

PENGARUH METODE PEMISAHAN PELARUT DALAM GEL TERHADAP SIFAT FISIK TITANIA-ALUMINA SEBAGAI PENYANGGA KATALIS

Silvester Tursiloadi¹, Dewi Sondari¹, Nino Renaldi¹ dan Hiroshi Hirashima²

¹Pusat Penelitian Kimia (P2K) - LIPI

Kawasan Puspiptek, Serpong, Tangerang 15314

²Department of Applied Chemistry, Faculty of Science and Technology
Keio University, 3-14-1, Hiyoshi, Kohoku-Ku, Yokohama 223-8522, Japan

ABSTRAK

PENGARUH METODE PEMISAHAN PELARUT DALAM GEL TERHADAP SIFAT FISIK TITANIA-ALUMINA SEBAGAI PENYANGGA KATALIS. TiO₂-Al₂O₃ gel monolitik dalam nisbah mol 0,2 untuk TiO₂ dan 0,8 untuk Al₂O₃ telah dibuat dengan cara hidrolisis dari aluminium sec-butoksida, Al(OC₄H₉^{sec})₃ dan titanium isopropoksida Ti(OC₃H₇^{iso})₄ dalam larutan n-propanol dengan katalis asam. Pemisahan pelarut dalam gel dilakukan dengan dua cara, pertama pengeringan pada tekanan atmosfer hingga terbentuk xerogel. Kedua, pemisahan pelarut pada kondisi CO₂ superkritik, hingga terbentuk aerogel. Terbentuknya gugus Ti-O, salah satu dari titanium dioksida atau jaringan polimer -Ti-O-Ti-O-Al-O- ditunjukkan dengan adanya puncak antara 500 dan 900 cm⁻¹ yang tajam tetapi lebar pada spektrum infra merah. Puncak yang kuat pada 1635 cm⁻¹ menandakan adanya gugus -OH uluran yang merupakan derajat yang tinggi dari permukaan hidroksilasi. Volume kumulatif pori-pori dari xerogel sangat kecil jika dibandingkan dengan aerogel hasil pemisahan pelarut pada kondisi CO₂ superkritik. Fase anatase TiO₂ tidak terbentuk selama proses kristalisasi hingga kalsinasi sampai suhu 1000°C. Pengkristalan alumina terjadi secara langsung dari fasa amorf Al₂O₃ ke fasa α-Al₂O₃ dan fasa-fasa antara θ- dan γ-Al₂O₃ tidak teramati. Dari hasil tersebut dapat diperkirakan bahwa selama kalsinasi partikel TiO₂ terpisah dari partikel Al₂O₃ membentuk inti atom rutil sebelum terbentuknya kristal α-Al₂O₃. Karena itu pembentukan fasa rutil TiO₂ akan mempercepat terbentuknya fasa α-Al₂O₃. Keasaman campuran titania alumina setelah dikalsinasi pada suhu 500 °C lebih tinggi daripada oksidanya masing-masing, yaitu TiO₂ dan Al₂O₃. Hal ini disebabkan oleh terbentuknya asam Lewis dari campuran titania-alumina.

Kata kunci : Katalis, Gel, Monolitik, Titania, Alumina, Superkritik, Kristal, Penyangga

ABSTRACT

EFFECT OF SOLVENT EXTRACTION METHOD ON PROPERTIES OF TITANIA-ALUMINA GEL AS SUPPORTING CATALYST. Monolithic gels of TiO₂-Al₂O₃ in molar ratio of 0.2 of TiO₂ and 0.8 of Al₂O₃ were prepared by hydrolysis of aluminium sec-butoxide, Al(OC₄H₉^{sec})₃ and titanium isopropoxide Ti(OC₃H₇^{iso})₄ in n-propanol solution with acid catalyst. Extraction of solvent in gel was done by two different methods, first, dried at atmospheric condition, resulting a xerogel, and second, extracted by flowing supercritical CO₂ in a supercritical extraction system to produce aerogel. The presence of Ti-O groups, either from titanium dioxide or the -Ti-O-Ti-O-Al-O- polymeric network is indicated by presence of the strong, but broad peak between 500 and 900 cm⁻¹ in infrared spectrum. After calcinating at 500 °C, the sample shows a strong peak at 1635 cm⁻¹, indicating the -OH stretching mode bears upon a high degree of surface hydroxylation. In comparison with the cumulative pore volume of the supercritically of calcinated aerogel, the cumulative pore volume of xerogel is much smaller. No anatase TiO₂ was observed during crystallization process up to 1000°C of calcinations. Direct crystallization of amorphous Al₂O₃ into α-Al₂O₃ and no θ and γ-Al₂O₃ were observed. These results suggest that during the calcinations treatment, TiO₂ is segregated from the Al₂O₃ particles forming nuclei of rutil and crystallizing before α-Al₂O₃. Therefore, the formation of rutil TiO₂ induces the formation of α-Al₂O₃. The acidity of titania-alumina mixture after calcinating at 500°C is higher than TiO₂ and Al₂O₃, indicating that a Lewis acid was formed.

