

J. Kim., No.2, Th. III
Januari 2004

JURNAL KIMIA

ISSN 1412-8691

*Hasil Penelitian Kimia,
Teori dan Penerapannya*

Diterbitkan oleh :

Jurusan Pendidikan Kimia F.MIPA Universitas Negeri Yogyakarta

JURNAL KIMIA

Jurnal Hasil Penelitian Kimia dan Pembelajarannya

Terbit dua kali setahun pada bulan Januari dan Juli (ISSN 1412-8691) berisi tulisan ilmiah hasil penelitian kimia dan pembelajarannya.

Ketua Penyunting

Prof. Dr. Nurfina Aznam, Apt.

Anggota Penyunting

Dr. Endang Widjajanti L

Retno Arianingrum, M.Si

Regina Tutik, P., M.Si

Togu Gultom, M.Si, M.Pd

Siti Sulastri, M.S

A.K. Prodjosantoso, Ph.D

Endang Dwi Siswani, M.T

Dr. Phil. Hari Sutrisno

Suwardi, M.Si

Penyunting Ahli

Prof. Dr. Sukardjo (UNY)

Bambang Ariwahjoedi, Ph.D (ITB)

Supranto, Ph.D (UGM)

Dr. Dwi Siswanta (UGM)

K.H. Sugiyarto, Ph.D (UNY)

Dr. Indyah Sulistyo Arty (UNY)

Pelaksana Tata Usaha

Supono

Alamat Penyunting dan Tata Usaha : **Juridik Kimia, FMIPA Universitas Negeri Yogyakarta, Karangmalang Yogyakarta 55281. Telepon (0274)586168 psw. 349. Langganan 2 nomor setahun Rp. 100.000,00 (tidak termasuk ongkos kirim). Uang langganan dapat dikirim dengan wesel kepada Retno Arianingrum, M.Si ke alamat Tata Usaha.**

Jurnal Kimia diterbitkan oleh Jurusan Pendidikan Kimia, FMIPA, Universitas Negeri Yogyakarta. **Penanggung Jawab : Kajurdik Kimia : Suharto, M.Si, Pengarah : Kaprodi Kimia : Endang Dwi Siswani, M.T. , Kaprodi Dik Kim : Crys Fajar P., M.Si., Dekan : Sukirman, M.Pd, Pembantu Dekan I : Dr. Ariswan, Pembantu Dekan II : Drs. Sutiman, Pembantu Dekan III: Suyoso, M.Si, Terbit pertama kali tahun 2002.**

Naskah yang dimuat dalam jurnal ini merupakan hasil penelitian kimia dan pembelajarannya. Penyunting menerima sumbangan tulisan yang belum pernah diterbitkan dalam media cetak lain. Naskah ditulis mengikuti petunjuk yang ada pada sampul belakang jurnal ini.

DAFTAR ISI

- Sintesis Holandit Dengan Metode Pengendapan Redoks dan Refluks Serta Karakterisasinya, **Suharto, Hari Sutrisno dan Endang Dwi Siswani** (67 - 81)
- Sintesis dan Karakterisasi Campuran Logam Oksida Super Asam SiO₂-ZrO₂, **Endang Dwi Siswani, Hari Sutrisno, Suharto dan Susila Kristianingrum** (82 - 89)
- Uji Aktivitas Antioksidan Ekstrak Buah Semu Jambu Mete (*Anacardium occidentale* L) Pada Minyak Kacang Tanah, **Is Fatimah** (90 - 96)
- Sintesis dan Karakterisasi Kopolimer Sambung-Silang Polianilin-KAF , **Suwardi, Agus Salim dan Crys Fajar Partana** (97- 104)
- Penentuan Konsentrasi Misel Kritis Lesitin Secara Turbidimetri, **Endang Widjajanti LFX dan Regina Tutik** (105- 115)
- Pengaruh Deaktivasi Katalis Terhadap Karakter Katalis Pt/Zeolit Pada Reaksi Hidrogenolisis n-Pentanol, **M. Pranjoto Utomo** (116-122)
- Pemisahan dan Elusidasi Struktur Senyawa Bioaktif Dalam Ekstrak Metanol *Sargasum Sp* (Alga Coklat) dari Pantai Selatan Gunung Kidul Yogyakarta, **Sri Atun** (123- 130)
- Sintesis (1)-N-Benzil-1,10-Fenantrolin Klorida, **Ruslin Hadanu, Retno Dwisoeslistyowati, Chairil Anwar, Jumina dan Mustafa** (131-136)
- Penentuan Kadar β -Sitosterol Beberapa Minyak nabati Menggunakan Kromatografi Gas, **Susila Kristianingrum, Sri Handayani dan Endang Dwi Siswani** (137-144)

