

## IV. HASIL DAN PEMBAHASAN

### A. Pengantar

Penelitian ini pada intinya dilakukan dengan dua tujuan utama, yakni mempelajari pembuatan katalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dari substrat  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  dengan metode sol-gel, dan mempelajari aktivitas katalitik  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  untuk reaksi konversi gas  $\text{CO}_2$  menjadi metanol.

Secara garis besar, penelitian ini mencakup tiga lingkup kegiatan yakni pembuatan katalis, karakterisasi katalis, dan uji aktivitas katalis. Pembuatan katalis diawali dengan pembuatan  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  dengan metode sol-gel, dilanjutkan dengan kalsinasi pada temperatur  $350^\circ\text{C}$ .  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  yang telah dikalsinasi kemudian direduksi menggunakan gas  $\text{H}_2$  untuk mengubah  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  menjadi  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ . Percobaan ini dilakukan dengan laju alir gas  $\text{H}_2$  yang berbeda yakni 1,6 L/jam; 1,8 L/jam; dan 2,0 L/jam untuk mendapatkan konversi  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  menjadi katalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  paling tinggi. Persen konversi ini ditentukan berdasarkan analisis menggunakan *X-Ray Diffractometer* (XRD). Katalis dengan kandungan fasa kristalin  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  paling tinggi selanjutnya dikarakterisasi dengan *Scanning Electron Microscope-Energy Dispersive X-Ray Spectrometer* (SEM-EDX) untuk melihat morfologi permukaan dan analisis komposisi unsur permukaan, serta metode adsorpsi basa piridin untuk mengevaluasi karakteristik keasaman katalis. Pengikatan piridin oleh katalis

dikonfirmasi dengan analisis fungsionalitas menggunakan Spektrofotometer Infra Merah.

Tahap terakhir adalah pengujian aktivitas katalis terbaik untuk reaksi konversi gas CO<sub>2</sub> menjadi metanol pada temperatur 100, 200, 300, dan 400 °C. Produk reaksi selanjutnya dianalisis menggunakan kromatografi gas dan keadaan katalis setelah uji aktivitas dimonitor kembali menggunakan *X-Ray Diffractometer (XRD)* dan *Scanning Electron Microscope-Energy Dispersive X-Ray Spectrometer (SEM-EDX)*.

## **B. Pembuatan Katalis dengan Metode Sol-gel**

Pada penelitian ini, pembuatan Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> menggunakan metode Sol-gel, mengikuti penelitian sebelumnya oleh Akbar *et al.*, (2004). Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> disiapkan dengan cara melarutkan prekursor Fe-nitrat ke dalam larutan asam sitrat. Larutan asam sitrat dibuat dengan melarutkan kristal C<sub>6</sub>H<sub>8</sub>O<sub>7</sub> · H<sub>2</sub>O ke dalam aquades, reaksi yang terjadi adalah endoterm. Larutan Fe-nitrat dalam asam sitrat berwarna merah, seperti yang disajikan pada Gambar 10 berikut:



Gambar 10. Larutan Fe-nitrat dalam asam

Larutan tersebut dipanaskan pada temperatur  $80^{\circ}\text{C}$  sambil diaduk dengan *magnetic stirrer* agar homogen. Pada proses pemanasan tersebut terjadi penguapan air dan pelepasan sedikit gas  $\text{NO}_2$  yang ditandai dengan keluarnya gas berwarna kuning kecoklatan.

Dari hasil pemanasan tersebut diperoleh gel yang berwarna merah, seperti yang disajikan dalam Gambar 11 berikut.

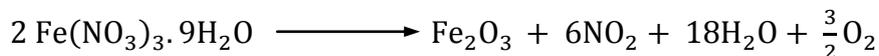


Gambar 11. Gel yang terbentuk

Gel tersebut kemudian dikeringkan di dalam oven pengering dengan temperatur  $60^{\circ}\text{C}$  selama 24 jam, selanjutnya dilakukan kalsinasi untuk mengubah Fe menjadi oksidanya, karena oksida dari Fe ini akan berperan sebagai situs aktif dalam proses katalitik.