Key words : Catalyst, Gel, Monolytic, Titania, Alumina, Supercritic, Crystal, Support

PENDAHULUAN

Sistem campuran $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ sangat menarik untuk berbagai aplikasi, seperti penyangga katalis dan material keramik maju. Akhir-akhir ini telah dilaporkan bahwa aktivitas katalis yang tinggi ditunjukkan dalam pembuatan anilin dari fenol dan amonia dan memiliki kenaikan keasaman berkenaan dengan adanya oksida-oksida campuran [1,2]. Kandungan dan letak kekuatan asam telah diketahui bergantung pada konsentrasi TiO_2 dan cara TiO_2 bergabung dalam matriks Al_2O_3 [2]. Di sisi lain, banyak laporan menunjukkan bahwa oksida-oksida $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ dipromosikan sebagai penyangga alternatif dari katalis hidrosulfurisasi (HDS) [3-7], dibanding dengan penyangga tradisional $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ [8]. Semua oksida ini dapat memperbaiki aktivitas katalis untuk penghilangan sulfur dan resisten terhadap abrasi [9].

Bartholow dan Vance [10] menyatakan bahwa penyangga dapat mempengaruhi adsorpsi, aktivitas dan selektivitas katalis hidrogenasi Co dan Ni. Terjadinya perbedaan pengaruh penyangga terhadap aktivitas katalis karena perbedaan sifat penyangga, terutama terhadap reduksibilitas penyangga tersebut dan luas permukaan spesifik. TiO_2 (anatase) yang mempunyai luas permukaan spesifik lebih kecil, yaitu $55 \text{ m}^2/\text{g}$ [11] dibanding dengan $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$, yaitu $150 \text{ m}^2/\text{g}$ [12]. Namun TiO_2 merupakan oksida yang lebih mudah direduksi menjadi suboksida TiO_x dibanding dengan Al_2O_3 .

Segawa dan et al. [13] melaporkan bahwa Mo yang disangga dengan campuran $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ mempunyai aktivitas katalitik yang tinggi terhadap hidrosulfurisasi minyak gas dibanding Al_2O_3 dan TiO_2 . Mereka melaporkan bahwa TiO_2 melapisi permukaan Al_2O_3 dan tidak ditemukan adanya pengelompokan. Dengan menggabungkan sifat reduksibilitas TiO_2 dan permukaan yang luas dari Al_2O_3 diharapkan dapat mempunyai sifat metanasi yang lebih besar dibanding dengan kedua penyangga asalnya yaitu TiO_2 dan Al_2O_3 .

Sifat-sifat material katalis dan penyangga bergantung pada cara pembuatannya [1-6]. Salah satunya ialah metode sol-gel yang sangat penting dalam aplikasinya pada bidang katalis. Distribusi pori-pori dan luas permukaan spesifik yang tinggi dari material dapat dibuat dengan metode sol-gel. Metode sol-gel tidak hanya dapat untuk mengendalikan ciri penyangga tetapi juga memungkinkan untuk membuat oksida katalis berpenyangga dari larutan homogen yang mengandung keduanya, yaitu prekursor metal dan prekursor penyangga [1,5]. Penambahan TiO_2 ke dalam Al_2O_3 dalam nisbah mol 0,2 untuk TiO_2 dan 0,8 untuk Al_2O_3 akan memperluas luas permukaan spesifik. Luas permukaan menurun jika ditambahkan lebih dari 0,2 mol TiO_2 [8]. Di sisi lain, Weissman et al. [9] telah melaporkan bahwa konsentrasi titania yang tinggi dalam campuran titania-zirkonia tidak stabil

Dengan berdasarkan data tersebut di atas, telah dilakukan penelitian pembuatan campuran $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$

serbuk dengan metoda sol-gel. Pengaruh pemisahan pelarut dalam gel dipelajari dengan cara pengeringan pada tekanan atmosferik hingga terbentuk xerogel dan pemisahan pelarut pada kondisi CO_2 superkritik hingga terbentuk aerogel terhadap sifat-sifat fisik campuran titania alumina.