SINTESIS DAN KARAKTERISASI CAMPURAN LOGAM OKSIDA SUPER ASAM $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$

*Endang Dwi Siswani, Hari Sutrisno, Suharto dan Susila Kriatianingrum
Jurusan Pendidikan Kimia, FMIPA Universitas Negeri Yogyakarta*

Abstrak

Tujuan penelitian ini adalah membuat dan mempelajari campuran Oksida $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$. Campuran oksida tersebut telah berhasil diperoleh melalui hidrolisis dan kondensasi tetra etil ortosilikat (TEOS), $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8 \text{H}_2\text{O}$ dan campuran tetrapropil amonium bromida (TPABr)- NH_4OH dalam air atau etilen glikol dengan metode hidrotermal atau solvotermal. Sistem campuran oksida $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$ mengandung situs asam kuat dan menunjukkan campuran SiO_2 dan ZrO_2 mengandung situs asam kuat dan menunjukkan campuran SiO_2 dan ZrO_2 berupa endapan amorf dalam skala atomik. Keasaman campuran oksida ini mengadopsi model Thomas yang kaya akan situs Si dan model Tanabe yang kaya Zr.

Kata Kunci : Campuran oksida, super asam dan katalis hidrogenasi

Abstract

The aims of this research are to prepare and to study of mixed oxide $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$. Its have been obtained via hydrolysis and condensation of tetraethyl orthosilicate (TEOS), $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ and mixed tetrapropil ammonium bromide (TPABr)- NH_4OH in water or ethylen glicol by hydrothermal or solvothermal method. The $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$ mixed oxide system contain strong acid sites and show mixing of SiO_2 and ZrO_2 on an atomic scale in the amorphous coprecipitate. The acidity of mixed oxide $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$ adopt model Thomas on the Si-rich side and model Tanabe on the Zr-rich side.

Key words : Mixed Oxides, Super acid, Heterogeneous acid catalyst

PENDAHULUAN

Latar Belakang Masalah

Banyak perubahan suatu senyawa kimia dikatalis oleh asam, misalnya : katalis homogen H_2SO_4 , AlCl_3 dan BF_3 . Katalis tersebut memiliki kelemahan di antaranya : terikat ke dalam produksi, mengakibatkan polusi lingkungan dan korosi terhadap reaktor. Katalis heterogen (katalis asam padatan) dapat digunakan sebagai pengganti untuk mengatasi kelemahan tersebut asalkan aktifitas dan selektifitas sebanding dengan katalis homogen. Se-cara kimia, banyak campuran logam oksida menunjukkan suatu sifat ke-asaman yang tinggi dibandingkan logam oksida murni dan campuran logam oksida tersebut sangat cocok sebagai katalis asam padatan. Campuran logam oksida yang

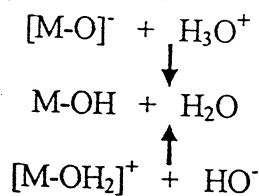
telah diketahui secara baik dalam bentuk amorf ataupun kristalin digunakan dalam banyak industri seperti, proses pemecahan minyak bumi yaitu silika-alumina ($\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$). Campuran logam oksida lain yang menarik sebagai katalis heterogen asam padatan yaitu $\text{TiO}_2\text{-SiO}_2$ (Kanai, *et al.*, 2001; Hadjiivanov, Reddy & Knozinger, 1999), $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (Harlé *et al.*, 2000), CaO-SiO_2 (Cordoncillo *et al.*, 1994), $\text{TiO}_2\text{-ZrO}_2$ (Daturi *et al.*, 1998), $\text{TiO}_2\text{-MoO}_3$ (Elder *et al.*, 2000) dan $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$ (Bosman, 1995).

Preparasi campuran logam oksida umumnya dilakukan melalui hidrolisis prekursor yang tepat. Sumber SiO_2 biasanya berasal dari tetra etil orto silikat (TEOS) dan natrium silikat yang dihasilkan melalui hidrolisis dan diikuti

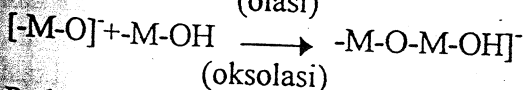
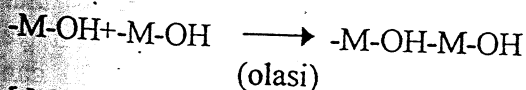
kondensasi, sedangkan ZrO_2 berasal dari zirkonium klorida, zirkonium nitrat atau zirkonil klorida melalui pengendapan dan pencucian dengan NH_4OH diikuti dengan kalsinasi.