Kalsinasi dilakukan dalam beberapa tahap. Pada tahap pertama dilakukan pemanasan dari temperatur ruang (temperatur  $30^{\circ}\text{C}$ ) hingga mencapai temperatur  $120^{\circ}\text{C}$  dengan kenaikan temperatur  $1^{\circ}\text{C}/\text{menit}$ , kemudian ditahan selama dua jam. Pada tahap pertama ini, yang terjadi adalah penghilangan kadar air yang masih terkandung di dalam gel. Tahap kedua, temperatur dinaikkan dari temperatur  $120^{\circ}\text{C}$  sampai temperatur  $350^{\circ}\text{C}$  dan ditahan

selama tiga jam. Pada tahap ini, terjadi pembebasan gugus nitrat dan mulai terbentuk fase oksida seperti pada persamaan reaksi berikut:



Kalsinasi dilakukan pada temperatur 350°C karena diharapkan fase oksida yang terbentuk belum cukup stabil, sehingga masih cukup reaktif untuk melewati tahap selanjutnya. Setelah dilakukan kalsinasi, warna yang terbentuk adalah merah bata seperti yang dapat dilihat dalam Gambar 12. Rendemen  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  yang dihasilkan sebesar 94,5 % dari hasil stokiometri.

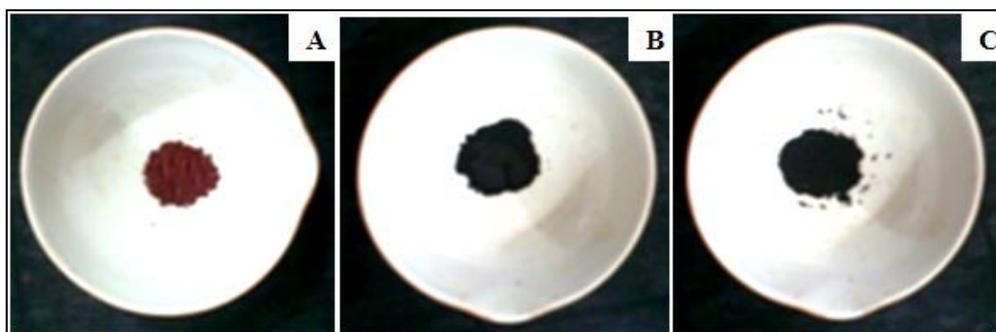


Gambar 12. Katalis  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  yang telah dikalsinasi dan kemudian digerus

$\text{Fe}_2\text{O}_3$  yang telah diperoleh kemudian dikonversi menjadi katalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  melalui tahapan reduksi. Pada penelitian ini, reduksi dilakukan dengan laju alir gas  $\text{H}_2$  yang bervariasi, yaitu: 1,6 L/jam; 1,8 L/jam; dan 2,0 L/jam. Variasi dilakukan untuk mengetahui laju alir gas  $\text{H}_2$  optimal yang diperlukan untuk mereduksi  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  menjadi katalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ . Hasil reduksi dari setiap laju alir gas  $\text{H}_2$  dimonitor fasa kristalinnya menggunakan difraksi sinar-X yang akan dibahas lebih lanjut. Secara fisik, hasil reduksi pada setiap variasi laju

alir gas  $H_2$ , menghasilkan produk dengan warna berbeda, yang mengindikasikan kemungkinan perbedaan komposisi.

Perubahan warna katalis yang telah direduksi dengan masing-masing laju alir gas  $H_2$  dapat dilihat seperti yang disajikan dalam Gambar 13.



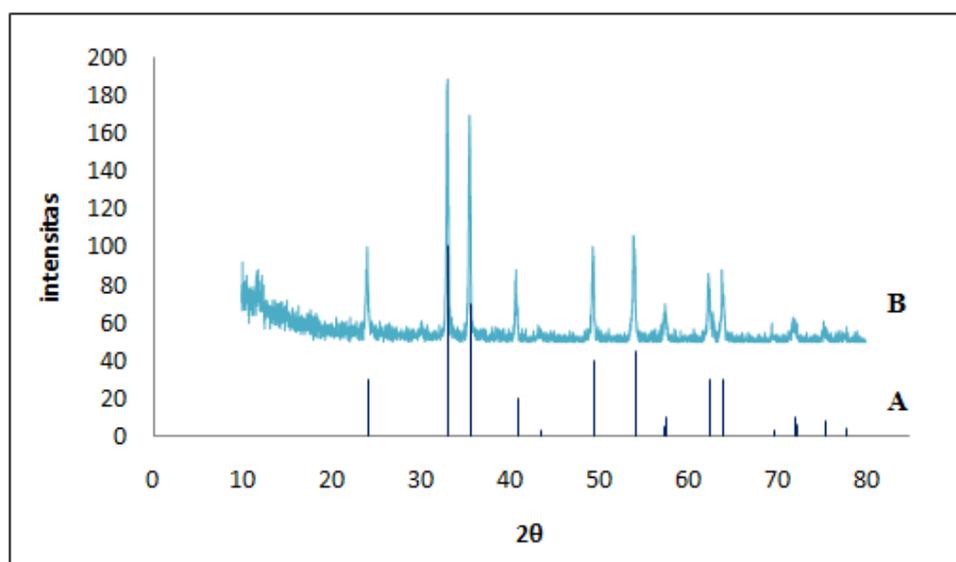
Gambar 13. Katalis hasil reduksi menggunakan laju alir gas  $H_2$  sebesar (A) 1,6 L/jam; (B) 1,8 L/jam; dan (C) 2,0 L/jam.

