

Pengaruh temperatur pada reaksi hidrasi α -pinena menjadi α -terpineol terkatalis zeolit alam teraktivasi

(Temperature effect on hidration reaction of α -pinene to α -terpineol catalyzed by activated nature zeolite)

Nia Amilia, Kusoro Siadi dan Latifah

Jurusan Kimia, FMIPA Universitas Negeri Semarang (UNNES),
Gedung D6 Kampus Sekaran Gunungpati, Semarang 50229,
telp. 8508035 dan e-mail: nia.amilia@gmail.com

Abstrak

Penelitian mengenai pengaruh temperatur pada reaksi hidrasi α -pinena menjadi α -terpineol sistem heterogen dengan katalis zeolit alam teraktivasi bertujuan untuk mengetahui kondisi temperatur terbaik untuk melangsungkan reaksi hidrasi α -pinena menjadi senyawa α -terpineol menggunakan katalis zeolit alam teraktivasi dan mengetahui besarnya energi aktivasi pada reaksi yang terjadi. Karakterisasi katalis meliputi penentuan luas permukaan, volume pori, dan rerata jejari pori menggunakan *Gas Sorption Analyzer NOVA1200e*. Reaksi hidrasi berlangsung pada temperatur 30, 40, 50, 60, 70, dan 80°C. Hasil reaksi dianalisis menggunakan spektrofotometer IR, *Gas Chromatography (GC)* dan *Gas Chromatography-Mass Spectroscopy (GC-MS)* untuk hasil reaksi terbaik. Hasil analisis IR menunjukkan adanya serapan gugus OH pada bilangan gelombang 3400 cm^{-1} , gugus C-H alifatik pada bilangan gelombang 2987,09 cm^{-1} , gugus C=C pada bilangan gelombang 1635,64 cm^{-1} , dan gugus C-O pada bilangan gelombang 1126,43 cm^{-1} . Kenaikan temperatur berpengaruh terhadap konversi (%) α -pinena menjadi α -terpineol. Hasil terbaik diperoleh pada temperatur reaksi 70°C dengan kadar 68,53% dan harga E_a reaksi hidrasi α -pinena sebesar 69,6546 kJmol^{-1} .

Kata kunci: α -pinena, temperatur, reaksi hidrasi, α -terpineol

Abstract

Study of temperature effect in hydration reaction of α -pinene to α -terpineol heterogeneous system over activated nature zeolite has been conducted. The purposes of the research are to know the best temperature of hydration reaction α -pinene to α -terpineol using activated nature zeolite and to determine the value of activation energy for the hydration reaction. Characterization of the catalyst include surface area, pore size, and pore volume was performed using *Gas Sorption Analyzer NOVA1200e*. Reaction occurs at various temperature of 30, 40, 50, 60, 70, and 80°C. The product of reaction is analyzed using infra red spectroscopy, gas chromatography, and chromatography-mass spectroscopy for the best product. Results of the analysis using infra red show absorption of OH group at 3400 cm^{-1} , C-H at 2987,09 cm^{-1} , C=C bond at 1635,64 cm^{-1} , and C-O at 1126,43 cm^{-1} . Effect of increasing temperature influences the conversion (%) α -pinene to α -terpineol. The best result was reached at 70°C for 68.53% and the activation energy of reaction hydration is 69.6546 kJmol^{-1} .

Key words: α -pinene, temperature, hydration reaction, α -terpineol

Pendahuluan

Sekitar 200 jenis minyak atsiri diperdagangkan di pasar dunia. Tidak kurang dari 80 jenis diantaranya diproduksi secara kontinu di berbagai negara berkembang dan 20 jenis minyak atsiri Indonesia dikenal di pasar dunia. Beberapa di antaranya sudah menjadi komoditi ekspor yaitu serai wangi, nilam, akar wangi, kenanga, kayu putih, cengkeh, cendana, pala, massoi, kruing, gaharu, lawang, dan terpentin. Minyak atsiri digunakan sebagai bahan tambahan dalam pembuatan obat-obatan, parfum, kosmetika, sabun, detergen, flavor dalam makanan dan minuman, dan aroma terapi.

Terpentin merupakan salah satu minyak yang didapatkan dari pohon pinus dan dimanfaatkan sebagai pelarut dalam industri farmasi, pengolahan resin, dan cat. Sebagian besar pohon pinus di Indonesia adalah jenis Pinus merkusii yang menghasilkan terpentin dengan komposisi 82% α -pinena dan komponen lain seperti kamfen, β -pinena, dan limonen [1].