Studi memperlihatkan berbagai literatur, keberhasilan sintesis dipengaruhi oleh metode, suhu dan tekanan, waktu, pelarut, jenis zat reaktan dan perbandingan mol zat reaktan. Faktor-faktor ini sangat berpengaruh karena dalam sintesis tersebut, melibatkan polimerisasi atau kondensasi yaitu terbentuknya rantai panjang dengan jembatan oksida atau hidroksida.

Polimerisasi atau kondensasi umumnya melalui 3 proses yaitu permulaan (*inisiasi*), perpanjangan (*propagasi*) dan pengakhiran (*terminasi*) (Jolivet, 1994). Pada proses permulaan, kondensasi diawali pembentukan senyawa hidroksida melalui penambahan suatu asam pada suatu senyawa oksida atau basa pada senyawa jenis aquo. Di sini merupakan suatu proses pembentukan ligan hidroksida sebagai suatu monomer:



Proses perpanjangan, tahap ini berlangsung setelah terbentuknya monomer senyawa hidroksida, yaitu reaksi lanjut berupa terbentuknya jembatan oksigen atau hidroksida antar kation logam (M). Dua proses reaksi yaitu *olasi* (jembatan hidroksida) dan *oksolasi* (jembatan oksida) meyakinkan kondensasi berlangsung.



Pada proses pengakhiran, proses kondensasi dapat terhenti dengan pembentukan oligomer atau berkembang

hingga terbentuknya suatu padatan. Kondensasi kompleks hidroksida yang bermuatan selalu berhenti dalam keadaan suatu senyawa dengan struktur terbatas dalam bentuk polikation atau polianion, sebaliknya kondensasi kompleks netral tak terbatas hingga terbentuk suatu padatan dalam bentuk hidroksida, oksihidroksida, oksida yang memiliki kurang atau lebih hidrat.

Preparasi campuran oksida SiO_2-ZrO_2 dilakukan melalui reaksi TEOS, $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$, dan campuran tetrapropil ammonium bromida (TPABr)- NH_4OH . Preparasi dilakukan dengan metode hidrotermal atau solvotermal pada perbandingan mol Si/Zr yang bervariasi dengan pelarut air (hidrotermal) atau etilen glikol (solvotermal) pada suhu dan waktu preparasi ditetapkan masing-masing sebesar $170^\circ C$ selama 7 hari pada kondisi tekanan autogeneus. Tujuan penelitian ini yaitu (1) memperoleh senyawa campuran oksida SiO_2-ZrO_2 dari reaksi bahan kimia di atas dan (2) mempelajari model struktur campuran logam oksida tersebut.

METODE PENELITIAN

Alat dan Bahan

1. Alat-alat yang digunakan : peralatan gelas, alat saring, penumbuh kristal (*bomb hidrotermal*), timbangan, tungku pemanas, pengaduk magnet, labu ukur.
2. Bahan-bahan yang diperlukan : $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$ (Aldrich), larutan tetra etil orto silikat (TEOS) (98 %, $d=0,941 \text{ kg/L}$, Aldrich), tetrapropil ammonium bromida (TPABr) (Aldrich), larutan NH_4OH (Aldrich), akuades.

Instrumen Karakterisasi

Alat-alat yang digunakan untuk karakterisasi padatan yaitu Alat difraksi sinar-X serbuk merk Shimadzu XRD-6000 dan Spektrometer FT-Infra Merah

tipe Shimadzu FTIR-8201PC. Pengukuran dengan FTIR menggunakan metode pelet KBr. Karakterisasi dilakukan di Jurusan Kimia, FMIPA, UGM.

Prosedur Penelitian

Metode Hidrotermal

Sintesis campuran logam oksida $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$ dilakukan dengan perbandingan mol bahan awal sebagai berikut : $\text{TEOS} : \text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O} : \text{NH}_4\text{OH} : \text{TPABr} : \text{H}_2\text{O} = 1 : x : 1,5 : 0,15 : 20$ dengan $x = 0 ; 0,03 ; 0,06 ; 0,09$ dan $0,12$ yang disimbolkan sebagai : Ht-1, Ht-2, Ht-3, Ht-4 dan Ht-5. Prosedur kerja sintesis tersebut adalah sebagai berikut :

