 45 menit. Sampel didinginkan menggunakan nitrogen cair sehingga temperatur sampel mencapai 77 K. Tekanan gas nitrogen diubah sehingga jumlah gas nitrogen yang terkondensasi dapat ditentukan. Data hasil analisis BET yang diperoleh tersebut dapat menentukan volume total pori, luas permukaan spesifik, dan rerata jari-jari pori. Analisis luas permukaan spesifik mengikuti persamaan Brunauer, Emmet, dan Teller (BET), yaitu :

$$Si = \frac{Wm.Nav.Ap}{BMN_2} \quad (4)$$

dengan, Nav = Bilangan avogadro ($6,023 \times 10^{23}$ molekul/mol)

Ap = Luas proyeksi N_2 ($16,2 \text{ \AA}^2$)

BM_{N_2} = Berat molekul N_2

Analisis rerata jari-jari pori katalis mengikuti persamaan Brunauer, Emmet, dan Teller (BET), yaitu:

$$rp = \frac{2Vp}{S} \quad (5)$$

dengan, rp = Rerata jari-jari pori katalis

Vp = Volume pori

S = Luas permukaan

Analisis volume total pori mengikuti persamaan Brunauer, Emmet, dan Teller (BET), yaitu:

$$Vp = \frac{Pa.Vads.Vm}{RT} \quad (6)$$

dengan, Vm = Volume molar dari nitrogen cair ($34,7 \text{ cm}^3/\text{mol}$)

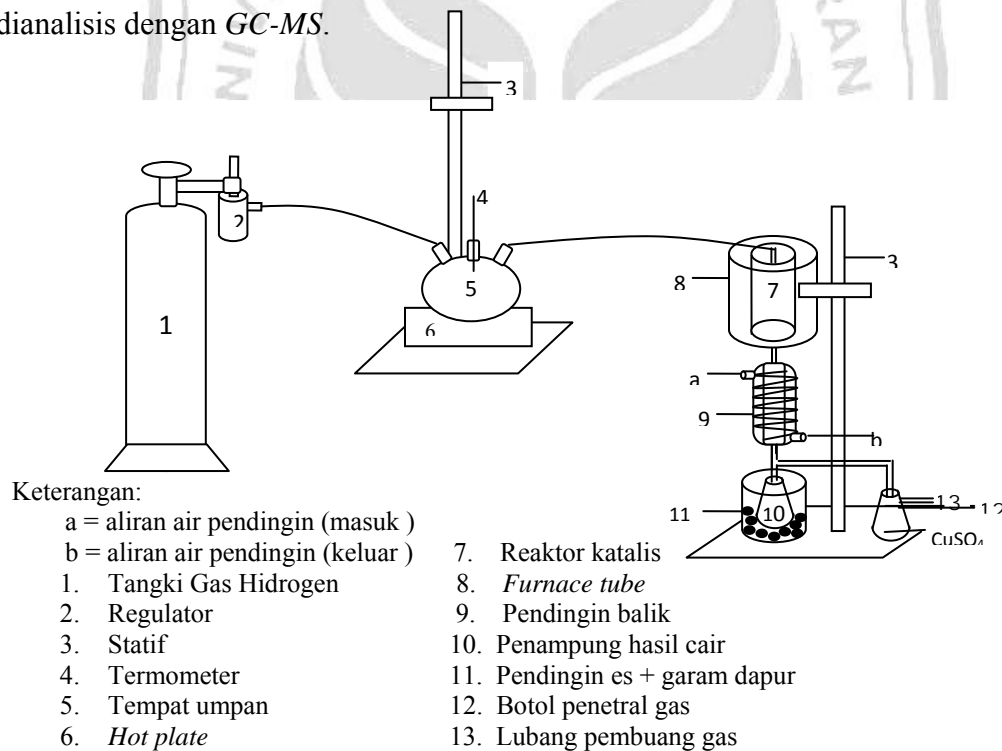
$Vads$ = Volume nitrogen yang teradsorpsi

Pa = Tekanan pengukuran

T = Temperatur pengukuran

3.3.2.6 Uji Aktivitas Katalis

Menyiapkan rangkaian alat hidrodesulfurisasi tiofen yang ditunjukkan pada Gambar 3.1. Sebanyak 1 g katalis Mo-Ni/ZAA diletakkan dalam reaktor katalis dan sebanyak 10 mL tiofen dan n-heksan dengan perbandingan 1:1 dimasukkan ke dalam wadah umpan. Reaktor katalis dipanaskan pada suhu 350°C, kemudian setelah panasnya konstan, wadah umpan dipanaskan sampai umpan menguap sambil dialiri gas H₂ dengan kecepatan alir 40 mL/menit selama 1 jam. Hasil perengkahan kemudian ditampung dan dianalisis dengan GC. Hasil analisis GC yang diperoleh menunjukkan aktivitas katalis Mo-Ni/ZAA, kemudian dipilih salah satu untuk dianalisis dengan GC-MS.



Gambar 3.1. Rangkaian Alat Hidrodesulfurisasi Tiofen.

BAB 4

HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1 Preparasi Katalis

4.1.1. Perlakuan Awal Zeolit Alam

Hasil perlakuan awal zeolit alam menunjukkan bahwa warna aquademin menjadi keruh dan hasil pengeringan zeolit alam mengalami perubahan warna yang awalnya berwarna hijau agak gelap menjadi berwarna putih kehijauan. Perubahan warna yang terjadi pada zeolit alam ini disebabkan karena terpisahnya pengotor-pengotor (seperti debu, kerikil, daun-daun kecil) pada waktu pencucian, penyaringan, dan pengayakan. Selain itu, juga terpisahnya pengotor organik yang berada didalam zeolit karena sifatnya yang polar sehingga mudah terbawa dan larut dalam aquademin.

4.1.2. Aktivasi Zeolit Alam Dengan HF, HCl, dan NH₄Cl

Aktivasi zeolit dengan perlakuan asam, pertama dilakukan dengan perendaman HF 1%. Pada perendaman HF 1%, zeolit menjadi seperti bubur. Berdasarkan hasil perendaman HF 1% ini tekstur zeolit yang awalnya halus menjadi agak kasar dan warnanya yang semula putih kehijauan menjadi putih agak keruh yang menunjukkan hilangnya Si di luar *framework*.

Aktivasi kedua dengan perendaman menggunakan HCl 6N. Berdasarkan hasil refluks perendaman zeolit menggunakan HCl warna larutan menjadi kuning kehijauan, seperti ditunjukkan pada Gambar 4.1.



Gambar 4.1. Warna Zeolit pada Perendaman HCl 6N.

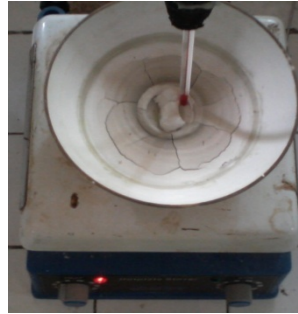
Gambar 4.1. menunjukkan bahwa pada saat perendaman dengan HCl 6N logam Fe berupa ion Fe^{3+} dalam zeolit larut keluar dari dalam *framework* tereduksi membentuk ion Fe^{2+} yang menyebabkan zeolit berwarna kuning kehijauan. Perendaman zeolit dengan HCl 6N juga melarutkan logam Al yang berada didalam zeolit sehingga Al dalam *framework* akan keluar membentuk AlCl_3 . Sesuai dengan penelitian Handoko (2002), hilangnya Fe^{3+} dan keluarnya Al dari dalam *framework* dapat menaikkan rasio Si/Al dalam *framework* sehingga meningkatkan keasaman, stabilitas termal, dan selektivitas dari zeolit.

Berdasarkan hasil perendaman HCl 6N, larutan akan membentuk endapan putih apabila ditetesi dengan indikator larutan $\text{Ag}(\text{NO}_3)$ yang menunjukkan bahwa didalam zeolit masih terdapat sisa-sisa ion Cl^- yang perlu dihilangkan. Hilangnya ion Cl^- ini ditunjukkan dengan tidak terbentuknya endapan putih dan larutan tetap berwarna jernih yang mengindikasikan bahwa zeolit tersebut sudah bersifat netral. Hasil pengeringan dari perendaman HCl 6N zeolit alam berwarna putih. Hal ini menunjukkan bahwa kation logam Fe dan Al yang berada diluar *framework* zeolit telah dapat dihilangkan.

Aktivasi ketiga dengan perendaman dengan NH_4Cl 1N yang menghasilkan warna zeolit menjadi lebih putih dibandingkan dengan warna zeolit setelah perendaman HCl 6N. Hal ini menunjukkan bahwa kation-kation penyeimbang dalam zeolit seperti Na^+ dan Ca^{2+} telah digantikan oleh NH_4^+ membentuk NH_4 -Zeolit. Ketika NH_4 -Zeolit Alam dipanaskan, maka NH_3 yang terikat oleh asam lewis akan menguap dan hanya meninggalkan H^+ pada zeolit alam (H-Zeolit Alam). Dengan demikian, ion logam seperti Fe^{3+} , Na^+ , Ca^{2+} dan ion logam lainnya tergantikan oleh H^+ . Adanya pertukaran kation-kation penyeimbang dengan H^+ ini menyebabkan zeolit dapat dimodifikasi dengan pengembanan logam bimetal Mo-Ni sehingga energi yang diperlukan dalam pertukaran kation dengan logam bimetal dapat seragam/sama dan memudahkan logam bimetal untuk terdistribusi secara merata dalam zeolit. Distribusi logam bimetal yang merata akan meningkatkan situs asam dalam katalis karena logam bimetal Mo-Ni bertindak sebagai asam Lewis.

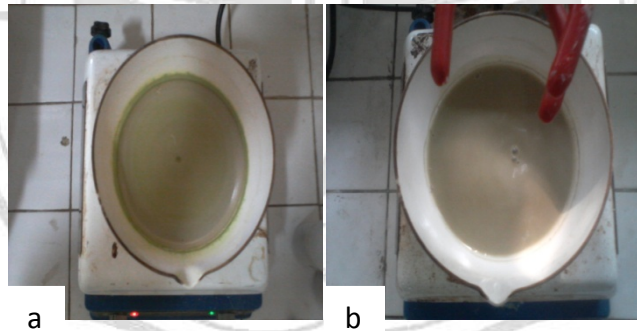
4.1.3. Sintesis Katalis Mo-Ni/ZAA

Sintesis katalis Mo-Ni/ZAA mempengaruhi dispersi logam Mo dan Ni yang masuk ke dalam zeolit alam aktif. Berdasarkan hasil pengeringan sintesis katalis Mo-Ni/ZAA pada pengembanan logam Mo dan Ni ke dalam zeolit secara koimpregnasi diperoleh warna katalis menjadi putih bersih, seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.2.



Gambar 4.2. Penguapan Katalis Mo-Ni/ZAA secara Koimpregnasi

Hasil pengeringan sintesis katalis Mo-Ni/ZAA pada pengembanan logam Mo dan Ni ke dalam zeolit secara impregnasi terpisah, awalnya warna katalis putih kuning kehijauan yang menunjukkan adanya logam Ni yang diembankan terlebih dahulu (ditunjukkan pada Gambar 4.3. a). Kemudian warna katalis menjadi putih setelah logam Mo diembankan ke dalam katalis (ditunjukkan Gambar 4.4. b).



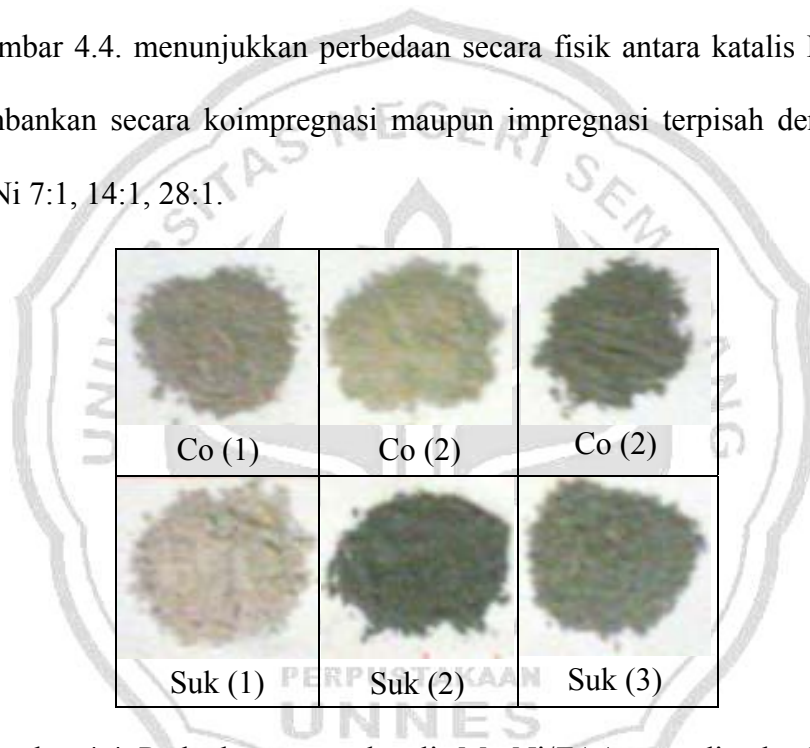
Gambar 4.3. Penguapan Katalis Mo-Ni/ZAA secara Impregnasi terpisah

4.1.4. Kalsinasi, Oksidasi, dan Reduksi Katalis

Hasil proses kalsinasi, oksidasi, dan reduksi pada masing-masing katalis dengan variasi rasio Mo/Ni dan metode pengembanan ini mengalami perubahan warna yang berbeda-beda. Pada katalis Mo-Ni/ZAA yang diembankan secara koimpregnasi warna katalis Co 7:1 berwarna abu-abu kecoklatan, warna katalis Co

14:1 berwarna abu-abu agak kekuningan, sedangkan warna katalis Co 28:1 berwarna abu-abu kecoklatan agak gelap. Pada katalis Mo-Ni/ZAA yang diimbangkan secara impregnasi terpisah warna katalis Suk 7:1 berwarna putih abu-abu, warna katalis Suk 14:1 berwarna abu-abu gelap, sedangkan warna katalis Suk 28:1 berwarna abu-abu agak gelap.

Gambar 4.4. menunjukkan perbedaan secara fisik antara katalis Mo-Ni/ZAA yang diimbangkan secara koimpregnasi maupun impregnasi terpisah dengan variasi rasio Mo/Ni 7:1, 14:1, 28:1.



Gambar 4.4. Perbedaan warna katalis Mo-Ni/ZAA yang diimbangkan secara koimpregnasi maupun impregnasi terpisah

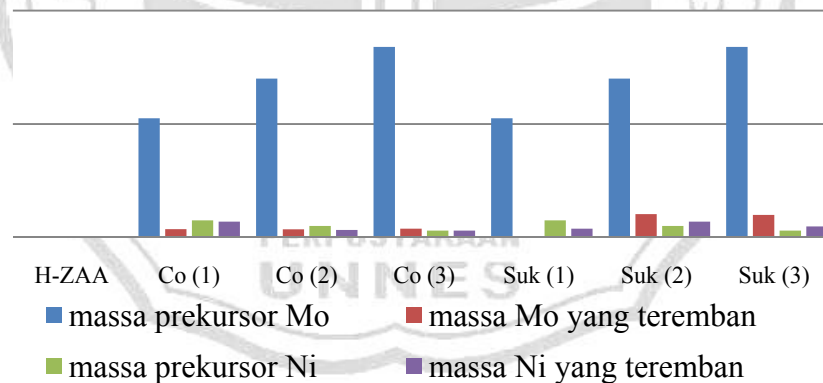
Gambar 4.4. tersebut menunjukkan warna katalis yang berbeda-beda. Hal ini disebabkan karena logam yang terkandung pada masing-masing katalis berbeda-beda, semakin banyak logam yang terkandung dalam zeolit warna katalis makin gelap terutama katalis yang mengandung logam Mo lebih banyak.

4.1.5. Karakterisasi Katalis Mo-Ni/ZAA

4.1.5.1 Analisis Kandungan Mo dan Ni dalam Katalis Mo-Ni/ZAA

Analisis kandungan logam Mo dan Ni yang teremban pada zeolit alam menggunakan SSA. Berdasarkan hasil analisis SSA menunjukkan adanya peningkatan kandungan logam Mo dan Ni dalam zeolit alam aktif setelah diembani dengan logam Mo dan Ni baik secara koimpregnasi maupun impregnasi terpisah. Kenaikan kandungan logam ini menunjukkan bahwa logam dapat masuk ke dalam pori zeolit alam aktif. Pengaruh cara pengembanan logam terhadap kandungan logam Ni dan Mo, disajikan pada Grafik 4.1.

Grafik 4.1. Pengaruh Metode Pengembanan terhadap Kandungan Logam Mo dan Ni



Grafik 4.1. menunjukkan bahwa pada metode pengembanan logam secara koimpregnasi terlihat semakin banyak massa prekursor Ni yang diembankan ke dalam zeolit, maka massa Ni yang teremban cenderung meningkat. Sedangkan massa Mo yang teremban ke dalam zeolit, menunjukkan massa yang hampir sama pada masing-masing rasio katalis. Hal ini terjadi adanya ikatan antara Ni yang bermuatan

positif dengan zeolit yang bermuatan negatif serta ukuran molekul Ni yang lebih kecil daripada Mo menyebabkan Ni mudah masuk ke dalam pori zeolit terlebih dahulu dan hanya memberikan sedikit celah pada mulut pori zeolit. Keadaan ini yang menyebabkan Mo hanya dapat tererman sedikit pada permukaan katalis.

Pada pengembanan secara impregnasi terpisah pada katalis Suk (1) massa Ni yang tererman lebih banyak daripada logam Mo. Hal ini terjadi karena Ni yang diembanan terlebih dahulu masuk ke dalam pori zeolit secara merata memenuhi mulut pori dan tidak membuka pori zeolit sehingga logam Mo hanya terdispersi di luar permukaan zeolit. Keadaan ini menyebabkan logam Mo tidak terikat kuat oleh zeolit sehingga mudah lepas. Sedangkan pada katalis Suk (2) dan katalis Suk (3) terlihat bahwa massa Ni yang tererman dalam zeolit lebih banyak dari massa prekursor Ni. Hal ini dimungkinkan terjadi karena pada saat impregnasi logam Ni ke dalam zeolit, logam Ni yang tererman membentuk gumpalan-gumpalan sehingga dari hasil analisis kandungan logam yang tererman lebih banyak.

Tabel 4.1. menyajikan pengaruh rasio massa prekursor Mo/Ni terhadap rasio massa Mo/Ni yang tererman.

Tabel 4.1. Pengaruh Rasio Massa Prekursor Mo/Ni terhadap Rasio Massa Mo/Ni yang Tererman

Katalis	rasio massa prekursor Mo/Ni	rasio massa Mo/Ni yang tererman
Co (1)	7:1	1:2
Co (2)	14:1	1:1
Co (3)	28:1	4:3
Suk (1)	7:1	1:20
Suk (2)	14:1	10:7
Suk (3)	28:1	2:1

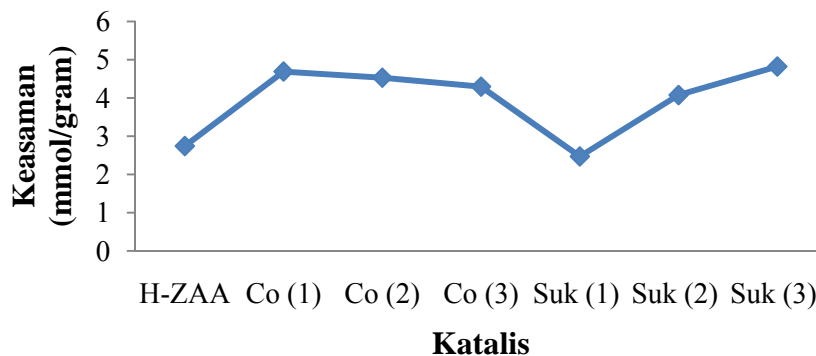
Tabel 4.1. menunjukkan bahwa semakin banyak rasio prekursor Mo/Ni yang diimbangkan ke dalam zeolit maka rasio Mo/Ni yang teremban juga semakin banyak pada katalis Co (1), Co (2), Co (3), Suk (2), dan Suk (3). Pada katalis Suk (1) terlihat perbedaan rasio dengan katalis yang lain. Hal ini dikarenakan Ni yang terkandung di dalam zeolit lebih banyak.