Senyawa α -pinena merupakan senyawa organik dari golongan senyawa terpen dan termasuk ke dalam senyawa alkena yang mengandung cincin reaktif karena adanya ikatan rangkap dan dapat ditemukan pada berbagai minyak pohon jenis konifer terutama pinus. Senyawa α -pinena didapatkan dari proses produksi bubur kertas berbahan dasar kayu pinus dengan kandungan sekitar 92% atau dari hasil isolasi minyak terpentin dengan destilasi pengurangan tekanan [2].

Terpineol merupakan produk utama dan paling berlimpah yang digunakan secara luas dalam industri kosmetik, parfum, antifungi, desinfektan, pewangi dalam cairan pembersih, dan kini juga dikembangkan sebagai polimer. Senyawa ini tergolong ke dalam senyawa alkohol monoterpen monosiklik yang diperoleh melalui hidrasi α -pinena dalam suasana asam menghasilkan campuran kompleks berupa monoterpen, alkohol, dan hidrokarbon. Selain itu α -terpineol juga dapat diperoleh melalui hidrasi atau biokonversi limonen terkatalisis asam tetapi disertai terbentuknya diol dalam jumlah yang besar [3].

Hidrasi α -pinena dengan katalis asam membentuk campuran kompleks monoterpen (alkohol dan hidrokarbon). α -pinena yang bereaksi dalam media asam akan mengekspansi cincinnya membentuk senyawa turunan seperti kamfen, fencen, dan bornilen atau membukanya cincin membentuk limonen, terpinolen, dan α atau γ -terpinen. Apabila dalam reaksi hidrasi ada kehadiran air dan katalis asam, penambahan produk-produk di atas akan membentuk alkohol seperti α -terpineol dan borneol.

Perumusan masalah dari penelitian ini yaitu: (a) pada temperatur berapakah yang paling baik untuk melangsungkan reaksi hidrasi α -pinena menjadi α -terpineol sistem heterogen dengan katalis zeolit alam teraktivasi, dan (b) berapa nilai energi aktivasi pada reaksi hidrasi α -pinena menjadi α -terpineol sistem heterogen dengan katalis zeolit alam teraktivasi.

Penelitian ini dilakukan dengan tujuan yaitu: (a) mengetahui temperatur reaksi yang paling baik untuk melangsungkan reaksi hidrasi α -pinena menjadi α -terpineol, dan (b) mengetahui besarnya energi aktivasi reaksi hidrasi α -pinena menjadi α -terpineol dengan katalis zeolit alam teraktivasi.

Metode Penelitian

Alat-alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah seperangkat alat gelas,

neraca analitik (*Ohaus*), penyaring vakum, satu set alat destilasi fraksinasi pengurangan tekanan, satu set alat refluks, sentrifuge Centurion GP Series, FT-IR (*Fourier Transform Infa Red*) Shimadzu-8201 PC, BET (*Brunnaer Emmet Teller*) 1200e NOVA (*No Void Analysis*), GC (*Gas Chromatography*) Agilent 6820, GC-MS (*Gas Chromatography Mass Spectrofotometry*) Shimadzu QP-2010S.

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah minyak terpentin, aquades, aquabides, zeolit alam (Malang), isopropil alkohol, Na_2SO_4 anhidrat, Na_2CO_3 , HCl, HF, diklorometan, dan NH_4Cl dengan *grade pro analyst* buatan E Merck, dan gas N_2 produksi PT Samator.

Aktivasi zeolit alam menggunakan metode Trisunaryati [4] dilakukan dengan menghancurkan zeolit alam kemudian diayak ukuran 100 mesh, direndam dalam aquades sambil diaduk selama 24 jam pada temperatur kamar sebanyak 3 kali, disaring, dan dikeringkan dalam oven pada temperatur 120°C . Serbuk zeolit alam direndam dengan HF 1% selama 30 menit kemudian dicuci dengan aquades dan dikeringkan dalam oven pada temperatur 120°C selama 24 jam. Sampel direndam dalam HCl 6 M kemudian dicuci dengan aquademin sampai ion Cl^- hilang (uji dengan AgNO_3 1%) selanjutnya zeolit dikeringkan dan dihaluskan kembali. Sampel kembali direndam menggunakan NH_4Cl 1N kemudian dicuci dengan aquademin sampai ion Cl^- hilang dan diayak dengan ukuran 100 mesh. Terakhir dilakukan kalsinasi pada temperatur 400°C selama 3 jam.

Isolasi minyak terpentin dilakukan dengan memisahkan komponen minyak terpentin dari air dengan menambahkan Na_2SO_4 anhidrat dan disaring kemudian didestilasi fraksinasi pengurangan tekanan pada suhu 50°C .

