

HIDROKSILASI FENOL DENGAN MENGGUNAKAN KATALIS $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ YANG DIKALSIKASI PADA SUHU BERVARIASI

Anis Farika, Syafsir Akhlus, Didik Prasetyoko¹⁾

Department of Chemistry,
Faculty of Mathematic and Sciences,
Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS),
Surabaya, Indonesia, 60111

¹⁾ Corresponding author, Phone: +62-31-5943353, fax. +62-31-5928314
email: didikp@chem.its.ac.id

ABSTRAK

Katalis $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ telah terbukti mempunyai aktivitas katalitik yang tinggi dibandingkan dengan TS-1 pada reaksi hidroksilasi fenol menjadi hidrokinon. Persiapan katalis menggunakan teknik impregnasi dengan menggunakan ammonium molibdat sebagai prekursor. Katalis dikalsinasi pada daerah suhu 400-800°C dan dikarakterisasi dengan menggunakan teknik difraksi sinar-X (XRD), adsorpsi piridin, dan uji hidrofilisitas. Suhu kalsinasi mempengaruhi sifat katalis dan berhubungan dengan aktivitas katalitik. Katalis $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ yang telah dikalsinasi pada 400°C menunjukkan hidrofilisitas tertinggi dibandingkan dengan TS-1, dan menunjukkan kecepatan reaksi yang lebih cepat pada pembentukan hidroksilasi fenol dan menunjukkan kenaikan aktivitas katalitik dibandingkan dengan katalis awal, TS-1.

Kata kunci: hidroksilasi fenol, H_2O_2 , TS-1, $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$

ABSTRACT

THE PHENOL HYDROXYLATION USING A $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ CATALYST THAT CALCINED ON THE VARIOUS TEMPERATURE. $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ catalyst has been proven have a higher catalytic activity rather than TS-1 on phenol hydroxylation reaction become a hydroquinone. Preparation catalyst using a impregnation technique with ammonium molybdate as a precursor. Catalyst calcined at temperature 400-800°C and characterized by X-Ray Diffraction (XRD), pyridine adsorption, and hydrophilicity test. Calcination temperature affects a catalyst characteristic and related to catalyst activity. $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ catalyst has been calcined at temperature 400°C showed a higher hydrophilicity rather than TS-1, a faster speed reaction on phenol hydroxylation, and increasing of catalyst activity rather than initial catalyst, TS-1.

Keywords : phenol hydroxylation, H_2O_2 , TS-1, $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$

PENDAHULUAN

Titanium silikat (TS-1) telah ditemukan pada 1983 oleh Taramasso dkk, dan secara berangsur-angsur penemuan tersebut telah diakui sebagai tonggak bersejarah dalam katalisis heterogen (Yang *et al.*, 2007) [1]. Dengan menggunakan hidrogen peroksida (H_2O_2) sebagai oksidan, zeolit TS-1 menunjukkan performa yang sangat bagus terhadap berbagai macam proses oksidasi selektif dari hidrokarbon, alkana, dll. Diantara reaksi oksidasi tersebut, hidroksilasi fenol membentuk difenol (hidrokinon dan katekol) merupakan salah satu proses yang terpenting dan menjanjikan dalam industri kimia karena difenol merupakan produk yang memiliki manfaat yang cukup luas dalam bidang fotografi, kimia seperti sebagai inhibitor polimerisasi, anti oksidan karet dan makanan

serta dalam bidang farmasi (Klaewkla *et al.*, 2007) [2].

Reaksi hidroksilasi fenol menggunakan katalis TS-1 memberikan aktivitas dan selektivitas yang tinggi, merupakan "clean reaction", dekomposisi H_2O_2 non-produktif yang rendah, stabilitas katalis yang tinggi, dan dapat digunakan pada reaksi fase cair (Liu *et al.*, 2004) [3]. TS-1 mengurangi produk tar dan produk samping yang berpotensi sebagai polutan. Namun, disamping berbagai keunggulan yang dimiliki katalis TS-1, reaksi hidroksilasi fenol menggunakan katalis TS-1 menunjukkan laju reaksi yang rendah (Sun *et al.*, 2000) [4]. Mekanisme reaksi katalitik pada katalis TS-1 dengan menggunakan H_2O_2 diawali oleh adsorpsi H_2O_2 pada permukaan katalis membentuk spesies intermediet (kompleks Ti-Perokso), kemudian diikuti adsorpsi substrat katalis dengan Ti perokso yang pada akhirnya akan menghasilkan