Hasil yang disajikan dalam Gambar 13 menunjukkan bahwa secara visual ada pengaruh yang cukup jelas dari laju alir gas  $H_2$ . Pada katalis yang direduksi menggunakan laju alir gas  $H_2$  sebesar 1,6 L/jam tidak terlihat perubahan warna yang cukup berarti, dibandingkan dengan warna  $Fe_2O_3$  sebelum direduksi. Tidak terjadinya perubahan warna mengindikasikan bahwa dengan laju alir 1,6 L/jam jumlah gas  $H_2$  yang diasup belum mampu mereduksi  $Fe_2O_3$  menjadi  $Fe_3O_4$ . Hasil percobaan menggunakan laju alir gas  $H_2$  sebesar 1,8 L/jam dan 2,0 L/jam menunjukkan bahwa jumlah gas  $H_2$  yang diasup sudah cukup mereduksi  $Fe_2O_3$  menjadi  $Fe_3O_4$ . Hal ini terlihat dari perubahan warna dari merah bata menjadi hitam. Karena secara visual produk yang dihasilkan dari percobaan dengan laju alir 1,8 L/jam dan 2,0 L/jam adalah sama, maka kedua sampel selanjutnya dianalisis menggunakan XRD.

## C. Karakterisasi Katalis

### 1. Analisis Struktur Kristal menggunakan XRD

Karakterisasi sampel menggunakan sinar-X dilakukan untuk memonitor hasil reduksi katalis pada setiap variasi laju alir gas H<sub>2</sub>. Data difraksi yang dihasilkan memberikan informasi berdasarkan sudut 2θ (dalam derajat) dan intensitas relatif. Hasil pengukuran pola difraksi sinar-X pada katalis yang direduksi menggunakan laju alir gas H<sub>2</sub> sebesar 1,6 L/jam, dapat dilihat dalam Gambar 14. Untuk analisis kualitatif pada setiap sampel hasil reduksi, digunakan metode pencocokan (*search match analysis*) menggunakan program PCPDFWIN 1997 atau JCPDS (*International Center for Diffraction Data*)



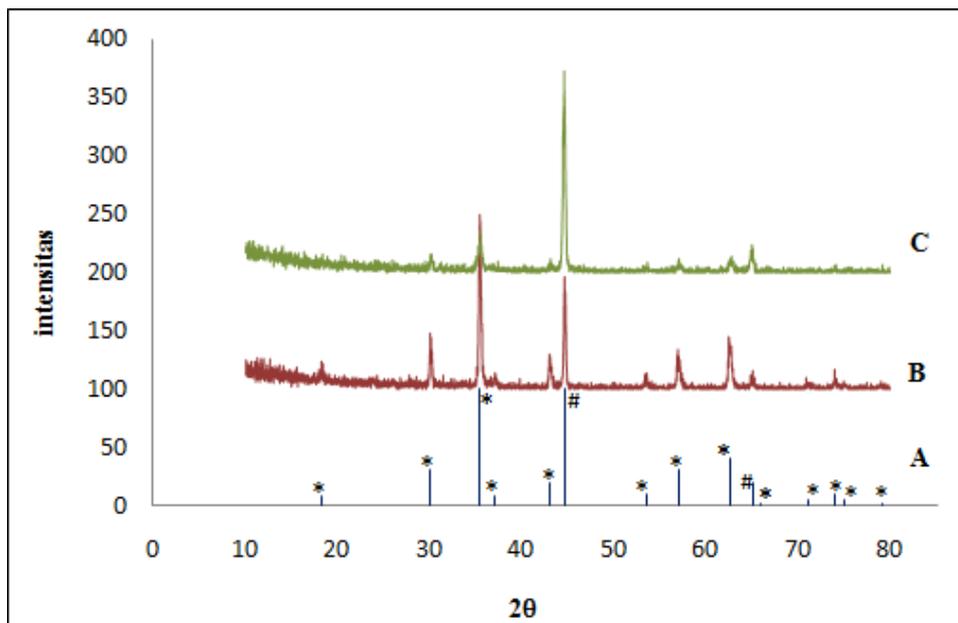
Gambar 14. (A) Pola difraksi mengacu pada PCPDF 33-0664 untuk Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, dan (B) Pola difraksi sampel yang direduksi dengan gas H<sub>2</sub> sebesar 1,6 L/jam

