



## Sintesis dan Karakterisasi Katalis Bentonit Termodifikasi TiO<sub>2</sub> dan Terimpregnasi Logam Ni

### [Synthesis and Characterization of TiO<sub>2</sub> Modified Bentonite Catalyst and Ni Metal Impregnated]

Mohamad Mirzan, Nining Austi Duda, Khairuddin, Nurakhirawati, Ruslan✉

Jurusan Kimia, Fakultas Matematika Dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Tadulako Jalan Soekarno-hatta Km 9, Kampus Bumi Tadulako Tondo Palu, Indonesia

**Abstract.** TiO<sub>2</sub>-modified and Ni-impregnated bentonite catalysts have been synthesized and characterized to determine their physicochemical properties. Ni(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>O was used as a precursor for impregnation. The physicochemical properties determined include surface acidity by acid-base titration method, FTIR spectrum, and XRF and XRD data. The highest surface acidity value was obtained from the Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonite catalyst sample of 1.57 mmol/g. The results of FTIR analysis showed that the peak at wave number 3441 cm<sup>-1</sup> in TiO<sub>2</sub>/bentonite shifted to 3458 cm<sup>-1</sup> in Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonite. The distribution of bentonite content after being pillared with TiO<sub>2</sub> = 8.68% and impregnated with NiO = 0.58%. The success of nickel metal impregnation into the TiO<sub>2</sub>/bentonite support was obtained from XRD data, which was marked by the appearance of a typical Ni peak at 2θ = 37.70° d = 2.38 Å, 2θ = 39.39° d = 2.28 Å, 2θ = 43.02° d = 2.10 Å, 2θ = 51.38° d = 1.77 Å.

**Keywords:** Bentonite, impregnation, modification, XRD, FTIR, XRF

**Abstrak.** Katalis bentonit termodifikasi TiO<sub>2</sub> dan terimpregnasi Ni telah disintesis dan dikarakterisasi untuk mengetahui sifat fisika-kimianya. Ni(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>·6H<sub>2</sub>O digunakan sebagai precursor untuk impregnasi. Sifat fisika-kimia yang ditentukkan meliputi keasaman permukaan dengan metode titrasi asam-basa, spektrum FTIR, data XRF dan XRD. Nilai keasaman permukaan tertinggi diperoleh dari sampel katalis Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonit sebesar 1,57 mmol/g. Hasil analisis FTIR menunjukkan puncak pada bilangan gelombang 3441 cm<sup>-1</sup> pada TiO<sub>2</sub>/bentonit mengalami pergeseran menjadi 3458 cm<sup>-1</sup> pada Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonit. Distribusi kandungan bentonit setelah dipilar TiO<sub>2</sub> = 8,68% dan setelah diimpregnasi NiO = 0,58%. Keberhasilan logam nikel terimpregnasi kedalam penyangga TiO<sub>2</sub>/bentonit diperoleh dari data XRD yang ditandai dengan munculnya puncak khas Ni pada 2θ = 37,70° d = 2,38 Å; 2θ = 39,39° d = 2,28 Å; 2θ = 43,02° d = 2,10 Å; 2θ = 51,38° d = 1,77 Å.

**Kata kunci:** Bentonit, impregnasi, modifikasi, XRD, FTIR, XRF

Diterima: 14 September 2024, Disetujui: 31 Desember 2024

Sitasi: Mirzan, M., Dua, N.A., Khairuddin., Nurakhirawati., dan Ruslan. (2024). Sintesis dan Karakterisasi Katalis Bentonit Termodifikasi TiO<sub>2</sub> dan Terimpregnasi Logam Ni. KOVALEN: Jurnal Riset Kimia, 10(3): 233-243.

## LATAR BELAKANG

Pecahnya molekul karbon rantai panjang menjadi molekul karbon yang lebih ringan atau lebih pendek disebut perengkahan. Bantuan katalis membantu proses perengkahan dapat

berjalan lancar karena menggunakan energi yang lebih sedikit untuk memutus rantai karbon (Dupain *et al.*, 2007). Katalis yang digunakan dalam proses perengkahan adalah katalis yang stabil pada suhu tinggi dan mudah dipisahkan dari produknya. Misalnya, katalis heterogen dengan logam sebagai bahan aktif dan lempung sebagai bahan pendukung (katalis

✉ Corresponding author

E-mail: [Ruslan\\_abdullah66@yahoo.co.id](mailto:Ruslan_abdullah66@yahoo.co.id)

<https://doi.org/10.22487/kovalen.2024.v10.i3.17411>



yang didukung logam). Lempung memiliki porositas besar, stabil pada suhu tinggi, dan memiliki aktivitas katalitik tinggi dalam sistem katalis yang didukung logam, sehingga katalis sulit untuk menggumpal (Liu *et al.*, 2006).

Salah satu jenis tanah liat yang mempunyai kandungan utama mineral smektit (montmorillonit) dengan kandungan 80-90% adalah bentonit. Bentonit dapat digunakan sebagai pendukung katalis karena mempunyai keunggulan yaitu mempunyai volume pori yang mudah dimodifikasi dan strukturnya fleksibel (Vaccari, 1998). Penggunaan bentonit sebagai katalis mempunyai kelemahan yaitu luas permukaan dan volume pori yang kecil serta stabilitas termal yang rendah (Kloprogge *et al.*, 2005). Aktivitas katalitik bentonit sebagai pendukung katalis dapat ditingkatkan dengan memodifikasi struktur bentonit.