Fenomena yang terjadi pada kedua metode menunjukkan bahwa cara pengembanan logam dan rasio Mo/Ni memberikan pengaruh yang besar pada kemampuan logam Ni dan Mo masuk ke dalam pori zeolit alam aktif.

4.1.5.2 Keasaman Katalis Mo-Ni/ZAA

Uji keasaman dalam penelitian ini didasarkan pada adsorpsi gas amonia dengan metode gravimetri. Menurut Radionso (2005), jumlah situs asam dengan amoniak sebagai basa adsorbatnya merupakan jumlah situs asam total karena memiliki ukuran molekul kecil sehingga memungkinkan untuk masuk ke dalam rongga maupun pori-pori katalis. Hasil keasaman total H-ZAA dan katalis Mo-Ni/ZAA disajikan pada Grafik 4.2.

Grafik 4.2. Keasaman Katalis H-ZAA dan Mo-Ni/ZAA

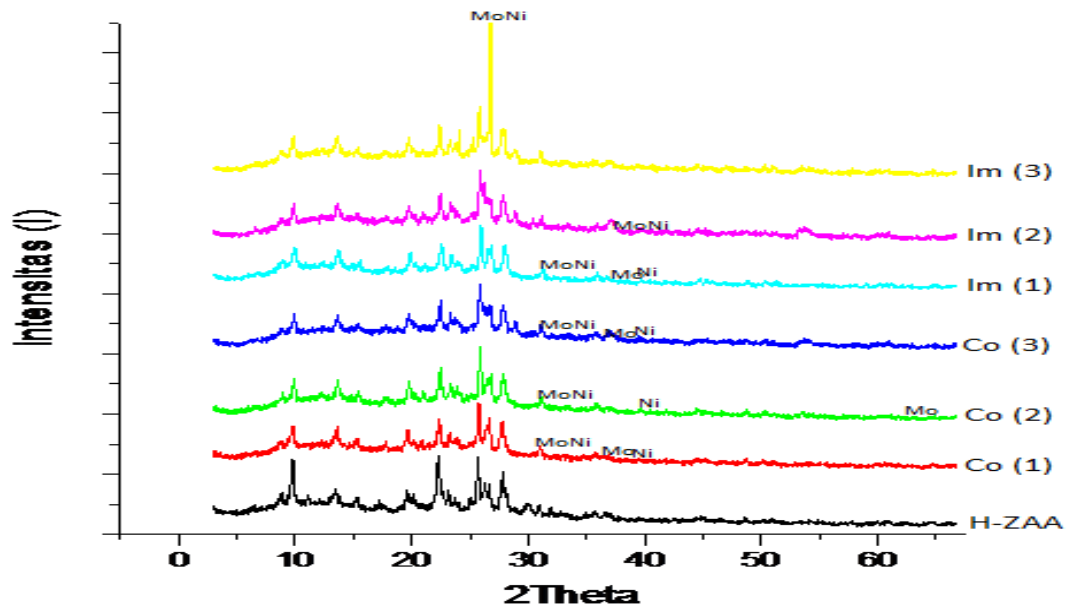


Grafik 4.2. menunjukkan bahwa keasaman katalis setelah pengembangan dengan variasi rasio Mo/Ni secara koimpregnasi maupun impregnasi terpisah, tidak selalu menunjukkan peningkatan keasaman total dari sampel awal. Peningkatan keasaman total dari H-ZAA awal terjadi pada katalis Co (1), Co (2), Co (3), Suk (2), Suk (3). Peningkatan katalis ini disebabkan adanya penyisipan logam transisi Mo dan Ni yang menyumbangkan orbital *d* belum terisi penuh dan bertindak sebagai akseptor elektron (asam *lewis*).

Keadaan yang demikian merupakan tujuan penyisipan logam transisi, selain sebagai katalis hidrogenasi atau dehidrogenasi dan menaikkan luas permukaan katalis. Katalis dengan keasaman yang besar diharapkan akan memiliki aktivitas dan selektivitas katalitik yang baik. Sedangkan pada katalis Suk (1) mengalami penurunan keasaman total, hal tersebut dimungkinkan terjadi karena logam Mo yang menempel pada permukaan katalis tidak dapat memberikan situs asam lewisnya sehingga tidak mampu mengadsorpsi basa dari uap amonia. Tabel 4.2 menunjukkan keasaman katalis yang paling tinggi pada katalis Suk (3) yaitu sebesar 4,821 mmol/g.

4.1.5.3 Kristalinitas Katalis Mo-Ni/ZAA

Analisis kristalinitas katalis Mo-Ni/ZAA menggunakan difraksi sinar-X dapat dilihat dari pola difraksi padatan katalis. Perbandingan pola difraksi (difraktogram) padatan katalis H-ZAA, Mo-Ni/ZAA untuk masing-masing metode pengembangan secara koimpregnasi serta impregnasi terpisah katalis akan disajikan pada Gambar 4.5.



Gambar 4.5. Perbandingan Difraktogram H-ZAA dengan Katalis Mo-Ni/ZAA

Berdasarkan Gambar 4.5. pola difraktogram dengan rentang 2θ 0° - 67° pada H-ZAA dan katalis Mo-Ni/ZAA baik secara koimpregnasi maupun impregnasi terpisah menunjukkan pola yang hampir sama setelah H-ZAA terembani logam Ni dan Mo. Puncak-puncak dari masing-masing katalis juga terlihat semakin runcing dan tajam. Selain itu, Gambar 4.5. juga memperlihatkan *base line* dari H-ZAA dan katalis Mo-Ni/ZAA baik secara koimpregnasi maupun impregnasi terpisah hampir sama dan lurus sejajar dengan sumbu-x. Dengan demikian, dapat dikatakan bahwa kristalinitas dari H-ZAA tidak mengalami kerusakan setelah terjadi proses pengembunan logam Ni dan Mo secara koimpregnasi maupun impregnasi terpisah.

Gambar 4.5. menunjukkan adanya kecenderungan logam yang diimbakan berlebih menyebabkan pergeseran pola difraksi. Hal ini dapat terjadi karena logam yang diimbakan akan mengalami proses termal lebih banyak sehingga dapat

mempengaruhi dispersi logam serta distribusinya di dalam katalis. Munculnya puncak baru, pergeseran puncak, serta kenaikan intensitas puncak pada Gambar 4.5. mengindikasikan adanya distribusi logam Ni dan Mo serta paduan logam Mo-Ni pada permukaan katalis setelah proses pengembunan secara koimpregnasi dan impregnasi terpisah. Indikasi adanya logam Ni dan Mo serta paduan logam Mo-Ni ini didapatkan dengan membandingkan puncak baru pada difraktogram katalis dengan JCPDS logam Ni, Mo, serta paduan logam Mo-Ni.

Tabel 4.2. menyajikan harga d dan 2θ untuk tiga puncak terkuat dari difraktogram katalis H-ZAA dan Mo-Ni/ZAA baik secara koimpregnasi maupun impregnasi terpisah.

Tabel 4.2. Harga d dan 2θ untuk Puncak-Puncak Terkuat dari Difraktogram Katalis Mo-Ni/ZAA

Sampel katalis	Puncak I		Puncak II		Puncak III	
	d	2θ	D	2θ	d	2θ
H-ZAA	3,4210	26,0255	3,1827	28,0121	3,9297	22,6084
Co (1)	3,4572	25,7482	3,2121	27,7509	3,3484	26,6000
Co (2)	3,4415	25,8671	3,9577	22,4463	3,1980	27,8756
Co (3)	3,4425	25,8600	3,1995	27,8622	3,9599	22,4338
Im (1)	3,4298	25,9575	3,1874	27,9703	3,3214	26,8200
Im (2)	3,4053	26,1472	3,2020	27,8400	3,9583	22,4431
Im (3)	3,3343	26,7140	3,4474	25,8226	3,9629	22,4166

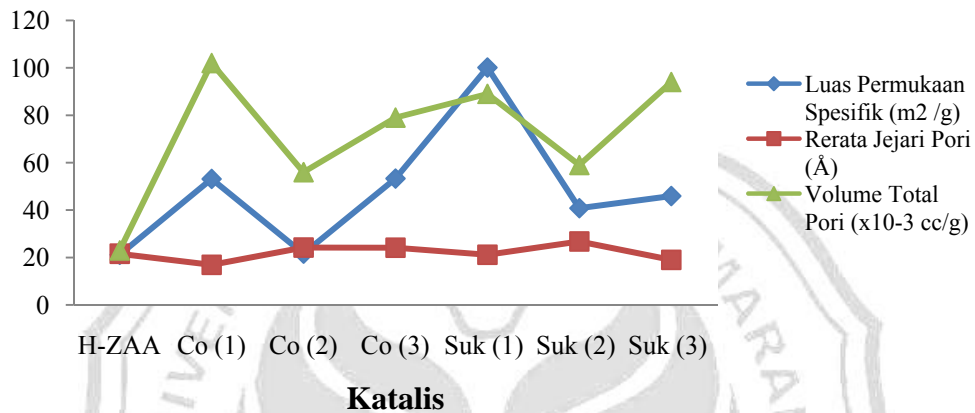
Tabel 4.3. menunjukkan puncak tajam H-ZAA pada $2\theta = 26,0255^\circ$ ($d = 3,4210 \text{ \AA}$), $2\theta = 28,0121^\circ$ ($d = 3,1827 \text{ \AA}$), $2\theta = 22,6084^\circ$ ($d = 3,9297 \text{ \AA}$). Puncak tajam dari H-ZAA ini juga ditunjukkan dengan puncak tajam dari katalis yang mempunyai harga d hampir sama dengan H-ZAA baik pada pengembunan secara koimpregnasi maupun impregnasi terpisah.

Berdasarkan perbandingan hasil XRD dengan JCPDS pengembunan secara koimpregnasi katalis Co (1) terlihat logam Ni pada $2\theta=39,4950^\circ$ ($d=2,27983\text{\AA}$); Mo pada $2\theta=37,2400^\circ$ ($d=2,41254\text{\AA}$); paduan logam Mo-Ni pada $2\theta=32,2158^\circ$ ($d=2,77638\text{\AA}$), katalis Co (2) terlihat logam Ni pada $2\theta=39,6166^\circ$ ($d=2,27311\text{\AA}$); Mo pada $2\theta=63,2545^\circ$ ($d=1,46894\text{\AA}$); paduan logam Mo-Ni pada $2\theta=32,0954^\circ$ ($d=2,78652\text{\AA}$), katalis Co (3) terlihat logam Ni pada $2\theta=39,5913^\circ$ ($d=2,27451\text{\AA}$); Mo pada $2\theta=37,1000^\circ$ ($d=2,42132\text{\AA}$); paduan logam Mo-Ni pada $2\theta=32,1275^\circ$ ($d=2,78381\text{\AA}$). Sedangkan pengembunan secara impregnasi katalis Im (1) terlihat logam Ni pada $2\theta=39,7125^\circ$ ($d=2,26785\text{\AA}$); Mo pada $2\theta=37,2633^\circ$ ($d=2,41108\text{\AA}$); paduan logam Mo-Ni pada $2\theta=32,2200^\circ$ ($d=2,77603\text{\AA}$), Im (2) terlihat logam Ni pada $2\theta=39,7033^\circ$ ($d=2,26835\text{\AA}$); Mo pada $2\theta=37,0853^\circ$ ($d=4,42225\text{\AA}$), Im (3) terlihat paduan logam Mo-Ni pada $2\theta=26,7140^\circ$ ($d=3,33438\text{\AA}$). Hal tersebut menunjukkan bahwa logam Ni dan Mo yang terdapat dalam sampel adalah dalam bentuk logamnya yang dibuktikan dengan adanya puncak-puncak pada harga d yang bersesuaian dengan puncak pada logam Ni dan Mo. Hasil tersebut menunjukkan bahwa perlakuan kalsinasi dengan gas N₂, oksidasi dengan gas O₂ dan reduksi dengan gas H₂, mampu merubah senyawa logam dalam garam prekursor Ni dan Mo atau bentuk oksidanya menjadi logam Ni dan Mo (bilangan oksidasi = 0). Walaupun demikian tidak menutup kemungkinan bahwa logam Ni dan Mo yang terembun masih dalam bentuk oksidanya.

4.1.5.4 Luas permukaan spesifik, Volume total pori, dan Rerata jejari pori

Analisis luas permukaan spesifik, volume total pori, dan rerata jejari pori menggunakan metode BET, disajikan pada Grafik 4.3.

Grafik 4.3. Hasil Analisis BET Katalis H-Zeolit dan Mo-Ni/ZAA



Grafik 4.3. diatas menunjukkan bahwa luas permukaan spesifik dan volume total pori zeolit cenderung meningkat setelah teremban logam Mo dan Ni secara koimpregnasi maupun impregnasi terpisah. Peningkatan luas permukaan spesifik zeolit setelah teremban logam Ni dan Mo menunjukkan bahwa pengembangan logam Ni dan Mo terdistribusi merata pada dinding pori. Selain itu, logam-logam yang diembankan tersebut dapat membentuk pori-pori baru sehingga volume total pori pun meningkat. Logam yang terdistribusi secara merata menyebabkan jumlah gas nitrogen yang teradsorpsi pada permukaan sampel meningkat.

Berdasarkan pada pengembangan secara koimpregnasi maupun impregnasi terpisah katalis (2) memiliki luas permukaan dan volume total pori yang lebih kecil dibandingkan dengan katalis (1) dan (3), tetapi memiliki rerata jari-jari pori yang

kebih besar. Hal ini dimungkinkan karena logam Ni dan Mo tidak terdispersi secara merata sehingga terjadi penumpukan logam yang mengakibatkan tertutupnya saluran pori zeolit dan menyebabkan jumlah gas nitrogen yang teradsorpsi pada permukaan zeolit menjadi berkurang.

Pada pengembunan secara impregnasi terpisah katalis Suk (1) dengan logam Ni diembankan terlebih dahulu memiliki luas permukaan yang paling besar diantara katalis Mo-Ni/ZAA dengan pengembunan secara koimpregnasi maupun impregnasi terpisah lainnya. Hal tersebut dapat terjadi karena logam Ni yang berukuran lebih kecil dari logam Mo yang diembankan terlebih dahulu sudah terdispersi secara merata ke dalam pori zeolit sehingga pori zeolit sudah terpenuhi dengan masuknya logam Ni yang tidak memberikan celah supaya logam Mo yang berukuran lebih besar dapat masuk ke dalam pori zeolit dan hanya menempel pada permukaan zeolit.

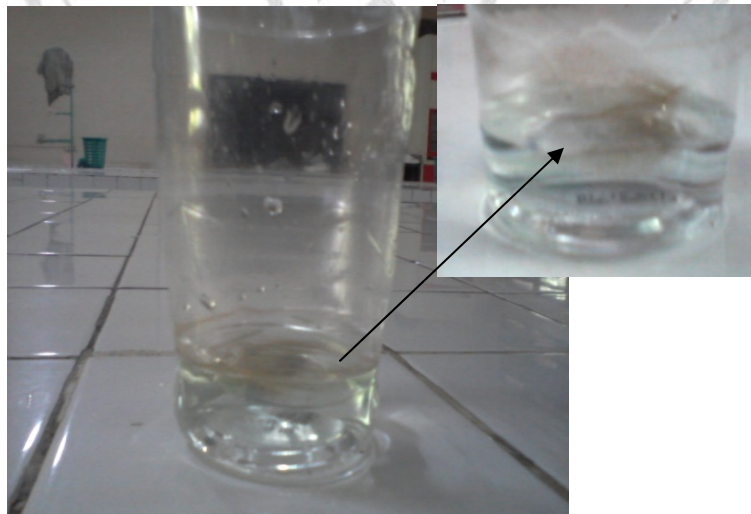
Luas permukaan katalis yang besar akan menyebabkan kontak reaktan dengan katalis menjadi lebih besar sehingga dapat memutus ikatan S pada proses Hidrodesulfurisasi dengan baik. Sedangkan volume pori yang besar akan memberi peluang yang besar kepada reaktan reaktan untuk dapat masuk ke dalam pori katalis sehingga adsorpsi reaktan di dalam pori katalis pun meningkat sehingga reaksi akan lebih cepat.

4.2 Uji Aktivitas Katalis

Proses Hidrodesulfurisasi tiofen merupakan proses reaksi hidrorengkah. Pencampuran tiofen dan n-heksan dengan rasio 1:1 dimaksudkan untuk menjaga

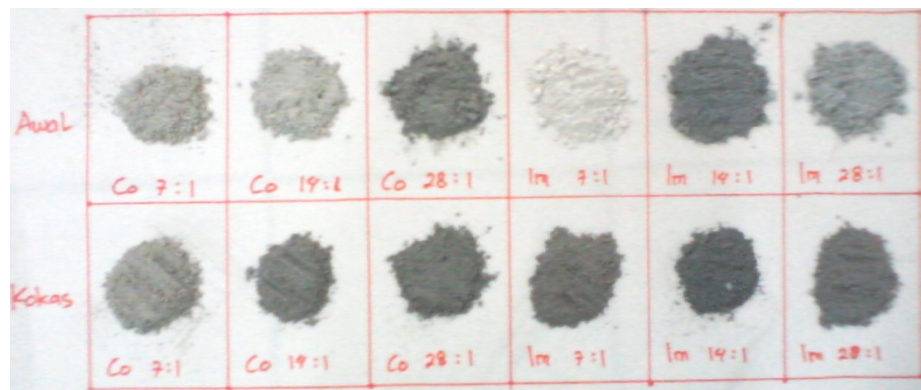
supaya produk dapat terdeteksi mengetahui kinerja katalis sebelum dan setelah dilakukan pengembanan logam Ni dan Mo ke dalam zeolit alam aktif. Produk tiofen yang berupa gas n-butan dapat larut dalam pelarut n-heksan yang bersifat polar.

Proses hidrodessulfurisasi tiofen pada penelitian ini dengan menguapkan umpan tiofen:n-heksan yang dialiri gas pembawa (H_2), kemudian masuk ke dalam reaktor (di dalamnya sudah terdapat katalis) pada laju alir H_2 40mL/menit dan temperatur $350^\circ C$. Produk cair yang dihasilkan dari proses hidrodessulfurisasi ini dianalisis menggunakan GC, sedangkan produk gas H_2S dalam penelitian ini hanya dianalisis secara kualitatif dengan menangkap gas yang dihasilkan dalam larutan $CuSO_4$. Gas yang keluar dimasukkan ke dalam larutan $CuSO_4$ sehingga pada dinding-dinding tempat keluarnya gas berwarna hitam. Warna hitam ini timbul karena adanya gas H_2S yang berikatan dengan $CuSO_4$ membentuk senyawa CuS ditunjukkan pada Gambar 4.6. dibawah ini.



Gambar 4.6. Senyawa CuS yang Terbentuk Berwarna Hitam

Kokas yang dihasilkan pada proses ini tidak ditentukan, tetapi ditunjukkan dengan perubahan warna katalis yang digunakan (disajikan pada Gambar 4.8). Dari Gambar 4.7. terlihat bahwa warna katalis menjadi lebih gelap yang diperkirakan warna gelap tersebut disebabkan oleh terdapatnya kokas yang terikat pada katalis.



Gambar 4.7. Perbedaan antara Katalis Awal dan Kokas

Berat produk cair dihitung dari berat tempat produk yang sudah berisi dikurangi dengan berat tempat produk kosong. Berat produk cair yang dihasilkan dari proses hidrodesulfurisasi tiofen dengan variasi metode pengembanan dan rasio Mo/Ni, disajikan pada Tabel 4.3.

Tabel 4.3. Data Berat Produk yang Dihasilkan dengan Variasi Katalis

Sampel katalis	Berat umpan 1:1 (gram)	Berat produk cair (gram)
H-ZAA	8	1,5397
Co (1)	8	2,0434
Co (2)	8	1,7527
Co (3)	8	0,5592
Im (1)	8	0,5227
Im (2)	8	1,1411
Im (3)	8	0,1049

Produk cair yang diperoleh dalam penelitian ini dimungkinkan berupa n-heksan, tiofen, dan produk gas n-butan hasil hidrodessulfurisasi yang larut dalam n-heksan. Data Tabel 4.3 tersebut digunakan untuk menentukan besarnya persen konversi HDS (hidrodessulfurisasi) dan HC (*hydrocracking*) yang dihitung dari perbandingan umpan. Penentuan konversi yang digunakan berdasarkan hasil kromatogram dari produk cair analisis GC. Data hasil perhitungan persen konversi HDS dan HC di dalam produk cair, disajikan pada Tabel 4.4.