produk difenol (Liu *et al.*, 2007; Bonino *et al.*, 2004) [5-6]. Karena H_2O_2 yang bersifat hidrofil dan TS-1 yang bersifat hidrofob maka laju H_2O_2 menuju TS-1 menjadi lambat, sehingga pembentukan Ti-perokso menjadi lambat. Penambahan sifat hidrofilik dapat dilakukan dengan penambahan oksida logam ke dalamnya sehingga meningkatkan keasaman. Penelitian dalam reaksi epoksidasi 1-oktena menunjukkan bahwa oksida logam yang terikat pada katalis TS-1 ternyata memberikan sisi asam Brønsted yang mampu meningkatkan sifat hidrofil katalis sehingga adsorpsi reaktan pada katalis menjadi lebih cepat (Prasetyoko, 2006; Prasetyoko, 2009 [7-8]).

Temperatur kalsinasi katalis juga merupakan salah satu parameter penting pada preparasi katalis, yang berhubungan dengan struktur dan sifat katalis (Tan *et al.*, 2002) [9]. Temperatur kalsinasi berbeda menyebabkan struktur berbeda yang berhubungan dengan sifat-sifat katalis seperti sifat keasaman. MoO_3 amorf menyediakan sisi asam Lewis lebih pada permukaan katalis dibandingkan MoO_3 kristalin (Liu *et al.*, 2007). Adanya dispersi MoO_3 pada ZrO_2 terbukti dapat meningkatkan aktivitas katalitik *cracking* cumena dan dehidrasi etanol. Hal ini dikarenakan adanya peningkatan sifat keasaman yaitu sisi asam Brønsted. Pada temperatur kalsinasi $550^\circ C$ katalis MoO_3/ZrO_2 mempunyai keasaman tertinggi dibandingkan pada temperatur kalsinasi lain. Meningkatnya temperatur kalsinasi diatas $550^\circ C$ menyebabkan berkurangnya Mo-O-Zr yang merupakan prekursor dari $Zr(MoO_4)_2$ sehingga menurunkan keasaman katalis (El-Sharkawy *et al.*, 2007) [10].

Indrayani (2008) [11] telah melaporkan pengaruh penambahan oksida logam MoO_3 pada TS-1, ternyata memberikan sisi keasaman dan sifat hidrofilitas katalis yang berbeda. Dan aktivitas terbesar katalis dihasilkan pada reaksi hidroksilasi fenol pada *loading* 1% $MoO_3/TS-1$. Sehingga pada penelitian ini akan diteliti pengaruh temperatur kalsinasi pada *loading* optimum yaitu 1% $MoO_3/TS-1$, terhadap aktivitasnya pada reaksi hidroksilasi fenol.

METODE PENELITIAN

Sintesis 1% $MoO_3/TS-1$

Katalis TS-1 disintesis dengan metode menurut Taramasso (Taramasso *et al.*, 1983) [12], sedangkan katalis 1% $MoO_3/TS-1$

disiapkan menggunakan metode impregnasi, yaitu titanium silikalit dimasukkan dalam larutan ammonium molibdat yang diperoleh dengan melarutkan amonium molibdat dalam air destilasi. Campuran titanium silikalit dalam larutan amonium molibdat tersebut diaduk dengan pengaduk magnet dan ditutup selama 3 jam, campuran dipanaskan pada temperatur $80-90^\circ C$ untuk menguapkan air. Padatan yang diperoleh, kemudian dikeringkan pada temperatur $110^\circ C$ selama 24 jam dan dikalsinasi pada temperatur $400^\circ C$, $500^\circ C$, $600^\circ C$, $700^\circ C$ dan $800^\circ C$ selama 5 jam.

Karakterisasi

Katalis TS-1 dan 1% $MoO_3/TS-1$ dengan kalsinasi $400^\circ C$, $500^\circ C$, $600^\circ C$, $700^\circ C$, $800^\circ C$ dikarakterisasi dengan teknik XRD dan spektroskopi FTIR untuk mengetahui strukturnya. Analisis keasaman permukaan dilakukan dengan meletakkan sampel yang telah ditekan dengan tekanan sekitar 2,5 ton pada pemegang sampel, dan dimasukkan ke dalam sel kaca yang terbuat dari pirex yang mempunyai jendela terbuat dari kalsium florida, CaF_2 . Selanjutnya, sel kaca dipanaskan pada suhu $400^\circ C$ selama 4 jam. Jenis sisi asam Brønsted dan Lewis ditentukan menggunakan molekul piridin sebagai basa. Piridin diadsorpsi pada suhu ruang selama satu jam, dilanjutkan dengan desorpsi pada $150^\circ C$ selama tiga jam. Spektra inframerah direkam pada suhu kamar pada daerah bilangan gelombang $1700-1400\text{ cm}^{-1}$.