METODE PERCOBAAN

Bahan dan Alat

Bahan dan alat-alat yang digunakan dalam percobaan ini ialah aluminium sec-butoksida, titanium isopropoksida, n-propanol, asam nitrat dari Merck, dan gas CO_2 . Alat analisis terdiri atas difraksi sinar X (Rigaku, RAD-C), alat TG-DTA 6200 (alat sistem Seiko/Exstar 6000), alat ekstraksi cairan superkritik, alat Barret-Joyner-Halenda (BJH), Scanning Electron Microscopy (SEM), dan alat FTIR

Cara Kerja

$\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ gel monolitik dalam nisbah mol 0,2 untuk TiO_2 dan 0,8 untuk Al_2O_3 telah dibuat dengan cara hidrolisis dari aluminium sec-butoksida, $\text{Al}(\text{OC}_4\text{H}_9^{\text{sec}})_3$ (ASB) dan titanium isopropoksida $\text{Ti}(\text{OC}_3\text{H}_7^{\text{iso}})_4$ (TIP) dalam larutan n-propanol dengan katalis asam. Nisbah mol yang digunakan dalam sintesis ini ialah $\text{H}_2\text{O}/\text{alkoksida}$ 2, $\text{HNO}_3/\text{alkoksida}$ 0,06 dan n-propanol/alkoksida 12.

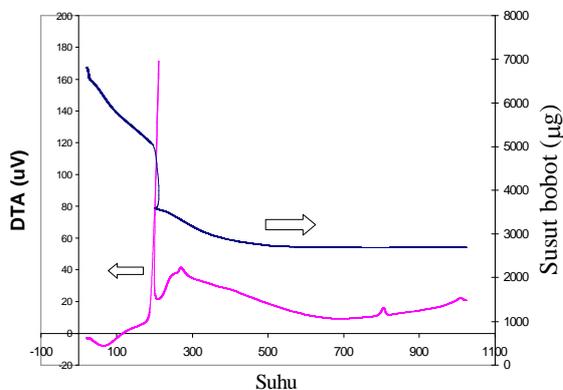
Pertama ABS dilarutkan dalam n-propanol pada 65°C , formulasi dihitung sesuai dengan nisbah mol tersebut, dan diaduk dengan kuat. Campuran diaduk terus-menerus pada 65°C selama 1 jam sehingga terjadi pelarutan sempurna. Setelah ABS larut kemudian didinginkan hingga suhu kamar, TIP dengan jumlah mol sesuai dengan formula campuran oksida ditambahkan dan diaduk selama 1 jam. Setelah itu, campuran dari sisa n-propanol, H_2O dan HNO_3 ditambahkan tetes demi tetes dan diaduk terus-menerus. Gel terbentuk setelah tetes terakhir ditambahkan.

Pelarut dalam gel dipisahkan dengan dua cara, pertama dikeringkan pada suhu 100°C pada tekanan atmosfer selama 18 jam hingga terbentuk xerogel. Kedua, pelarut dari gel dipisahkan pada kondisi CO_2 superkritik, yaitu pada suhu 313 K dan tekanan 14 MPa selama 2 jam. Aerogel yang terbentuk selanjutnya dikeringkan pada suhu 100°C selama 18 jam. Perubahan mikrostruktur dari gel selama pemanasan dievaluasi dengan *thermal gravimetric dan differential thermal analyses* (TG-DTA) dan N_2 adsorpsi. TG-DTA diukur menggunakan alat sistem Seiko (Exstar 6000) TG-DTA 6200 di bawah aliran O_2 dengan kecepatan 300 mL min^{-1} , dan kecepatan pemanasan $10^\circ\text{C min}^{-1}$. Luas permukaan spesifik, distribusi ukuran pori-pori dan volume pori-pori dari gel sebelum dan setelah dikalsinasi pada berbagai suhu, dianalisis menggunakan Barret-Joyner-Halenda (BJH) dengan metode kurva adsorpsi-desorpsi N_2 . Kelakuan

kristalisasi dari contoh dianalisis dengan alat difraksi sinar X (Rigaku, RAD-C) setelah dikalsinasi berturut-turut pada suhu 500, 600, 750, 800, dan 1000°C.