Metode modifikasi dilakukan dengan proses interkalasi menggunakan kation hidroksi logam sebagai pemilar ke dalam antarlapis (interlayer) alumina-silika bentonit yang berguna sebagai tiang atau pilar diantara lapisannya (Figueras, 1988). Struktur bentonit akan mengalami dehidrasi dan dehidroksilasi saat proses interkalasi, sehingga menghasilkan oksida logam diantara lapisan alumina-silika. Bentonit termodifikasi akan menghasilkan stabilitas termal tinggi dan ruang antarlapis dalam dimensi molekuler (Kloprogge *et al.*, 2005). Metode modifikasi dipilih dalam penelitian ini karena memiliki kelebihan, salah satunya yaitu tidak mengubah struktur dasar bentonit setelah dilakukan proses interkalasi.

Menurut penelitian Wijaya (2002), lempung pilar  $\text{TiO}_2$  secara umum memiliki sifat fisik dan kimia yang lebih unggul dalam hal peningkatan luas permukaan spesifik dan volume pori total dibandingkan dengan

lempung pilar  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  dan  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ . Darmawan dkk (2005) melaporkan bahwa larutan pilar  $\text{TiCl}_4$  dapat digunakan untuk menghasilkan lempung pilar titanium oksida ( $\text{TiO}_2$ ). Dibandingkan dengan lempung yang tidak dimodifikasi, lempung pilar  $\text{TiO}_2$  memiliki luas permukaan, stabilitas termal, jarak dasar, keasaman dan keberadaan situs asam Bronsted-Lewis yang lebih tinggi.

Metode sintesis dan kandungan logam mempengaruhi sifat katalis, selanjutnya sifat katalis mempengaruhi selektivitas dan aktivitas katalis (Wegener *et al.*, 2004). Nikel berguna untuk menutupi permukaan bentonit yang tidak aktif, maka sisi aktif pada permukaan bentonit yang dimodifikasi akan lebih besar dibandingkan sebelum dilakukan modifikasi. Penggunaan logam Ni sebagai komponen aktif katalis dapat meningkatkan luas permukaan katalis ketika diimpregnasikan ke dalam komponen penyangga. Suyati, dkk (2005) dalam penelitiannya mensintesis katalis Ni/zeolit dengan metode impregnasi, dimana sebelum diimpregnasikan dengan logam Ni luas permukaan zeolit sebesar  $53,16 \text{ m}^2/\text{g}$ , dan setelah diimpregnasikan dengan logam Ni luas permukaannya menjadi  $75,66 \text{ m}^2/\text{g}$ .

Mirzan (2020) melaporkan bahwa terjadi peningkatan  $\text{TiO}_2$  hingga 11,16% pada katalis  $\text{TiO}_2$ -Lempung, dan NiO meningkat menjadi 0,87% pada Ni/ $\text{TiO}_2$ -Lempung. Data ini menunjukkan adanya peningkatan komposisi dari Ni setelah dilakukan impregnasi.

Berdasarkan beberapa penelitian yang telah dilakukan, kami berupaya mensintesis bentonit yang dimodifikasi dengan  $\text{TiO}_2$  dan diimpregnasi dengan logam Ni yang kemudian dikarakterisasi sifat fisika-kimianya. Modifikasi bentonite dengan  $\text{TiO}_2$  dan Ni belum pernah

diteliti sebelumnya, sehingga menjadi kebaruan dari penelitian ini.

## METODOLOGI PENELITIAN

### Bahan dan Peralatan

Bahan yang digunakan antara lain: bentonit berasal dari daerah Tangerang yang dibeli dari NIO Chemical,  $\text{TiO}_2$  (Titanium dioksida),  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ , aquadest, etanol, NaOH, HCl, indikator phenolphthalein (pp), kertas saring.

Peralatan yang digunakan, yaitu refluks, sentrifugator, desikator, hotplate, magnetic stirrer, oven, furnace kalsinasi, ayakan, gelas ukur, batang pengaduk, gelas kimia, cawan petri, kurs porselen, lumpang alu, instrumen *fourier Transform infrared* (FT-IR), *X-Ray Diffraction* (XRD) dan *X-Ray Fluorescence* (XRF).

### Prosedur

#### Preparasi sampel

Sebanyak 15 g bentonit dihaluskan dengan ukuran 200 mesh selama 15 menit. Larutan didekantir dan larutan koloid disentrifugasi dengan kecepatan 2000 rpm selama 15 menit sehingga diperoleh endapan dan filtrat. Selanjutnya sampel dicuci sebanyak 3 kali dengan akuades rasio bentonit/akuades 1/10 (b/b). Endapan dan filtrate yang diperoleh kemudian dikeringkan pada temperatur 100 °C dan digerus sampai halus kemudian diayak menggunakan ayakan 200 mesh selama 15 menit.

#### Sintesis katalis $\text{TiO}_2$ -bentonit

Pembuatan  $\text{TiO}_2$  terimpregnasi pada bentonit dilakukan dengan cara mencampurkan 10 g bentonit dengan 0,5 g  $\text{TiO}_2$ . Kemudian ditambahkan dengan 10 mL etanol absolut dan 75 ml aquades sambil diaduk dengan

pengaduk magnetik selama 5 jam dengan kecepatan 220 rpm. Untuk menghilangkan etanol yang tersisa dari pori-pori bentonit, padatan yang terbentuk dipisahkan secara dekantasi dan dikeringkan selama lima jam dalam oven pada suhu 120°C, kemudian digerus sampai halus setelah dikeringkan. Dikalsinasi selama lima jam pada suhu 400°C dan diayak menggunakan ayakan 200 mesh (Darmawan *et al.*, 2005).