Sifat hidrofilisitas katalis diuji dengan metode dispersi dalam campuran xilena dan air. Sampel dimasukkan ke dalam campuran air dan xilena, dan diamati pergerakannya dalam masing-masing fasa dengan *stopwatch* kemudian diambil gambarnya menggunakan kamera. Selanjutnya campuran diaduk dengan pengaduk magnet selama 1 menit, kemudian didiamkan kira-kira 10 menit sampai campuran stabil. Setelah itu masing-masing sampel diamati waktu pergerakannya dengan *stopwatch* dan diambil gambarnya menggunakan kamera.

Uji Aktivitas Katalitik Katalis pada Reaksi Hidroksilasi Fenol

Semua katalis hasil sintesis diuji aktivitasnya pada reaksi hidroksilasi fenol dengan pelarut metanol dan oksidan H_2O_2 (30% larutan berair). Sampling dilakukan setiap 0, 1, 2, dan 4 jam, kemudian dianalisis dengan meng-

gunakan teknik kromatografi gas (KG) menggunakan kolom polar PE-5 (25 m, 0.32 mm, 1.0 mm, 5% metil benzena silikon) dengan Flame Ionization Detector.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Karakterisasi

Katalis TS-1 dengan temperatur kalsinasi 550°C dan TS-1 kalsinasi 800°C, serta sampel 1%MoO₃/TS-1 dengan berbagai variasi temperatur kalsinasi 400, 500, 600, 700, 800°C dianalisa dengan menggunakan teknik XRD dan spektroskopi FTIR untuk mengetahui strukturnya, sifat keasaman permukaan dengan adsorpsi piridin yang kemudian dianalisa menggunakan teknik spektroskopi FTIR, dan uji sifat hidrofilik katalis menggunakan metode (Wang *et al.*, 2004) [13].

Karakterisasi XRD dilakukan pada katalis MoO₃/TS-1 dengan berbagai variasi temperatur kalsinasi (data tidak ditampilkan). Semua sampel secara umum menunjukkan pola difraksi sinar X dengan tipe struktur MFI dan simetri ortorombik dengan puncak-puncak spesifik yang merupakan puncak dari titanium silikalit-1, yaitu pada $2\theta = 7.88; 8.78; 23.14; 23.9; 24.39; 24.78^\circ$. Terbentuknya puncak pada $2\theta = 24^\circ$ menunjukkan bahwa terdapat perubahan simetri kristal dari simetri monoklinik, yang merupakan simetri dari silikalit-1, menjadi ortorombik yang merupakan simetri dari titanium silikalit-1. Kemiripan difraktogram antara sampel TS-1 dan MoO₃/TS-1 dengan berbagai variasi temperatur kalsinasi mengindikasikan bahwa kerangka MFI bersifat stabil. Puncak-puncak fase kristalin MoO₃ tidak terdeteksi pada pola difraksi sinar-X sampel MoO₃/TS-1 disebabkan kandungan MoO₃ pada sampel MoO₃/TS-1 yang rendah yaitu 1%MoO₃.

Karakterisasi FTIR menunjukkan pita serapan pada bilangan gelombang sekitar 970 cm⁻¹ yang merupakan serapan khas dari TS-1. Pita serapan pada bilangan gelombang sekitar 970 cm⁻¹ tersebut merupakan vibrasi regangan ikatan Si-O dari unit [SiO₄] yang terikat secara tetrahedral pada atom Ti^{IV} yang terdapat dalam kerangka TS-1. Atom Ti^{IV} yang terisolasi secara tetrahedral dalam

matrik silika -(Si-O)₂-Ti-(O-Si)₂ ini merupakan pusat aktif katalitik dari katalis TS-1. Puncak 970 cm⁻¹ tetap ada setelah penambahan MoO₃ dan kalsinasi dengan berbagai variasi temperatur. Tidak terlihat adanya pergeseran pita maupun puncak tambahan yang muncul pada setiap spektrum.