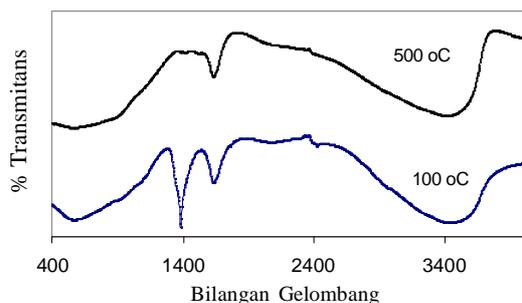
HASIL PENGAMATAN

Profil TG dan DTA dari gel yang sudah dikeringkan diperlihatkan pada Gambar 1. Kehilangan bobot sekitar 55% teramati sekitar suhu 200°C. Di atas 300°C tidak terjadi kehilangan bobot. Kurva DTA menunjukkan adanya puncak endotermik sekitar 100°C yang mengindikasikan berturut-turut menguapnya air sebagai bahan untuk menghidrolisis dan n-propanol sebagai pelarut. Puncak eksotermik yang tajam sekitar 200°C yang diikuti oleh kehilangan berat pada TG sekitar 55% mengindikasikan terjadinya pembakaran residu organik. Puncak-puncak eksotermik yang kecil juga teramati sekitar suhu 800 dan 1000°C, mengindikasikan adanya kristalisasi.



Gambar 1. Kurva TG-DTA untuk campuran titania alumina xerogel

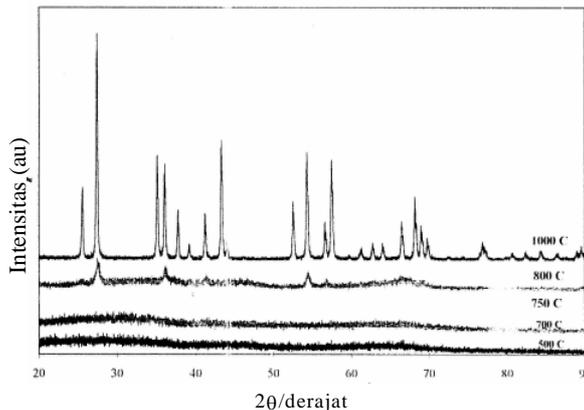
Pola spektrum FTIR dari campuran $TiO_2 - Al_2O_3$ setelah dikeringkan pada suhu 100°C dan dikalsinasi pada suhu 500°C dalam daerah 4000–400 cm^{-1} dapat dilihat pada Gambar 2. Spektrum yang lebar sekitar 3400 cm^{-1} menunjukkan adanya gugus OH yang disebabkan oleh adanya air dan gugus =Ti-OH. Contoh yang dikeringkan menunjukkan adanya spektrum yang kuat pada 1636 cm^{-1} yang menunjukkan adanya uluran dari -OH dan spektrum pada 1377 cm^{-1} menunjukkan adanya getarani -C-H. Setelah dikalsinasi pada suhu 500°C



Gambar 2. Spektrum FTIR untuk campuran titania alumina setelah pengeringan pada suhu 100°C dan kalsinasi 500°C.

selama 2 jam, spektrum pada daerah 2920, 2851, 1473 dan pada daerah 1377 cm^{-1} menghilang, akan tetapi spektrum pada 3400 cm^{-1} untuk gugus OH dan pada 1635 cm^{-1} untuk -OH masih kelihatan.

Pembentukan fasa kristal selama proses pembakaran perlu dicermati, karena secara alami fasa penyangga dapat mempengaruhi kelakuan dari katalis. Setelah dikeringkan pada suhu 100°C selama 18 jam, kedua contoh baik xerogel maupun aerogel mempunyai fase amorf, sebagaimana ditunjukkan pola difraksi pada Gambar 3. Setelah dikalsinasi sampai suhu 750°C selama 2 jam, fasa amorf dari kedua contoh tidak menampakkan adanya perubahan. Setelah dikalsinasi pada suhu 800°C selama 2 jam, fasa amorf dari kedua contoh berubah menjadi fasa TiO_2 rutil. Pada akhirnya, setelah dikalsinasi pada suhu 1000°C selama 2 jam, fase TiO_2 rutil dan fase α -alumina teramati. Dari hasil analisis difraksi sinar X ini, fasa-fasa antara seperti TiO_2 anatase, θ - dan γ -alumina tidak teramati pada kedua contoh, baik xerogel maupun aerogel.