#### Sintesis Ni- $\text{TiO}_2$ /Bentonit

Impregnasi logam Ni [Ni 1 % (b/b)] pada  $\text{TiO}_2$ /bentonit dilakukan dengan menggunakan metode impregnasi basah. Sebanyak 0,07533 g Nikel nitrat heksahidrat dilarutkan dalam 50 mL akuades dan ditambahkan 7,5 g  $\text{TiO}_2$ /bentonit, direfluks sambil diaduk dengan pengaduk magnet selama 4 jam pada temperatur 80°C. Hasil impregnasi kemudian dikeringkan dengan oven pada temperatur 110°C. Setelah itu sampel dikalsinasi pada temperatur 400°C dan dialiri gas  $\text{N}_2$  dengan laju alir 20 mL/menit selama 2 jam. Setelah dikalsinasi, sampel direduksi dengan cara mengalirkan gas  $\text{H}_2$  pada temperatur 300°C dengan laju alir 20 mL/menit selama 2 jam. Setelah itu sampel disimpan dalam desikator. Katalis yang diperoleh dinamakan katalis Ni- $\text{TiO}_2$ /bentonit dengan berat 1 % (Rustam, 2011).

#### Penentuan keasaman permukaan

Proses penentuan keasaman permukaan menggunakan titrasi asam basa. Dimasukkan 0,5 gram sampel kedalam erlenmeyer 250 ml. Sampel yang digunakan yaitu bentonit yang sudah dipreparasi,  $\text{TiO}_2$ /bentonit, dan Ni- $\text{TiO}_2$ /Bentonit (1%). Kemudian ditambahkan 15 ml larutan NaOH 0,1 M sambil diaduk dengan pengaduk magnet

selama 20 menit dengan kecepatan 350 rpm. Ditambahkan tiga tetes indikator phenolphthalein (pp) sampai berwarna merah muda (adanya NaOH yang berlebih). Campuran dititrasi dengan larutan HCl 0,1 M sampai berubah warna putih yaitu warna dari bentonit (Diantariani, 2010). Kemudian dihitung menggunakan Persamaan 1.

$$K_{at} = \frac{(\text{mmol NaOH awal} - \text{mmol NaOH bebas})}{\text{Berat sampel}} \dots(1)$$

### Karakterisasi katalis dengan FTIR

Analisis FTIR dilakukan menggunakan teknik KBr pelet yaitu padatan sampel digerus dalam mortar kecil bersama padatan dengan kristal KBr kering dalam jumlah yang sedikit (0,5-2 mg cuplikan + 100 mg KBr kering). Setelah itu digunakan hydrolytic press untuk menekan campuran menjadi pelet transparan. Untuk menghindari kondensasi uap dari udara sekitar, lebih baik menumbuk KBr di bawah lampu IR untuk memastikannya kering. Spektrofotometer IR digunakan untuk menetralkan tablet sampel tipis dengan lubang mengarah ke dalam menuju radiasi Ka. Bilik ukur diisi dengan serbuk KBr sebagai blanko, yang ditempatkan pada wadah yang berbeda. Pengukuran sampel dilakukan setelah pengukuran blanko. Estimasi diselesaikan pada lingkup bilangan gelombang yang ditetapkan dari 300-4500  $\text{cm}^{-1}$ .

### Karakterisasi katalis dengan XRF

Analisis XRF dilakukan dengan memasukkan sampel yang telah halus ke dalam sample holder, selanjutnya sampel disinari dengan sinar-X. setelah itu akan diperoleh data berupa persen unsur yang terkandung pada sampel yang diuji.

### Karakterisasi katalis dengan XRD

Analisis XRD dilakukan dengan memasukkan sampel sebanyak 0,5 gram yang telah halus ke dalam sample holder. Cetakan ini berukuran 20 x 10 mm dan tebal 1 mm. Pengukuran pola difraksi pada sudut rentang  $2\theta$  dari  $2^\circ$  sampai dengan  $10^\circ$  dan  $10^\circ$  sampai dengan  $80^\circ$  dengan kondisi pengoperasian yaitu 40 kV dan 30 mA menggunakan radiasi Cu-K $\alpha$  (1,542 Å).

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Sintesis Katalis TiO<sub>2</sub>/Bentonit

Sampel diperkecil hingga ukuran 200 mesh untuk mendapatkan luas permukaan yang besar. Luas permukaan besar akan memudahkan interaksi antara katalis dan reaktan (Ruslan *et al.*, 2017). Pencucian bentonit dengan akuades bertujuan untuk menghilangkan pengotor baik organik maupun anorganik yang ada pada permukaan bentonit sehingga tidak menghambat proses interkalasi. Filtrat bentonit dilakukan sentrifuse yang bertujuan untuk memisahkan antara endapan dan filtrat bentonit. Pengeringan pada suhu  $100^\circ\text{C}$  bertujuan untuk menguapkan molekul air yang masih terperangkap pada antarlapis bentonit. Ukuran akhir dari padatan bentonit adalah 200 mesh.

Pembuatan TiO<sub>2</sub>/bentonit dengan metode sol gel dengan mencampurkan bentonit dan TiO<sub>2</sub> kemudian ditambahkan etanol absolut dan akuades ke dalam gelas kimia. Selama lima jam, campuran diaduk dengan pengaduk magnet (Andronic *et al.*, 2013). Pengadukan ini bertujuan untuk mempercepat proses penempelan TiO<sub>2</sub> pada bentonit dan memastikan campuran dapat tercampur secara merata. Dekantasi digunakan untuk memisahkan campuran yang dihasilkan dan

menghilangkan etanol yang tersisa. Untuk menghilangkan sisa etanol dan air dari permukaan TiO<sub>2</sub>/bentonit, TiO<sub>2</sub>/bentonit dikeringkan selama lima jam dalam oven pada suhu 120°C (Fatimah *et al.*, 2008). Kalsinasi TiO<sub>2</sub>/bentonit bertujuan untuk membersihkan pori dari pengotor yang masih menempel (Wahyu, 2012).