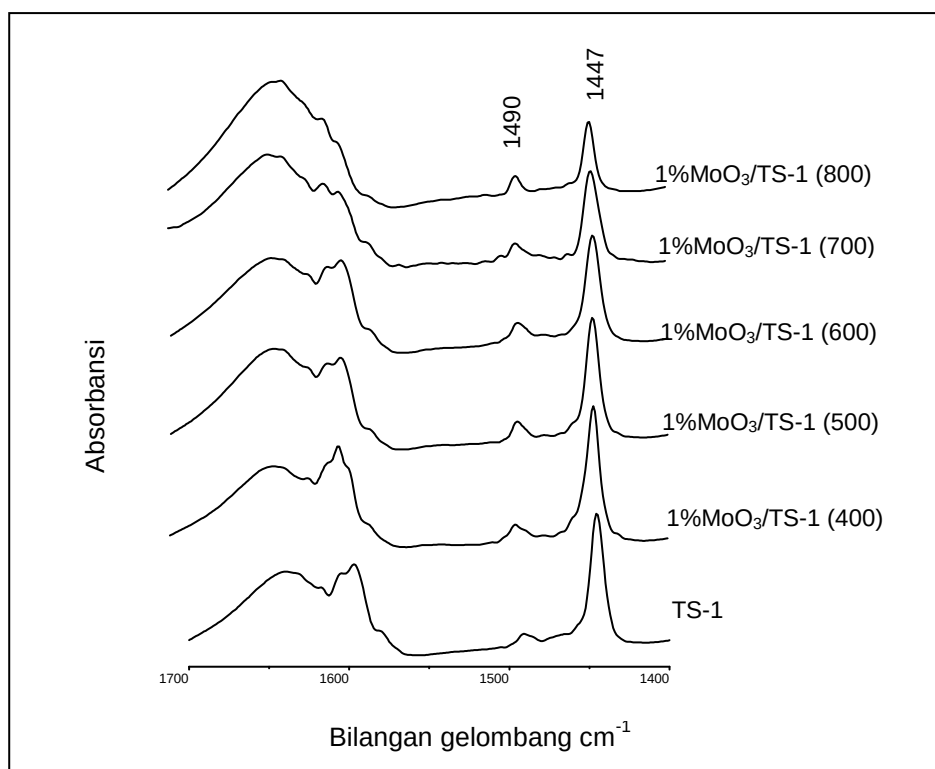
Analisa keasaman permukaan menunjukkan bahwa pada interaksinya dengan sisi asam Brønsted, molekul piridin terprotonasi dan teradsorpsi di bilangan gelombang inframerah sekitar 1540-1545 cm⁻¹, sedangkan interaksinya dengan sisi asam Lewis akibat pembentukan ikatan koordinasi antara molekul piridin dengan permukaan padatan memunculkan pita serapan pada daerah sekitar 1449-1452 cm⁻¹. Munculnya pita absorpsi pada 1490 cm⁻¹ merupakan kontribusi dari piridin yang teradsorpsi pada sisi asam Lewis dan Brønsted.

Gambar 1 menunjukkan spektra inframerah untuk semua sampel, dimana terdapat pita serapan pada bilangan gelombang 1447 cm⁻¹. Hal ini menunjukkan bahwa semua sampel mempunyai situs asam Lewis. Namun semua sampel tidak menunjukkan puncak pada daerah vibrasi piridin sekitar 1540 cm⁻¹ yang berarti tidak mempunyai sisi asam Brønsted dikarenakan kandungan MoO₃ pada TS-1 rendah yakni hanya 1%MoO₃. Jumlah sisi asam Lewis ditabulasikan pada Tabel 1. Secara umum terlihat bahwa penambahan MoO₃ pada sampel 1%MoO₃/TS-1 (400) menyebabkan sedikit peningkatan keasaman sampel, tetapi dengan peningkatan temperatur kalsinasi untuk sampel 1%MoO₃/TS-1 (400-800) secara umum menyebabkan penurunan jumlah sisi asam Lewis.

Sifat permukaan katalis yang berperan penting karena adanya penambahan MoO₃ pada permukaan TS-1 adalah sifat hidrofilisitas. Hasil pengamatan pada tahap ini, semua sampel menunjukkan pergerakan dalam xilena lebih cepat sekitar 2-3 detik dibandingkan saat melewati air, lama kelamaan serbuk katalis tenggelam dalam air, namun terdapat sedikit serbuk yang masih tertinggal pada fasa antar muka.