1. Dicampur 0,4528 gram TPABr dan 2,5663 ml larutan NH_4OH 25 % dalam teflon, diaduk pada suhu $75\text{-}80^\circ\text{C}$ hingga homogen selama 30 menit
2. Tambahkan larutan $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ yang dibuat dari 0,1078 gram dalam 4 ml akuades, selanjutnya diaduk pada suhu $75\text{-}80^\circ\text{C}$ hingga homogen selama 30 menit
3. Tambahkan 2,51 ml TEOS dan diaduk selama 2 jam sehingga larutan bercampur homogen dan terbentuk gel
4. Masukkan teflon ke reaktor (*bomb hidrotermal*) dan dipanaskan pada 170°C selama 7 hari pada tekanan *autogeneus*
5. Endapan yang terbentuk disaring dan dicuci dengan aquadest hingga bersih
6. Endapan yang bersih dikalsinasi pada suhu 550°C selama 5 jam
7. Serbuk hasil kalsinasi dikarakterisasi dengan difraktometer sinar-X dan spektrofotometer FTIR

Metode Solvotermal

Prosedur kerja metode solvotermal sama dengan metode hidrotermal, hanya berbeda pada penggantian se-

bagian H_2O dengan etilen glikol. Perbandingan mol bahan yang digunakan $\text{TEOS} : \text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O} : \text{NH}_4\text{OH} : \text{TPABr} : \text{H}_2\text{O} : \text{etilen glikol} = 1 : x : 1,5 : 0,15 : 5 : 15$ dengan $x = 0 ; 0,03 ; 0,06 ; 0,09$ dan $0,12$ yang disimbolkan masing masing sebagai : St-1, St-2, St-3, St-4 dan St-5