### Sintesis katalis Ni-TiO<sub>2</sub>/Bentonit

Pembuatan katalis Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonit dilakukan dengan melarutkan nikel nitrat heksahidrat TiO<sub>2</sub>/bentonit dalam akuades, direfluks sambil diaduk untuk mendapatkan campuran homogen dan mempercepat proses masuknya nikel nitrat heksahidrat pada TiO<sub>2</sub>/bentonit. Kalsinasi pada temperatur 400°C dengan laju alir gas N<sub>2</sub> 20 mL/menit berfungsi untuk memodifikasi komposisi kimia dari suatu sampel (Handoko, 2002).

Proses reduksi terjadi setelah mengalirkan gas H<sub>2</sub> yang berfungsi untuk mengubah ion logam menjadi atom logam yang diembankan ke dalam bentonit. Katalis yang diperoleh dinamakan katalis Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonite (Changqing *et al.*, 2017)

### Karakterisasi TiO<sub>2</sub>/bentonit, Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonit Keasaman permukaan

Banyaknya situs asam (asam bronsted dan asam lewis) yang melekat pada setiap gram bentonit merupakan keasaman permukaan bahan (Sinta *et al.*, 2015). Teknik titrasi asam basa digunakan untuk menentukan keasaman permukaan bentonit. Metode volumetrik meliputi titrasi, di mana situs asam bentonit bereaksi dengan NaOH hingga volumenya ekuivalen (zat yang bereaksi habis seluruhnya).

Titrasi asam basa digunakan dalam proses karakterisasi keasaman permukaan pada sampel bentonit yang sudah dipilarisasi,

TiO<sub>2</sub>/bentonit, dan Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonit 1 %. Prinsip dari titrasi asam basa yang dilakukan yaitu situs asam pada permukaan bentonit direaksikan dengan basa (NaOH) berlebih, dan sisa OH<sup>-</sup> (yang tidak bereaksi dengan situs asam pada permukaan bentonit) dititrasi dengan asam (HCl) sehingga jumlah zat-zat yang bereaksi ekuivalen satu sama lainnya. Hasil yang diperoleh menunjukkan bahwa katalis Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonit memiliki nilai keasaman paling tinggi yaitu sebesar 1,57 mmol/g. Pengaruh kalsinasi dan penambahan pengemban logam pada bentonit terpillar akan meningkatkan situs keasaman total (Adriati, 2011).

**Tabel 1.** Hasil penentuan keasaman permukaan

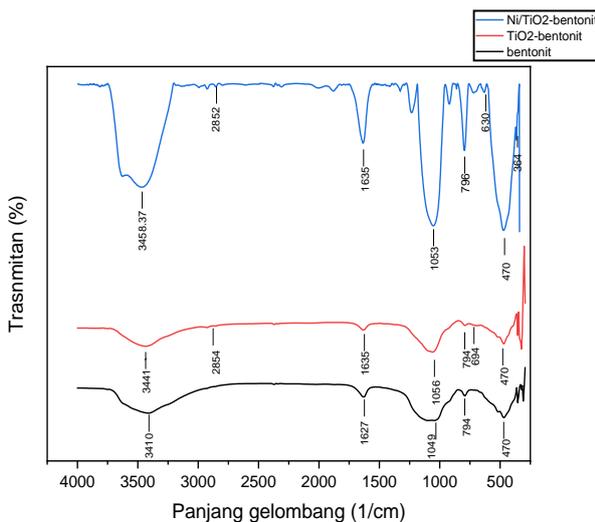
Sampel	Rata-rata(mmol/gr)
Bentonit preparasi	1,26
TiO <sub>2</sub> /bentonit	1,45
Ni-TiO <sub>2</sub> /bentonit	1,57

Keasaman katalis dipengaruhi oleh situs asam Lewis dan asam Bronsted. Logam Ni berperan sebagai asam Lewis (Trisunaryanti, 2014) dan bentonit berperan sebagai asam Bronsted (Lestari *et al.*, 2019). Interkalasi Ti dan kalsinasi mampu meningkatkan keasaman bentonit terpillar (1,26 mmol/g menjadi 1,45 mmol/g) (Tabel 1). Gyftopoulou *et al.* (2005) menyatakan bahwa keasaman permukaan lempung meningkat akibat distribusi agen pemilar, dehidroksilasi pemilar dan lembaran-lembaran lempung saat kalsinasi berlangsung. Kation-kation pada permukaan lempung akan tersubstitusi dengan H<sup>+</sup>, sehingga situs H<sup>+</sup> menjadi bertambah yang menyebabkan keasaman permukaan lempung akan semakin meningkat (Suarya, 2008).

Tingkat keasaman dari katalis akan mempengaruhi aktivitas katalis untuk reaksi

perengkahan. Pengikatan proton bebas selama proses dehidroksilasi agen pemilar dan lapisan silikat bentonit memperlihatkan peran dari asam Bronsted. Sedangkan agen pemilar yang berupa logam dalam bentuk oksidanya memperlihatkan sifat dari asam Lewis. Bentonit dan senyawa yang bertindak sebagai pemilar yang menentukan kekuatan dari asam ini. Sifat asam lempung terpillar dapat berguna pada reaksi perengkahan (Gyftopoulou et al., 2005).

Karakterisasi FTIR berfungsi untuk menentukan gugus fungsi katalis. Spektra inframerah mineral bentonit, TiO<sub>2</sub>/bentonit dan Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonit diamati pada panjang gelombang 450-4000 cm<sup>-1</sup>. Mineral bentonit memiliki puncak serapan khas berdasarkan hasil spektrum FTIR yang terdeteksi pada panjang gelombang 470 cm<sup>-1</sup> yang merupakan vibrasi tekuk (bending) dari Si-O-Si (Gambar 1). Pada puncak serapan daerah bilangan gelombang 1049 cm<sup>-1</sup> merupakan vibrasi ulur (stretching) dari Si-O-Si. Menurut Ritonga (2015), vibrasi tekuk dan ulur Si- O-Si terjadi pada masing- masing pita serapan 470 cm<sup>-1</sup> dan 1008,7 cm<sup>-1</sup>.