Hasil analisis kualitatif difraksi sinar-X seperti yang disajikan pada Gambar 14 menunjukkan bahwa hasil reduksi menggunakan laju alir gas  $H_2$  sebesar 1,6 L/jam masih berupa  $Fe_2O_3$ . Hal ini dapat diketahui jika melihat puncak-puncak difraktogram sampel hasil reduksi (B), yang bersesuaian dengan puncak-puncak pada difraktogram standar yang mengacu pada PCPDF 33-0664. Identifikasi dilakukan dengan membandingkan tiga puncak berintensitas tertinggi dari sampel terhadap data rujukan (Gooden and Mc Carthy, 1972). Kecocokan puncak-puncak fasa kristalin  $Fe_2O_3$  terhadap rujukan dapat dilihat pada Tabel 1 di bawah ini.

Tabel 1. Interpretasi antara data dari hasil penelitian dari laju alir gas  $H_2$  1,6 L/jam dengan data standar  $Fe_2O_3$  sebagai rujukan

$Fe_2O_3$ rujukan		Hasil penelitian	
Intensitas Relatif (%)	$2\theta$	Intensitas Relatif (%)	$2\theta$
100	33,195	100	33,22
70	35,657	58,77	35,62
45	54,163	35,41	54,06

Untuk sampel katalis yang direduksi menggunakan laju alir gas  $H_2$  sebesar 1,8 L/jam dan 2,0 L/jam terlihat memberikan perubahan warna yang sama, akan tetapi sebenarnya kedua laju alir gas  $H_2$  tersebut memberikan hasil yang berbeda. Hal ini dapat terlihat dari difraktogram kedua sampel yang memiliki pola berbeda. Difraktogram kedua sampel seperti yang ditunjukkan dalam Gambar 15.



Gambar 15. Difraktogram dari katalis yang telah direduksi dengan laju alir gas H<sub>2</sub> sebesar (B) 1,8 L/jam (C) 2,0 L/jam dan (A) difraktogram standar, dimana (#) PCPDF 06-0696 untuk Fe dan (\*) PCPDF 19-0629 untuk Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>

Hasil analisis kualitatif difraktogram yang terlihat pada Gambar 15 menunjukkan bahwa reduksi Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dengan menggunakan laju alir gas H<sub>2</sub> sebesar 1,8 L/jam (B) terbentuk fasa kristalin Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, terlihat dari pola puncak-puncak difraktogram hasil analisis yang bersesuaian dengan pola puncak-puncak difraktogram standar PCPDF 19-0629 untuk Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>. Akan tetapi, pada difraktogram tersebut juga terlihat dua puncak yang tidak bersesuaian dengan pola difraktogram standar Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> yaitu pada  $2\theta = 44,63$  dan  $2\theta = 64,99$ . Melalui metode pencocokan (*search match analysis*), diketahui kedua puncak tersebut cocok dengan puncak difraktogram standar PCPDF 06-0696 untuk fasa kristalin Fe.

Tabel 2. Interpretasi antara data yang dari hasil penelitian dari laju alir gas H<sub>2</sub> 1,8 L/jam dengan data standar Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> dan Fe sebagai rujukan.