HASIL DAN PEMBAHASAN

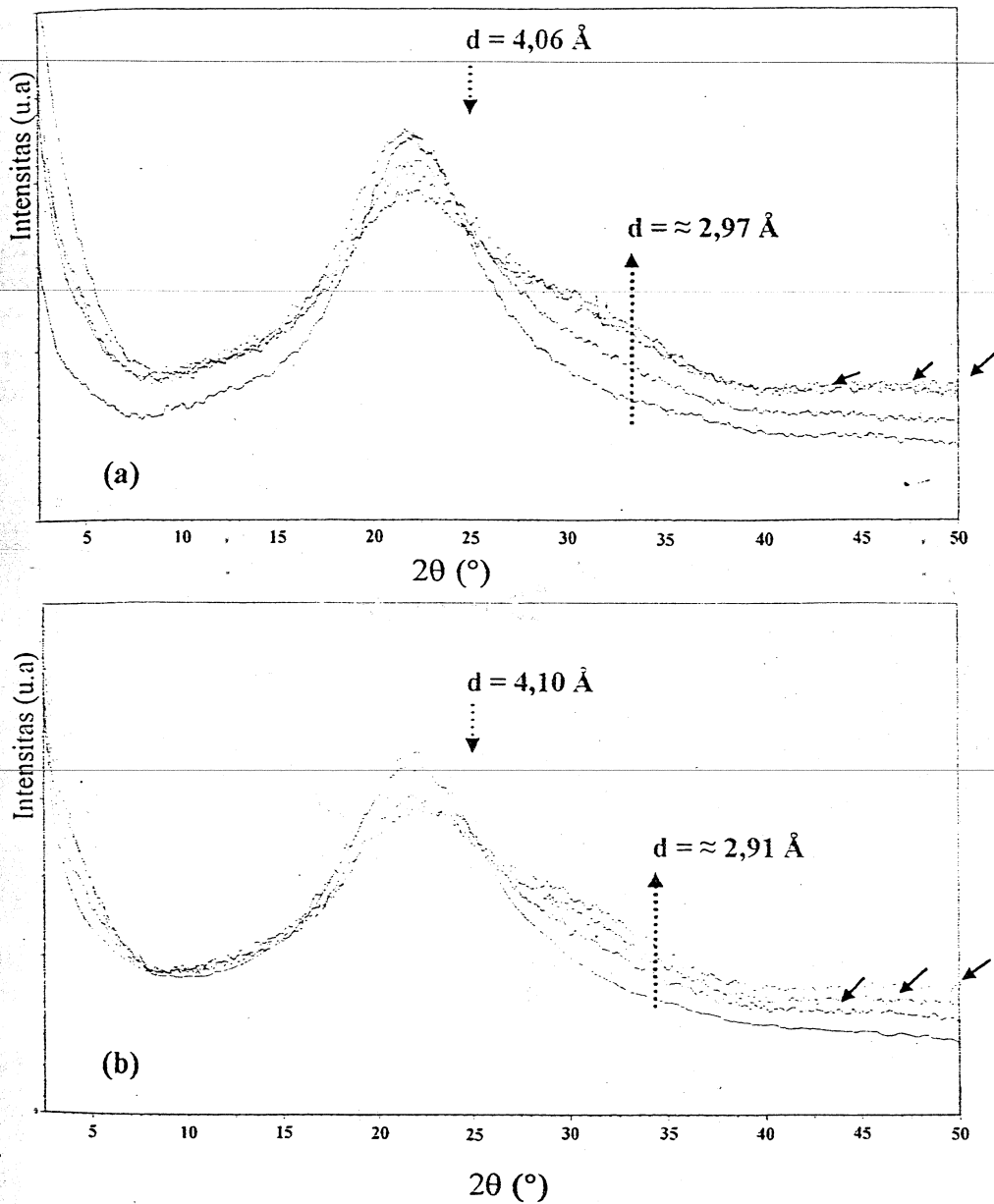
Hasil Penelitian

Spektra Difraksi Sinar-X

Spektra difraksi sinar-X endapan hasil reaksi dengan metode hidrotermal dan solvotermal terdapat pada gambar 1. Berdasarkan spektra difraksi sinar-X tersebut, semua endapan memiliki struktur amorf dengan ditandai puncak spektra yang lebar. Puncak spektra pada sekitar 4 \AA menunjukkan jarak bidang Si-O-Si , Zr-O-Si atau Zr-O-Zr melalui persekutuan ujung, sedangkan di sekitar 3 \AA menunjukkan adanya jarak $\text{Zr-O}_2\text{-Si}$ atau ikatan $\text{Zr-O}_2\text{-Zr}$ melalui persekutuan samping.

Spektra FT-Infra Merah

Endapan yang telah dikalsinasi dari hasil sintesis dengan metode hidrotermal dan solvotermal memiliki spektra FTIR yang mirip (Gambar 2). Perbedaan terdapat pada daerah spektra 960 cm^{-1} intensitas spektra semakin tampak seiring dengan penambahan mol prekursor Zr, karena spektra pada daerah tersebut merupakan vibrasi simetrik dari Zr-O-Si . Spektra pada daerah sekitar 460 cm^{-1} menunjukkan vibrasi tekuk simetrik dan asimetrik Si-O , sedangkan spektra 800 dan 1100 cm^{-1} merupakan vibrasi ulu simetrik dan asimetrik Si-O-Si . Adanya spektra pada daerah sekitar 1620 dan 3500 cm^{-1} menunjukkan adanya air sedangkan 3600 cm^{-1} merupakan vibrasi ulur OH dari Si-OH (Colthup, Daly & Wiberly, 1990 : 361; Bosman, 1995 : 45)



Gambar 1. Spektra difraksi sinar-X endapan hasil eksperimen dengan metode :
(a) hidrotermal dan (b) solvotermal

Pembahasan

Penelitian ini telah berhasil mensintesis campuran oksida $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$ yang amorf, baik dengan metode hidrotermal ataupun solvotermal. Intesitas spektra pada $d \approx 4,1 \text{ \AA}$ semakin menurun seiring peningkatan perbandingan mol Zr/Si prekursor, sedangkan intensitas pada daerah $d \approx 2,9 \text{ \AA}$ semakin menurun. Hal ini menunjukkan

adanya pengurangan persekutuan ujung dan sebaliknya terdapat kenaikan persekutuan samping yang berarti zirkonium masuk ke jaringan struktur. Senyawa ini merupakan campuran logam oksida superasam yang berguna untuk katalis.

Menurut Thomas yang dikutip oleh Bosman (1995 : 24-25), model struktur amorf campuran oksida $\text{SiO}_2\text{-ZrO}_2$ terdiri dari Zr yang memiliki

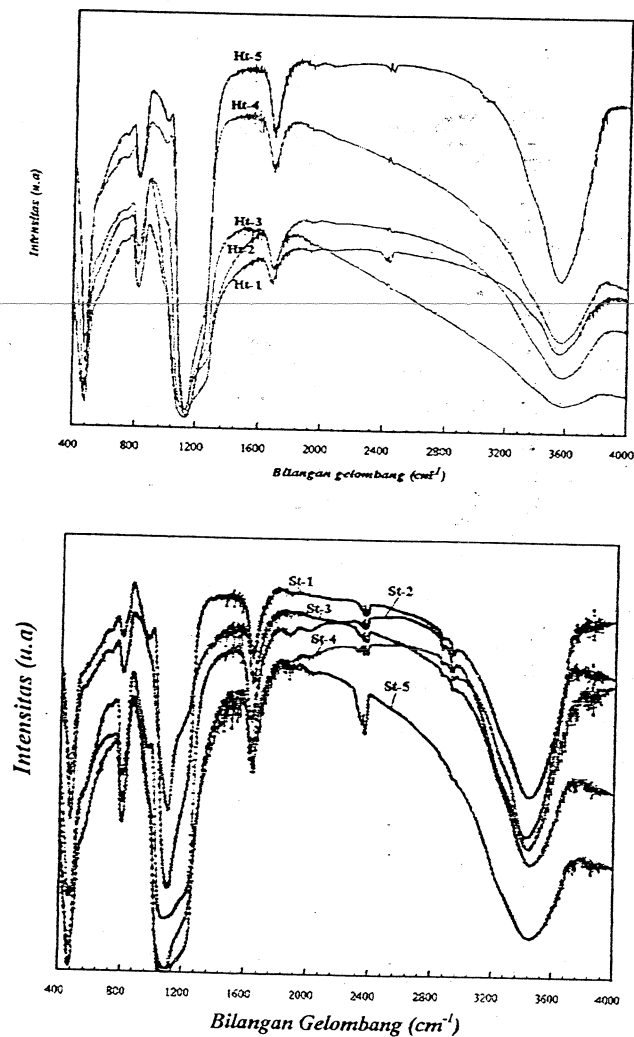
nuari 2004
likol. Per-
gunakan :
H : TPABr
1,5 : 0,15 :
,06 ; 0,09
masing-
St-3, St-4