**Gambar 1.** Spektrum FTIR pada sampel bentonit, TiO<sub>2</sub>/bentonit dan Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonit

Bilangan gelombang 794 cm<sup>-1</sup> merupakan vibrasi regangan -OH yang terikat Al. Menurut Siregar dan Irma (2016), serapan pada 796,6 cm<sup>-1</sup> menunjukkan vibrasi ulur -OH terikat Al<sup>3+</sup> pada bagian antarlapis bentonit. Serapan pada 1627 cm<sup>-1</sup> diartikan sebagai vibrasi tekuk -OH dari molekul H<sub>2</sub>O yang teradsorpsi pada antarlapis bentonit. Serapan pada 3410 cm<sup>-1</sup> semakin mempertegas ikatan hydrogen tersebut (Ritonga, 2015).

Tabel 2 memperlihatkan puncak pada bilangan 694 cm<sup>-1</sup> dan 630 cm<sup>-1</sup> pada bentonit yang telah mengalami modifikasi dengan cara pemiliran dengan TiO<sub>2</sub> menunjukkan adanya vibrasi tekuk dari Ti-O-Ti. Sari et al. (2021), melaporkan vibrasi tekuk dari Ti-O-Ti terjadi pada bilangan gelombang 623,25 cm<sup>-1</sup>. Puncak baru muncul pada bilangan 2854 cm<sup>-1</sup> dan 2852 cm<sup>-1</sup> merupakan vibrasi kisi TiO<sub>2</sub>. Sari et al. (2021), puncak serapan pada 2517,26 cm<sup>-1</sup> menunjukkan adanya serapan Ti-O.

**Tabel 2.** Data serapan FTIR bentonit, TiO<sub>2</sub>/bentonit, dan Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonit

Bentonit	TiO <sub>2</sub> /bentonit	Ni-TiO <sub>2</sub> /Bentonit	Interpretasi
-	-	364	Intensitas kuat dari unsur logam
470	470	470	Vibrasi tekuk Si-O-Si
-	694	630	Vibrasi Ti-O-Ti
794	794	796	Vibrasi tekuk Al-OH
1049	1056	1053	Vibrasi ulur Si-O-Si
1627	1635	1635	Vibrasi tekuk O-H
-	2854	2852	Serapan Ti-O
3410	3441	3458	Vibrasi ulur O-H

Puncak baru muncul pada hasil FTIR Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonit pada bilangan gelombang 368 cm<sup>-1</sup>. Menurut Wogo (2013), Intensitas kuat dari unsur logam akan terlihat pada bilangan

gelombang 300-500  $\text{cm}^{-1}$  yang memungkinkan adanya nikel dalam bentonit. Pita serapan karakteristik untuk vibrasi ulur OH mengalami pergeseran puncak ke arah bilangan gelombang yang lebih tinggi seperti pada bilangan gelombang (3410  $\text{cm}^{-1}$  ; 3441  $\text{cm}^{-1}$  ; 3458  $\text{cm}^{-1}$ ) disebabkan oleh proses interkalasi. Menurut Fitriyah (2016), terjadinya interkalasi dapat diamati dari adanya pergeseran spektrum vibrasi ke arah bilangan gelombang yang lebih tinggi.

### Karakterisasi XRF

Analisis bentonit, bentonit-TiO<sub>2</sub> dan bentonit-Ni/TiO<sub>2</sub> dengan XRF bertujuan untuk menganalisis distribusi unsur-unsur yang terkandung dalam bentonit.

**Tabel 3.** Hasil analisis komposisi kimia bentonit, TiO<sub>2</sub>/bentonit, dan Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonit

Senyawa	Komposisi (%) Bentonit	Komposisi (%) TiO <sub>2</sub> /bentonit	Komposisi (%) Ni-TiO <sub>2</sub> /bentonit
SiO <sub>2</sub>	83,26	81,97	77,39
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	5,83	5,59	6,15
SO <sub>3</sub>	4,85	-	-
CaO	3,46	2,36	1,59
TiO <sub>2</sub>	1,06	8,68	9,13
NiO	-	-	0,58

Hasil XRF menunjukkan bahwa komponen utama penyusun bentonit adalah SiO<sub>2</sub> dan Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Tabel 3). SiO<sub>2</sub> dan Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pada bentonit memiliki komposisi terbesar daripada komponen oksida logam lain, seperti SO<sub>3</sub>, CaO, dan TiO<sub>2</sub>. Kandungan SiO<sub>2</sub> pada bentonit sebelum dilakukan proses pilarisasi sebesar 83,26%, sedangkan kandungan Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> sebesar 5,83%. Logam Fe terkandung dalam bentonit karena adanya

pengaruh dari lingkungan disekitarnya yang memungkinkan bentonit mengadsorpsi atau mengalami pertukaran kation maupun anion. Selain itu, adanya logam juga bisa disebabkan berasal dari oksida-oksida bebas sebagai pengotor.

Hasil analisis Tabel 3 menunjukkan bahwa bentonit mengalami penurunan persentase kandungan silikon dioksida yang disebabkan oleh proses pilarisasi. Selama proses kalsinasi yang menghasilkan pembentukan pilar TiO<sub>2</sub>, perubahan struktur kimia antar lapisan menyebabkan kandungan silikon menurun (Darmawan et al., 2005).