Reaksi hidrasi menggunakan metode Avila [5] dengan variasi temperatur 30, 40, 50, 60, 70, dan 80°C . Dalam labu alas bulat leher 3 dimasukkan 0,25 gram α -pinena, 2,5 mL aquabides, dan 3,4 mL isopropil alkohol. Labu dilengkapi pendingin bola, termometer, dan pengaduk magnet. Campuran diaduk sambil dipanaskan sampai temperatur yang diinginkan tercapai kemudian dimasukkan 400 mg katalis H-zeolit. Reaksi dilakukan selama 120 menit dan campuran dipisahkan dengan dipusingkan selama 15 menit; 350 rpm untuk memisahkan katalis dari campuran. Campuran yang telah terpisah dari katalis dipisahkan menggunakan corong pisah untuk memisahkan lapisan bawah (fase air) dari lapisan atas (fase organik). Fase organik dicuci dengan aquades di dalam corong pisah, dinetralkan dengan Na_2CO_3 10%, dan dicuci dengan diklorometana kemudian dipisahkan fase organik dengan air hasil pencucian. Ditambahkan Na_2SO_4 anhidrat untuk mengikat sisa air kemudian disaring untuk memisahkan endapan dan dialiri gas N_2 untuk menguapkan sisa pelarut. Hasil diuji dengan spektrofotometri infra merah dan kromatografi gas dan GC-MS untuk produk hasil reaksi terbaik.

Hasil dan Diskusi

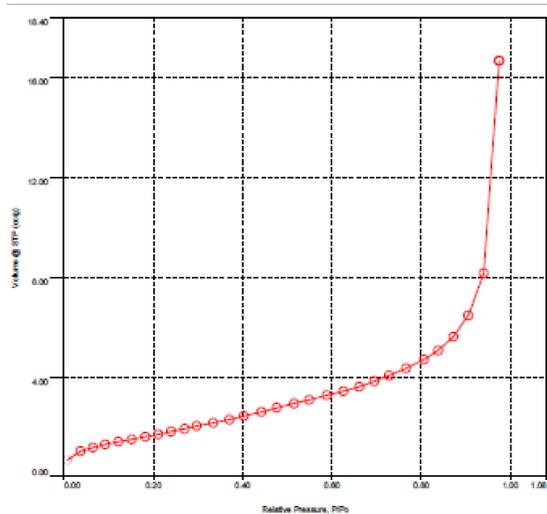
Karakterisasi katalis zeolit alam teraktivasi meliputi luas permukaan spesifik, rerata jejari pori, dan volume total pori katalis menggunakan metode BET dengan alat *Gas Sorption Analyzer* NOVA1200e. Dalam proses reaksi hidrasi, harus terjadi kontak antara molekul umpan α -pinena, pelarut, dan air dengan situs aktif katalis untuk menyediakan suasana asam. Apabila luas permukaan katalis semakin besar maka kemungkinan terjadinya reaksi hidrasi dan pertukaran ion H^+ akan semakin besar juga. Ukuran jari-jari pori katalis yang besar juga menunjang molekul umpan untuk dapat

masuk ke dalam pori katalis.

Tabel1. Hasil Karakterisasi luas permukaan spesifik, rerata jejari pori, dan volume total pori katalis menggunakan metode BET

Sampel	Luas Permukaan Spesifik (m ² /g)	Rerata Jejari Pori (Å)	Volume Pori (cc/g)
H-Zeolit Alam	6,376	16,960	0,025

Aktivasi zeolit alam dengan perlakuan asam dan garam bermanfaat untuk meningkatkan kinerja dari zeolit alam. Karakterisasi luas permukaan katalis zeolit alam teraktivasi menggunakan BET (Bruner, Emmet, dan Teller) didasarkan pada fenomena adsorpsi gas lapis tunggal yang berlangsung pada temperatur tetap. Luas permukaan dan volume pori yang besar menyebabkan reaktan dapat masuk ke dalam pori katalis sehingga molekul reaktan yang teradsorpsi pada permukaan katalis akan meningkat sehingga reaksi lebih cepat dan produk yang dihasilkan juga semakin banyak. Gambar 1 menunjukkan grafik jumlah adsorpsi gas nitrogen terhadap tekanan relatif P/P₀. Berdasarkan grafik dapat dilihat bahwa isoterm adsorpsi nitrogen menunjukkan pola dimana terjadi kenaikan secara cepat pada P/P₀ rendah, kemudian naik perlahan pada pertengahan dan naik dengan cepat pada nilai P/P₀ mendekati satu. Kenaikan pertama terjadi akibat adanya molekul gas yang teradsorpsi berinteraksi dengan daerah yang berenergi pada permukaan padatan. Pada pengisian ini terbentuk *monolayer*, kemudian pada daerah P/P₀ yang lebih tinggi penambahan molekul gas terjadi pada permukaan *monolayer* sebelumnya membentuk lapisan berlapis (*multilayer*) hingga pada akhir pengisian. Adanya *loop* histerisis pada daerah pertengahan menunjukkan isoterm ini merupakan isoterm tipe II yaitu jenis adsorpsi dari padatan berpori meso yakni dengan ukuran diameter pori 20-500 Å atau 2-50 nm [6].