N
X endapan
hidrotermal
gambar 4.
sinar-X di
struktur
spektra
pada d
ak bidang
r melalui
d sekitar
Zr-O₂-Si
ui perse-

likalsinasi
ode hidro-
ki spektra
Perbedaan
960 cm⁻¹,
mpak se-
prekursor
h tersebut
i Zr-O-Si.
460 cm⁻¹
netrik dan
ektra 800
brasi ulur
i. Adanya
1620 dan
anya air,
an vibrasi
, Daly &
1, 1995 :

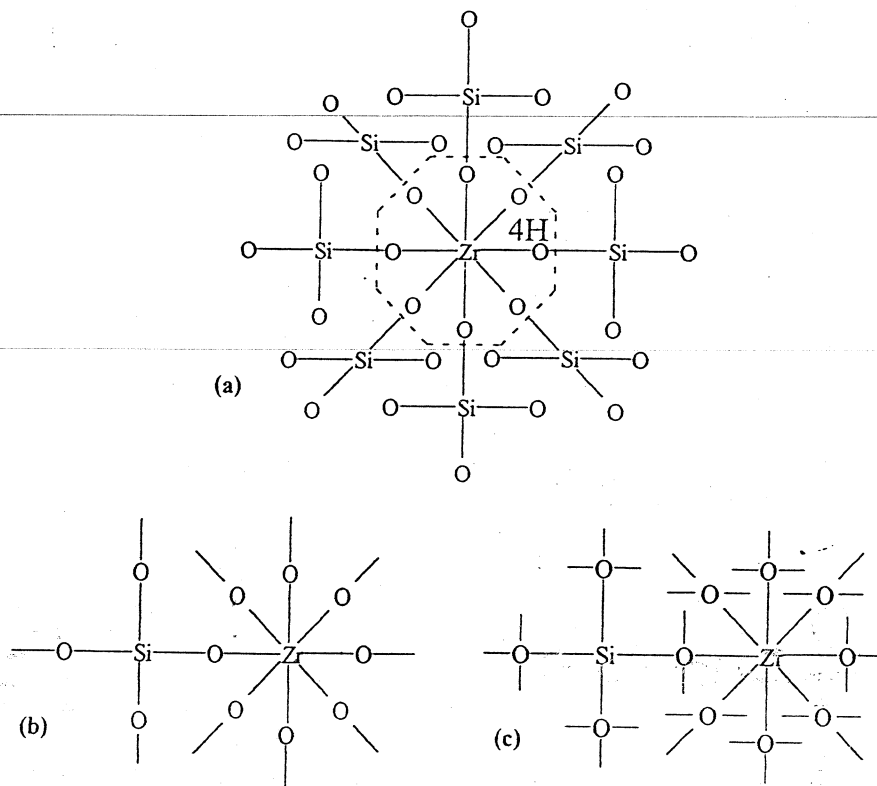
koordinasi 8 dan Si yang berkoordinasi 4. Kedua atom tersebut dihubungkan melalui jembatan okso dan pengimbangan muatan dengan H^+ sehingga rumus molekul menjadi $H_4ZrSi_2O_8$, seperti pada Gambar 3a. Menurut Tanabe sebagaimana dikutip oleh Bosman (1995 : 27), model struktur campuran oksida terdiri dari 2 macam yaitu kaya Si dan yang lain kaya Zr. Dalam struktur campuran oksida SiO_2-ZrO_2 yang kaya Si (Gambar 3b), kation Zr memiliki valensi +4 berikatan dengan 8 oksigen yang memiliki valensi -2, sedangkan

setiap oksigen mengikat 2 atom sehingga muatan total sebesar -4. Muatan negatif tersebut diseimbangkan oleh proton, sehingga sifat keasaman Bronsted diperkirakan akan dominan. Untuk struktur campuran oksida SiO_2-ZrO_2 yang kaya Zr (Gambar 3c), kation Si memiliki valensi +4 yang berikatan dengan 4 atom oksigen bervalensi -2, sedangkan setiap atom oksigen berikatan dengan 2 atom (Si atau Zr), sehingga muatan total menjadi +2. Muatan positif ini merupakan indikasi suatu sifat keasaman Lewis.