Berdasarkan hasil analisis XRF, terjadi pening katan komposisi TiO<sub>2</sub> setelah proses modifikasi dan impregnasi berturut-turut sebesar 8,68% meningkat menjadi 9,13%. Selain itu, Kandungan NiO muncul setelah dilakukan impregnasi sebesar 0,58%. Hal ini menunjukkan terjadinya modifikasi pada struktur bentonit setelah diimpregnasi dengan logam Ni yang mengindikasikan bahwa interkalasi berhasil dilakukan. Penelitian yang dilakukan oleh Widjaya et al., 2019 menyebutkan peningkatan komposisi kandungan unsur ketika dilakukan proses modifikasi menggunakan TiO<sub>2</sub> pada bentonit mengindikasikan bahwa saling berikatan pada antarlapis (*interlayer*) bentonit.

### Karakterisasi XRD

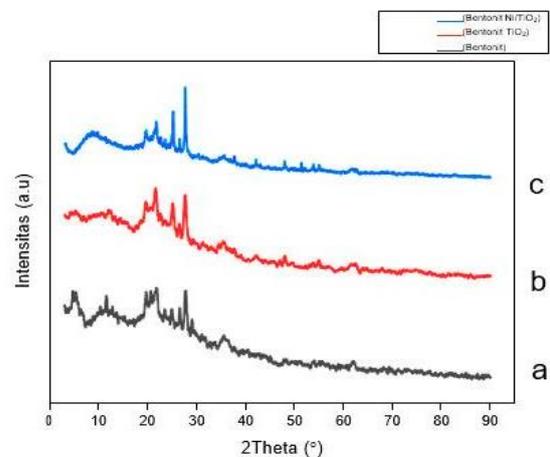
Sifat kristalisasi dari katalis ditentukan dengan menggunakan XRD. Pengukuran jarak antarlapis (*interlayer*) dilakukan pada sudut difraksi  $2\theta$  antara 5-90°. Pola difraksi katalis bentonit, bentonit-TiO<sub>2</sub>, dan bentonit- Ni/TiO<sub>2</sub> diperlihatkan pada Gambar 2.

Hasil Gambar difraktogram 2.a memperlihatkan puncak spesifik bentonit yaitu pada  $2\theta = 19,68^\circ$   $d = 4,50$ ;  $2\theta = 20,68^\circ$   $d =$

4,29 ;  $2\theta = 26,56^\circ$   $d = 3,35$  yang merupakan puncak ciri khas mineral *montmorillonit*. Hasil ini sesuai dengan data COD (*Crystallography Open Database*). Pola XRD montmorillonite umumnya berada pada  $2\theta = 19,58^\circ$ ;  $20,64^\circ$ ; dan  $26,33^\circ$  (Dewi et al., 2020). Berdasarkan hasil tersebut maka struktur bentonit termasuk tipe *montmorillonit*. Bentonit dengan tipe montmorillonit dibedakan melalui komposisi alumina-silika yang memiliki perbandingan konfigurasi 2:1 dengan sifat khas swelling (dapat mengembang) dalam kerangka bentonit (Wibowo, 2017), sedangkan puncak spesifik pada  $2\theta = 27,72^\circ$  dengan jarak  $d = 3,21 \text{ \AA}$  merupakan karakteristik untuk kuarsa. Kandungan kuarsa yang tinggi menunjukkan bahwa sampel bentonit memiliki kandungan kuarsa ( $\text{SiO}_2$ ) yang besar. Difraksi tersebut sesuai dengan puncak khas kuarsa yang dilaporkan oleh Mirzan (2020) puncak kuarsa memiliki intensitas yang tinggi terjadi karena struktur kuarsa relative lebih stabil terhadap temperatur  $400^\circ\text{C}$ . Dari sudut  $2\theta$  pada difraktogram, dimungkinkan untuk mengidentifikasi masuknya  $\text{TiO}_2$  ke dalam ruang antar lapisan bentonit. Menggunakan pedoman sinar-X (JCPDS No. 88-1175 dan 84-1286), fase anatase dapat dilihat pada sudut  $2\theta = 25^\circ$  untuk mengidentifikasi fase kristal  $\text{TiO}_2$  (Thamaphat et al., 2008). Difraktogram penelitian ini menunjukkan bahwa ketika dilakukan pemiliran terhadap  $\text{TiO}_2$ , terdapat sudut  $2\theta = 25,11^\circ$  yang belum pernah terlihat pada bentonit sebelumnya. Sehingga dapat ditarik kesimpulan bahwa  $\text{TiO}_2$  memiliki fasa anatase dan telah berhasil memasuki daerah interlayer bentonit sebagai penyangga.

Pola difraksi katalis Ni/ $\text{TiO}_2$  pada Gambar 2.c memperlihatkan adanya pengaruh penambahan logam Ni pada

bentonit termodifikasi  $\text{TiO}_2$  ditandai dengan munculnya pada puncak khas Ni pada  $2\theta = 37,70^\circ$   $d = 2,38 \text{ \AA}$  ;  $2\theta = 39,39^\circ$   $d = 2,28 \text{ \AA}$  ;  $2\theta = 43,02^\circ$   $d = 2,10 \text{ \AA}$  ;  $2\theta = 51,38^\circ$   $d = 1,77 \text{ \AA}$  ;  $2\theta = 86,63^\circ$   $d = 1,12 \text{ \AA}$  ;  $2\theta = 89,85^\circ$   $d = 1,09 \text{ \AA}$ . Hal ini sesuai dengan penelitian Syukri et al., (2003) Puncak khas Ni biasanya muncul pada  $2\theta = 44,80$  dan  $51,86$ . Hal ini menunjukkan bahwa logam nikel telah berhasil terimpregnasi ke dalam penyangga  $\text{TiO}_2$  (Galuh & Wuryaningsih, 2010).