Data Rujukan				Hasil Penelitian	
untuk Fe		untuk Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>		Intensitas Relatif (%)	2θ
Intensitas Relatif (%)	2θ	Intensitas Relatif (%)	2θ		
-	-	8	18,292	4,75	18,2067
-	-	30	30,133	26,52	30,0826
-	-	100	35,468	100	35,4486
-	-	8	37,100	7,40	37,0925
-	-	20	43,109	18,11	43,0235
100	44,732	-	-	62,04	44,6344
-	-	10	53,463	1,13	52,4453
-	-	30	57,020	6,65	53,4298
-	-	40	62,602	19,69	56,9158
20	65,113	-	-	28,76	62,0510
-	-	2	65,835	4,47	64,9951
-	-	4	71,026	1,29	70,9504
-	-	10	74,026	5,47	73,0520
-	-	4	75,070	2,29	75,0520

Sedangkan pada pola difraktogram katalis yang direduksi menggunakan laju alir gas H<sub>2</sub> sebesar 2,0 L/jam (C), puncak-puncak difraktogram yang menunjukkan adanya fasa kristalin Fe yaitu pada 2θ = 44,63 dan 2θ = 64,99 mengalami kenaikan intensitas yang cukup tinggi dan puncak-puncak difraktogram yang menunjukkan adanya fasa kristalin Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> terlihat mengalami penurunan intensitas.

Tabel 3. Interpretasi antara data yang dari hasil penelitian dari laju alir gas H<sub>2</sub> 2,0 L/jam dengan data standar Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> dan Fe sebagai rujukan

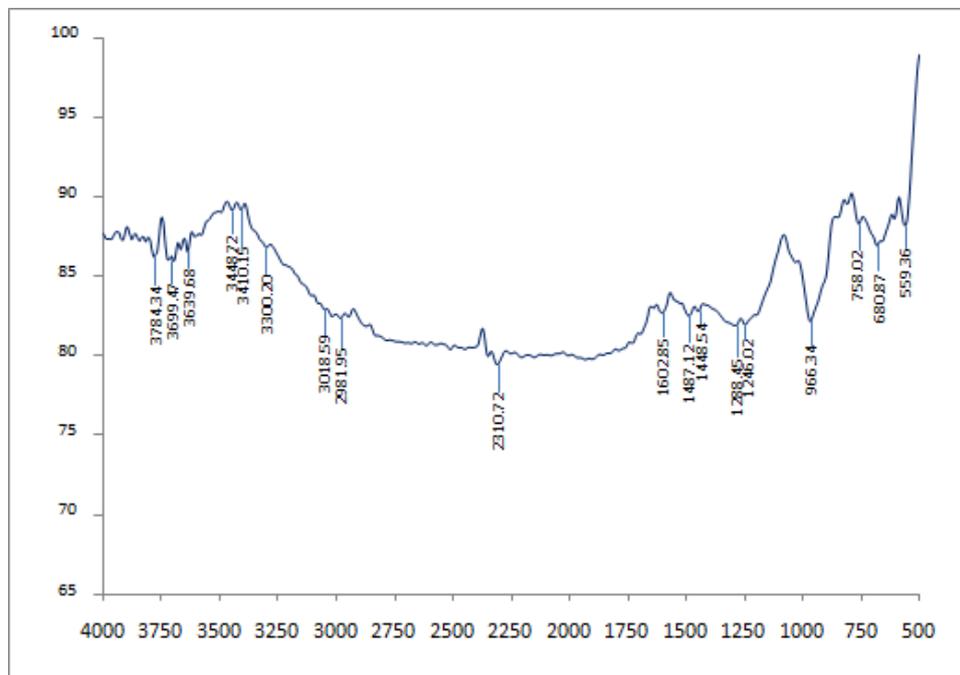
Data Rujukan				Hasil Penelitian	
untuk Fe		untuk Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>		Intensitas Relatif (%)	2θ
Intensitas Relatif (%)	2θ	Intensitas Relatif (%)	2θ		
-	-	30	30,133	8	30,139
-	-	100	35,468	29,5	35,481
100	44,732	-	-	100	44.620
-	-	30	57,02	12,4	57,117
20	65,113	-	-	30,2	65,058

## 2. Uji Keasaman Katalis

Keasaman turut memegang peranan yang cukup penting dalam mempengaruhi aktivitas katalis. Keasaman suatu katalis atau suatu material dapat ditentukan dengan menggunakan metode gravimetri, yaitu dengan menghitung daya adsorpsi katalis terhadap basa yang mana dalam penelitian ini yang digunakan adalah piridin. Banyaknya mol piridin yang teradsorpsi pada situs asam menyatakan kekuatan asam dari katalis (Richardson., 1989). Pada penelitian ini, berdasarkan hasil perhitungan yang disajikan dalam Lampiran 3, dengan menggunakan metode gravimetri diketahui keasaman per-satu gram katalis Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> adalah sebesar 1,116 mmol piridin.