Gambar 1. Isoterm adsorpsi N₂ dari katalis H-Zeolit.

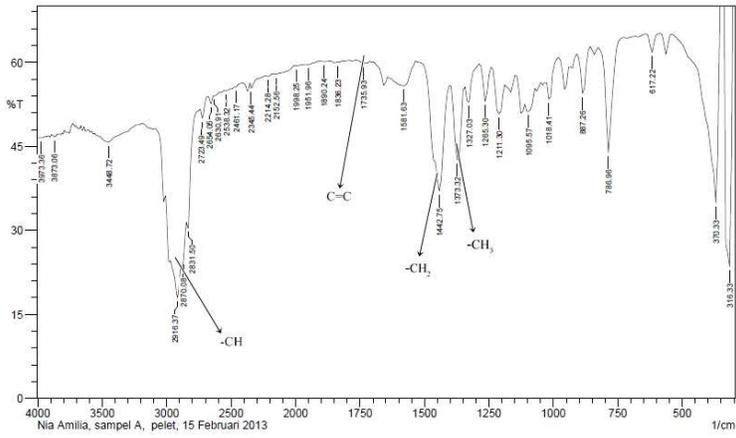
Hasil analisis pada katalis H-zeolit yang digunakan dalam reaksi hidrasi α -pinena ini memiliki ukuran diameter pori sebesar 80,90 Å atau dikatakan bahwa ukuran pori H-zeolit tergolong ke dalam ukuran mesopori.

Bahan dasar α -pinena yang digunakan dalam penelitian ini merupakan minyak terpentin yang berasal dari Perum Perhutani Unit I Jawa Tengah dan diisolasi dengan cara distilasi pengurangan tekanan dengan identifikasi fisik seperti dalam Tabel 2 berikut.

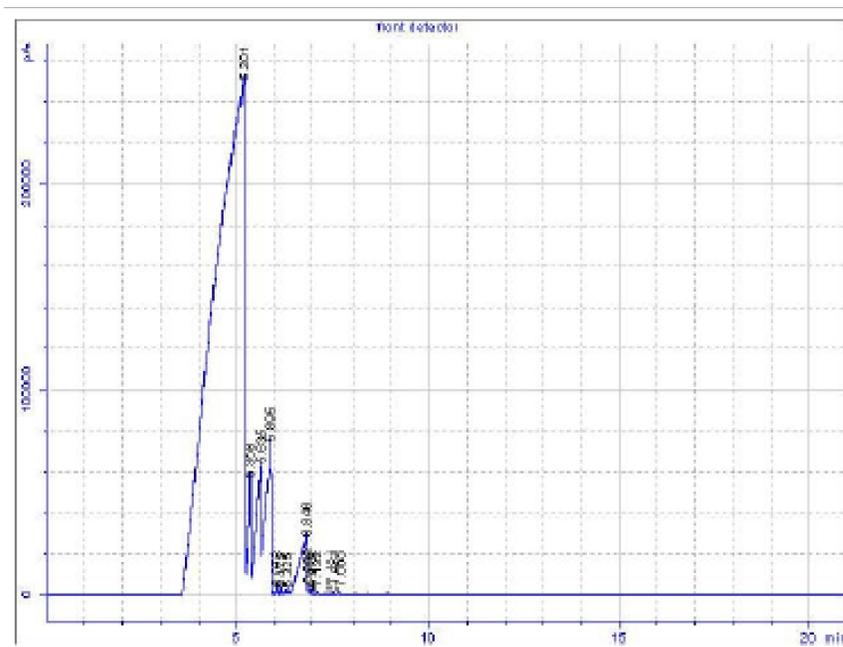
Tabel 2. Sifat fisik senyawa α -pinena hasil isolasi.

No	Sifat Fisik	Keterangan
1.	Wujud	Cair
2.	Warna	Jernih
3.	Bau	Bau khas terpentin

Hasil analisis α -pinena menggunakan spektrofotometer inframerah pada Gambar 2 menunjukkan adanya beberapa serapan karakteristik. Puncak 2916,37 cm⁻¹ menunjukkan adanya serapan gugus C-H alkana, 1735,93 cm⁻¹ menunjukkan adanya rentangan C=C alkena, 1442,75 cm⁻¹ menunjukkan gugus CH₂ dan 1373,32 cm⁻¹ menunjukkan gugus CH₃. Berdasarkan spektrum hasil analisis tersebut dimungkinkan bahwa senyawa yang dianalisis adalah α -pinena. Hasil kromatogram GC pada Gambar 3 menunjukkan adanya 5 puncak dengan puncak tertinggi pada waktu retensi 5,201 menit sebagai puncak dari senyawa α -pinena dengan persentase kadar sebesar 87,84%.