Gambar 2. Spektre FT-IR endapan hasil eksperimen dengan metode :
(a) hidrotermal dan (b) solvotermal

om se-
Muatan
leh pro-
Bronsted
Untuk
O₂-ZrO₂
ation Si
atan de-
nsi -2,
erikatan
ehingga
1 positif
ifat ke-



Gambar 3. Campuran oksida SiO₂-ZrO₂ model Thomas (a) dan Tanabe : (b) kaya dengan Si dan (c) kaya dengan Zr

Berdasarkan data difraksi sinar-X dari endapan hasil eksperimen menunjukkan adanya persekutuan samping antara Zr-Zr melalui dua jembatan okso. Hal ini ditunjukkan nilai *d* sekitar 2,97 Å pada endapan dari hasil sintesis dengan metode hidrotermal dan *d* sekitar 2,91 Å dengan metode solvotermal. Spektra pada nilai *d* tersebut semakin jelas seiring dengan penambahan mol prekursor Zr, hal ini menunjukkan kehadiran persekutuan samping antara Zr-O-Zr semakin banyak. Dengan demikian campuran oksida tersebut memiliki keasaman Lewis semakin besar seiring penambahan Zr.

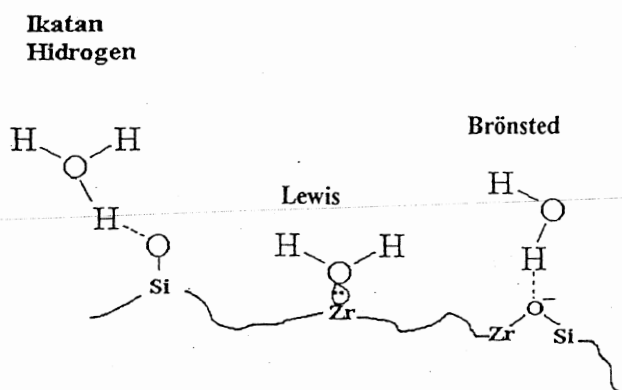
Kehadiran Zr dalam struktur campuran oksida ditandai adanya spektra FTIR pada daerah 960 cm⁻¹ yang merupakan vibrasi ulur simetrik dari Zr-O-Si. Perbandingan intensitas antara spektra 960 cm⁻¹ dengan 800 cm⁻¹ yang

merupakan vibrasi ulur simetrik Si-O-Si menunjukkan peningkatan secara kualitatif. Adanya spektra pada daerah sekitar 1620 dan 3500 cm⁻¹ menunjukkan adanya air, sedangkan 3600 cm⁻¹ merupakan vibrasi ulur OH dari Si-OH. Air ini bukan merupakan air yang teradsorpsi secara fisik, tetapi merupakan air yang terikat pada posisi Lewis, Bronsted dan ikatan hidrogen dengan Si-OH. Pada endapan dengan Ht-1 dan St-1 posisi yang berperan pada interaksi dengan H₂O yaitu Si-OH membentuk ikatan hidrogen, sedangkan pada objek yang lain selain ikatan hidrogen juga pada posisi Lewis dan Bronsted (Gambar 4). Posisi Lewis semakin bertambah seiring semakin banyak Zr, sedangkan posisi Bronsted semakin berkurang.

Mekanisme pembentukan logam oksida SiO₂ dan campuran logam oksida

SiO₂-ZrO₂ dimungkinkan analog seperti pada mekanisme pembentukan

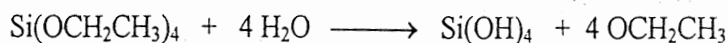
pembentukan logam oksida melalui proses sol-gel (Sutrisno, 1997).