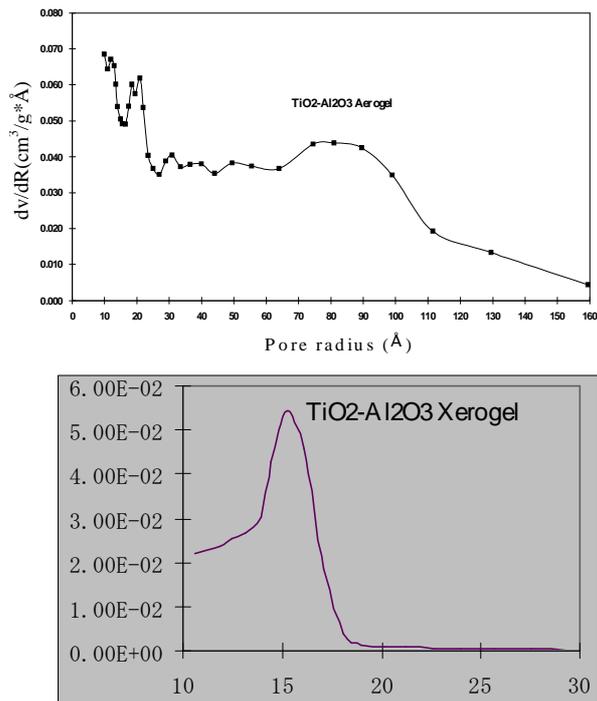


Gambar 3. Pola XRD untuk contoh campuran titania-alumina setelah dikalsinasi pada berbagai suhu dan di tahan 2 jam.

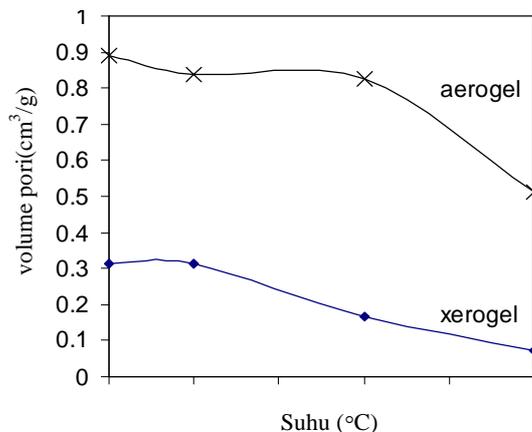
Distribusi ukuran pori-pori untuk campuran titania alumina aerogel dan xerogel setelah dikalsinasi pada suhu 500°C selama 2 jam dapat dilihat pada Gambar 4. Pola distribusi ukuran pori-pori sangat berbeda antara campuran titania alumina xerogel dan aerogel. Campuran titania alumina xerogel mempunyai distribusi ukuran pori-pori yang lebih homogen dibandingkan dengan campuran titania alumina aerogel. Ukuran rata-rata radius pori-pori campuran titania alumina aerogel jauh lebih besar, yaitu 7,75 nm daripada ukuran rata-rata radius pori-pori campuran titania alumina xerogel, yaitu 1,99 nm.

Pengaruh suhu kalsinasi campuran titania alumina aerogel dan xerogel terhadap volume pori-pori kumulatif dapat dilihat pada Gambar 5. Campuran titania alumina aerogel mempunyai volume pori-pori kumulatif jauh lebih besar dari pada campuran titania alumina xerogel untuk semua suhu kalsinasi. Volume pori-pori kumulatif turun dengan naiknya suhu kalsinasi.

Campuran titania alumina aerogel mempunyai luas permukaan spesifik lebih besar dari pada campuran titania



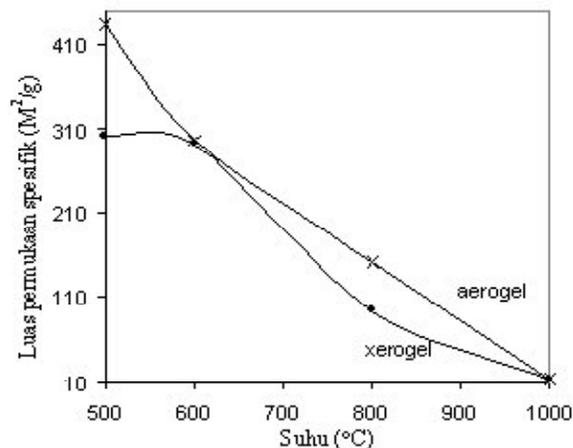
Gambar 4. Distribusi ukuran pori campuran titania-alumina aerogel dan xerogel setelah dikalsinasi pada suhu 500°C selama 2 jam.