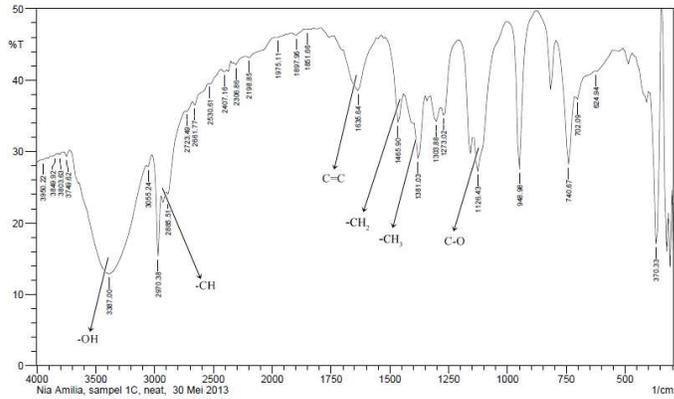


Gambar 2. Spektrum IR α -pinena hasil isolasi.



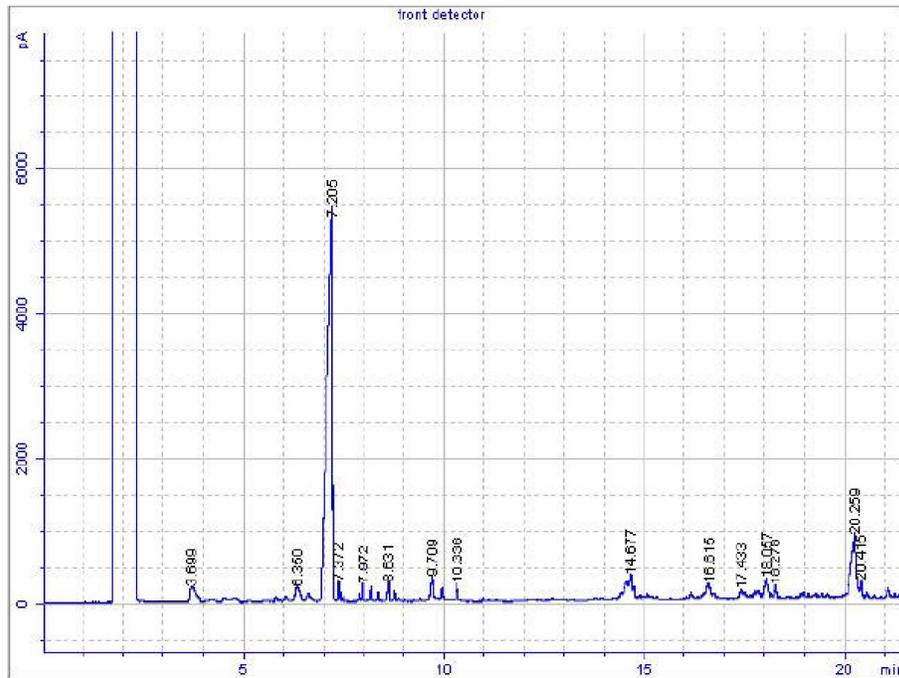
Gambar 3. Kromatogram GC α -pinena.

Analisis hasil reaksi hidrasi α -pinena menggunakan GC didasarkan pada pemisahan komponen berdasarkan sifat kepolaran dan titik didihnya. Kolom yang digunakan adalah kolom HP-5 yang sifatnya semipolar-nonpolar dan sampel di injeksikan pada temperatur injektor 300°C, temperatur kolom 70°C, temperatur detektor 300°C, dan *running* selama 21 menit. Hasil reaksi hidrasi α -pinena pada temperatur 30°C menghasilkan rendemen sebesar 0,17% yang muncul pada waktu retensi 7,252 menit dalam kromatogram GC sedangkan sisa α -pinena sebanyak 81,70%. Temperatur 40°C menghasilkan rendemen sebesar 1,06% yang muncul pada waktu retensi 6,942 menit, sisa α -pinena sebanyak 15,14%. Temperatur 50°C menghasilkan rendemen 2,03% yang muncul pada waktu retensi 7,251 menit, sisa α -pinena sebanyak 23,84%. Temperatur 60°C menghasilkan rendemen 48,53% yang muncul pada waktu retensi 6,946 menit dan sisa α -pinena 13,91%. Temperatur 70°C menghasilkan rendemen 68,53% yang muncul pada waktu retensi 7,205 menit dan sisa α -pinena 3,37%. (Gambar 4). Terakhir pada temperatur 80°C menghasilkan rendemen sebesar 6,34% pada waktu retensi 7,268 menit dan sisa α -pinena sebanyak 2,66%. Kadar α -pinena semakin menurun dan senyawa α -terpineol semakin banyak dengan kenaikan temperatur mulai dari temperatur 30°C hingga 70°C, namun hingga reaksi pada temperatur 80°C kadar senyawa α -terpineol menurun. Bertambahnya temperatur pada reaksi hidrasi mengakibatkan gerakan sangat aktif dari reaktan sehingga muncul rintangan antara sisi aktif molekul reaktan dengan situs aktif katalis.