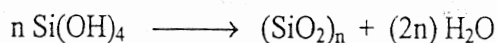
Gambar 4. Skema interaksi H₂O pada permukaan campuran oksida SiO₂-ZrO₂

Mekanisme pembentukan logam oksida SiO₂:

Hidrolisis :

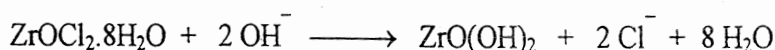
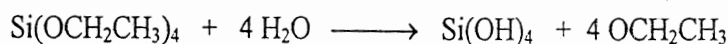


Kondensasi :

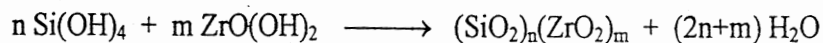


Mekanisme reaksi pembentukan campuran logam oksida SiO₂-ZrO₂ :

Hidrolisis :



Kondensasi :



KESIMPULAN DAN SARAN

Kesimpulan

Berdasarkan hasil penelitian dan pembahasan di atas dapat disimpulkan :

1. Senyawa campuran logam oksida SiO₂-ZrO₂ dapat dihasilkan dari reaksi TEOS, ZrOCl₂·8H₂O dan campuran TPABr-NH₄OH dalam pelarut air atau etilen glikol melalui metode hidrotermal atau solvo-termal.

2. Campuran logam oksida SiO₂-ZrO₂ yang bersifat padatan superasam memiliki struktur amorf dengan model struktur Thomas dan berubah ke arah model Tanabe seiring penambahan atom zirkonium.

Saran

Pembuatan campuran oksida SiO₂-ZrO₂ yang merupakan katalis superasam dilakukan dengan jumlah pre-

melalui

kursor dari zirkonium yang lebih banyak

UCAPAN TERIMA KASIH

Diucapkan terima kasih yang sebesar-besar atas biaya penelitian ini, kepada : (1). proyek DUE-Like Tahun anggaran 2002/2003 FMIPA, Universitas Negeri Yogyakarta (UNY) Nomor kotrak : 38/Ktr.RG/LPIU.DI/2002, (2). Nurudin Ahmad dan Bardo Tri Hermoko atas bantuannya.

DAFTAR PUSTAKA

Bosman, H.J.M. (1995). Characterization of the Acidity of SiO₂-ZrO₂ Mixed Oxides. *Disertation*. Eindhoven : Technische Universiteit Eindhoven

Colthup, N.B., Daly, L.H. & Wiberley, S.E. (1990). *Introduction to Infrared and Raman Spectroscopy*. London : Academic Press.

Cordoncillo, E., Monros, G., Tena, M.A., Escribano, P. & Carda, J. (1994). Study of Phase-Transfer-Catalyst Influence in Cao-SiO₂ Gel Preparation. *Journal of Materials Science*, 29 : 4325-4330.

Daturi, M., Cremona, A., Milella, F., Busca, G. & Vogna, E. (1998). Characterization of Zirconia-Titania Powders Prepared by Coprecipitation. *Journal of the European Ceramic Society*, 18 : 1079-1087.

Elder, S.H., Cot, F.M., Su, Y., Heald, S.M., Tyryshkin, A.M., Bowman, M.K., Gao, Y., Joly, A.G., Balmer, M.L., Kolwaite, A.C., Magrini, K.A. & Blake, D.M. (2000). The

Discovery and Study of Nanocrystalline TiO₂-MoO₃ Core-Shell Materials. *Journal of American Chemical Society*, A-I.

Hadjiivanov, K., Reddy, B.M. & Knozinger, H. (1999). FTIR Study of Low-Temperature Adsorption and Co-Adsorption of ¹²CO and ¹³CO on a TiO₂-SiO₂ Mixed Oxide. *Applied Catalysis A : General*, 188 : 355-360.

Harlé, V., Vrinat, M., Scharff, J.P., Durand, B. & Deloume, J.P. (2000). Catalysis Assisted Characterizations of Nanosized TiO₂-Al₂O₃ Mixtures Obtained in Molten Alkali Metal Nitrates Effect of the Metal Precursor. *Applied Catalysis A : General*, 166 : 261-269.

Huheey, J. (1983). *Inorganic Chemistry : Principles of Structure and Reactivity*. New York : Harper International Edition.

Jolivet, J. P. (1994). *De la Solution à l'Oxyde*, Paris : Inter Edition - CNRS Editions.

Kanai, H., Shono, M., Hamada, K. & Imamura, S. (2001). Photooxidation of Propylene with Oxygen over TiO₂-SiO₂ Composite Oxides Prepared by Rapid Hydrolysis. *Journal of Molecular Catalysis A : Chemical*, 172 : 25-31.

Sutrisno, H. (1997). Aspek Kimia dan Fisika dalam Sintesis Keramik Melalui Proses Sol-Jel. *Cakrawala Pendidikan*, XVI(2) : 31-38.

SiO₂

SiO₂-ZrO₂ perasam dengan berubah seiring

oksida silis superlah pre-