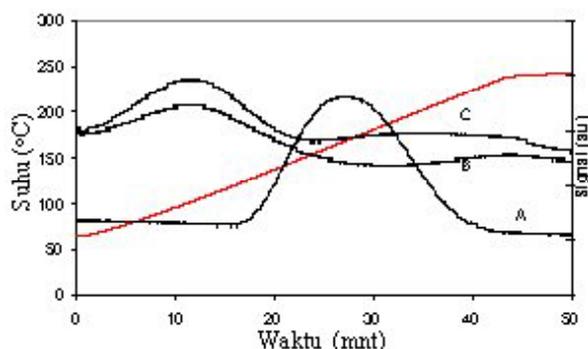
Gambar 5. Kumulatif volume pori-pori untuk campuran titania alumina aerogel dan xerogel setelah dikalsinasi pada berbagai suhu selama 2 jam.

alumina xerogel setelah dikalsinasi pada suhu 500°C selama 2 jam. Akan tetapi setelah dikalsinasi pada suhu 600°C selama 2 jam luas permukaan spesifik dari campuran titania alumina aerogel turun secara drastis menyamai luas permukaan spesifik dari campuran titania alumina xerogel. Luas permukaan spesifik dari kedua contoh turun secara nyata dengan naiknya suhu kalsinasi; hal tersebut dapat dilihat pada Gambar 6.

Dari hasil analisis TPD (*temperature programmed desorption*) dapat dilihat profil C_6H_6 - dari alumina-titania, alumina, dan titania setelah dikalsinasi pada 500°C pada Gambar 7. Keasaman dari alumina dan titania relatif sama, yaitu C_6H_6 - terlepas pada suhu sekitar 105°C.



Gambar 6. Luas permukaan spesifik untuk campuran titania-alumina aerogel dan xerogel setelah dikalsinasi pada berbagai suhu selama 2 jam



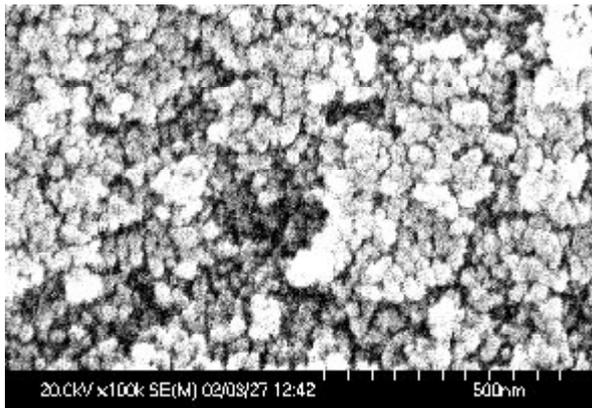
Gambar 7. Profil C_6H_6 -TPD dari (A) alumina-titania, (B) alumina dan (C) titania setelah dikalsinasi pada 500°C

Campuran titania dan alumina mempunyai keasaman yang lebih kuat yaitu C_6H_6 - terlepas pada suhu sekitar 160°C.

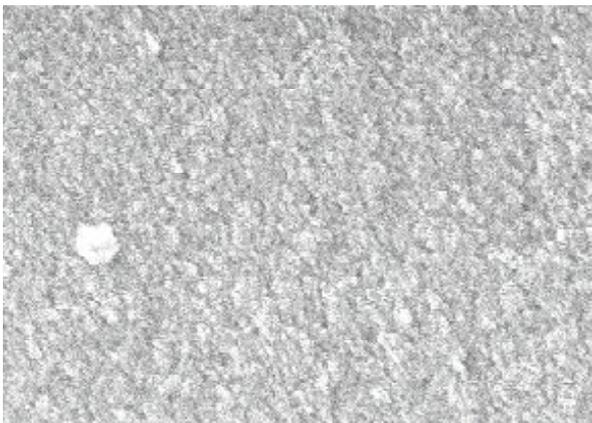
Data analisis dengan SEM (Gambar 8) untuk campuran dari $TiO_2-Al_2O_3$ xerogel dan aerogel setelah dikalsinasi pada suhu 500°C selama 2 jam. Campuran $TiO_2-Al_2O_3$ aerogel mempunyai ukuran partikel jauh lebih besar, yaitu sekitar 250 nm dibanding dengan campuran $TiO_2-Al_2O_3$ xerogel, yaitu sekitar 100 nm. Campuran titania-alumina xerogel mempunyai ukuran partikel yang lebih homogen dari pada campuran titania-alumina aerogel. Ukuran pori-pori campuran titania-alumina aerogel juga terlihat lebih besar daripada ukuran pori-pori campuran titania-alumina xerogel.