Tabel 4.4. Data Persen Konversi HDS dan HC

Sampel katalis	% HDS	% HC
H-ZAA	95,95	65,42
Co (1)	92,94	55,81
Co (2)	94,99	61,04
Co (3)	98,65	87,83
Im (1)	98,94	87,93
Im (2)	95,54	75,85
Im (3)	99,75	97,62

Berdasarkan Tabel 4.4. kinerja katalis berperan terhadap proses HDS maupun HC. Hal ini ditunjukkan dengan adanya peningkatan persen konversi HDS dan HC pada katalis setelah diimbani logam Mo dan Ni. Tetapi pada pengembangan katalis secara koimpregnasi Co (1) dan Co (2) terjadi penurunan persen konversi baik dalam proses HDS maupun HC. Hal ini dimungkinkan kinerja dari kedua katalis tersebut kurang optimal dan terjadi penggumpalan pada saat proses berlangsung. Tingkat persen konversi dari produk cair hasil proses hidrodessulfurisasi mendekati 100% untuk masing-masing katalis. Hal ini berarti katalis tersebut baik digunakan untuk memutus ikatan S pada senyawa tiofen menjadi senyawa hidrokarbon rantai

panjang C₄. Aktivitas katalis optimum ditunjukkan pada katalis Im (3) pada pengembunan secara impregnasi terpisah yang menunjukkan konversi HDS sebesar 99,75% dan konversi HC sebesar 97,62%.

Dilihat dari data konversi HDS Tabel 4.5. diatas dapat menimbulkan hipotesis yang menyatakan tidak ada perbedaan pengaruh metode pengembunan secara koimpregnasi dan impregnasi terpisah yang signifikan terhadap hasil konversi HDS. Hal ini dapat ditunjukkan dengan hasil perhitungan nilai F₀ dari kedua metode tersebut. Hasil perhitungan F₀ diperoleh 1,46 dengan taraf signifikansi 5% dari tabel F diperoleh F_{0,05(1,3)}=7,71. Dengan demikian berarti pada α= 5% F₀=1,46 < F_{0,05(1,3)}, yang mengindikasikan bahwa hipotesis tentang pengaruh metode pengembunan secara koimpregnasi dan impregnasi terpisah diterima.

Hasil analisis GC-MS terhadap salah satu produk dari proses HDS tiofen menunjukkan puncak kromatogram dengan waktu retensi 2,264 menit yang memiliki berat molekul 58 g/mol. Berdasarkan fragmentasi yang terjadi, senyawa dengan berat molekul 58 g/mol tersebut kemungkinan adalah 2-propanon. Selain 2-propanon, GC-MS juga mendeteksi adanya produk reaksi HC n-heksan yang berupa puncak kromatogram dengan waktu retensi 2,610 menit, 2,710 menit, 2,837 menit, 3,127 menit yang memiliki berat molekul masing-masing berturut-turut 86 g/mol, 86 g/mol, 86 g/mol, 84 g/mol. Berdasarkan fragmentasi yang terjadi, senyawa tersebut kemungkinan berturut-turut adalah 2-metil pentana, 3-metil pentana, n-heksana, metal-1-siklopentana. Selain itu juga terdeteksi kromatogram dari senyawa tiofen pada waktu retensi 3,628 menit dengan berat molekul sebesar 84 g/mol.

Dari hasil analisis GC-MS produk hasil konversi dari HDS tidak terdeteksi yang terdeteksi hanya 2-propanon. Hal ini disebabkan karena produk hasil konversi dari senyawa tiofen tersebut sudah menguap sebelum dianalisis menggunakan GC-MS.



BAB 5

PENUTUP

5.1 Kesimpulan

Berdasarkan hasil penelitian dan pembahasan, dapat disimpulkan bahwa:

1. Rasio prekursor Mo/Ni yang mempunyai karakter terbaik adalah katalis Suk (3) yang diembankan secara impregnasi terpisah rasio setelah teremban adalah 2:1 dengan jumlah kandungan logam sebesar sebesar 0,294 gram, memiliki situs asam paling besar yaitu 4,821 mmol/gram, dan kristalinitas dengan intensitas 3662 pada $2\theta: 26,1740(\text{deg})$ dan nilai $d: 3,33438(\text{Å})$. Sedangkan luas permukaan katalisnya sebesar $45,910 \text{ m}^2/\text{g}$ dengan rerata jejari pori sebesar $18,991 \text{ Å}$ dan volume pori sebesar $0,094 \text{ cc/g}$.
2. Secara umum dalam penelitian ini antara metode koimpregnasi dan impregnasi terpisah mempunyai karakter yang tidak jauh berbeda, hanya pada metode Suk (1) yang karakternya sedikit berbeda karena memiliki keasaman yang rendah dan luas permukaan paling besar.
3. Tidak ada pengaruh metode pengembanan dan rasio Mo/Ni katalis Mo-Ni/ZAA terhadap hasil uji aktivitas katalis Mo-Ni/ZAA karena % konversi HDS yang diperoleh pada masing-masing katalis hampir sama mendekati 100%.

5.2 Saran

Berdasarkan hasil penelitian yang dilakukan, penulis dapat memberikan saran sebagai berikut:

1. Perlu dilakukan sintesis ulang supaya menghasilkan karakteristik yang jauh lebih baik sehingga didapatkan perbedaan pengaruh metode pengembanan secara koimpregnasi dan impregnasi terpisah dengan variasi rasio.
2. Perlu dilakukan analisis kuantitatif dari produk gas yang dihasilkan agar didapatkan bukti bahwa produk gas yang keluar benar-benar gas H₂S.
3. Perlu dilakukan kajian tentang proses hidrodessulfurisasi tiofen lebih lanjut tanpa ada pencampuran tiofen dan n-heksan agar dapat diketahui produk yang dihasilkan hanya senyawa-senyawa karbon dengan rantai pendek tidak melebihi rantai karbon C₄.

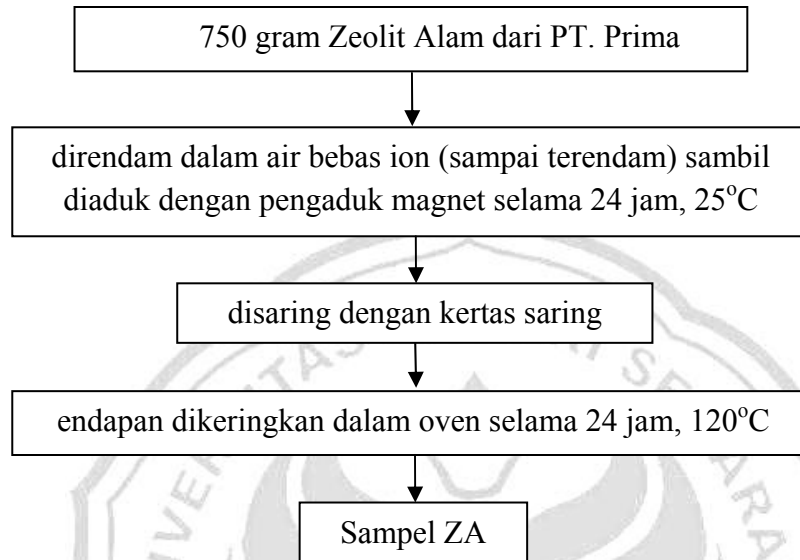
DAFTAR PURTAKA

- Babich, I., V., & Moulijn, J., A. 2003. Science and Technology of Novel Processes for Deep Desulfurization of Oil Refinery Streams: A Review. *Fuel* 82 (2003) 607–631. The Netherlands: Faculty of Applied Sciences, Delft University of Technology, Delft ChemTech, Julianalaan 136, 2628 BL Delft.
- Busrah, M. 2011. Minyak Bumi, Panduan Belajar Siswa Kelas X SMA. *Widyaiswara Lpmp Sulawesi Selatan*. Online. Tersedia di http://lpmpsulsel.net/v2/attachments/115_minyakbumi_panduan_kls_X_sma_Busrah.pdf (diakses 06-12-2011).
- Fatimah, I., dan Wijaya, K. 2005. Sintesis TiO₂/Zeolit Sebagai Fotokatalis Pada Pengolahan Limbah Cair Industri Tapioka Secara Adsorpsi-Fotodegradasi. *TEKNOIN*, Vol. 10, No. 4, Desember 2005, 257-267.
- Firdaus, A. 2009. *Aplikasi Bentonit-Zeolit Dalam Meningkatkan Mutu Minyak Akar Wangi Hasil Penyulingan Daerah Kabupaten Garut*. Skripsi. Bogor: FMIPA INSTITUT PERTANIAN BOGOR.
- Lauritsen, J., V. 2002. *Atomic-scale Study of a Hydrodesulfurization Model Catalyst*. Thesis. Aarhus: Department of Physics and Astronomy University of Aarhus.
- Maryani, 2004. *Pengaruh Cara Pengembanan Logam Ni dan Mo pada Zeolit Alam Aktif Terhadap Karakter Katalis Bimetal*. Skripsi. Surakarta: Universitas Sebelas Maret Surakarta.
- Musta, R. 2011. Hidrodesulfurisasi Tiofen Menggunakan Katalis Como/H-Zeolit Y. *Jurnal Fisika FLUX*, Vol. 8 No.1, Pebruari 2011 (1 – 6).
- Nugrahaningtyas, K., D., Widjonarko, D., M., Trisunaryanti, W., Triyono. 2009. Preparation and Characterization Of NiMo/Active Natural Zeolite Catalysts. *CHEMICAL, BIOLOGICAL AND ENVIRONMENTAL ENGINEERING - Proceedings of the International Conference on CBEE 2009*, (171-174)
- Nugrahaningtyas, K., D., Widjonarko, D., M., Wijaya, D. 2005. Efektivitas Pengembanan Logam Monometal (Ni, Mo) dan bimetal (NiMo) pada Zeolit Alam Aktif. *Seminar Nasional Kimia XIV*, FMIPA, UGM.

- Pujiastuti, C. & Adi Saputro, E. 2008. Model Matematika Adsorpsi Zeolit Alam Terhadap Ion Zn pada Air Limbah Elektroplating. *Jurnal Teknik Kimia*. Vol.2, No.2, April 2008: 147-153.
- Rini, D., K. & Fendi, A., L. 2010. *Optimasi Aktivasi Zeolit Alam Untuk Dehumidifikasi*. Skripsi. Semarang: Jurusan Teknik Kimia, FT, Universitas Diponegoro.
- Setiadi dan Pertiwi, A. 2007. Preparasi dan Karakterisasi Zeolit Alam Untuk Konversi Senyawa Abe Menjadi Hidrokarbon. *Prosiding Konggres dan Simposium Nasional Kedua Mkics 2007*. ISSN : 0216 – 4183. Depok: Departemen Teknik Kimia, Fakultas Teknik Universitas Indonesia.
- Trisunaryanti, W., Triwahyuni, E., and Sudiono, S. 2005. Preparasion, Characterizations And Modification Of Ni-Pd/Natural Zeolite Catalysts. *Indo. J. Chem.* 2005. 5 (1). 48 – 53.
- Trisunaryanti, W., Triwahyuni, E., dan Sudiono, S. 2005. Preparasi, Modifikasi dan Karakterisasi Katalis Ni-Mo/Zeolit Alam dan Mo-Ni/Zeolit Alam. *TEKNOIN*, Vol.10, No.4, Desember 2005, 269-282.
- Triyono. 2002. *Kimia Katalis*. Yogyakarta: Jurusan Kimia FMIPA Universitas Gadjah Mada.
- Wang, B., Zhu, J., & Hongzhu Ma. 2009. Desulfurization From Thiophene By $\text{SO}_4^{2-}/\text{ZrO}_2$ Catalytic Oxidation At Room Temperature And Atmospheric Pressure. *Jo urnal of Hazardous Materials*, 164 (2009) 256–264.
- Witanto, E., Trisunaryanti, W., Triyono. 2010. Preparasi dan Karakterisasi Katalis Ni-Mo/Zeolit Alam Aktif. *SEMINAR NASIONAL VI SDM TEKNOLOGI NUKLIR YOGYAKARTA*, 18 NOVEMBER 2010, ISSN 1978-0176.
- Yuanita, D. Lestari. 2010. Kajian Modifikasi dan Karakterisasi Zeolit Alam dari Berbagai Negara. *Prosiding Seminar Nasional Kimia Dan Pendidikan Kimia 2010*, Yogyakarta, 30 Oktober 2010, ISBN: 978-xxx-xxxxx-x-x.
- Yusnani, A. 2008. *Konsentrasi Prekursor Logam dan Metode Impregnasi pada Preparasi Nimo/Zeolit Y Terhadap Karakter Katalis*. Skripsi. Surakarta: FMIPA Universitas Sebelas Maret Surakarta.

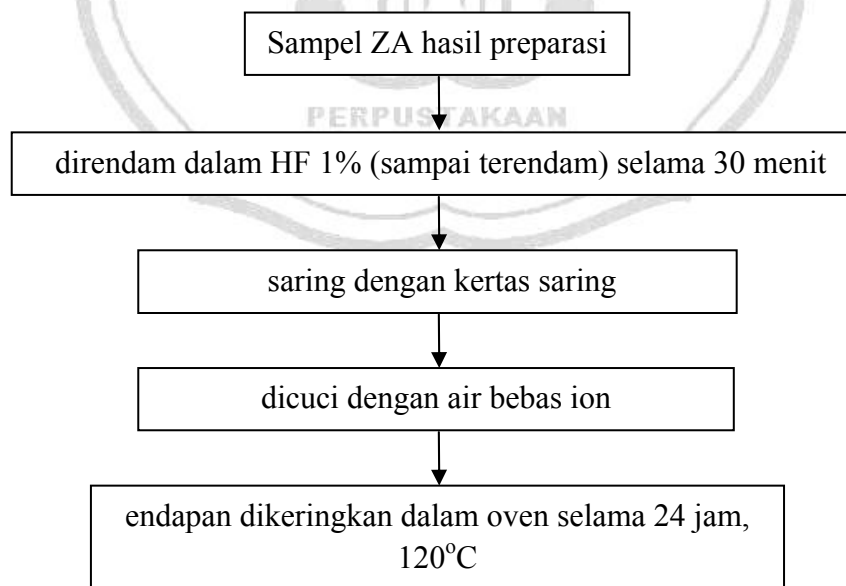
Lampiran 1. Diagram Alir Prosedur Penelitian