**Gambar 2.** Difraktogram XRD pada sampel a. bentonit, b.  $\text{TiO}_2$ /bentonit dan c. Ni- $\text{TiO}_2$ /bentonit

**Tabel 4.** Perubahan *basal spacing*  $d_{001}$

Sampel	$2\theta$ ( $^\circ$ )	$d_{001}$ ( $\text{\AA}$ )	$\Delta d_{001} = d_{001} - 9,6$ ( $\text{\AA}$ )
Bentonit	5,80	15,22	5,62
$\text{TiO}_2$ /bentonit	5,85	15,09	5,49
Ni- $\text{TiO}_2$ /bentonit	6,06	14,56	4,96

Tabel 4 menunjukkan penurunan nilai *basal spacing* setelah proses modifikasi. Darmawan et al. (2005) melaporkan bahwa pada suhu yang cukup tinggi, struktur dari pilar  $\text{TiO}_2$  yang terbentuk kurang stabil dan sulit mempertahankan strukturnya, sehingga menyebabkan terjadinya penurunan nilai *basal spacing*. Nugroho (2014) menjelaskan bahwa penggunaan kalsinasi

dengan temperatur lebih dari 350°C akan merusak struktur lapisan pada lempung yang ditandai dengan mulai terjadinya pelepasan molekul air pada antarlapis lempung sehingga terjadi pergeseran puncak  $d_{001}$  ke arah kiri dan mengakibatkan penurunan nilai *basal spacing*.

## KESIMPULAN

Terjadi peningkatan komposisi TiO<sub>2</sub> setelah proses modifikasi dan impregnasi berturut-turut sebesar 8,68% meningkat menjadi 9,13%. Selain itu, Kandungan NiO muncul setelah dilakukan impregnasi sebesar 0,58% yang membuktikan bahwa interkalasi berhasil dilakukan. Vibrasi ulur -OH mengalami pergeseran puncak ke arah bilangan gelombang yang lebih tinggi (3410 cm<sup>-1</sup>; 3441 cm<sup>-1</sup>; 3458,37 cm<sup>-1</sup>) sebagai pita karakteristik dari Ni/TiO<sub>2</sub>-bentonit. Keasaman permukaan yang ditentukan dengan metode titrasi asam-basa mengalami peningkatan untuk Ni-TiO<sub>2</sub>/bentonit dengan hasil tertinggi sebesar 1,57 mmol/g. Katalis Ni/TiO<sub>2</sub>-bentonit selanjutnya sangat berpotensi dimanfaatkan pada reaksi perengkahan.

## UCAPAN TERIMAKASIH

Ucapan terimakasih Tim Peneliti haturkan kepada Dekan Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Tadulako yang telah memberikan dana Hibah Penelitian Skema Unggulan melalui dana DIPA Fakultas Nomor: 448.an/UN28.2/PL/2021.

## DAFTAR PUSTAKA

Adriati, M., Suseno, A., & Taslimah. (2013). Modifikasi Zeolit Alam Menggunakan Besi (Fe) dan Kobalt (Co) untuk Katalis Degradasi Fenol. *Jurnal Kimia Sains Dan Aplikasi*, 16(1), 1–5.

- Andronic, L., Perniu, D., Duta, A. (2013). Synergistic effect between TiO<sub>2</sub> sol-gel and Degussa P25 in dye photodegradation, *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 0928-0707 (66: 3)
- Changqing, C., Yi, Z., Wen, C., Hui, J., Liejin, G., Ziyang, H. (2017). Transition Metal Oxides as Catalysts for Hydrogen Production from Supercritical Water Gasification of Glucose, *Catalysis Letters*, DOI 10.1007/s10562-2017-2002-z.
- Darmawan, A.; Suseno, A. and Purnomo, S.A. (2005). Sintesis Lempung Terpillar Titania, *JSKA.*, 8 (3): 1-12.
- Dewi, D.A.D.N., Simpen, I.N., dan Suarsa, I.W. (2020). Synthesis and characterization of photocatalyst Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pillared montmorillonite doped TiO<sub>2</sub> and its application for rhodamine B photodegradation using visible light irradiation. *J. Chem.*, 14(1) 82–8.
- Diantariani, N.P. (2010). Peningkatan Potensi Batu Padas Ladgeston sebagai Adsorben Ion Logam Berat Cr(III) dalam Air melalui Aktivasi Asam dan Basa. *J. Kimia* 4(1).
- Dupain, X., Costa, D. J., Schaverien, C. J., Makkee, M., and Moulijn, J. (2007). Cracking of A Rapeseed Vegetable Oil Under Realistic FCC Conditions, *Appl. Catal. B.*, 72: 44–61.
- Fatimah, I., Wijaya, K., Setyawan, K.H. (2008). Synthesis ZrO<sub>2</sub>-Montmorillonite and Application as Catalyst in Catalytic Cracking of Heavy Fraction of Crude Oil. *Bulletin of Chemical Reaction Engineering & Catalysis*, 3(1-3), 2.
- Figueras, F. (1988). Pillared Clays as Catalysts. *Catalysis Reviews*, 30(3), 457–499.
- Fitriyah, F. (2016). Interkalasi Xilenol Orange pada Zeolit Alam Lampung Sebagai Elektroda Zeolit Termodifikasi. *EduChemia (Jurnal Kimia dan Pendidikan)*, 1(2), 162-175.
- Galuh W dan Wuryaningsih SR. (2010). Pengaruh Metode Preparasi dan