Metode spektrofotometri inframerah merupakan data penunjang bagi metode gravimetri untuk mengetahui sisi asam manakah yang berperan dalam mengikat basa dalam hal ini piridin.

Spektrum IR katalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  setelah uji keasaman menggunakan basa piridin seperti yang disajikan dalam Gambar 16.

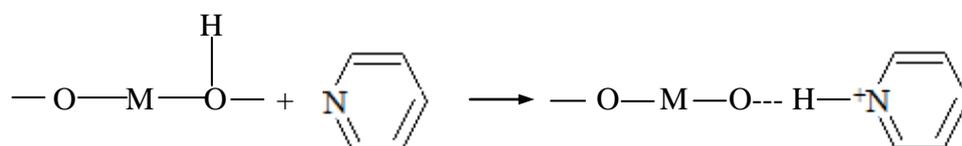


Gambar 16. Spektrum IR katalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  setelah setelah uji keasaman

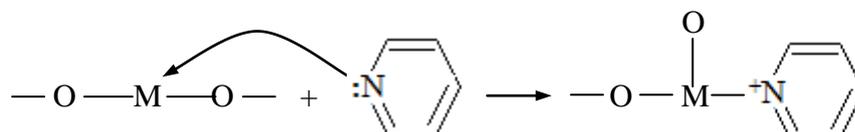
Pada spektrum infra merah situs asam Brønsted-Lowry ditunjukkan pada daerah bilangan gelombang  $1485\text{-}1500\text{ cm}^{-1}$ , sedangkan situs asam Lewis ditunjukkan pada daerah bilangan gelombang  $1447\text{-}1460\text{ cm}^{-1}$  (Tanabe., 1981). Dalam Gambar 16 terlihat adanya puncak serapan dari ion piridinium, yaitu pada  $1487,12\text{ cm}^{-1}$  yang mengindikasikan adanya situs asam Brønsted-Lowry yang berperan pada permukaan katalis. Selain situs asam Brønsted-Lowry, situs asam Lewis (serapan piridin yang berikatan dengan logam) juga berperan pada permukaan katalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , yaitu dengan adanya puncak serapan pada  $1448,54\text{ cm}^{-1}$ .

Adsorpsi piridin pada permukaan katalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  terlihat dengan adanya serapan vibrasi tarik C-H pada daerah  $3020\text{-}3070\text{ cm}^{-1}$ , serapan vibrasi tarik C-C pada daerah  $1590\text{-}1660\text{ cm}^{-1}$ , dan serapan vibrasi untuk C-N pada daerah  $1000\text{-}1250\text{ cm}^{-1}$ . Kemudian pada daerah  $3400\text{-}3500\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan serapan vibrasi N-H yang bertumpangsih dengan serapan O-H akibat adsorpsi piridin pada permukaan katalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ . Sedangkan serapan pada daerah sekitar  $559,36\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan adanya serapan vibrasi untuk Fe-O yang merupakan karakteristik adanya  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  (Barizuddin. S., 2006).

Keasaman situs aktif katalis dapat dijelaskan sebagai berikut: gugus hidroksil dari katalis berikatan kovalen koordinasi dengan piridin membentuk ion piridinium sehingga membentuk pusat aktif Brønsted-Lowry. Reaksi yang terjadi adalah:



Sedangkan pusat aktif asam Lewis pengikatan gugus piridin dapat dilihat pada reaksi berikut :