1. Perlakuan Awal Zeolit Alam

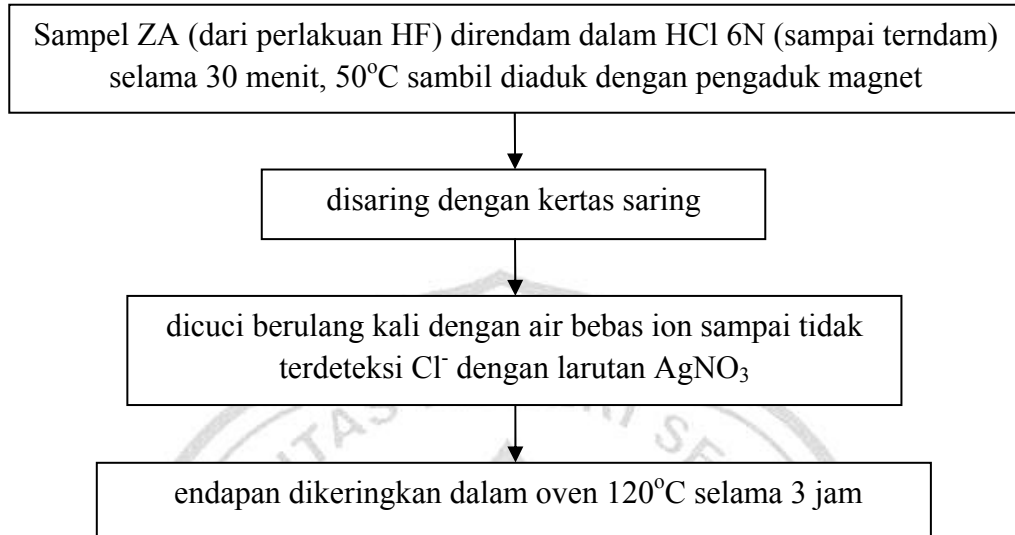


2. Aktivasi zeolit dengan perlakuan HF, HCL, dan NH₄Cl

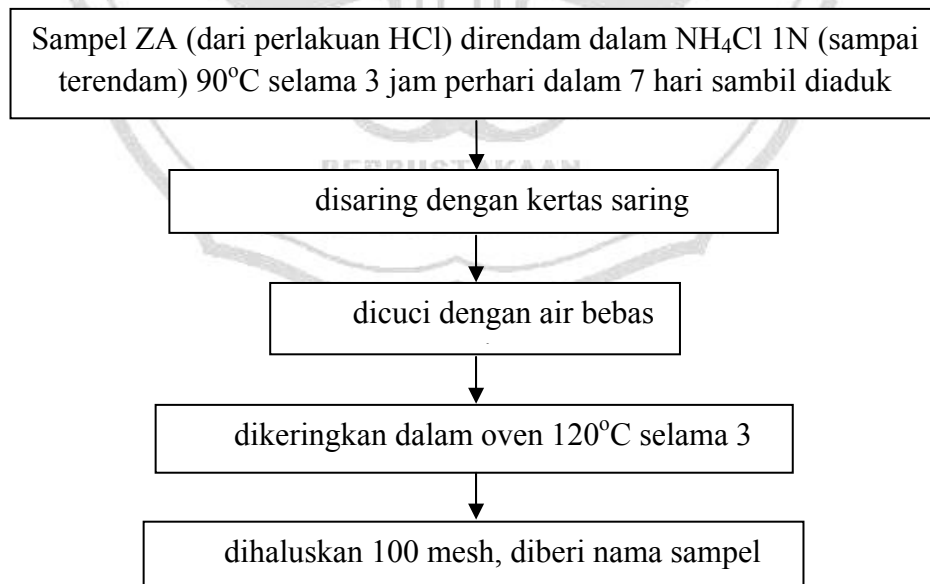
Perlakuan dengan HF



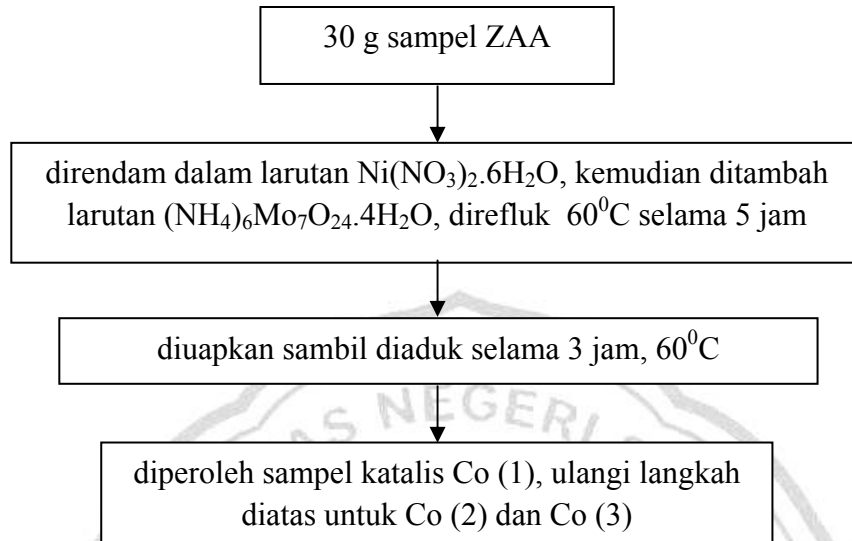
Perlakuan dengan HCl



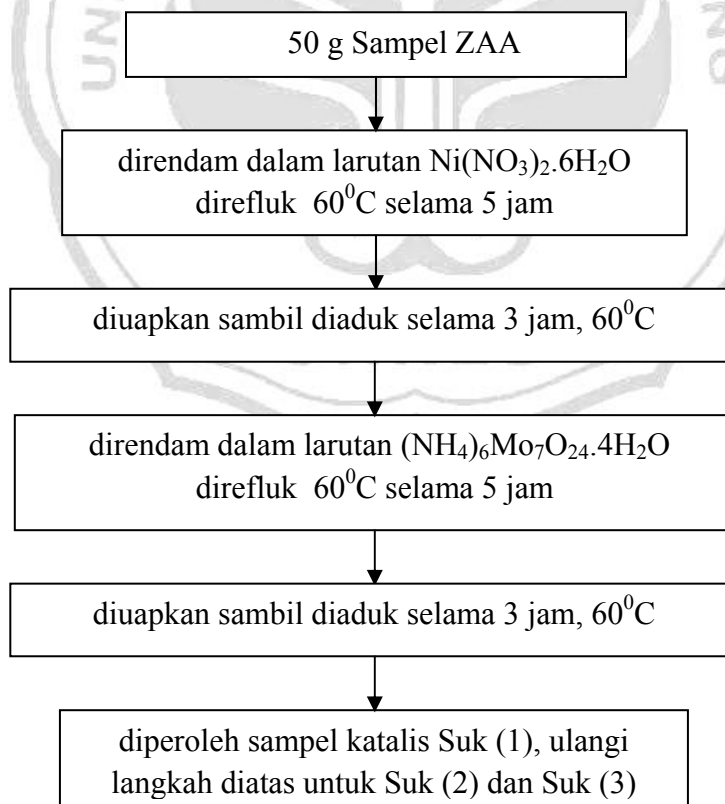
Perlakuan dengan NH₄Cl



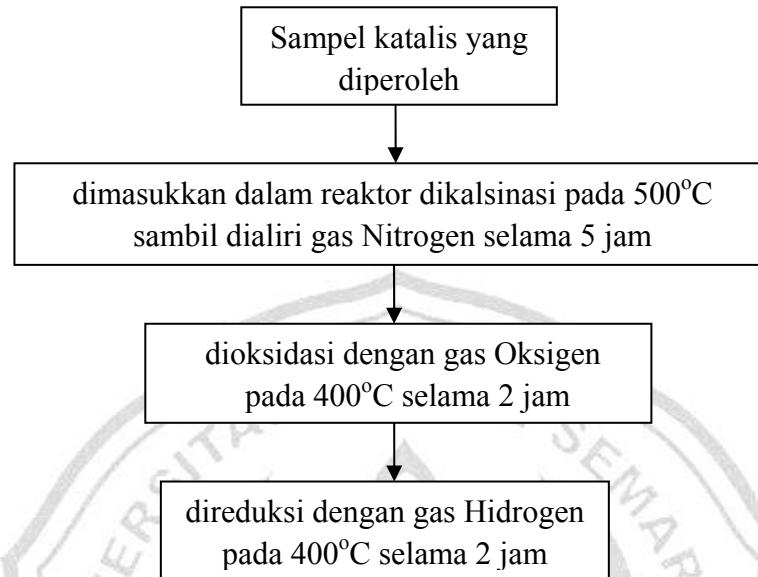
3. Preparasi Katalis Mo-Ni/ZAA secara koimpregnasi



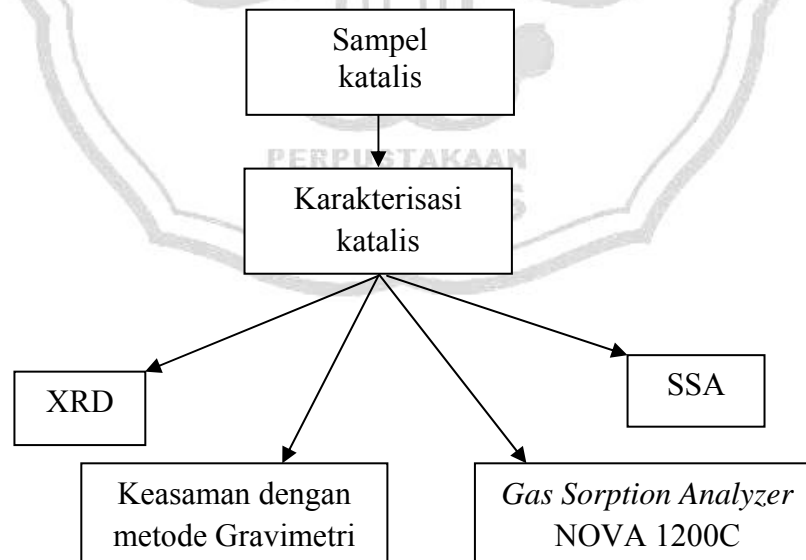
4. Preparasi Katalis Mo-Ni/ZAA secara impregnasi terpisah



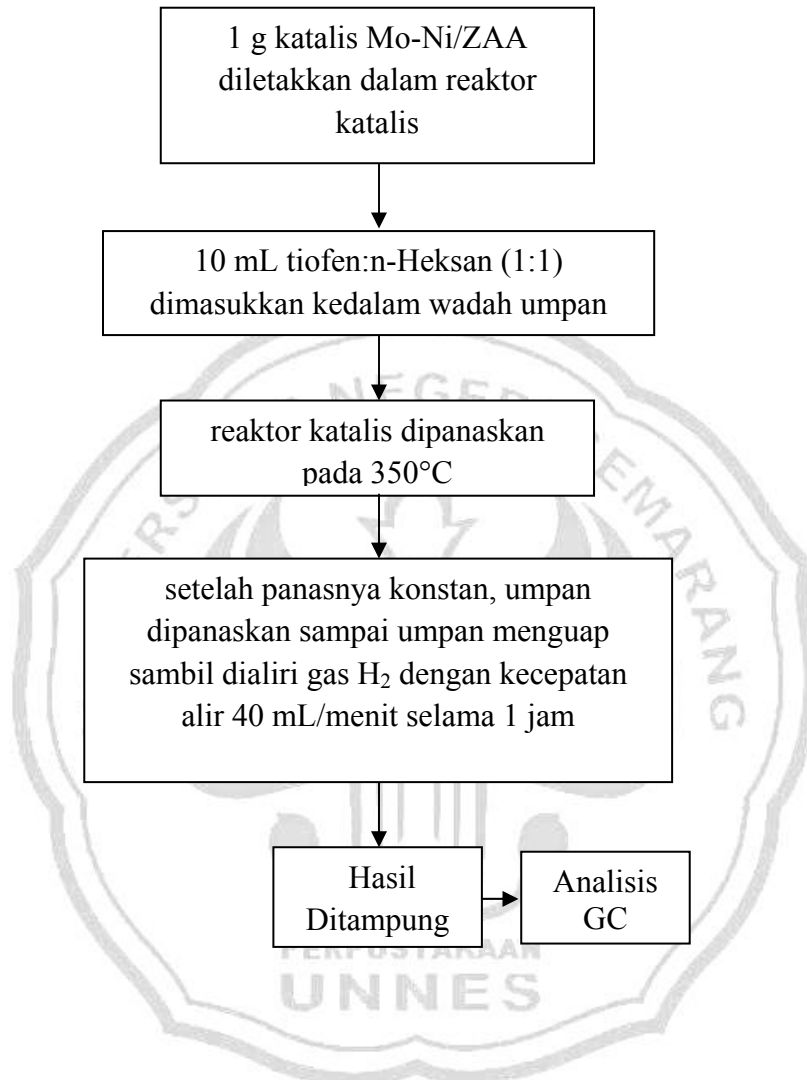
5. Kalsinasi, oksidasi, dan reduksi sampel katalis



6. Karakterisasi katalis



7. Uji Aktivitas Katalis



Lampiran 2. Hasil Analisis AAS

Sampel Mo-Ni/ZAA	Pengukuran Logam	Hasil Pengukuran (ppm)	Rata-Rata (ppm)	Massa logam (gram)	Rasio Mo/Ni
ZAA	Mo	3,908	3,806	0,002	5:1
		3,705			
	Ni	3,806	0,695	0,0004	
		0,690			
Co-1	Mo	0,706	11,931	0,072	1:2
		11,931			
	Ni	11,830	22,960	0,138	
		12,033			
Co-2	Mo	23,014	11,626	0,07	1:1
		12,134			
	Ni	11,220	10,833	0,065	
		11,525			
Co-3	Mo	10,833	12,642	0,076	4:3
		10,833			
	Ni	12,439	9,922	0,06	
		12,642			
Suk-1	Mo	9,987	0,658	0,004	1:20
		0,658			
	Ni	0,759	12,656	0,076	
		0,556			
Suk-2	Mo	12,786	33,999	0,204	10:7
		31,968			
	Ni	34,000	23,177	0,139	
		36,031			
Suk-3	Mo	23,503	32,984	0,198	2:1
		22,689			
	Ni	23,340	15,962	0,096	
		35,015			

Lampiran 3. Data dan Perhitungan Keasaman Katalis dengan Basa

Amonia

Sampel	Berat Krus Kosong (W_0)	Berat Krus + sampel (W_1)	Berat Krus + sampel + NH_3 (W_2)	Keasaman NH_3 (mmol/gram)
H-ZAA	20,3148	21,2945	21,3402	2,742
Co (1)	36,8341	37,8014	37,8785	4,689
Co (2)	31,9037	32,8854	32,9610	4,529
Co (3)	35,3123	36,2971	36,3690	4,295
Suk (1)	20,7071	21,6883	21,7295	2,469
Suk (2)	37,2854	38,3148	38,3861	4,074
Suk (3)	21,8406	22,8815	22,9668	4,821

$$\text{Keasaman} = \frac{(W_2 - W_1)}{(W_1 - W_0)} \times \frac{1000}{M_b}$$

1. Keasaman H-ZAA

$$\text{Keasaman H - ZAA} = \frac{(21,3402 - 21,2945)}{(21,2945 - 20,3148)} \times \frac{1000}{17} = 2,742 \text{ mmol/gram}$$

2. Keasaman Co (1)

$$\text{Keasaman Co (1)} = \frac{(37,8785 - 37,8014)}{(37,8014 - 36,8341)} \times \frac{1000}{17} = 4,689 \text{ mmol/gram}$$

3. Keasaman Co (2)

$$\text{Keasaman Co (2)} = \frac{(32,9610 - 32,8854)}{(32,8854 - 31,9037)} \times \frac{1000}{17} = 4,529 \text{ mmol/gram}$$

4. Keasaman Co (3)

$$\text{Keasaman Co (3)} = \frac{(36,3690 - 36,2971)}{(36,2971 - 35,3123)} \times \frac{1000}{17} = 4,295 \text{ mmol/gram}$$

5. Keasaman suk (1)

$$\text{Keasaman Suk (1)} = \frac{(21,7295 - 21,6883)}{(21,6883 - 20,7071)} \times \frac{1000}{17} = 2,469 \text{ mmol/gram}$$

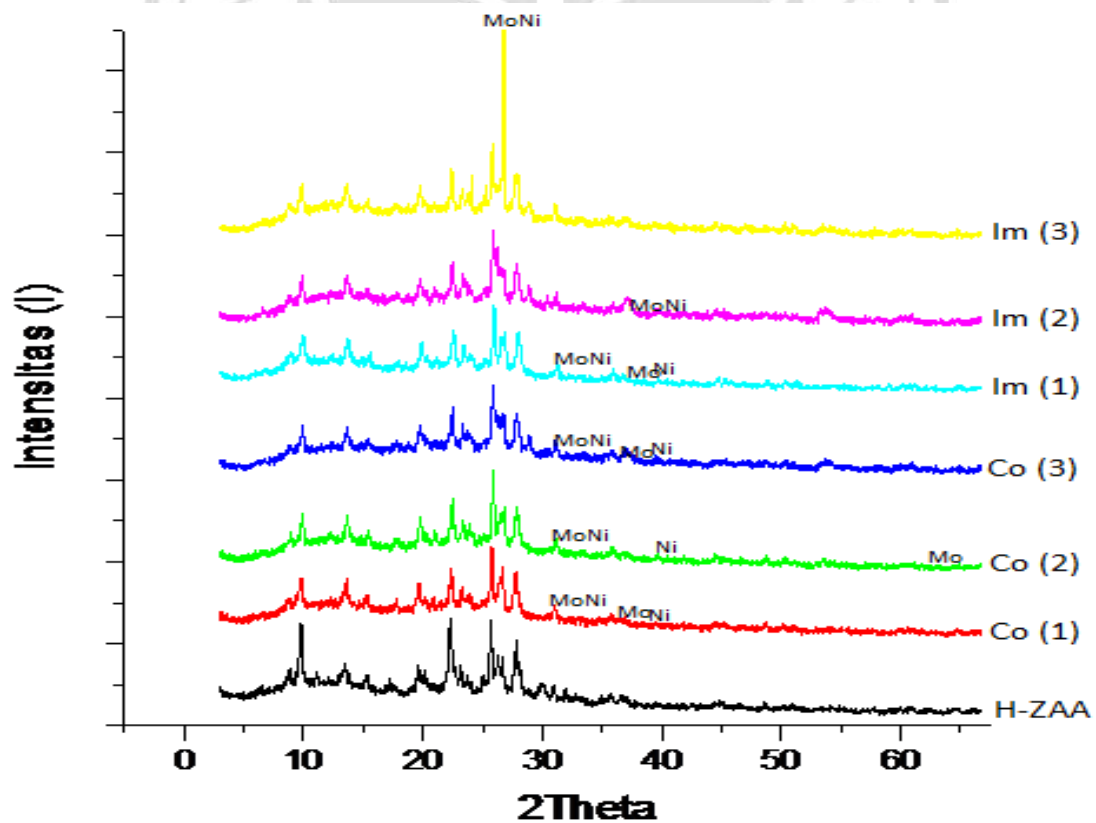
6. Keasaman Suk (2)

$$\text{Keasaman Suk (2)} = \frac{(38,3861 - 38,3148)}{(38,3148 - 37,2854)} \times \frac{1000}{17} = 4,074 \text{ mmol/gram}$$

7. Keasaman Suk (3)

$$\text{Keasaman Suk (3)} = \frac{(22,9668 - 22,8815)}{(22,8815 - 21,8406)} \times \frac{1000}{17} = 4,821 \text{ mmol/gram}$$

Lampiran 4. Hasil Analisis XRD Katalis H-ZAA dan Mo-Ni/ZAA



**Data Harga d dan 2θ untuk Puncak-Puncak Terkuat dari
Difraktogram Katalis H-ZAA dan Mo-Ni/ZAA**

Sampel katalis	Puncak I		Puncak II		Puncak III	
	d	2θ	D	2θ	D	2θ
H-ZAA	3,4210	26,0255	3,1827	28,0121	3,9297	22,6084
Co (1)	3,4572	25,7482	3,2121	27,7509	3,3484	26,6000
Co (2)	3,4415	25,8671	3,9577	22,4463	3,1980	27,8756
Co (3)	3,4425	25,8600	3,1995	27,8622	3,9599	22,4338
Suk (1)	3,4298	25,9575	3,1874	27,9703	3,3214	26,8200
Suk (2)	3,4053	26,1472	3,2020	27,8400	3,9583	22,4431
Suk (3)	3,3343	26,7140	3,4474	25,8226	3,9629	22,4166

Lampiran 5. Hasil Analisis BET Katalis H-ZAA dan Mo-Ni/ZAA

Sampel katalis	Luas Permukaan	Rerata Jejari	Volume Total
	Spesifik (m^2/g)	Pori (\AA)	Pori (cc/g)
H-ZAA	21,135	21,604	0,023
Co (1)	53,107	16,935	0,102
Co (2)	21,591	24,222	0,056
Co (3)	53,282	24,134	0,079
Suk (1)	100,093	21,144	0,089
Suk (2)	40,787	26,747	0,059
Suk (3)	45,910	18,991	0,094

1. Hasil Analisis BET Katalis Co (1)

Quantachrome NovaWin - Data Acquisition and Reduction
for NOVA instruments
©1994-2010, Quantachrome Instruments
version 11.0



Analysis		Report	
Operator:nova	Date:2012/09/20	Operator:nova	Date:10/2/2012
Sample ID: Sovi	Filename:	C:\QCdata\Physisorb\201209211Sovi Nurul I.qps	
Sample Desc: Zeolit Mo:Ni 1:1 (co-impreg)	Comment:	Sample Volume: 0.02641 cc	Sample Density: 3.9 g/cc
Sample weight: 0.103 g	OutgasTemp: 300.0 C	Bath Temp: 77.3 K	
Outgas Time: 3.0 hrs	Equil time: 60/60 sec (ads/des)	Equil timeout: 240/240 sec (ads/des)	
Analysis gas: Nitrogen	End of run: 2012/09/20 13:04:57	Instrument: Nova Station A	
Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)		F/W version: 0.00	
Analysis Time: 122.8 min			
Cell ID: 98			

Multi-Point BET

Data Reduction Parameters Data

Adsorbate	Po override: 760.00 mmHg	Temperature	77.350K	Liquid Density:	0.808 g/cc
	Nitrogen	Cross Section:	16.200 Å²		
	Molec. Wt.: 28.013 g				

Multi-Point BET Data

Relative Pressure [P/Po]	Volume @ STP [cc/g]	1 / [W((Po/P) - 1)]	Relative Pressure [P/Po]	Volume @ STP [cc/g]	1 / [W((Po/P) - 1)]
4.62025e-02	11.3312	3.4204e+00	2.44644e-01	16.0767	1.6119e+01
7.24915e-02	12.7085	4.9207e+00	2.70142e-01	16.7714	1.7658e+01
1.46733e-01	14.1062	9.7540e+00	2.96416e-01	17.4000	1.9373e+01
1.96443e-01	15.1470	1.2914e+01	3.46444e-01	18.2160	2.3284e+01

BET summary

Slope = 65.381
Intercept = 1.945e-01
Correlation coefficient, r = 0.999511
C constant = 337.162
Surface Area = 53.107 m²/g

Quantachrome NovaWin - Data Acquisition and Reduction
for NOVA Instruments
©1994-2010, Quantachrome Instruments
version 11.0



Analysis		Report	
Operator:nova	Date:2012/09/20	Operator:nova	Date:10/2/2012
Sample ID: Sovi	Filename:	C:\QCdata\Physisorb\201209211Sovi Nurul I.qps	
Sample Desc: Zeolit Mo:Ni 1:1 (co-impreg)	Comment:		
Sample weight: 0.103 g	Sample Volume: 0.02641 cc	Sample Density: 3.9 g/cc	
Outgas Time: 3.0 hrs	OutgasTemp: 300.0 C		
Analysis gas: Nitrogen	Bath Temp: 77.3 K		
Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)	Equil time: 60/60 sec (ads/des)	Equil timeout: 240/240 sec (ads/des)	
Analysis Time: 122.8 min	End of run: 2012/09/20 13:04:57	Instrument: Nova Station A	
Cell ID: 98		F/W version: 0.00	

BJH Pore Size Distribution Adsorption

Data Reduction Parameters Data

t-Method	Po override: 760.00 mmHg		
BJH/DH method	Calc. method: de Boer		
Adsorbate	Moving pt. avg.: off	Ignoring P-tags below 0.35 P/Po	
	Nitrogen	Temperature 77.350K	
	Molec. Wt.: 28.013 g	Cross Section: 16.200 Å ²	Liquid Density: 0.808 g/cc
	Contact Angle: 0.0 degrees	Surf. Tension: 8.850 erg/cm ²	