Tabel 1. Sifat keasaman dan hidrofilisitas dari sampel TS-1 dan 1%MoO₃/TS-1

Kode Sampel	Asam Lewis (mmol/g)	Hidrofilisitas: Waktu tenggelam (detik)
TS-1	0.1829	99
1%MoO ₃ /TS-1 (400)	0.1857	32
1%MoO ₃ /TS-1 (500)	0.1747	51
1%MoO ₃ /TS-1 (600)	0.1721	68
1%MoO ₃ /TS-1 (700)	0.1719	70
1%MoO ₃ /TS-1 (800)	0.1135	92



Gambar 1. Spektrogram FTIR daerah piridin dari sampel TS-1 dan 1%MoO₃/TS-1 dengan variasi temperatur kalsinasi 400, 500, 600, 700, 800 setelah evakuasi pada temperatur 400°C diikuti adsorpsi piridin pada temperatur ruang dan desorpsi pada temperatur 150°C selama 3 jam

Oleh karena itu berdasarkan pengamatan dikategorikan ke dalam tipe hidrofobik parsial dengan nomor indeks 5 yaitu pada awalnya sampel tertahan pada fase antar muka, setelah pengadukan, beberapa partikel masih ada yang tetap tertahan pada fase antar muka.

Contoh foto hasil perlakuan ini pada sampel katalis 1%MoO₃/TS-1 (800) dapat dilihat pada Gambar 2. Terlihat pada Gambar 2 terdapat serbuk sampel pada antar muka. Serbuk ini secara perlahan-lahan turun sampai sedikit sekali yang masih tertinggal pada fasa antar muka. Selanjutnya campuran

diaduk dengan pengaduk magnet selama beberapa menit, kemudian dibiarkan beberapa menit sampai campuran stabil. Foto hasil uji sifat hidrofilik ini dapat dilihat pada Gambar 3. Terlihat semua sampel tenggelam pada permukaan air. Waktu yang diperlukan oleh sampel untuk tenggelam dalam air mulai dari permukaan air sampai dasar dicatat dan dicantumkan pada Tabel 1.

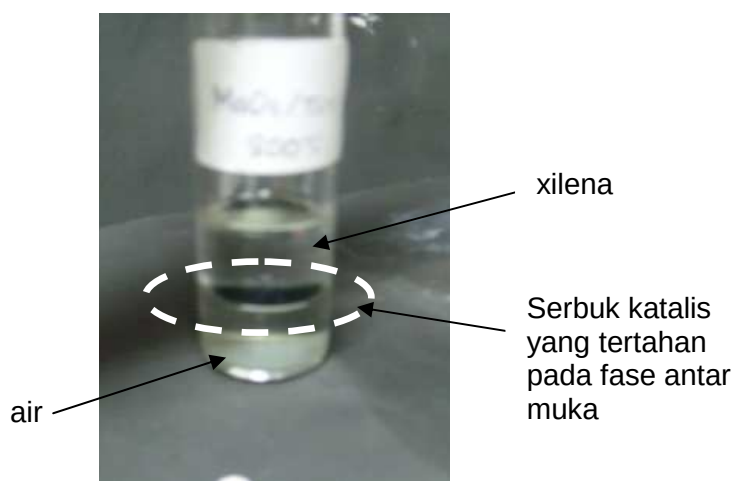
Pada Tabel 1 terlihat bahwa sampel dengan temperatur kalsinasi 400°C menunjukkan waktu tenggelam yang paling cepat yaitu 32 detik. Secara umum semakin tinggi temperatur kalsinasi, semakin lama waktu

tenggelamnya sampel dalam air sehingga sampel semakin bersifat hidrofobik. Hal ini kemungkinan terjadi karena dengan semakin tinggi temperatur kalsinasi, MoO_3 akan mengalami aglomerasi sehingga interaksi antara MoO_3 dengan TS-1 menjadi kurang baik. Selanjutnya aglomerasi MoO_3 menyebabkan luas permukaan MoO_3 semakin kecil, sehingga meningkatkan hidrofobisitas sampel melakukan penyerapan air dan gugus hidroksil.