Gambar 4. Spektrum IR hasil reaksi hidrasi α -pinena temperatur 70°C

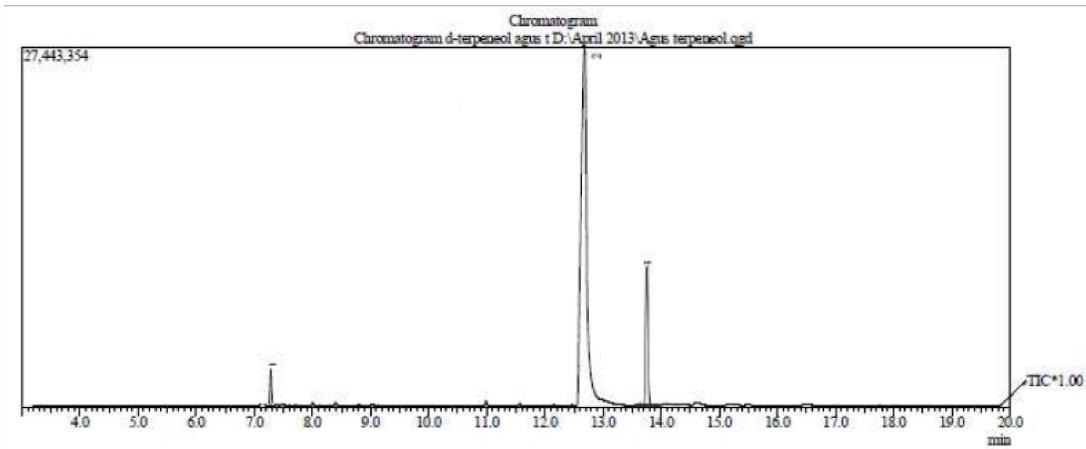
Analisis struktur senyawa reaksi hidrasi menggunakan IR menghasilkan spektrum dengan serapan gugus OH pada bilangan gelombang 3387 cm^{-1} . Serapan gugus C-H alifatik pada bilangan gelombang 2987,09 cm^{-1} , gugus C=C pada bilangan gelombang 1635,64 cm^{-1} , gugus C-O pada bilangan gelombang 1126,43 cm^{-1} , dapat disimpulkan bahwa senyawa yang dihasilkan merupakan senyawa alkohol berupa α -terpineol yang termasuk ke dalam alkohol tersier.



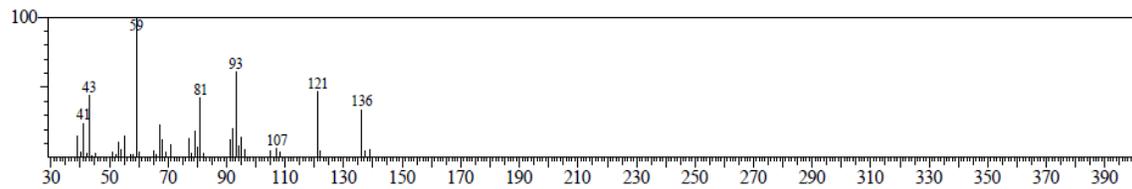
Gambar 5. Kromatogram GC hasil reaksi hidrasi α -pinena temperatur 70°C

Analisis dengan GC-MS bertujuan untuk mengetahui jumlah senyawa, konsentrasi senyawa, massa rumus, rumus struktur, dan *mass peak* senyawa produk hasil reaksi hidrasi. Senyawa α -terpineol yang dipilih untuk dianalisis adalah hasil α -terpineol dari reaksi hidrasi pada temperatur 70°C. Berdasarkan hasil analisis terdapat 3

puncak utama pada kromatogram dan diperkirakan α -terpineol muncul pada puncak ke-2 pada waktu retensi 12,684 menit dengan kadar sebesar 72,12%.