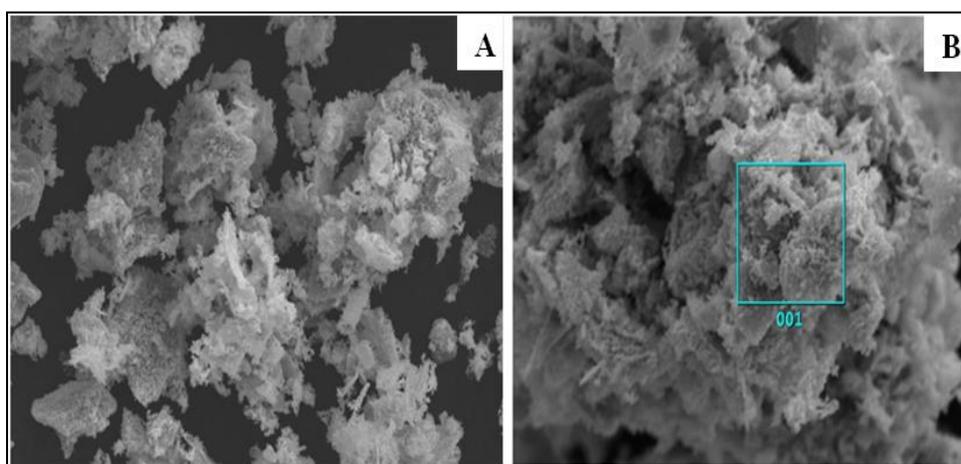


M merupakan logam besi (Fe) mempunyai situs asam yang dapat mengadsorpsi basa piridin. Logam Fe merupakan unsur golongan transisi yang berkaitan dengan orbital d yang terisi elektron belum penuh.

Dominasi antara situs asam Brønsted-Lowry dengan Lewis dapat dilihat pada spektra analisis. Dari spektrum dapat dilihat bahwa katalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  relatif didominasi oleh situs asam Brønsted-Lowry. Hal ini ditunjukkan dengan lebih kecilnya % transmittan pada daerah serapan  $1487,12 \text{ cm}^{-1}$  bila dibandingkan dengan % transmittan pada daerah  $1448,54 \text{ cm}^{-1}$ .

### 3. Analisis SEM-EDS

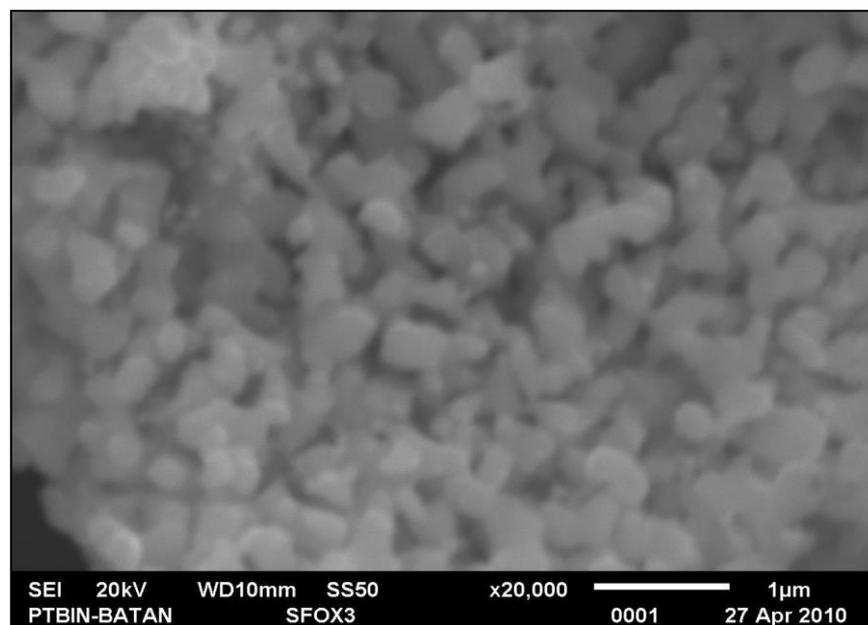
Analisis menggunakan SEM dilakukan untuk mengevaluasi morfologi permukaan katalis yang telah dihasilkan. Agar morfologi permukaan ini dapat terungkap dengan lebih jelas, analisis dilakukan dengan tiga perbesaran, yakni 1500x, 2000x, dan 20000x. Mikrograf sampel disajikan dalam Gambar 17.



Gambar 17. Struktur mikro katalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  (A) dengan perbesaran 1500x dan (B) dengan perbesaran 2000x.

Hasil analisis dengan perbesaran 1500x (Gambar 17A) menunjukkan bahwa partikel-partikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  membentuk kelompok-kelompok (*cluster*)

dengan struktur *polimorf* (tidak homogen). Diduga pembentukan *cluster* ada kaitannya dengan sifat magnet  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  sehingga partikel condong mengelompok. Untuk memperjelas profil *cluster* yang teramati, dilakukan analisis SEM dengan perbesaran 2000x. Hasil analisis dengan perbesaran yang lebih tinggi menunjukkan *cluster* ini cukup homogen tetapi belum memberikan informasi tentang bentuk dan ukuran partikelnya. Atas dasar itulah, analisis dilakukan dengan perbesaran 20000x seperti yang disajikan dalam Gambar 18.