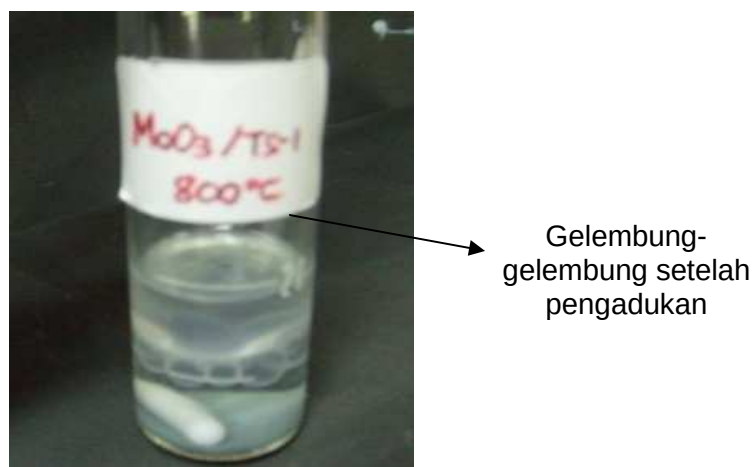
Aktivitas katalitik

Aktivitas katalitik dari TS-1 dan $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ dengan berbagai variasi temperatur kalsinasi diuji melalui reaksi hidroksilasi fenol dengan H_2O_2 sebagai agen pengoksidasi dalam pelarut metanol pada temperatur 70°C selama 4 jam dengan pengambilan sampel secara periodik pada waktu reaksi 0; 0.5; 1; 2 ; dan 4 jam. Hasil pengamatan selama reaksi menunjukkan adanya perubahan warna

campuran dari jernih menjadi coklat. Perubahan warna coklat ini bertambah tua dengan semakin lamanya waktu reaksi. Adanya perubahan warna ini mengindikasikan sudah terbentuknya produk. Namun penampakan warna coklat tersebut bukan mengindikasikan warna dari hidro-quinon yang berwarna jernih, tetapi kemungkinan merupakan warna dari produk katekol yang mempunyai penampakan kecoklatan (MSDS, 2003). Adanya perubahan warna pada awal reaksi pada reaksi hidroksilasi fenol dengan katalis $1\%\text{MoO}_3/\text{TS-1}$, mengindikasikan bahwa produk lebih cepat terbentuk bila reaksi dilakukan dengan menggunakan katalis $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ yakni dengan waktu reaksi 0.5 jam dibandingkan bila reaksi dilakukan dengan menggunakan katalis TS-1, karena reaksi dengan katalis TS-1 setelah 2 jam baru terlihat berwarna coklat yang mengindikasikan baru terbentuk produk.



Gambar 2. Uji hidrofilitas sebelum pengadukan pada sampel $1\%\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ (800)



Gambar 3. Uji hidrofilitas sampel setelah pengadukan. Pada sampel $1\%\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ (800)

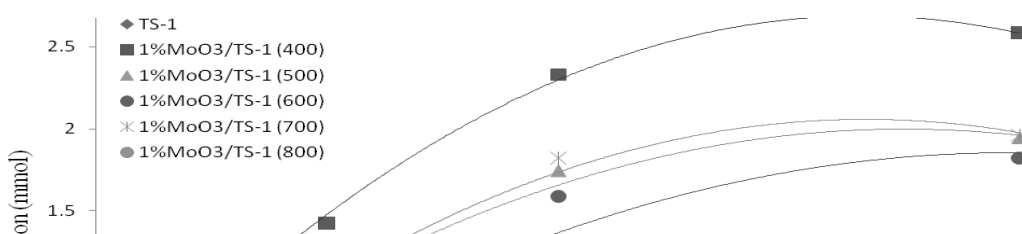
Produk hasil reaksi hidroksilasi fenol kemudian dianalisis dengan menggunakan peralatan Kromatografi Gas (KG) dan dihitung rasio luas puncak hidroquinon terhadap luas puncak internal standar nitrobenzen untuk menghitung produk hidroquinon yang terbentuk.