BJH Pore Size Distribution Adsorption Data

Radius [Å]	Pore Volume [cc/g]	Pore Surf Area [m ² /g]	dV(r) [cc/Å/g]	dS(r) [m ² /Å/g]	dV(logr) [cc/g]	dS(logr) [cc/g]
16.9354	1.6093e-03	1.9005e+00	8.6604e-04	1.0228e+00	3.3738e-02	3.9843e+01
18.9282	2.9886e-03	3.3579e+00	6.4836e-04	6.8507e-01	2.8228e-02	2.9827e+01
21.3094	4.0732e-03	4.3759e+00	4.1160e-04	3.8631e-01	2.0170e-02	1.8931e+01
24.1494	4.8742e-03	5.0392e+00	2.6307e-04	2.1787e-01	1.4609e-02	1.2099e+01
26.6421	5.8169e-03	5.7470e+00	4.8578e-04	3.6467e-01	2.9787e-02	2.2361e+01
28.6001	7.0361e-03	6.5995e+00	6.1723e-04	4.3163e-01	4.0631e-02	2.8413e+01
32.1277	8.3945e-03	7.4452e+00	2.6741e-04	1.6647e-01	1.9741e-02	1.2289e+01
36.3747	9.8349e-03	8.2371e+00	4.2188e-04	2.3197e-01	3.5309e-02	1.9414e+01
39.8807	1.0855e-02	8.7487e+00	2.8352e-04	1.4218e-01	2.6018e-02	1.3048e+01
46.0806	1.2986e-02	9.6738e+00	2.4215e-04	1.0510e-01	2.5615e-02	1.1118e+01
57.3923	1.6473e-02	1.0889e+01	2.5228e-04	8.7913e-02	3.3177e-02	1.1561e+01
69.6864	1.9011e-02	1.1617e+01	2.3568e-04	6.7639e-02	3.7741e-02	1.0832e+01
82.1833	2.2254e-02	1.2407e+01	2.2800e-04	5.5485e-02	4.3037e-02	1.0473e+01
121.5301	3.6920e-02	1.4820e+01	2.2749e-04	3.7438e-02	6.2138e-02	1.0226e+01
241.5155	7.3867e-02	1.7880e+01	2.1052e-04	1.7433e-02	1.1172e-01	9.2520e+00
377.3804	1.0232e-01	1.9388e+01	2.9571e-04	1.5672e-02	2.5556e-01	1.3544e+01

BJH adsorption summary

Surface Area = 19.388 m²/g
Pore Volume = 0.102 cc/g
Pore Radius Dv(r) = 16.935 Å

2. Hasil Analisis BET Katalis Co (2)

Quantachrome NovaWin - Data Acquisition and Reduction
for NOVA Instruments
©1994-2010, Quantachrome Instruments
version 11.0

Quantachrome
INSTRUMENTS

Optimizing particle performance

Analysis		Report	
Operator:nova	Date:2012/09/24	Operator:nova	Date:10/2/2012
Sample ID: sovi nurul	Filename:	C:\QCdata\Physisorb\201209251Sovi_nurul.qps	
Sample Desc: Na-Bentonit	Comment:	Sample Volume: 0.02636 cc	Sample Density: 3.9 g/cc
Sample weight: 0.1028 g	Sample Volume:	Outgas Temp: 300.0 C	
Outgas Time: 3.0 hrs	Bath Temp:	77.3 K	
Analysis gas: Nitrogen	Equil time:	60/60 sec (ads/des)	Equil timeout: 240/240 sec (ads/des)
Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)	End of run:	2012/09/24 12:03:27	Instrument: Nova Station A
Analysis Time: 106.2 min			F/W version: 0.00
Cell ID: 92			

Multi-Point BET

Data Reduction Parameters Data

Adsorbate	Po override: 760.00 mmHg	Temperature	77.350K	Liquid Density:	0.808 g/cc
Nitrogen		Cross Section:	16.200 Å ²		
Molec. Wt.: 28.013 g					

Multi-Point BET Data

Relative Pressure [P/Po]	Volume @ STP [cc/g]	1 / [W((Po/P) - 1)]	Relative Pressure [P/Po]	Volume @ STP [cc/g]	1 / [W((Po/P) - 1)]
5.64175e-02	5.6165	8.5176e+00	2.49847e-01	7.0026	3.8055e+01
7.93453e-02	5.9839	1.1524e+01	2.75437e-01	7.1452	4.2568e+01
1.51314e-01	6.5009	2.1944e+01	3.03095e-01	7.2699	4.7866e+01
1.97517e-01	6.7518	2.9167e+01	3.48139e-01	7.5658	5.6480e+01

BET summary

Slope = 163.160
Intercept = -1.863e+00
Correlation coefficient, r = 0.998264
C constant = -86.571
Surface Area = 21.591 m²/g

Quantachrome NovaWin - Data Acquisition and Reduction
for NOVA instruments
©1994-2010, Quantachrome Instruments
version 11.0



Analysis		Report	
Operator:nova	Date:2012/09/24	Operator:nova	Date:10/2/2012
Sample ID: sovi nurul	Filename:	C:\QCdata\Physisorb\201209251Sovi_nurul.qps	
Sample Desc: Na-Bentonit	Comment:		
Sample weight: 0.1028 g	Sample Volume: 0.02636 cc	Sample Density: 3.9 g/cc	
Outgas Time: 3.0 hrs	OutgasTemp: 300.0 C		
Analysis gas: Nitrogen	Bath Temp: 77.3 K		
Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)	Equil time: 60/60 sec (ads/des)	Equil timeout: 240/240 sec (ads/des)	
Analysis Time: 106.2 min	End of run: 2012/09/24 12:03:27	Instrument: Nova Station A	
Cell ID: 92		F/W version: 0.00	

BJH Pore Size Distribution Adsorption

Data Reduction Parameters Data

t-Method	Po override: 760.00 mmHg		
BJH/DH method	Calc. method: de Boer		
Adsorbate	Moving pt. avg.: off	Ignoring P-tags below 0.35 P/Po	
	Nitrogen	Temperature 77.350K	
	Molec. Wt.: 28.013 g	Cross Section: 16.200 Å ²	Liquid Density: 0.808 g/cc
	Contact Angle: 0.0 degrees	Surf. Tension: 8.850 erg/cm ²	

BJH Pore Size Distribution Adsorption Data

Radius	Pore Volume	Pore Surf Area	dV(r)	dS(r)	dV(logr)	dS(logr)
[Å]	[cc/g]	[m ² /g]	[cc/Å/g]	[m ² /Å/g]	[cc/g]	[cc/g]
16.9625	2.2645e-04	2.6700e-01	1.1851e-04	1.3973e-01	4.6238e-03	5.4519e+00
18.9298	4.2291e-04	4.7456e-01	9.7074e-05	1.0256e-01	4.2272e-03	4.4661e+00
21.3004	6.9142e-04	7.2669e-01	9.8808e-05	9.2776e-02	4.8396e-03	4.5441e+00
24.2222	2.5432e-03	2.2556e+00	5.9235e-04	4.8910e-01	3.2992e-02	2.7241e+01
26.5736	2.8284e-03	2.4703e+00	1.8088e-04	1.3614e-01	1.1065e-02	8.3275e+00
28.5902	3.2021e-03	2.7317e+00	1.5213e-04	1.0642e-01	1.0009e-02	7.0017e+00
32.1911	3.8153e-03	3.1127e+00	1.2923e-04	8.0291e-02	9.5617e-03	5.9406e+00
36.3946	4.2674e-03	3.3612e+00	1.2347e-04	6.7850e-02	1.0338e-02	5.6811e+00
39.8630	5.0560e-03	3.7568e+00	2.4077e-04	1.2080e-01	2.2088e-02	1.1082e+01
45.6644	6.5302e-03	4.4025e+00	1.7702e-04	7.7532e-02	1.8562e-02	8.1295e+00
57.2436	8.9088e-03	5.2335e+00	1.6039e-04	5.6037e-02	2.1022e-02	7.3446e+00
70.4333	1.0996e-02	5.8263e+00	1.8076e-04	5.1328e-02	2.9250e-02	8.3057e+00
83.9786	1.3656e-02	6.4597e+00	1.7113e-04	4.0754e-02	3.2995e-02	7.8581e+00
126.0988	2.4774e-02	8.2231e+00	1.6184e-04	2.5669e-02	4.5805e-02	7.2650e+00
232.1079	4.1432e-02	9.6585e+00	1.1623e-04	1.0015e-02	6.0092e-02	5.1780e+00
364.1963	5.6096e-02	1.0464e+01	1.2133e-04	6.6628e-03	1.0080e-01	5.5357e+00

BJH adsorption summary

Surface Area =	10.464 m ² /g
Pore Volume =	0.056 cc/g
Pore Radius Dv(r) =	24.222 Å

3. Hasil Analisis BET Katalis Co (3)

Quantachrome NovaWin - Data Acquisition and Reduction
for NOVA instruments
©1994-2010, Quantachrome Instruments
version 11.0



Analysis		Report	
Operator:nova	Date:2012/09/24	Operator:nova	Date:10/2/2012
Sample ID: sovi nurul	Filename:	C:\QCdata\Physisorb\201209252Sovi_nurul.qps	
Sample Desc: Mo-Ni 4:1 (co-impregnasi)	Comment:		
Sample weight: 0.1024 g	Sample Volume: 0.02626 cc	Sample Density: 3.9 g/cc	
Outgas Time: 3.0 hrs	OutgasTemp: 300.0 C		
Analysis gas: Nitrogen	Bath Temp: 77.3 K		
Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)	Equil time: 60/60 sec (ads/des)	Equil timeout: 240/240 sec (ads/des)	
Analysis Time: 116.8 min	End of run: 2012/09/24 14:18:03	Instrument: Nova Station A	
Cell ID: 98		FW version: 0.00	

Multi-Point BET

Data Reduction Parameters Data

Adsorbate	Po override: 760.00 mmHg	Temperature	77.350K	Liquid Density:	0.808 g/cc
Nitrogen	Molec. Wt.: 28.013 g	Cross Section:	16.200 Å²		

Multi-Point BET Data

Relative Pressure [P/Po]	Volume @ STP [cc/g]	1 / [W((Po/P) - 1)]	Relative Pressure [P/Po]	Volume @ STP [cc/g]	1 / [W((Po/P) - 1)]
5.29937e-02	14.8526	3.0145e+00	2.48837e-01	17.7136	1.4963e+01
7.78065e-02	15.6423	4.3156e+00	2.73531e-01	17.9694	1.6765e+01
1.51589e-01	16.5657	8.6298e+00	2.99028e-01	18.1909	1.8763e+01
2.00440e-01	17.1403	1.1702e+01	3.49169e-01	18.5903	2.3090e+01

BET summary

Slope = 66.435
Intercept = -1.075e+00
Correlation coefficient, r = 0.996994
C constant = -60.807
Surface Area = 53.282 m²/g

Quantachrome NovaWin - Data Acquisition and Reduction
for NOVA instruments
©1994-2010, Quantachrome Instruments
version 11.0



Optimizing particle performance

Analysis		Report	
Operator:nova	Date:2012/09/24	Operator:nova	Date:10/2/2012
Sample ID: sovi nurul	Filename:	C:\QCdata\Physisorb\201209252Sovi_nurul.qps	
Sample Desc: Mo-Ni 4:1 (co-impregnasi)	Comment:		
Sample weight: 0.1024 g	Sample Volume: 0.02626 cc	Sample Density: 3.9 g/cc	
Outgas Time: 3.0 hrs	OutgasTemp: 300.0 C		
Analysis gas: Nitrogen	Bath Temp: 77.3 K		
Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)	Equil time: 60/60 sec (ads/des)	Equil timeout: 240/240 sec (ads/des)	
Analysis Time: 116.8 min	End of run: 2012/09/24 14:18:03	Instrument: Nova Station A	
Cell ID: 98		F/W version: 0.00	

BJH Pore Size Distribution Adsorption

Data Reduction Parameters Data

t-Method	Po override: 760.00 mmHg		
BJH/DH method	Calc. method: de Boer		
Adsorbate	Moving pt. avg.: off	Ignoring P-tags below 0.35 P/Po	
	Nitrogen	Temperature 77.350K	
	Molec. Wt.: 28.013 g	Cross Section: 16.200 Å ²	Liquid Density: 0.808 g/cc
	Contact Angle: 0.0 degrees	Surf. Tension: 8.850 erg/cm ²	

BJH Pore Size Distribution Adsorption Data

Radius [Å]	Pore Volume [cc/g]	Pore Surf Area [m ² /g]	dV(r) [cc/Å/g]	dS(r) [m ² /Å/g]	dV(logr) [cc/g]	dS(logr) [cc/g]
16.9472	6.4354e-04	7.5946e-01	3.4600e-04	4.0833e-01	1.3488e-02	1.5918e+01
18.9593	1.2552e-03	1.4047e+00	2.8262e-04	2.9814e-01	1.2325e-02	1.3001e+01
21.3483	1.9053e-03	2.0138e+00	2.4874e-04	2.3303e-01	1.2212e-02	1.1440e+01
24.1338	3.1161e-03	3.0171e+00	4.0941e-04	3.3929e-01	2.2723e-02	1.8831e+01
26.5591	3.6790e-03	3.4410e+00	2.9730e-04	2.2388e-01	1.8174e-02	1.3685e+01
28.6012	4.2278e-03	3.8248e+00	2.5051e-04	1.7517e-01	1.6490e-02	1.1531e+01
32.2090	5.2754e-03	4.4753e+00	2.0848e-04	1.2945e-01	1.5430e-02	9.5813e+00
36.4656	5.9613e-03	4.8515e+00	1.9664e-04	1.0785e-01	1.6498e-02	9.0487e+00
39.8782	7.2820e-03	5.5138e+00	3.9577e-04	1.9849e-01	3.6319e-02	1.8215e+01
46.0953	9.2231e-03	6.3560e+00	2.1337e-04	9.2578e-02	2.2573e-02	9.7941e+00
57.4962	1.2069e-02	7.3460e+00	2.0767e-04	7.2237e-02	2.7362e-02	9.5180e+00
69.6581	1.4880e-02	8.1531e+00	2.6471e-04	7.6002e-02	4.2375e-02	1.2167e+01
81.8777	1.8021e-02	8.9204e+00	2.2731e-04	5.5523e-02	4.2752e-02	1.0443e+01
117.7702	3.0075e-02	1.0967e+01	2.0795e-04	3.5315e-02	5.5235e-02	9.3801e+00
220.6793	5.5645e-02	1.3285e+01	1.7294e-04	1.5673e-02	8.4484e-02	7.6567e+00
339.2198	7.9234e-02	1.4676e+01	2.6437e-04	1.5587e-02	2.0529e-01	1.2104e+01

BJH adsorption summary

Surface Area =	14.676 m ² /g
Pore Volume =	0.079 cc/g
Pore Radius Dv(r) =	24.134 Å

4. Hasil Analisis BET Katalis Suk (1)

Quantachrome NovaWin - Data Acquisition and Reduction
for NOVA instruments
©1994-2010, Quantachrome Instruments
version 11.0



Analysis		Report	
Operator:nova	Date:2012/09/23	Operator:nova	Date:10/2/2012
Sample ID: Sovi	Filename:	C:\QC\data\Physisorb\201209241Sovi Nurul I.qps	
Sample Desc: Zeolit Mo:Ni 1:1 (impregnasi)	Comment:		
Sample weight: 0.1023 g	Sample Volume: 0.02623 cc	Sample Density: 3.9 g/cc	
Outgas Time: 3.0 hrs	Outgas Temp: 300.0 C		
Analysis gas: Nitrogen	Bath Temp: 77.3 K		
Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)	Equil time: 60/60 sec (ads/des)	Equil timeout: 240/240 sec (ads/des)	
Analysis Time: 133.7 min	End of run: 2012/09/23 13:28:33	Instrument: Nova Station A	
Cell ID: 92		F/W version: 0.00	

Multi-Point BET

Data Reduction Parameters Data

Adsorbate	Po override: 760.00 mmHg	Temperature	77.350k	Liquid Density:	0.808 g/cc
	Nitrogen	Cross Section:	16.200 Å ²		
	Molec. Wt.: 28.013 g				

Multi-Point BET Data

Relative Pressure [P/Po]	Volume @ STP [cc/g]	1 / [W((Po/P) - 1)]	Relative Pressure [P/Po]	Volume @ STP [cc/g]	1 / [W((Po/P) - 1)]
7.67261e-02	29.7344	2.2362e+00	2.46804e-01	33.5923	7.8047e+00
8.39344e-02	30.3312	2.4170e+00	2.72132e-01	34.1071	8.7707e+00
1.47220e-01	31.7651	4.3484e+00	3.00574e-01	34.6116	9.9343e+00
1.96860e-01	32.7200	5.9938e+00	3.47539e-01	35.3663	1.2051e+01

BET summary

Slope = 35.521
Intercept = -7.286e-01
Correlation coefficient, r = 0.997456
C constant = -47.754
Surface Area = 100.093 m²/g

Quantachrome NovaWin - Data Acquisition and Reduction
for NOVA instruments
©1994-2010, Quantachrome Instruments
version 11.0



Analysis		Report	
Operator:nova	Date:2012/09/23	Operator:nova	Date:10/2/2012
Sample ID: Sovi	Filename:	C:\QCdata\Physisorb\201209241Sovi Nurul I.qps	
Sample Desc: Zeolit Mo:Ni 1:1 (impregnasi)	Comment:		
Sample weight: 0.1023 g	Sample Volume: 0.02623 cc	Sample Density: 3.9 g/cc	
Outgas Time: 3.0 hrs	Outgas Temp: 300.0 C		
Analysis gas: Nitrogen	Bath Temp: 77.3 K		
Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)	Equil time: 60/60 sec (ads/des)	Equil timeout: 240/240 sec (ads/des)	
Analysis Time: 133.7 min	End of run: 2012/09/23 13:28:33	Instrument: Nova Station A	
Cell ID: 92		F/W version: 0.00	

BJH Pore Size Distribution Adsorption

Data Reduction Parameters Data

t-Method	Po override: 760.00 mmHg		
BJH/DH method	Calc. method: de Boer		
Adsorbate	Moving pt. avg.: off	Ignoring P-tags below 0.35 P/Po	
	Nitrogen	Temperature 77.350K	
	Molec. Wt.: 28.013 g	Cross Section: 16.200 Å ²	Liquid Density: 0.808 g/cc
	Contact Angle: 0.0 degrees	Surf. Tension: 8.850 erg/cm ²	

BJH Pore Size Distribution Adsorption Data

Radius [Å]	Pore Volume [cc/g]	Pore Surf Area [m ² /g]	dV(r) [cc/Å/g]	dS(r) [m ² /Å/g]	dV(logr) [cc/g]	dS(logr) [cc/g]
16.8141	1.1959e-03	1.4225e+00	6.2690e-04	7.4568e-01	2.4245e-02	2.8839e+01
18.7771	2.3735e-03	2.6768e+00	5.8346e-04	6.2146e-01	2.5202e-02	2.6843e+01
21.1440	4.1844e-03	4.3897e+00	6.6685e-04	6.3077e-01	3.2422e-02	3.0667e+01
24.1410	5.5783e-03	5.5445e+00	4.2516e-04	3.5223e-01	2.3597e-02	1.9549e+01
26.5586	6.1556e-03	5.9793e+00	3.7090e-04	2.7931e-01	2.2675e-02	1.7076e+01
28.4420	6.8772e-03	6.4867e+00	3.2646e-04	2.2956e-01	2.1369e-02	1.5027e+01
31.8687	8.5250e-03	7.5208e+00	3.5490e-04	2.2272e-01	2.5996e-02	1.6315e+01
36.0200	9.6119e-03	8.1243e+00	2.9701e-04	1.6492e-01	2.4613e-02	1.3666e+01
39.6821	1.0568e-02	8.6062e+00	2.6092e-04	1.3151e-01	2.3824e-02	1.2007e+01
45.5465	1.2855e-02	9.6105e+00	2.8360e-04	1.2453e-01	2.9665e-02	1.3026e+01
56.3432	1.6149e-02	1.0780e+01	2.4349e-04	8.6433e-02	3.1437e-02	1.1159e+01
68.2169	1.8562e-02	1.1487e+01	2.3614e-04	6.9233e-02	3.7023e-02	1.0854e+01
82.7466	2.2998e-02	1.2559e+01	2.3544e-04	5.6906e-02	4.4664e-02	1.0795e+01
122.0061	3.5789e-02	1.4656e+01	2.1432e-04	3.5133e-02	5.8990e-02	9.6700e+00
225.4314	6.1528e-02	1.6940e+01	1.7489e-04	1.5516e-02	8.7462e-02	7.7595e+00
356.4166	8.8712e-02	1.8465e+01	2.3679e-04	1.3287e-02	1.9264e-01	1.0810e+01

BJH adsorption summary

Surface Area = 18.465 m²/g
Pore Volume = 0.089 cc/g
Pore Radius Dv(r) = 21.144 Å

5. Hasil Analisis BET Katalis Suk (2)

Quantachrome NovaWin - Data Acquisition and Reduction
for NOVA instruments
©1994-2010, Quantachrome Instruments
version 11.0