PEMBAHASAN

Spektrum FT-IR contoh setelah dikalsinasi pada suhu 500°C menunjukkan adanya gugus Ti-O dan salah satu dari titanium dioksida atau jaringan polimer -Ti-O-Ti-O-Al-O- yang teridentifikasi dengan adanya puncak antara 500 dan 900 cm^{-1} yang tajam tetapi lebar. Puncak yang kuat pada 1635 cm^{-1} menandakan adanya -OH uluran yang merupakan derajat yang tinggi dari



a



b

Gambar 8. Foto SEM dari campuran titania alumina (A) aerogel dan (B) xerogel setelah dikalsinasi pada suhu 500°C selama 2 jam

permukaan hidroksilasi. Puncak DTA yang teramati pada 800°C menunjukkan terjadinya kristalisasi secara langsung dari fase amorf ke fase rutil TiO_2 , yang diperkuat dengan adanya puncak-puncak difraksi sinar X (Gambar 3). Fase anatase TiO_2 tidak teramati. Puncak DTA pada 1000°C menunjukkan terjadinya kristalisasi secara langsung dari fase amorf Al_2O_3 ke fase $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Gambar 3). Fase antara $\theta\text{-}$ dan $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ tidak teramati. Dari hasil ini dapat diperkirakan bahwa selama kalsinasi partikel TiO_2 terpisah dari partikel Al_2O_3 membentuk inti atom rutil sebelum kristal $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ terbentuk. Karena itu pembentukan fasa rutil TiO_2 akan mempercepat terbentuknya fasa $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$.

Pengaruh ekstraksi pelarut pada gel terhadap diameter rata-rata pori untuk contoh setelah dikalsinasi pada suhu 500 °C (Gambar 4) menunjukkan bahwa ekstraksi yang dilakukan dengan menggunakan CO_2 pada kondisi superkritik menghasilkan serbuk yang mempunyai diameter rata-rata pori 7,75 nm, jauh lebih besar daripada yang diekstraksi dengan cara pengeringan pada kondisi atmosferik, yaitu 1,99 nm. Foto SEM (Gambar 8) memperlihatkan perbedaan yang sangat mencolok, yaitu pori-pori dari contoh yang diekstraksi dengan menggunakan CO_2 pada kondisi superkritik lebih besar daripada yang diekstraksi dengan cara pengeringan pada kondisi atmosferik. Hal ini disebabkan pada pengambilan

pelarut pada kondisi superkritik, gel yang diekstraksi tidak mengalami penyusutan yang berarti dibanding dengan ekstraksi dengan cara pengeringan pada tekanan atmosferik sehingga meninggalkan hasil ekstrak yang mempunyai pori yang lebih besar. Serbuk hasil dari ekstraksi yang dilakukan dengan menggunakan CO_2 pada kondisi superkritik menunjukkan volume pori yang jauh lebih besar daripada serbuk hasil ekstraksi dengan cara pengeringan pada tekanan atmosferik (Gambar 5), dan volume pori ini dapat dipertahankan hingga suhu kalsinasi dinaikkan 800°C, meskipun pada suhu kalsinasi tersebut di atas rutil TiO_2 sudah terbentuk (Gambar 3). Akan tetapi luas permukaan spesifiknya turun secara mencolok setelah suhu kalsinasi dinaikkan (Gambar 6). Hal ini menunjukkan bahwa struktur pori yang terbentuk pada kalsinasi hingga suhu 800°C mengalami perubahan, sehingga luas permukaan spesifiknya turun, akan tetapi jumlah keseluruhan dari volume pori tidak berubah secara berarti. Setelah dikalsinasi pada suhu 1000°C, volume pori turun secara nyata dan luas permukaan spesifiknya turun secara mencolok. Hal ini akibat terbentuknya kristal yang sempurna dari fase rutil TiO_2 dan fase $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Gambar 3).