Grafik hasil jumlah produk hidroquinon hasil reaksi hidroksilasi fenol selama 4 jam pada katalis TS-1 dan $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ ditunjukkan pada Gambar 4. Pada Gambar 4, terlihat pada awal reaksi, semua katalis belum menghasilkan produk. Pada reaksi hidroksilasi fenol pada reaksi dengan katalis $1\%\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ dengan temperatur kalsinasi 400, 500, 600 dan 700°C produk terbentuk setelah reaksi berlangsung selama 0,5 jam, dengan menggunakan katalis $1\%\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ yang dikalsinasi pada temperatur 800°C mulai terbentuk produk setelah reaksi berlangsung satu jam, sedangkan dengan katalis TS-1 baru terbentuk pada reaksi setelah berlangsung 2 jam. Penemuan ini mengindikasikan adanya pengaruh penambahan MoO_3 pada TS-1, dimana dengan adanya penambahan MoO_3 pada TS-1 mengakibatkan TS-1 menjadi lebih hidrofil. Penambahan jumlah MoO_3 yang sama dengan temperatur kalsinasi yang berbeda juga memberikan pengaruh terhadap sifat hidrofilitas katalis. Pada temperatur 400, 500, 600, dan 700°C menunjukkan lebih hidrofil, terbukti dengan reaksi yang cepat terbentuk produk setelah berjalan 0,5 jam. Sementara pada temperatur 800 terbentuk produk setelah berjalan 1 jam, masih lebih cepat dari TS-1. Reaksi hidroksilasi fenol dengan katalis TS-1 berjalan dengan melibatkan Ti^{4+} sebagai pusat aktif. Adsorpsi oksidan H_2O_2 pada pusat aktif katalis akan menyebabkan pembentukan spesies titanium-perokso, yang sangat berperan dalam reaksi hidroksilasi fenol. Hal ini menunjukkan adanya pengaruh penambahan oksida logam MoO_3 pada TS-1, dimana katalis $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ lebih bersifat hidrofil dibandingkan dengan katalis TS-1, sehingga oksidan H_2O_2 lebih cepat teradsorpsi pada permukaan TS-1 yang telah ditambah dengan MoO_3 dan produk hidroquinon lebih cepat terbentuk. Hal ini sesuai dengan yang

diungkapkan oleh Nur *et al.* (2004) [14] dan Prasetyoko (2009), dimana keberadaan oksida logam pada katalis TS-1 memberikan sisi asam yang mampu meningkatkan sifat hidrofilisitas katalis sehingga adsorpsi reaktan pada katalis menjadi lebih cepat.

Berdasarkan hasil reaksi hidroksilasi fenol pada Gambar 4 dapat diamati bahwa pada reaksi dengan katalis $1\%\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ (400) menghasilkan produk paling banyak dibandingkan katalis $1\%\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ (500-800). Hal ini sesuai dengan data pada uji hidrofilisitas yang menunjukkan bahwa katalis $1\%\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ (400) memiliki hidrofilisitas yang lebih tinggi dari pada sampel lain yang mengakibatkan katalis ini memiliki kemampuan mengadsorpsi spesies H_2O_2 dengan cepat, sehingga pembentukan produk pada katalis tersebut masih lebih tinggi bila dibandingkan dengan katalis lain. Gambar 4 menunjukkan pada temperatur kalsinasi 400°C katalis $1\%\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ menghasilkan mmol hidroquinon paling banyak disebabkan sifat hidrofilisitasnya tinggi, yang ditunjukkan dengan waktu tenggelam dalam air paling cepat.

Secara umum, hasil reaksi hidroksilasi fenol pada penelitian ini sesuai dengan data uji hidrofilisitas pada pembahasan sebelumnya bahwa aktivitas katalitik yang optimum pada katalis $1\%\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ (400) disebabkan tingginya hidrofilisitas yang disebabkan tingginya keasaman katalis. Produk hidroquinon pada akhir reaksi untuk tiap-tiap katalis tampak masih tinggi yang mengindikasikan bahwa katalis masih aktif pada kondisi reaksi 4 jam, tetapi aktivitas katalitik katalis menjelang akhir reaksi cenderung menunjukkan penurunan dibandingkan pada saat awal reaksi. Hal ini dibuktikan dengan teramatinya peningkatan jumlah produk hidroquinon yang tidak begitu signifikan menjelang akhir reaksi dibandingkan pada awal reaksi. Seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4, terlihat kenaikan jumlah hidroquinon pada waktu reaksi 0.5 jam ke 1 jam, 1 jam ke 2 jam cukup tinggi jika dibandingkan dengan kenaikannya pada waktu reaksi 2 jam ke 4 jam.



Gambar 4. mmol hidroquinon pada waktu reaksi ke 0, 0,5 , 1, 2, dan 4 jam pada katalis TS-1 dan 1%MoO₃/TS-1 (400-800)

KESIMPULAN

Katalis MoO₃/TS-1 yang dikalsin pada suhu 400°C menunjukkan aktivitas katalitik tertinggi pada reaksi hidroksilasi fenol dengan menggunakan hydrogen peroksida sebagai oksidan.