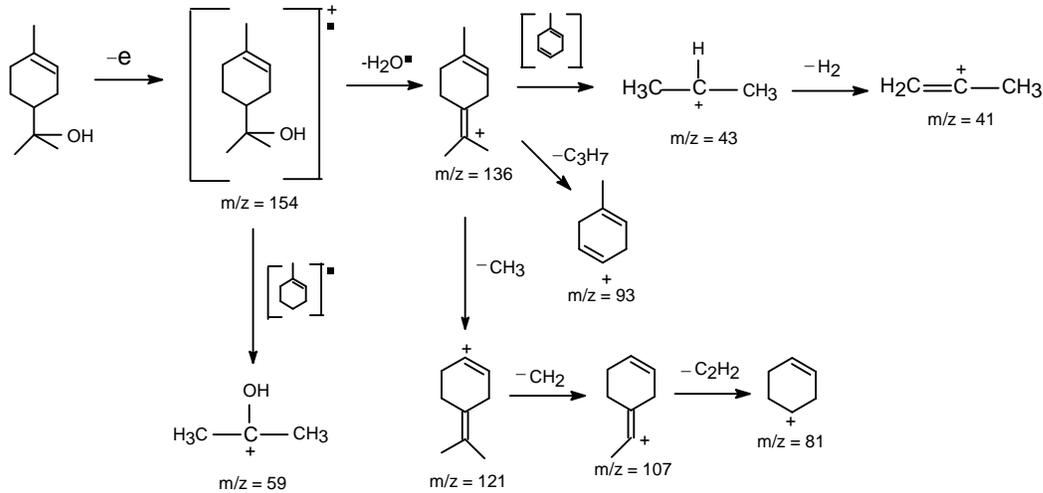


Gambar 6. Kromatogram GC hasil reaksi hidrasi α -pinena temperatur 70°C.



Gambar7. Spektrum massa α -terpineol.

Hasil spektrum massa senyawa menunjukkan ion molekuler dengan m/z 154 tetapi tidak terdeteksi oleh spektrofotometer karena tidak stabil dan fragmen selanjutnya terdeteksi yakni pada m/z 136. Pecahan khas dari suatu alkohol adalah lepasnya molekul H_2O dari ion molekuler m/z 154 ditandai dengan munculnya pecahan $M-18^+$ membentuk pecahan ion molekuler dengan m/z 136. Selanjutnya ion molekuler pada m/z 136 melepaskan CH_3 membentuk pecahan ion molekuler m/z 121 kemudian menjadi m/z 107 akibat melepaskan CH_2 . Pecahan dengan m/z 107 melepaskan C_2H_2 menghasilkan pecahan dengan m/z 81 dan seterusnya hingga terjadi pecahan dengan m/z 43 akibat terlepasnya gugus-gugus pada ion molekuler α -terpineol.



Gambar 8.Fragmentasi senyawa α -terpineol

Besarnya energi aktivasi pada reaksi hidrasi α -pinena ditentukan menggunakan persamaan Arrhenius dengan memplotkan grafik $\ln k$ terhadap $1/T$. Data persentase reaktan dapat digunakan untuk menentukan harga konstanta laju reaksi sesuai dengan

persamaan [7]:

$$k = \frac{\mu}{V} \ln \frac{C_0}{C}, \quad (1)$$

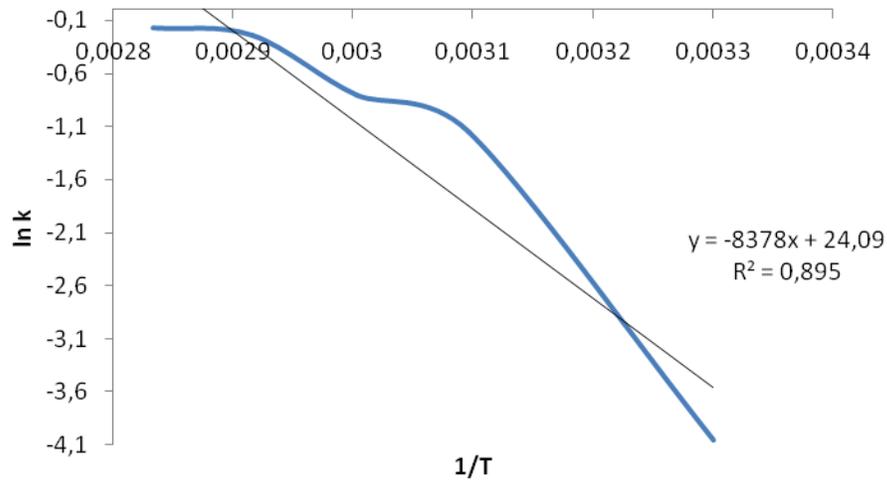
dengan μ adalah volume larutan awal yakni volume α -pinena, aquabides, dan isopropil alkohol dibagi dengan lamanya waktu reaksi (ml/menit), V adalah volume katalis (cm^3) yang dihitung dengan cara menentukan volume katalis dalam bentuk pelet, C_0 adalah konsentrasi awal α -pinena (%), dan C adalah konsentrasi akhir α -pinena setelah reaksi

hidrasi (%). Harga k yang diperoleh dapat digunakan untuk menentukan harga energi