Analysis		Report	
Operator:nova	Date:2012/10/01	Operator:nova	Date:10/2/2012
Sample ID: Sovi Nurul	Filename:	C:\QCdata\Physisorb\201210021sovi_nurul.qps	
Sample Desc: impregnasi 2:1	Comment:		
Sample weight: 0.1026 g	Sample Volume: 0.02631 cc	Sample Density: 3.9 g/cc	
Outgas Time: 3.0 hrs	Outgas Temp: 300.0 C		
Analysis gas: Nitrogen	Bath Temp: 77.3 K		
Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)	Equil time: 60/60 sec (ads/des)	Equil timeout: 240/240 sec (ads/des)	
Analysis Time: 113.8 min	End of run: 2012/10/01 7:11:44	Instrument: Nova Station A	
Cell ID: 98		FW version: 0.00	

Multi-Point BET

Data Reduction Parameters Data

Adsorbate	Po override: 760.00 mmHg	Temperature	77.350K	Liquid Density:	0.808 g/cc
	Nitrogen	Cross Section:	16.200 Å²		
	Molec. Wt.: 28.013 g				

Multi-Point BET Data

Relative Pressure [P/Po]	Volume @ STP [cc/g]	1 / [W((Po/P) - 1)]	Relative Pressure [P/Po]	Volume @ STP [cc/g]	1 / [W((Po/P) - 1)]
4.66334e-02	9.5043	4.1178e+00	2.45781e-01	12.6484	2.0614e+01
7.28652e-02	10.4483	6.0184e+00	2.70347e-01	13.1781	2.2496e+01
1.47100e-01	11.3312	1.2178e+01	2.95534e-01	13.6564	2.4579e+01
1.96253e-01	12.0193	1.6254e+01	3.47595e-01	14.0065	3.0435e+01

BET summary

Slope = 85.667
Intercept = -2.834e-01
Correlation coefficient, r = 0.998709
C constant = -301.238
Surface Area = 40.787 m²/g

Quantachrome NovaWin - Data Acquisition and Reduction
for NOVA instruments
©1994-2010, Quantachrome Instruments
version 11.0



Optimizing particle performance

Analysis		Report	
Operator:nova	Date:2012/10/01	Operator:nova	Date:10/2/2012
Sample ID: Sovi Nurul	Filename:	C:\QCdata\Physisorb\201210021sovi_nurul.qps	
Sample Desc: impregnasi 2:1	Comment:		
Sample weight: 0.1026 g	Sample Volume: 0.02631 cc	Sample Density: 3.9 g/cc	
Outgas Time: 3.0 hrs	Outgas Temp: 300.0 C		
Analysis gas: Nitrogen	Bath Temp: 77.3 K		
Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)	Equil time: 60/60 sec (ads/des)	Equil timeout: 240/240 sec (ads/des)	
Analysis Time: 113.8 min	End of run: 2012/10/01 7:11:44	Instrument: Nova Station A	
Cell ID: 98		FW version: 0.00	

BJH Pore Size Distribution Adsorption

Data Reduction Parameters Data

t-Method	Po override: 760.00 mmHg		
BJH/DH method	Calc. method: de Boer		
Adsorbate	Moving pt. avg.: off	Ignoring P-tags below 0.35 P/Po	
	Nitrogen	Temperature 77.350K	
	Molec. Wt.: 28.013 g	Cross Section: 16.200 Å²	Liquid Density: 0.808 g/cc
	Contact Angle: 0.0 degrees	Surf. Tension: 8.850 erg/cm²	

BJH Pore Size Distribution Adsorption Data

Radius [Å]	Pore Volume [cc/g]	Pore Surf Area [m²/g]	dV(r) [cc/Å/g]	dS(r) [m²/Å/g]	dV(logr) [cc/g]	dS(logr) [cc/g]
16.9621	4.3999e-04	5.1880e-01	2.3570e-04	2.7792e-01	9.1965e-03	1.0844e+01
18.9982	1.0156e-03	1.1247e+00	2.6098e-04	2.7475e-01	1.1404e-02	1.2005e+01
21.3717	1.8506e-03	1.9062e+00	3.2853e-04	3.0744e-01	1.6148e-02	1.5111e+01
24.2211	2.5700e-03	2.5002e+00	2.2789e-04	1.8817e-01	1.2692e-02	1.0480e+01
26.7475	3.2922e-03	3.0402e+00	3.8090e-04	2.8481e-01	2.3449e-02	1.7534e+01
28.7933	3.8668e-03	3.4393e+00	2.6167e-04	1.8176e-01	1.7340e-02	1.2045e+01
32.4313	4.8207e-03	4.0276e+00	1.8778e-04	1.1580e-01	1.3994e-02	8.6299e+00
36.7017	5.8791e-03	4.6043e+00	3.0584e-04	1.6666e-01	2.5827e-02	1.4074e+01
40.1735	6.4965e-03	4.9117e+00	1.7725e-04	8.8242e-02	1.6386e-02	8.1575e+00
46.6503	8.6124e-03	5.8188e+00	2.2343e-04	9.5787e-02	2.3917e-02	1.0254e+01
58.8679	1.1304e-02	6.7332e+00	1.7985e-04	6.1102e-02	2.4246e-02	8.2375e+00
71.9099	1.3935e-02	7.4650e+00	2.3664e-04	6.5815e-02	3.9104e-02	1.0876e+01
84.9066	1.6740e-02	8.1258e+00	1.8860e-04	4.4425e-02	3.6778e-02	8.6631e+00
129.7697	2.7103e-02	9.7229e+00	1.3845e-04	2.1337e-02	4.0195e-02	6.1948e+00
256.3706	4.7081e-02	1.1281e+01	1.1202e-04	8.7386e-03	6.3366e-02	4.9433e+00
418.4176	5.8830e-02	1.1843e+01	8.0614e-05	3.8533e-03	7.6875e-02	3.6746e+00

BJH adsorption summary

Surface Area = 11.843 m²/g
Pore Volume = 0.059 cc/g
Pore Radius Dv(r) = 26.747 Å

6. Hasil Analisis BET Katalis Suk (3)

Quantachrome NovaWin - Data Acquisition and Reduction
for NOVA instruments
©1994-2010, Quantachrome Instruments
version 11.0



Analysis		Report	
Operator:nova	Date:2012/10/01	Operator:nova	Date:10/2/2012
Sample ID: Sovi Nurul	Filename:	C:\QCdata\Physisorb\201210023sovi_nurul.qps	
Sample Desc: impregnasi 4:1	Comment:	Sample Volume: 0.0269 cc	Sample Density: 3.9 g/cc
Sample weight: 0.1049 g	Outgas Temp: 300.0 C	Outgas Temp: 300.0 C	
Outgas Time: 3.0 hrs	Bath Temp: 77.3 K	Bath Temp: 77.3 K	
Analysis gas: Nitrogen	Equil time: 60/60 sec (ads/des)	Equil time: 60/60 sec (ads/des)	Equil timeout: 240/240 sec (ads/des)
Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)	End of run: 2012/10/01 11:49:18	End of run: 2012/10/01 11:49:18	Instrument: Nova Station A
Analysis Time: 121.6 min			F/W version: 0.00
Cell ID: 99			

Multi-Point BET

Data Reduction Parameters Data

Adsorbate	Po override: 760.00 mmHg	Temperature	77.350K	Liquid Density:	0.808 g/cc
	Nitrogen	Cross Section:	16.200 Å ²		
	Molec. Wt.: 28.013 g				

Multi-Point BET Data

Relative Pressure [P/Po]	Volume @ STP [cc/g]	1 / [W((Po/P) - 1)]	Relative Pressure [P/Po]	Volume @ STP [cc/g]	1 / [W((Po/P) - 1)]
4.65905e-02	10.4483	3.7422e+00	2.48626e-01	14.1808	1.8670e+01
7.34794e-02	11.4966	5.5194e+00	2.74625e-01	14.7258	2.0571e+01
1.49140e-01	12.6019	1.1129e+01	2.98901e-01	15.2399	2.2383e+01
1.99345e-01	13.4477	1.4814e+01	3.47582e-01	15.8525	2.6890e+01

BET summary

Slope = 75.942
Intercept = -8.723e-02
Correlation coefficient, r = 0.999364
C constant = -869.614
Surface Area = 45.910 m²/g

Quantachrome NovaWin - Data Acquisition and Reduction
for NOVA instruments
©1994-2010, Quantachrome Instruments
version 11.0



Analysis		Report	
Operator:nova	Date:2012/10/01	Operator:nova	Date:10/2/2012
Sample ID: Sovi Nurul	Filename:	C:\QCdata\Physisorb\201210023sovi_nurul.qps	
Sample Desc: impregnasi 4:1	Comment:		
Sample weight: 0.1049 g	Sample Volume: 0.0269 cc	Sample Density: 3.9 g/cc	
Outgas Time: 3.0 hrs	OutgasTemp: 300.0 C		
Analysis gas: Nitrogen	Bath Temp: 77.3 K		
Press. Tolerance: 0.100/0.100 (ads/des)	Equil time: 60/60 sec (ads/des)	Equil timeout: 240/240 sec (ads/des)	
Analysis Time: 121.6 min	End of run: 2012/10/01 11:49:18	Instrument: Nova Station A	
Cell ID: 99		F/W version: 0.00	

BJH Pore Size Distribution Adsorption

Data Reduction Parameters Data

t-Method	Po override: 760.00 mmHg		
BJH/DH method	Calc. method: de Boer		
Adsorbate	Moving pt. avg.: off	Ignoring P-tags below 0.35 P/Po	
	Nitrogen	Temperature 77.350K	
	Molec. Wt.: 28.013 g	Cross Section: 16.200 Å ²	Liquid Density: 0.808 g/cc
	Contact Angle: 0.0 degrees	Surf. Tension: 8.850 erg/cm ²	

BJH Pore Size Distribution Adsorption Data

Radius [Å]	Pore Volume [cc/g]	Pore Surf Area [m ² /g]	dV(r) [cc/Å/g]	dS(r) [m ² /Å/g]	dV(logr) [cc/g]	dS(logr) [cc/g]
16.9604	6.8495e-04	8.0770e-01	3.5672e-04	4.2066e-01	1.3916e-02	1.6410e+01
18.9915	1.8877e-03	2.0743e+00	5.6146e-04	5.9128e-01	2.4526e-02	2.5829e+01
21.3275	2.8429e-03	2.9700e+00	3.7756e-04	3.5405e-01	1.8519e-02	1.7367e+01
24.1846	3.5092e-03	3.5210e+00	2.0925e-04	1.7304e-01	1.1635e-02	9.6222e+00
26.8066	3.9641e-03	3.8605e+00	2.2088e-04	1.6480e-01	1.3627e-02	1.0167e+01
28.8702	4.5910e-03	4.2948e+00	3.0321e-04	2.1005e-01	2.0148e-02	1.3957e+01
32.3808	5.4857e-03	4.8474e+00	1.8062e-04	1.1156e-01	1.3441e-02	8.3017e+00
36.6893	6.2020e-03	5.2378e+00	1.9552e-04	1.0658e-01	1.6504e-02	8.9964e+00
40.3786	7.2634e-03	5.7636e+00	2.8569e-04	1.4151e-01	2.6543e-02	1.3147e+01
46.8473	8.9500e-03	6.4836e+00	1.8288e-04	7.8077e-02	1.9664e-02	8.3949e+00
58.7679	1.1785e-02	7.4485e+00	1.9394e-04	6.6003e-02	2.6108e-02	8.8852e+00
71.6767	1.3898e-02	8.0381e+00	1.8868e-04	5.2647e-02	3.1076e-02	8.6713e+00
84.5894	1.6892e-02	8.7459e+00	2.0468e-04	4.8394e-02	3.9767e-02	9.4023e+00
129.0577	3.1459e-02	1.1003e+01	1.9603e-04	3.0379e-02	5.6607e-02	8.7724e+00
251.7678	5.8364e-02	1.3141e+01	1.5724e-04	1.2491e-02	8.7530e-02	6.9532e+00
420.8470	9.4414e-02	1.4854e+01	2.1581e-04	1.0256e-02	2.0635e-01	9.8065e+00

BJH adsorption summary

Surface Area =	14.854 m ² /g
Pore Volume =	0.094 cc/g
Pore Radius Dv(r) =	18.991 Å

Lampiran 6. Hasil Analisis GC Produk HDS dan HC

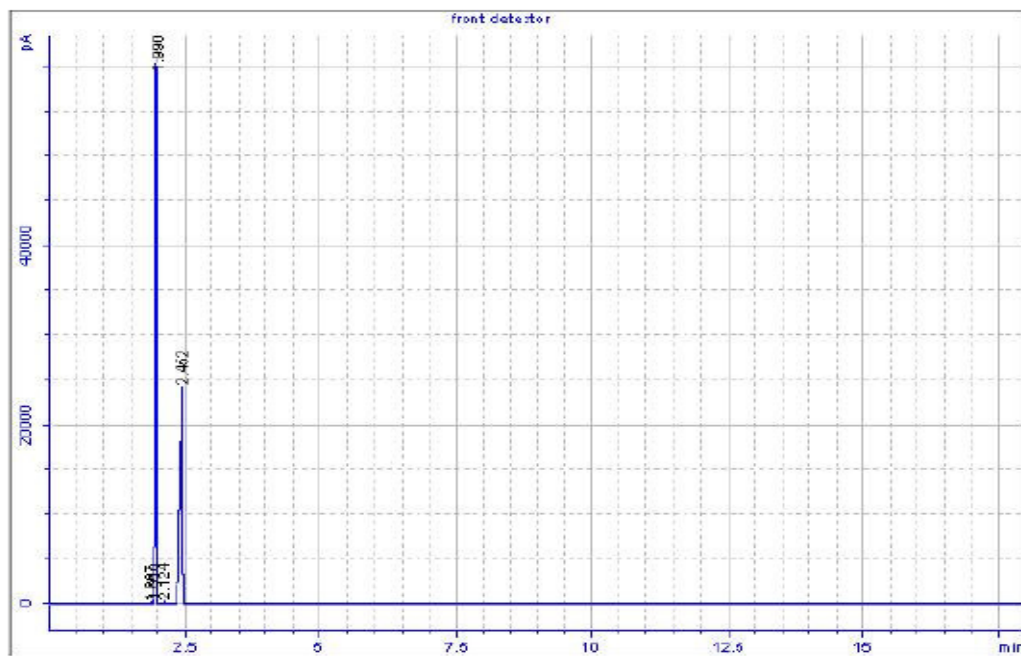
7. Kromatogram senyawa umpan tiofen:n-Heksan

Report date: Monday, October 29, 2012 3:25:44 PM

Page 1 of 2

Agilent Cerity QA/QC Report

Sample name:	*Reprocessed: @ Sovie3
Sample note:	umpan
Submission time:	Monday, October 29, 2012 10:40:40 AM
Operator:	
Injection date:	Monday, October 29, 2012 11:23:03 AM
GC Description:	GC1 - SN: CN10713006
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Volatil Sulfur Compounds
Method last saved:	Monday, October 29, 2012 3:25:41 PM



file://C:\Program Files\Agilent\Cerity QA-QC\TempDirectory\RepPrinta0420007001.htm 10/29/2012

Area Percent Report

Calibration last saved:	Tuesday, September 04, 2012 3:32:55 PM
Multiplier:	1.0000
Dilution:	1.0000
Sample amount:	0.0000 ppm
Sample type:	Sample
Sampling source:	Manual

Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA*s]	Area %
1	1.867	PV	0.017	147.24798	0.09957
1	1.916	VV	0.017	335.55778	0.22690
1	1.990	VB S	0.017	73126.29536	49.44722
1	2.124	PP	0.019	493.04134	0.33339
1	2.452	VB S	0.039	73785.43257	49.89292

Total Area = 147887.575

Report summary:

Warning(s): Calibrated compound(s) not found

Warning(s): Sample amount is zero. Absolute amounts calculated

Instrument run log:

No deviations found

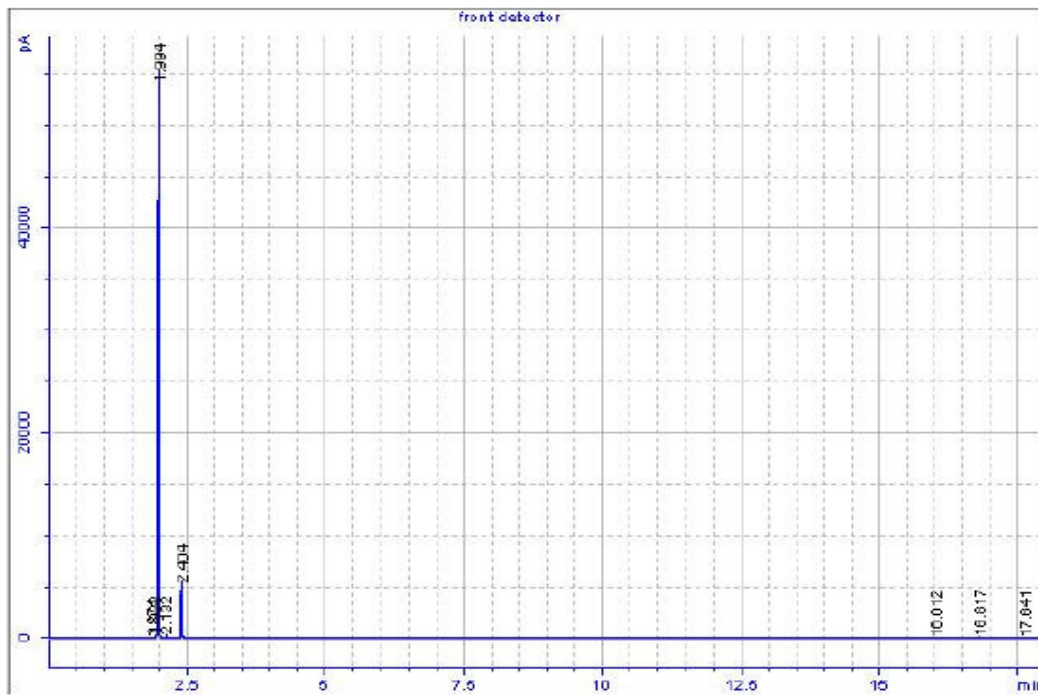
8. Kromatogram produk HDS dan HC menggunakan katalis H-ZAA

Report date: Wednesday, November 07, 2012 3:11:32 PM

Page 1 of 2

Agilent Cerity QA/QC Report

Sample name:	*Reprocessed: @_Sovie
Sample note:	
Submission time:	Wednesday, November 07, 2012 2:10:53 PM
Operator:	
Injection date:	Wednesday, November 07, 2012 2:18:51 PM
GC Description:	GC1 - SN: CN10713006
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Volatil Sulfur Compounds
Method last saved:	Wednesday, November 07, 2012 3:11:31 PM



Area Percent Report

Calibration last saved:	Wednesday, November 07, 2012 3:11:14 PM
Multiplier:	1.0000
Dilution:	1.0000
Sample amount:	0.0000 ppm
Sample type:	Sample
Sampling source:	Manual

Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA's]	Area %
1	1.874	BV	0.016	99.60823	0.14013
1	1.923	VP	0.018	263.02281	0.37003
1	1.994	VB S	0.019	62564.62308	88.01832
1	2.132	BP	0.018	364.88374	0.51333
1	2.404	BB S	0.022	7393.71955	10.40177
1	16.012	PB	0.029	104.69618	0.14729
1	16.817	PB	0.026	148.49895	0.20891
1	17.641	PP	0.029	142.30826	0.20020

Total Area = 71081.361

Report summary:

Warning(s): Sample amount is zero. Absolute amounts calculated

Instrument run log:

No deviations found

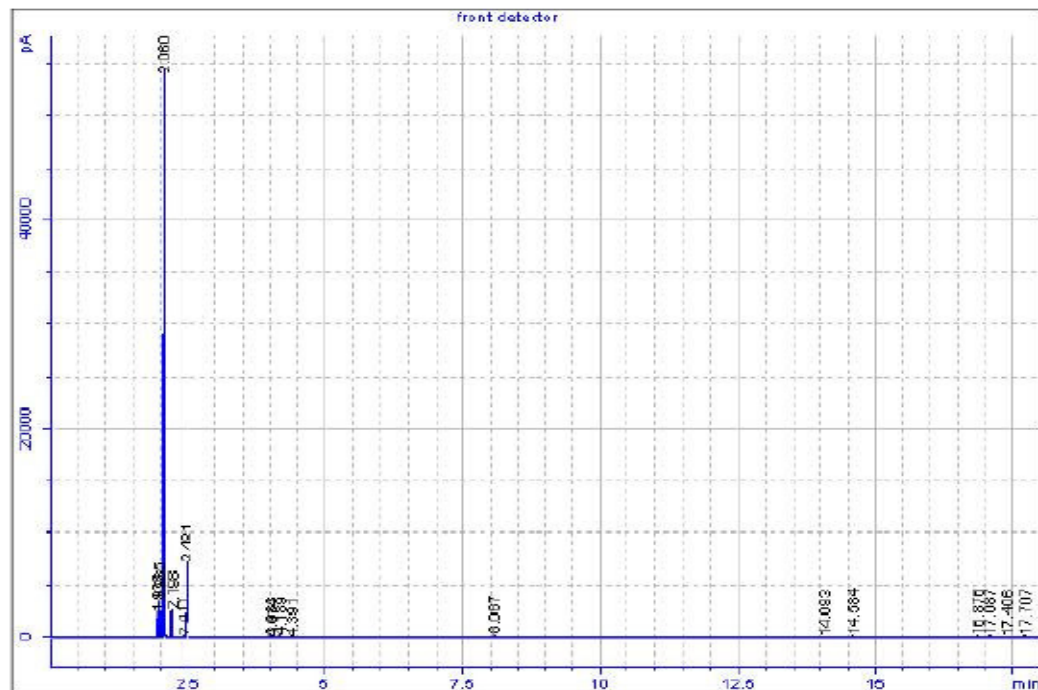
9. Kromatogram produk HDS dan HC menggunakan katalis Co (1)

Report date: Friday, October 19, 2012 1:19:43 PM

Page 1 of 2

Agilent Cerity QA/QC Report

Sample name:	*Reprocessed: \$ Sovi
Sample note:	co 1:1_1
Submission time:	Tuesday, October 16, 2012 3:42:54 PM
Operator:	
Injection date:	Tuesday, October 16, 2012 3:57:49 PM
GC Description:	GC1 - SN: CN10713006
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Volatil Sulfur Compounds
Method last saved:	Friday, October 19, 2012 1:19:39 PM



file://C:\Program Files\Agilent\Cerity OA-OC\TempDirectory\RepPrint2c47c001001.htm 10/19/2012

Area Percent Report

Calibration last saved:	Tuesday, September 04, 2012 3:32:55 PM
Multiplier:	1.0000
Dilution:	1.0000
Sample amount:	0.0000 ppm
Sample type:	Sample
Sampling source:	Manual

Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA*s]	Area %	Name
1	1.935	BV S	0.015	2213.89708	2.68987	
1	1.985	VV S	0.015	3375.78119	4.10156	
1	2.060	VV S	0.017	60933.26713	74.03360	1
1	2.198	VB S	0.016	2607.13125	3.16765	
1	2.411	BV	0.018	227.45763	0.27636	
1	2.481	VB S	0.021	9816.98581	11.92759	2
1	3.983	BV	0.032	468.20226	0.56886	
1	4.034	VB	0.033	113.42559	0.13781	
1	4.189	VB	0.034	319.04403	0.38764	
1	4.391	VB	0.028	174.08179	0.21151	
1	8.067	BB	0.028	544.67689	0.66178	
1	14.083	BV	0.026	100.61678	0.12225	
1	14.584	VB	0.028	275.84434	0.33515	
1	16.876	VV	0.027	275.92057	0.33524	
1	17.087	VV	0.037	436.62024	0.53049	
1	17.406	VV	0.043	105.40741	0.12807	
1	17.707	VB	0.029	316.52710	0.38458	

Total Area = 82304.887

Report summary:

Warning(s): Sample amount is zero. Absolute amounts calculated

Instrument run log:

No deviations found

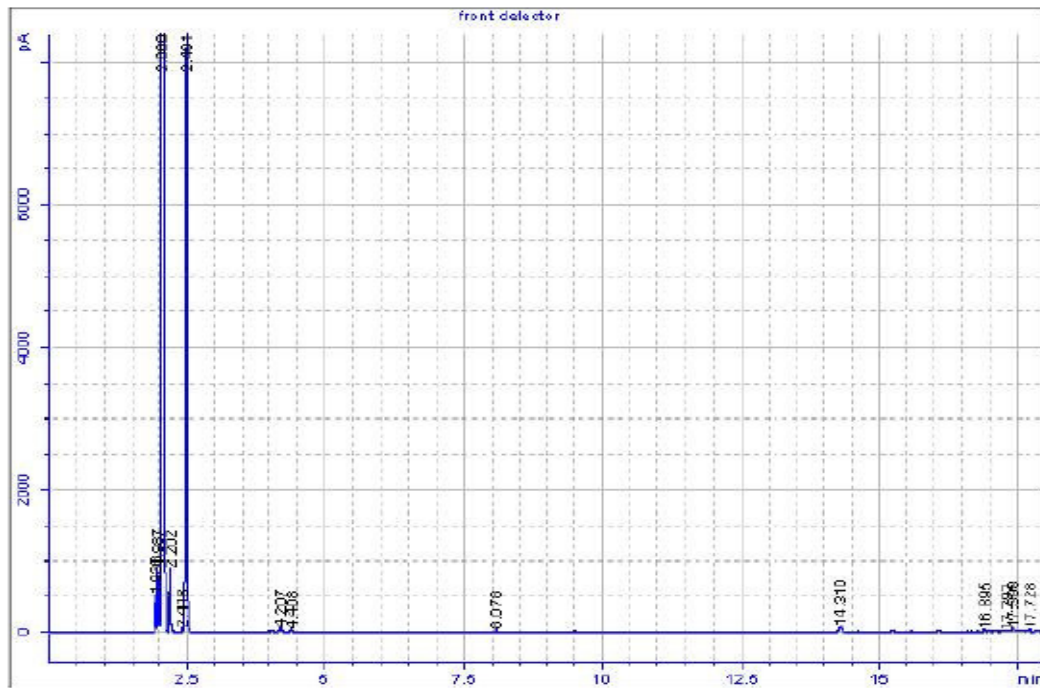
10. Kromatogram produk HDS dan HC menggunakan katalis Co (2)

Report date: Friday, October 19, 2012 1:30:25 PM

Page 1 of 2

Agilent Cerity QA/QC Report

Sample name:	*Reprocessed: \$ Sovi3
Sample note:	co 2:1
Submission time:	Friday, October 19, 2012 9:20:38 AM
Operator:	
Injection date:	Friday, October 19, 2012 10:10:16 AM
GC Description:	GC1 - SN: CN10713006
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Volatil Sulfur Compounds
Method last saved:	Friday, October 19, 2012 1:30:23 PM



file://C:\Program Files\Agilent\Cerity OA-OC\TempDirectory\RepPrint2c47c006001.htm 10/19/2012

Report date: Friday, October 19, 2012 1:30:25 PM

Page 2 of 2

Area Percent Report

Calibration last saved:	Tuesday, September 04, 2012 3:32:55 PM
Multiplier:	1.0000
Dilution:	1.0000
Sample amount:	0.0000 ppm
Sample type:	Sample
Sampling source:	Manual

Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA*s]	Area %	Name
1	1.936	BV	0.018	611.04652	0.49091	
1	1.987	VV	0.018	1121.19083	0.90076	
1	2.069	VE S	0.020	106756.90400	85.76791	1
1	2.202	VE X	0.018	1088.09842	0.87417	
1	2.418	PV	0.020	60.91849	0.04894	
1	2.491	VE S	0.024	13849.21137	11.12638	2
1	4.207	VB	0.040	154.40977	0.12405	
1	4.408	VB	0.030	64.77938	0.05204	
1	8.078	PB	0.026	72.01325	0.05786	
1	14.310	VB	0.053	307.93785	0.24740	
1	16.895	BV	0.026	56.98603	0.04578	
1	17.292	BV	0.070	63.96565	0.05139	
1	17.398	VV	0.054	195.38923	0.15697	
1	17.728	VB	0.029	69.00255	0.05544	

Total Area = 124471.853

Report summary:

Warning(s): Sample amount is zero. Absolute amounts calculated

Instrument run log:

No deviations found

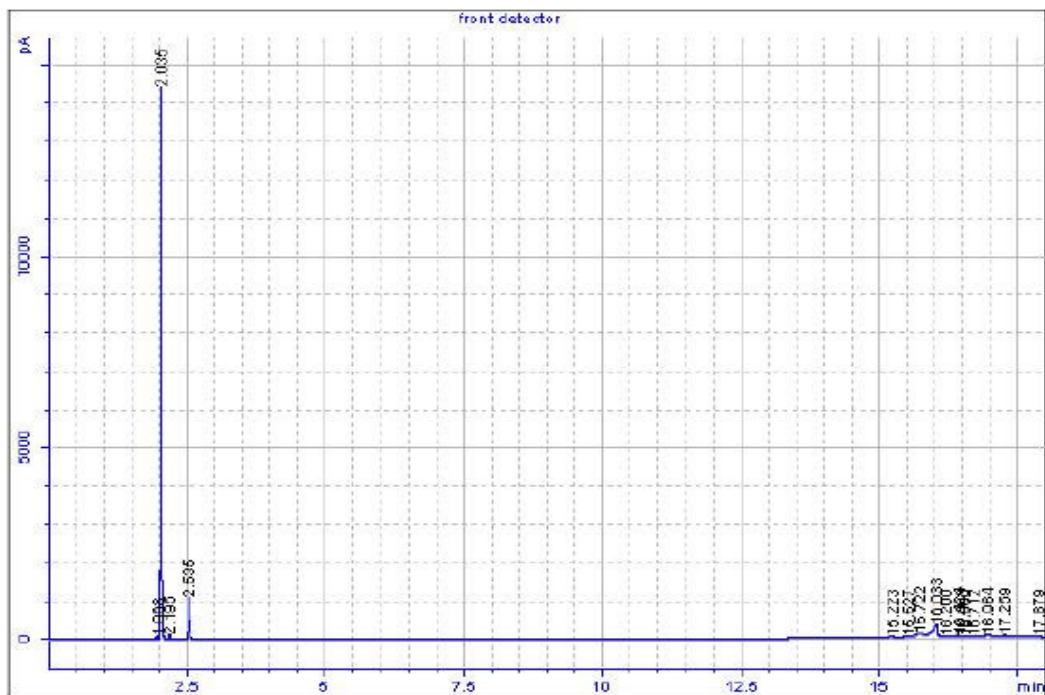
11. Kromatogram produk HDS dan HC menggunakan katalis Co (3)

Report date: Monday, October 22, 2012 1:04:09 PM

Page 1 of 2

Agilent Cerity QA/QC Report

Sample name:	*Reprocessed: \$ Sovi9
Sample note:	co 4:1
Submission time:	Friday, October 19, 2012 1:48:13 PM
Operator:	
Injection date:	Friday, October 19, 2012 2:41:12 PM
GC Description:	GC1
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Volatil Sulfur Compounds
Method last saved:	Monday, October 22, 2012 1:04:08 PM



file://C:\Program Files\Agilent\Cerity OA-OC\TempDirectory\RepPrint21c5c002001.htm 10/22/2012

Area Percent Report

Calibration last saved:	Tuesday, September 04, 2012 3:32:55 PM
Multiplier:	1.0000
Dilution:	1.0000
Sample amount:	0.0000 ppm
Sample type:	Sample
Sampling source:	Manual

Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA*s]	Area %	Name
1	1.968	VV	0.016	77.70842	0.34541	
1	2.035	VB S	0.016	15198.85552	67.55899	1
1	2.195	BB X	0.018	117.38982	0.52180	
1	2.535	PB	0.023	1630.39355	7.24711	2
1	15.223	BV	0.081	64.16375	0.28521	
1	15.527	VV	0.079	146.83734	0.65269	
1	15.722	VV	0.121	1037.59950	4.61214	
1	16.033	VV	0.095	2482.53885	11.03490	
1	16.200	VV	0.094	189.72722	0.84334	
1	16.424	VV	0.064	253.74493	1.12790	
1	16.493	VV	0.029	50.70089	0.22537	
1	16.559	VV	0.060	125.48754	0.55779	
1	16.712	VV	0.110	263.28087	1.17028	
1	16.964	VV	0.110	595.79972	2.64833	
1	17.259	VP	0.057	206.61090	0.91839	
1	17.879	PPA	0.060	56.32299	0.25036	

Total Area = 22497.162

Report summary:

Warning(s): Sample amount is zero. Absolute amounts calculated

Instrument run log:

No deviations found

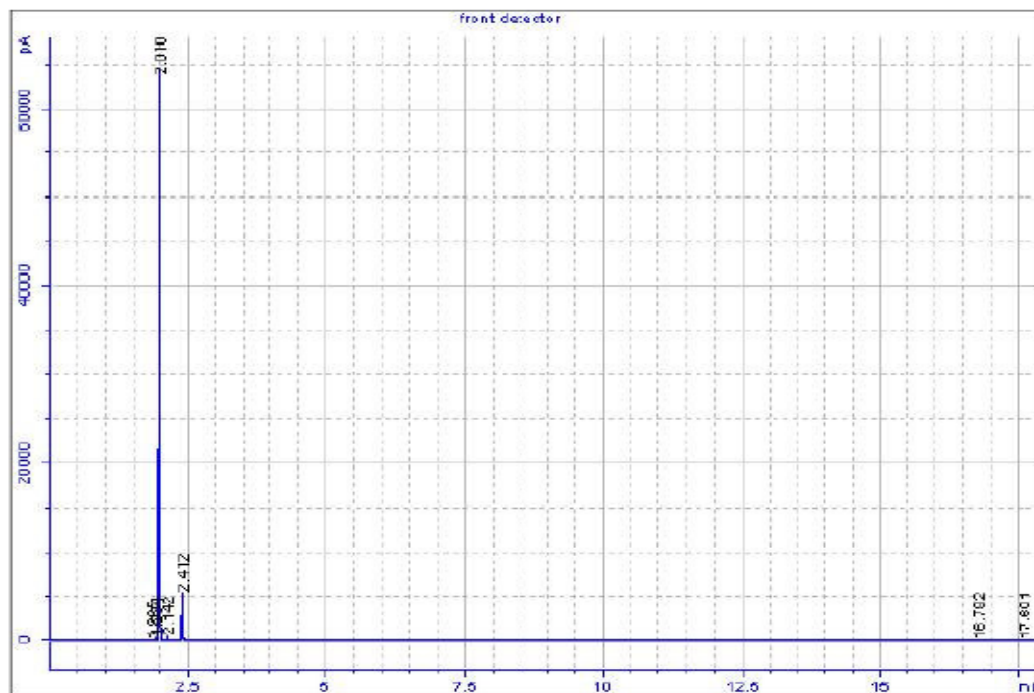
12. Kromatogram produk HDS dan HC menggunakan katalis Suk (1)

Report date: Monday, October 29, 2012 3:21:41 PM

Page 1 of 2

Agilent Cerity QA/QC Report

Sample name:	*Reprocessed: @ Sovie
Sample note:	IM 1:1
Submission time:	Monday, October 29, 2012 9:21:26 AM
Operator:	
Injection date:	Monday, October 29, 2012 10:01:03 AM
GC Description:	GC1 - SN: CN10713006
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Volatil Sulfur Compounds
Method last saved:	Monday, October 29, 2012 3:21:40 PM



file://C:\Program Files\Agilent\Cerity QA-QC\TempDirectory\RepPrinta0420005001.htm 10/29/2012

Area Percent Report

Calibration last saved:	Tuesday, September 04, 2012 3:32:55 PM
Multiplier:	1.0000
Dilution:	1.0000
Sample amount:	0.0000 ppm
Sample type:	Sample
Sampling source:	Manual

Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA*s]	Area %	Name
1	1.885	BP	0.014	105.29527	0.12310	
1	1.934	VP	0.015	296.90634	0.34712	
1	2.010	VB S	0.017	77709.02033	90.85238	1
1	2.142	VB	0.015	458.36892	0.53590	
1	2.412	VB S	0.019	6855.28621	8.01476	
1	16.782	BV	0.026	56.66599	0.06625	
1	17.601	BP	0.029	51.73465	0.06048	

Total Area = 85533.278

Report summary:

Warning(s): Calibrated compound(s) not found

Warning(s): Sample amount is zero. Absolute amounts calculated

Instrument run log:

No deviations found

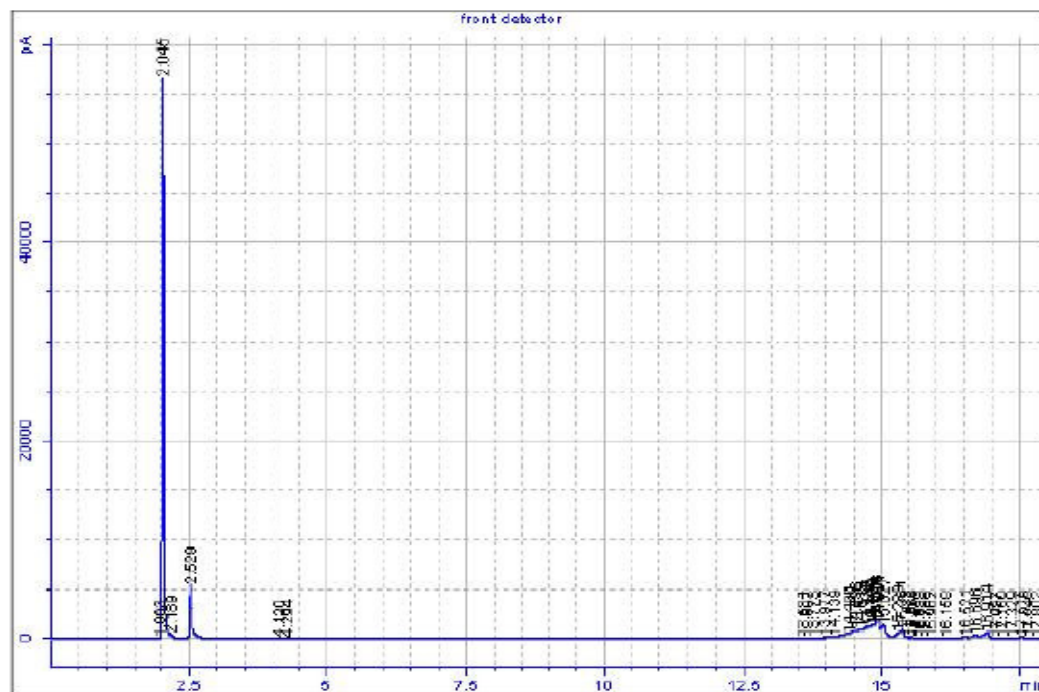
13. Kromatogram produk HDS dan HC menggunakan katalis Suk (2)

Report date: Monday, October 22, 2012 1:03:08 PM

Page 1 of 3

Agilent Cerity QA/QC Report

Sample name:	*Reprocessed: \$ Sovi8
Sample note:	im 2:1
Submission time:	Friday, October 19, 2012 1:48:13 PM
Operator:	
Injection date:	Friday, October 19, 2012 2:10:13 PM
GC Description:	GC1
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Volatil Sulfur Compounds
Method last saved:	Monday, October 22, 2012 1:03:05 PM



file://C:\Program Files\Agilent\Cerity QA-QC\TempDirector\RepPrint21c5c001001.htm 10/22/2012

Area Percent Report

Calibration last saved:	Tuesday, September 04, 2012 3:32:55 PM
Multiplier:	1.0000
Dilution:	1.0000
Sample amount:	0.0000 ppm
Sample type:	Sample
Sampling source:	Manual

Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA*s]	Area %	Name
1	1.963	VV	0.019	150.83464	0.08624	
1	2.045	VV S	0.024	95135.30364	54.39662	1
1	2.189	VV S	0.068	1844.61156	1.05471	
1	2.529	VB S	0.048	17727.23561	10.13611	2
1	4.130	BV	0.069	81.82154	0.04678	
1	4.294	VB	0.064	150.67463	0.08615	
1	13.581	BV	0.058	61.85397	0.03537	
1	13.687	VV	0.065	111.06833	0.06351	
1	13.773	VV	0.051	130.44561	0.07459	
1	13.977	VV	0.101	631.98186	0.36136	
1	14.139	VV	0.093	967.61382	0.55326	
1	14.400	VV	0.106	4125.12886	2.35867	
1	14.427	VV	0.015	540.50483	0.30905	
1	14.536	VV	0.072	4664.68184	2.66718	
1	14.619	VV	0.061	4494.03342	2.56961	
1	14.734	VV	0.060	5589.72737	3.19610	
1	14.739	VV	0.021	1950.90987	1.11549	
1	14.800	VV	0.032	3075.25888	1.75838	
1	14.830	VV	0.019	1949.35831	1.11461	
1	14.858	VV	0.017	1776.94271	1.01602	
1	14.906	VV	0.034	4548.60428	2.60081	
1	14.931	VV	0.035	4236.06083	2.42210	
1	15.027	VV	0.073	7520.99634	4.30037	
1	15.288	VV	0.050	2051.49058	1.17300	
1	15.361	VV	0.062	4679.58007	2.67570	
1	15.471	VV	0.043	251.95435	0.14406	
1	15.566	VV	0.061	333.52146	0.19070	
1	15.659	VV	0.020	71.73960	0.04102	
1	15.688	VV	0.046	175.54225	0.10037	
1	15.788	VV	0.053	139.43109	0.07972	
1	15.902	VP	0.037	55.92331	0.03198	
1	16.158	VV	0.070	167.98616	0.09605	

Report date: Monday, October 22, 2012 1:03:08 PM

Page 3 of 3

1	16.521	VV	0.062	188.51011	0.10779
1	16.696	VV	0.067	1407.89013	0.80501
1	16.914	VV	0.079	3138.52224	1.79455
1	17.057	VV	0.054	114.10269	0.06524
1	17.159	VP	0.047	92.84528	0.05309
1	17.329	VP	0.063	170.56343	0.09753
1	17.515	VV	0.065	261.99309	0.14980
1	17.646	VP	0.056	74.64758	0.04268
1	17.802	VV	0.048	50.05007	0.02862

Total Area = 174891.946

Report summary:

Warning(s): Sample amount is zero. Absolute amounts calculated

Instrument run log:

No deviations found

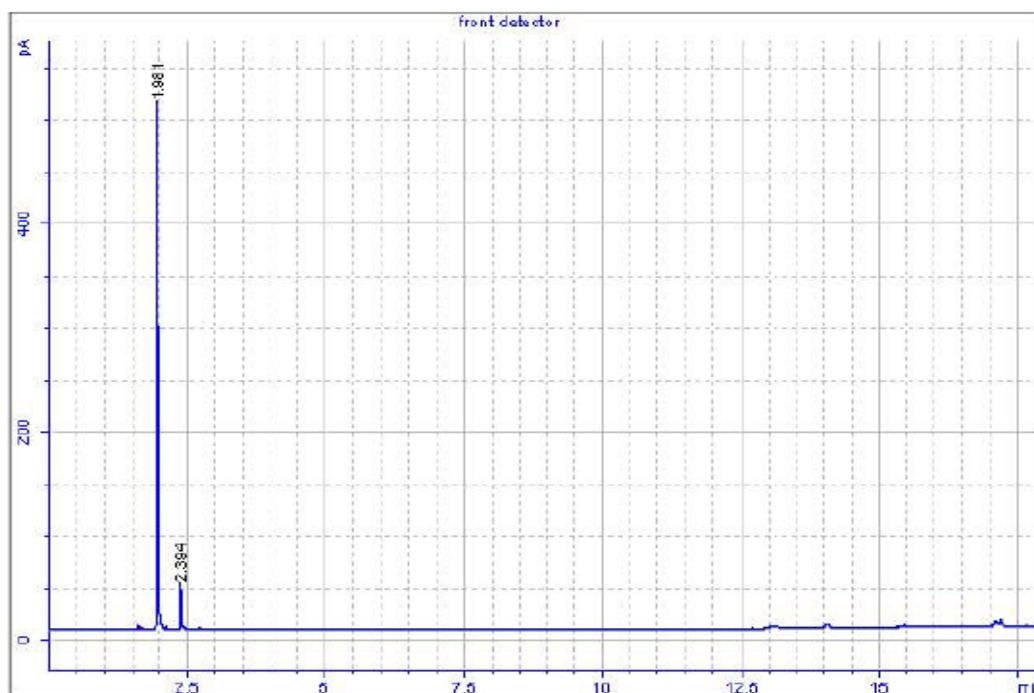
14. Kromatogram produk HDS dan HC menggunakan katalis Suk (3)

Report date: Monday, October 29, 2012 3:22:46 PM

Page 1 of 2

Agilent Cerity QA/QC Report

Sample name:	*Reprocessed: @ Sovie1
Sample note:	IM 4:1_
Submission time:	Monday, October 29, 2012 9:21:27 AM
Operator:	
Injection date:	Monday, October 29, 2012 10:32:11 AM
GC Description:	GC1 - SN: CN10713006
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Volatil Sulfur Compounds
Method last saved:	Monday, October 29, 2012 3:22:44 PM



file://C:\Program Files\Agilent\Cerity OA-OC\TempDirector\RepPrinta0420006001.htm 10/29/2012

Report date: Monday, October 29, 2012 3:22:46 PM

Page 2 of 2

Area Percent Report

Calibration last saved:	Tuesday, September 04, 2012 3:32:55 PM
Multiplier:	1.0000
Dilution:	1.0000
Sample amount:	0.0000 ppm
Sample type:	Sample
Sampling source:	Manual

Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA*s]	Area %
1	1.981	PB	0.018	652.72973	90.53285
1	2.394	BB	0.022	68.25688	9.46715

Total Area = 720.987

Report summary:

Warning(s): Calibrated compound(s) not found

Warning(s): Sample amount is zero. Absolute amounts calculated

Instrument run log:

No deviations found

Lampiran 7. Perhitungan % Konversi HDS dan HC

1. Data Uji Aktivitas Katalis

Sampel katalis	Berat umpan 1:1 (gram)	Berat produk cair (gram)
H-ZAA	8	1,5397
Co (1)	8	2,0434
Co (2)	8	1,7527
Co (3)	8	0,5592
Suk (1)	8	0,5227
Suk (2)	8	1,1411
Suk (3)	8	0,1049

2. Analisis massa Tiofen dan n-Heksan dari Hasil GC

$$\text{massa n - Heksan} = \frac{\text{peak n - Heksan}}{\text{peak n - Heksan} + \text{peak Tiofen}} \times \text{massa}$$

$$\text{massa Tiofen} = \frac{\text{peak Tiofen}}{\text{peak n - Heksan} + \text{peak Tiofen}} \times \text{massa}$$

a. Umpan

$$\text{massa n - Heksan} = \frac{49,44722}{49,44722+49,89292} \times 8 \text{ gram} = 3,9821 \text{ gram}$$

$$\text{massa Tiofen} = \frac{49,89292}{49,44722+49,89292} \times 8 \text{ gram} = 4,0189 \text{ gram}$$

b. Katalis H-ZAA

$$\text{massa n - Heksan} = \frac{88,01832}{88,01832 + 10,40177} \times 1,5397 \text{ gram} = 1,3769 \text{ gram}$$

$$\text{massa Tiofen} = \frac{10,40177}{88,01832 + 10,40177} \times 1,5397 \text{ gram} = 0,1628 \text{ gram}$$

c. Katalis Co (1)

$$\text{massa n - Heksan} = \frac{74,03360}{74,03360 + 11,92759} \times 2,0434 \text{ gram} = 1,7599 \text{ gram}$$

$$\text{massa Tiofen} = \frac{11,92759}{74,03360 + 11,92759} \times 2,0434 \text{ gram} = 0,2835 \text{ gram}$$

d. Katalis Co (2)

$$\text{massa n - Heksan} = \frac{85,76791}{85,76791 + 11,12638} \times 1,7527 \text{ gram} = 1,5514 \text{ gram}$$

$$\text{massa Tiofen} = \frac{11,12638}{85,76791 + 11,12638} \times 1,7527 \text{ gram} = 0,2013 \text{ gram}$$

e. Katalis Co (3)

$$\text{massa n - Heksan} = \frac{67,55899}{67,55899 + 7,24711} \times 0,5592 \text{ gram} = 0,505 \text{ gram}$$

$$\text{massa Tiofen} = \frac{7,24711}{67,55899 + 7,24711} \times 0,5592 \text{ gram} = 0,0542 \text{ gram}$$

f. Katalis Suk (1)

$$\text{massa n - Heksan} = \frac{90,85238}{90,85238 + 8,01476} \times 0,5227 \text{ gram} = 0,4803 \text{ gram}$$

$$\text{massa Tiofen} = \frac{8,01476}{90,85238 + 8,01476} \times 0,5227 \text{ gram} = 0,0424 \text{ gram}$$

g. Katalis Suk (2)

$$\text{massa n - Heksan} = \frac{54,39662}{54,39662 + 10,13611} \times 1,1411 \text{ gram} = 0,9619 \text{ gram}$$

$$\text{massa Tiofen} = \frac{10,13611}{54,39662 + 10,13611} \times 1,1411 \text{ gram} = 0,1792 \text{ gram}$$

h. Katalis Suk (3)

$$\text{massa n - Heksan} = \frac{90,53285}{90,53285 + 9,46715} \times 0,1049 \text{ gram} = 0,095 \text{ gram}$$

$$\text{massa Tiofen} = \frac{9,46715}{90,53285 + 9,46715} \times 0,1049 \text{ gram} = 0,0099 \text{ gram}$$

3. Perhitungam % Konversi HDS dan HC

$$\% \text{ Konversi HDS} = \frac{\text{massa umpan Tiofen} - \text{massa produk}}{\text{massa umpan Tiofen}} \times 100\%$$

$$\% \text{ Konversi HC} = \frac{\text{massa umpan n - Heksan} - \text{massa produk}}{\text{massa umpan n - Heksan}} \times 100\%$$

a. Katalis H-ZAA

$$\% \text{ Konversi HDS} = \frac{4,0189 - 0,1628}{4,0189} \times 100 \% = 95,94 \%$$

$$\% \text{ Konversi HC} = \frac{3,9821 - 1,3769}{3,9821} \times 100 \% = 65,42 \%$$

b. Katalis Co (1)

$$\% \text{ Konversi HDS} = \frac{4,0189 - 0,2835}{4,0189} \times 100 \% = 92,94 \%$$

$$\% \text{ Konversi HC} = \frac{3,9821 - 1,7599}{3,9821} \times 100 \% = 55,81 \%$$

c. Katalis Co (2)

$$\% \text{ Konversi HDS} = \frac{4,0189 - 0,2013}{4,0189} \times 100 \% = 94,99 \%$$

$$\% \text{ Konversi HC} = \frac{3,9821 - 1,5514}{3,9821} \times 100 \% = 61,04 \%$$

d. Katalis Co (3)

$$\% \text{ Konversi HDS} = \frac{4,0189 - 0,0542}{4,0189} \times 100 \% = 98,65 \%$$

$$\% \text{ Konversi HC} = \frac{3,9821 - 0,505}{3,9821} \times 100 \% = 87,33 \%$$

e. Katalis Suk (1)

$$\% \text{ Konversi HDS} = \frac{4,0189 - 0,0424}{4,0189} \times 100 \% = 98,94 \%$$

$$\% \text{ Konversi HC} = \frac{3,9821 - 0,4803}{3,9821} \times 100 \% = 87,93 \%$$

f. Katalis Suk (2)

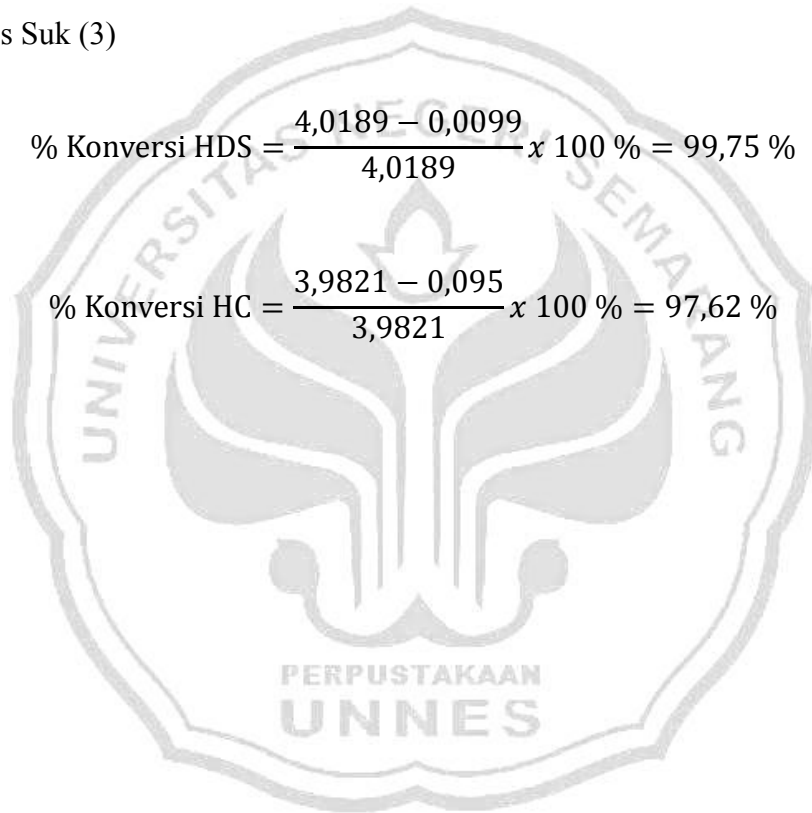
$$\% \text{ Konversi HDS} = \frac{4,0189 - 0,1792}{4,0189} \times 100 \% = 95,54 \%$$

$$\% \text{ Konversi HC} = \frac{3,9821 - 0,9619}{3,9821} \times 100 \% = 75,85 \%$$

g. Katalis Suk (3)

$$\% \text{ Konversi HDS} = \frac{4,0189 - 0,0099}{4,0189} \times 100 \% = 99,75 \%$$

$$\% \text{ Konversi HC} = \frac{3,9821 - 0,095}{3,9821} \times 100 \% = 97,62 \%$$



Lampiran 8. Perhitungan Hasil Uji Signifikasi % Konversi HDS

Metode pengembanan	Koimpregnasi	Impregnasi Terpisah
	% Konversi HDS	92,94 94,99 98,65
	$\bar{x}_1 = 95,53$	$\bar{x}_2 = 98,08 \rightarrow \bar{x} = 193,61/2 = 96,81$

(i) $H_0 : \mu_1 = \mu_2$ (tidak ada perbedaan rata-rata % konversi HDS pada setiap metode pengembanan)

$H_a : \mu_i = \mu_j \rightarrow i \neq j$ (ada perbedaan rata-rata, minimal dari dua % konversi HDS)
Penguujian Hipotesis ini untuk mengetahui pengaruh metode pengembanan terhadap hasil % konversi HDS.

(ii) Perhitungan F_0 , untuk $n_j = n = 3$, $k = 2$

$$SSx = n \sum (j - \bar{x})^2 = 3[(95,53 - 96,81)^2 + (98,08 - 96,81)^2] = 9,7539$$

$$Sse = [(92,94 - 95,53)^2 + (94,99 - 95,53)^2 + \dots + (99,75 - 98,08)^2] = 26,7142$$

$$MSx = \frac{SSx}{k - 1} = \frac{9,7539}{2 - 1} = 9,7539$$

$$MSe = \frac{Sse}{k(n - 1)} = \frac{26,7142}{2(3 - 1)} = 6,6786$$

$$SSy = SSx + Sse = 9,7539 + 26,7142 = 36,4681$$

Tabel Analisis Varian Satu Arah

Sumber Variasi	df	SS	MS=SS/df
Antar-sampel	$k-1=1$	$SSx=9,7539$	$MSx=9,7539$
Dalam sampel	$k(n-1)=2(3-1)=4$	$Sse=26,7142$	$MSe=6,6786$
jumlah	$nk-1=5$	$SSy=36,4681$	

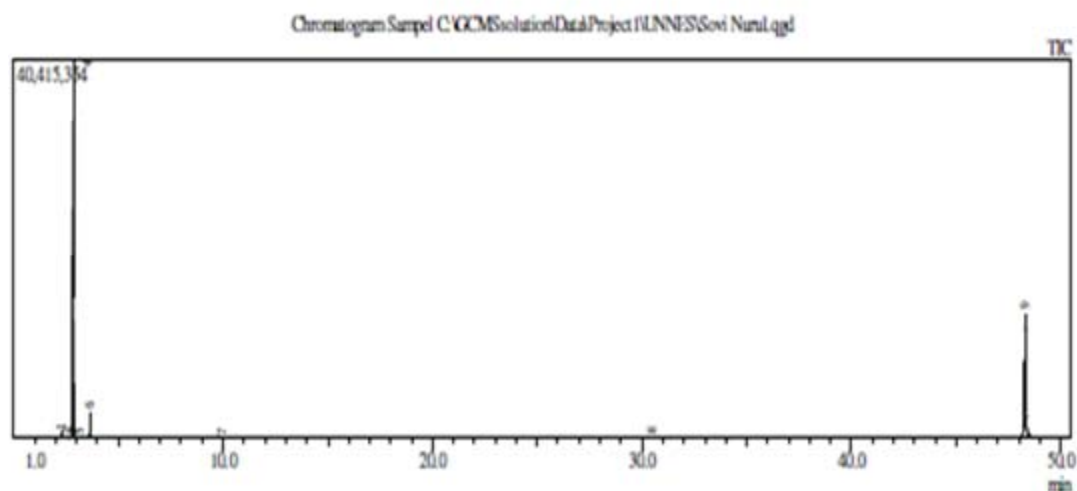
$$F_0 = 9,7539/6,6786 = 1,46$$

Kalau $\alpha=0,05$, dari tabel F, diperoleh $F_{0,05(1,4)}=7,71$. Jadi dengan $\alpha 5\%$, $F_0 < F_{0,05(1,4)}$

H_0 diterima, memang tidak ada perbedaan rata-rata hasil % konversi pada setiap metode pengembanan atau tidak ada perbedaan pengaruh metode pengembanan secara koimpregnasi dan impregnasi terpisah terhadap hasil % konversi HDS.

Lampiran 9. Hasil Analisis GC-MS Produk HDS

Sample Information
 Analyzed by : Admin
 Analyzed : 1/2/2013 12:07:13 PM
 Sample Name : Sampel
 Sample ID :
 Injection Volume : 0.10
 Data File : C:\GCMSolution\Data\Project\UNNES\Govi Nural.qgd
 Tuning File : C:\GCMSolution\SystemTune\Tuning 10072012.qgt



Peak#	R.Time	I.Time	F.Time	Area	Area%	Height
1	2.264	2.230	2.310	831681	0.60	575858
2	2.610	2.585	2.640	68746	0.05	52930
3	2.710	2.655	2.745	208496	0.15	145945
4	2.837	2.785	2.885	58429506	41.86	40391512
5	3.127	3.090	3.170	318320	0.23	195278
6	3.628	3.575	3.685	5461111	3.91	2829774

Hasil Analisis GC-MS Produk HDS menggunakan Katalis Im (1)

Waktu Retensi	MR	Senyawa
2,265	58	2-propanon
2,610	86	2-metil pentane
2,710	86	3-metil pentane
2,835	86	n-heksana
3,125	84	metil siklopentana
3,630	84	Tiofen

Lampiran 10. Dokumentasi Penelitian



Proses pengadukan pada saat perendaman aquademin



Perendaman HCl 6N



Perendaman NH_4Cl 6N



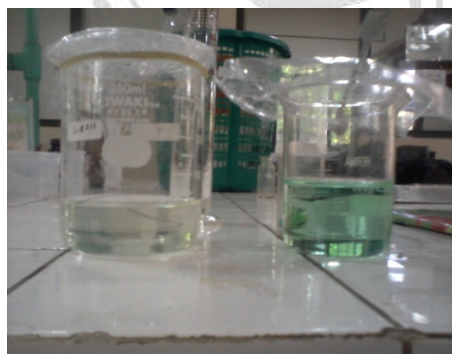
Pengecekan ion Cl^-



**Impregnasi dan
Koimpregnasi Katalis
Mo-Ni/ZAA**



**Penguapan Katalis
Mo-Ni/ZAA**



**Larutan
Mo dan Ni**



**Umpan Tiofen dan
n-Heksana**



Reaktor Hidrodesulfurisasi Tiofen