Keasaman campuran titania alumina setelah dikalsinasi pada suhu 500°C lebih tinggi daripada oksidanya masing-masing, yaitu TiO_2 dan Al_2O_3 (Gambar 7). Hal ini disebabkan karena adanya asam Lewis dari campuran titania-alumina. Keasaman titania-alumina didasarkan pada perbedaan koordinasi yang diperlukan dari aluminium (*threefold*) dan titanium (*fourfold*) dalam struktur oksida polimer titania-alumina. Atom aluminium mempunyai struktur valensi elektron $3s^2 3p^1$, yang diikuti ikatan-ikatan tiga atom oksigen untuk menyusun struktur alumina. Dalam struktur yang digabungkan dengan titania, setiap atom aluminium mengikat oksigen (Al-O) ke dalam tiga orientasi yang sesuai dengan konfigurasi tetrahedral dari ikatan-ikatan Ti-O pada atom-atom titanium. Sebagai hasil, kekosongan elektron tetrahedral secara langsung pada atom aluminium memberikan tempat untuk pasangan elektron.

KESIMPULAN

Serbuk $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ yang dibuat dengan metode sol-gel dan pelarut dipisahkan dengan CO_2 pada kondisi superkritik menghasilkan $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ yang mempunyai luas permukaan spesifik dan kumulatif pori volume yang tinggi daripada pelarut dipisahkan dengan pengeringan pada kondisi atmosferik.

Fase anatase TiO_2 tidak teramati selama proses kristalisasi hingga kalsinasi sampai suhu 1000°C. Pengkristalan alumina terjadi secara langsung dari fase amorf Al_2O_3 ke fase $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ dan fasa-fasa antara $\theta\text{-}$ dan $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ tidak teramati. Dari hasil ini dapat diperkirakan bahwa selama kalsinasi partikel TiO_2 terpisah dari partikel Al_2O_3 membentuk inti atom rutil sebelum terbentuknya kristal $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$. Oleh karena itu,

pembentukan fase rutil TiO_2 akan mempercepat terbentuknya fase $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$.

Keasaman campuran titania alumina setelah dikalsinasi pada suhu 500°C lebih tinggi daripada masing-masing oksidanya, yaitu TiO_2 dan Al_2O_3 . Hal ini disebabkan adanya asam Lewis dari campuran titania-alumina.

DAFTAR ACUAN

- [1]. J. RAMIREZ, L. RUIZ-RAMIREZ, L. CEDENO, V. HARLE, M. VRINAT and M. BREYSSE, *Appl. Catal.*, **93**, 163, (1993).
- [2]. H. NAKABAYASHI, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **65**, 914, (1992).
- [3]. HIROSHI HIRASHIMA, HIROAKI IMAI, VLADIMIR BALEK, *J. Non-Crystalline Solids.*, **285**, 96, (2001).
- [4]. MIAH MUHAMMED YUSUF, HIROAKI IMAI, HIROSHI HIRASHIMA. *J. Non-Crystalline Solids.*, **285**, 96, (2001).
- [5]. H. WOHLFROMM, P. PENA, J.S. MOYA and J. REQUENA, *J. Am. Ceram. Soc.*, **75**, 3473, (1992).
- [6]. B.N. DAS, *J. Mater. Sci. Lett.*, **11**, 843, (1992).
- [7]. MAKOTO TOBA, FUJIO MIZUKAMI, SHU-ICHI NIWA, YOSHIMICHI KIYOZUMI, KAZUYUKI MAEDA, ARTO ANNILA AND VEIKKO KOMPPA, *J. Mater. Chem.*, **4(4)**, 585, (1994).
- [8]. R. LINACERO, M.L. ROJAS-CERVANTES, J. DE D. LOPEZ-GONZALEZ, *J. Mater. Sci.*, **35**, 3279, (2000).
- [9]. I.C. WEISSMAN, E.I. KO and S. KAYTAL., *Appl. Catal.*, **94**, 45, (1993).
- [10]. BARTHOLOMEW C.H. and CRAIG K. VANCE, *J. of Catalysis.*, **91**, 78-84, (1985).
- [11]. HAERUDIN H., STEPHAN BERTEL, REINHARD KRAMER, *J. Chemical Society, Faraday Trans.*, **94(10)**, 1481-1487, (1998).
- [12]. VANCE C.K., and CALVIN H. BARTHOLOMEW, *Applied Catalysis.*, **7**, 169-177, (1983).
- [13]. SEGAWA K., KAZUSHIGE TAKAHASHI, SHINOBU SATOH, *Catalysis Today.*, **63 :2-4**, 123-131, (2000).