aktivasi E_a (kJ/mol) reaksi hidrasi α -pinena melalui persamaan berikut [8]:

$$\ln k = \ln A - \frac{E_a}{RT}. \quad (2)$$

Berdasarkan Gambar 9 didapatkan nilai E_a pada reaksi hidrasi α -pinena sebesar 69,654692 kJ/mol. Menurut [9], berdasarkan tenaga pengaktifan dapat ditentukan tahapan penentu laju reaksi adalah proses kimia yaitu pada adsorpsi, reaksi, dan desorpsi atau proses fisis pada tahap difusi dan transfer produk reaksi ke fasa fluida. Apabila tenaga pengaktifan terukur lebih besar dari 45 kJ/mol maka tahapan penentu laju reaksinya adalah proses kimia sedangkan apabila lebih kecil dari 15kJ/mol maka tahapan penentu laju reaksinya adalah proses fisis. Pada penelitian ini E_a yang terukur lebih dari 45 kJ/mol sehingga dapat ditunjukkan bahwa tahap penentu laju reaksi hidrasi α -pinena terkatalisis H-Zeolit alam adalah proses kimia. Interaksi yang terjadi antara katalis dan reaktan dapat menghasilkan senyawa antara yang lebih aktif, meningkatkan jumlah tumbukan dan menyebabkan terjadinya reaksi dengan



energi pengaktifan yang lebih rendah. Atkins [8] mengemukakan bahwa kecepatan reaksi akan meningkat dengan naiknya temperatur. Apabila temperatur dinaikkan maka energi reaktan akan meningkat. Kenaikan energi ini mengakibatkan partikel aktif bergerak sehingga frekuensi tumbukan semakin meningkat, reaksi berjalan semakin cepat, dan laju reaksi semakin besar. Tetapi bila temperatur terlalu tinggi maka kecepatan reaksi menurunkan jumlah reaktan yang teradsorpsi pada permukaan katalis karena waktu kontak antara katalis dan reaktan menjadi cepat dan produk yang terkonversi semakin kecil.

Gambar 9. Hubungan $\ln k$ terhadap $1/T$ reaksi hidrasi α -pinena.

Tabel 3. Data hasil perhitungan $\ln k$.

T(K)	1/T (K ⁻¹)	M	Co/C	k (menit ⁻¹)	$\ln k$
303	0,0033	0,0512	1,0751	0,01746	-4,04778
313	0,003195	0,0513	5,7994	0,42468	-0,85641
323	0,003096	0,0512	3,6834	0,31439	-1,15709
333	0,003003	0,0513	6,3138	0,44521	-0,80919
343	0,002915	0,0512	26,0158	0,78578	-0,24107
353	0,002833	0,0512	32,9097	0,84246	-0,17142

Kesimpulan

Hasil reaksi terbaik dalam reaksi hidrasi α -pinena menjadi α -terpineol menggunakan katalis zeolit alam teraktivasi diperoleh pada kondisi temperatur 70°C dalam waktu reaksi 120 menit dengan kadar sebesar 68,53% dan nilai energi aktivasi reaksi hidrasi α -pinena menjadi α -terpineol menggunakan katalis zeolit alam teraktivasi yang dihitung menggunakan persamaan Arrhenius adalah 69,654692 kJ/mol.

Pustaka

- [1] H. Utami, Kinetika Reaksi Terpeneol dari Terpentin, Fakultas Teknik UGM, 2009.
- [2] R. Aguirre, D.T. Saenz, W.A. Flores, A.R. Sanchez, A.A. Elguezabal, *Journal of Catalysis Today*, 107-108 (2005) 310-314.
- [3] P.A.R Dutenhofner, K.A. da Silva, M.R.H. Siddiqui, I.V. Kozhevnikov, E.V. Gusevskaya, *Journal of Molecular Catalysis*, 175 (2001) 33-42.
- [4] Trisunaryati, W.E.Triwahyuni, S. Sudiono, *TEKNO* 10(4) (2005) 269-282.
- [5] M.C. Avila, N.A. Comelli, E. R.Castellón, A.J. López, R.C. Flores, E.N. Ponzi, M.I. Ponzi, *Journal of Molecular Catalysis A:Chemical*, 322 (2010) 106-112.
- [6] D. Hartanto, T.E. Purbaningtiyas, H. Fansuri, D. Prasetyoko, *Jurnal ILMU DASAR*, 12 (2011) 80-90.
- [7] J.W. Moore dan R.G. Pearson, *Kinetic and Mechanisms*, 3rd Ed., John Wiley and Sons, Inc., Canada, 1981.
- [8] P.W. Atkins, *Physical Chemistry*, Oxford University Press, Tokyo, 1990.

[9] Triyono, Kimia Katalis, Yogyakarta, FMIPA UGM, 2004.