- Kandungan Logam Aktif terhadap Aktivitas Katalis Ni/Kieselguhr. *Jurnal Sains Materi Indonesia*, 11(2): 1-5.
- Gyftopoulou, M. E., Millan, M., Bridgwater, A. V., Dugwell, D., Kandiyoti, R., & Hriljac, J. A. (2005). Pillared clays as catalysts for hydrocracking of heavy liquid fuels. *Applied Catalysis A: General*, 282(1-2), 205-214.
- Handoko, D.S.P., (2002), The Effect of Acid, Hydrothermal and Support Chromium Treatments of Natural Zeolite in Catalyst Preparation, *Jurnal Ilmu Dasar*, 3(2) : 103-109.
- Klopprogge, J. T., Duong, L. V., & Frost, R. L. (2005). A Review of the Synthesis and Characterization of Pillared Clays and Related Porous Materials for Cracking of Vegetable Oil to Produce Biofuels. *Journal Environmental Geology*, 47, 1–36.
- Lestari, Dian Novita. (2009). Studi Preparasi dan Karakterisasi N-Doped TiO<sub>2</sub> dengan Metode Sol-Gel menggunakan prekursor Titanium IsoPropoksida (TTIP) dan Diethylamine (DEA). (*Skripsi*). Kimia FMIPA UI, Depok.
- Liu, J., Cao, Z., Xu, X., 2006, Hydro- upgrading of FCC on Ni-Mo-P/USY Catalyst. *Bulletin of the Catalysis Society of India*. 87-93.
- Mirzan, M. (2020). Impregnasi Logam Ni Bentonit Terpilar ZrO<sub>2</sub> Dan Aplikasinya Sebagai Katalis Hidrorengkah Tir Batubara. (*Disertasi*). Universitas Gadjah Mada. Yogyakarta
- Nugroho, W. S. K., Suseno, A., & Priyono, P. (2014). Pengaruh Temperatur Kalsinasi pada Modifikasi Lempung dengan Oksida Aluminium sebagai Pemilar. *Jurnal Kimia Sains dan Aplikasi*, 17(2), 43-47.
- Ritonga, P. S. (2015). Kajian XRD dan IR Lempung Terpilar-Fe Pada Penjernihan Minyak Daun Cengkeh. *Prosiding Seminar Rapat Tahunan*, 339–348.
- Ruslan, Hardi, J., & Mirzan, M. 2017. Sintesis dan Karakterisasi Katalis Lempung Terpilar Zirkonia Tersulfatasi Sebagai Katalis Perengkah. *Prosiding Seminar Nasional Kimia UNY*, 319–324.
- Rustam. (2011). Hidrodesulfurisasi Tiofen Menggunakan Katalis Como/H- Zeolit Y. *Jurnal Fisika Flux: Jurnal Ilmiah Fisika FMIPA Universitas Lambung Mangkurat*, 8(1), 1-6.
- Sari, A. R., Wardhani, S., Mutfotin, S., Matematika, F., Alam, P., & Brawijaya, U. (2021). Sintesis Granul TiO<sub>2</sub> -Bentonit /Alginat Untuk Fotodegradasi Metilen Biru. *The Indonesian Green Technology Journal*, 10(2), 50–57.
- Sinta, I.N., Suarya, P. & Santi, S.R. (2015). Adsorpsi Ion Fosfat oleh Lempung Teraktivasi Asam Sulfat. *Jurnal Kimia*. 9(2): 217-225.
- Siregar, S. H., & Irma, W. (2016). SINTESIS DAN PERBANDINGAN STRUKTUR, TEKSTUR BENTONIT ALAM DAN BENTONIT TERAKTIVASI SAM. *Photon: Journal of Natural Sciences and Technology*, 7(01), 137-140. <https://doi.org/10.37859/jp.v7i01.572>
- Suarya, P. (2008). Adsorpsi Pengotor Minyak daun Cengkeh oleh Lempung Teraktivasi Asam, *Jurnal Kimia*, 219-24.
- Suyati, L., (2005), Pembuatan dan Karakterisasi Katalis Nikel/Zeolit pada Pirolisis Tir Batubara, *Jurnal Kimia Sains dan Aplikasi*, 8(2) : 39-42.
- Syukri TB, Ohya Y, Takahashi Y. (2003). A Simple Synthesis of Metallic Ni and Ni-Co Alloy Fine Powders from a Mixed-metal Acetate Precursor. *Material Chemistry Physic*, 17: 645- 649.
- Thamaphat, K.; Limsuwan, P. and Ngotawornchai, B. (2008). Phase Characterization of TiO<sub>2</sub> Powder by XRD and TEM, *Kasetsart J. Nat. Sci.*, 42: 357–361.
- Trisunaryanti, W. (2015). Material Katalis Dan Karakternya. Yogyakarta : UGM Press.
- Vaccari, A. (1998). Preparation and Catalytic Properties of Cationic and Anionic Clays. *Catalysis Today*, 41(1–3), 53–71.
- Wahyu W. (2012). Impregnasi Zeolit Alam dengan TiO<sub>2</sub> untuk Degradasi Jingga Metil Secara Fotokatalitik (*Doctoral dissertation*), Universitas Airlangga.

- Wegener G, Zechlin J, Warlimont H. (2004). *Process for the production of Raney nickel catalysts and their use in the hydrogenation of organic compounds*. USPatent7517829.
- Wibowo, E. A. P. (2017). Sintesis Komposit N-TiO<sub>2</sub>/Bentonit dan Karakterisasi Menggunakan FTIR. *JTT (Jurnal Teknologi Terpadu)*, 5(1), 96.
- Widjaya, R. R., Juwono, A. L., & Rinaldi, N. (2019). Development Tin- Chromium Pillared in Bentonite as Catalyst for Ethanol to Gasoline Conversion. *Asian Journal of Applied Sciences*, 07(04), 425–434.
- Wijaya, K., (2002). Multifuction of Layer and Porous Materials, *Indo. J. Chem.*, 2(3): 142- 154.
- Wogo, H. E., Nitbani, F. O., & Tjitda, P. J. (2013). Sintesis Lempung Terinterkalasi Anilin dan Pemanfaatannya sebagai Adsorben Fenol. *Jurnal ilmiah Sains dan Terapan Kimia*, 7(1), 29-41.