UCAPAN TERIMA KASIH

Kami sangat berterima kasih kepada direktorat jendral pendidikan tinggi, dibawah hibah pasca.

DAFTAR PUSTAKA

1. Yang, G., Lan, X., Zhuang, J., Ma, D., Zhou, L., Liu, X., Han, X., Bao, L., 2007, "Acidity and Defect Sites in Titanium Silicalite Catalyst", *Applied Catalysis A: General* vol 337, hal. 58-65
2. Klaewkla R., Kulprathipanja, S., Rangsunvigit P., Rirksomboon, T., Rathbun, W., Nemeth, L. (2007), "Kinetic Modelling of Phenol Hydroxylation Using Titanium and Tin Silicalite-1s: Effect of Tin Incorporation", *Chemical Engineering Journal*, Vol. 129, hal. 21-30.
3. Liu, X., Wang, X., Guo, X., Li, G., (2004), "Effect of Solvent on The Propylene Epoxidation Over TS-1 Catalyst", *Catalysis Today* Vol. 93-95, hal. 505-509.
4. Sun, J., Meng, X., Shi, Y., Wang, R., Feng, S., Jiang, D., Xu, R., Xiao, F-S. (2000), "A Novel Catalyst of Cu-Bi-V-O Complex in Phenol Hydroxylation with Hydrogen Peroxide", *Journal of Catalysis*, Vol. 193, hal. 199-206.
5. Liu, Y., Ma, X., Wang, S., Gong, J. (2007), "The Nature of Surface Acidity and Reactivity of MoO₃/SiO₂ and MoO₃/TiO₂-SiO₂ for Transesterification of Dimethyl Oxalate with Phenol: A Comparative Investigation", *Applied Catalysis B: Environmental*, Vol. 77, hal. 125-134.
6. Bonino, F., Damin, A., Ricchiardi, G., Ricci, M., Spano, G., D'Aloisio, R., Zecchina, A., Lamberti, C., Prestipino, C., Bordiga, S. (2004), "Ti-Peroxo Species in The TS-1/H₂O₂/H₂O System", *Journal of Physical Chemistry B*, Vol. 108, hal. 3573-3583.
7. Prasetyoko, D. (2006), Bifunctional Oxidative and Acidic Titanium Silicalite (TS-1) Catalysts for One Pot Synthesis of 1,2-Octanediol from 1-Octene, Disertasi Doktor, Universiti Teknologi Malaysia, Malaysia.
8. Prasetyoko, D. (2009), "Tungsten Oxides-Containing Titanium Silicalite for Liquid Phase Epoxidation of 1-octene with Aqueous Hydrogen Peroxide", *Catalyst Letters*, Vol.12, hal.177-182.
9. Tan, P.L., Leung, Y.L., Lai, S.Y., Au C.T.(2002), " The Effect of Calcination Temperatur on The Catalytic - Performance of 2%Mo/HZSM-5 in methane aromatization", *Applied Catalysis. A*, Vol. 228, hal.115-125.

10. El-Sharkawy, E.A., Khder, A.S., Ahmed, A.I. (2007), "Structural Characterization and Catalytic Activity of Molybdenum Oxide Supported Zirconia Catalysts", *Microporous and Mesoporous Materials*, Vol.102, hal. 128-137.
11. Indrayani, S. (2008), "Aktifitas Katalitik $\text{MoO}_3/\text{TS-1}$ pada Reaksi Hidroksilasi Fenol menggunakan H_2O_2 ", Tesis: Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya.
12. Taramasso, M., Perego, G., Notari, B. (1983), *Preparation of Porous Crystalline Synthetic Material Comprised of Silicon and Titanium Oxides*. (U. S. Patents No. 4,410,501).
13. Wang, Z., Wang, T., Wang, Z., Jin, Y. (2004), "Organic modification of ultrafine particles using carbon dioxide as the solvent", *Journal of Powder Technology*, Vol. 139, hal. 148-155.
14. Nur, H., Prasetyoko, D., Ramli, Z., Endud, S. (2004), "Sulfation: A simple Method to Enhance the Catalytic Activity of TS-1 in Epoxidation of 1-Octene with Aqueous Hydrogen Peroxide", *Catalysis Communication*, Vol.5, hal.725-728.