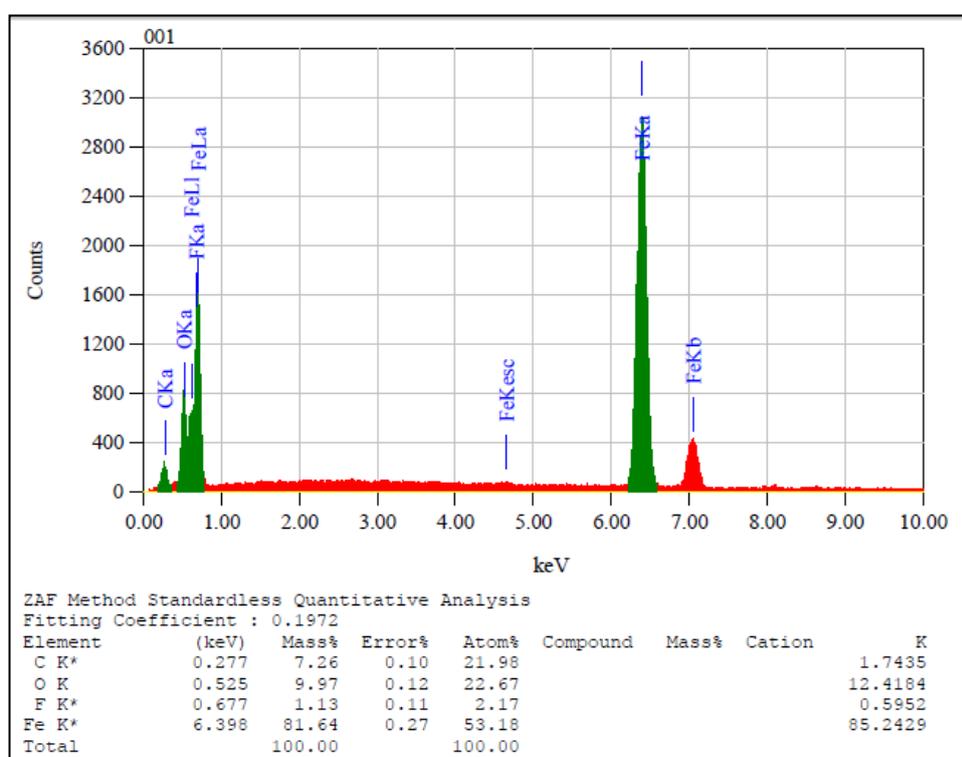


Gambar 18. Struktur mikro katalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dengan perbesaran 20000x

Mikrograf dengan perbesaran 20000x seperti yang dapat dilihat dalam Gambar 18 mampu menunjukkan dua informasi penting yakni bentuk partikel dan ukuran partikel yang berada dalam rentang mikron. Dalam Gambar 18 partikel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  terlihat tersebar merata dengan bentuk dan ukuran partikel yang kurang homogen, ada yang memiliki bentuk agak

bulat memanjang dan ada yang agak bulat hampir membentuk struktur kubik.

Analisis EDX pada sampel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  yang diperoleh dari reduksi  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  menggunakan laju alir gas  $\text{H}_2$  sebesar 1,8 L/jam dilakukan untuk mengetahui komposisi unsur di dalam sampel. Hasil analisis EDX disajikan dalam Gambar 19.



Gambar 19. Spektrum EDX dan komposisi sampel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  hasil reduksi  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  dengan laju alir gas  $\text{H}_2$  sebesar 1,8 L/jam

Berdasarkan hasil analisis EDX dalam Gambar 19, diketahui bahwa struktur mikro sampel hasil reduksi  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  menggunakan laju alir gas  $\text{H}_2$  sebesar 1,8 L/jam mengandung komposisi unsur Fe, O, C dan F dengan persen massa relatif unsur Fe sebesar 81,64%, unsur O sebesar 9,97%,

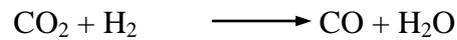
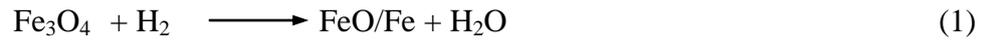
unsur C sebesar 7,26%, dan unsur F sebesar 1,13%. Unsur C dan F kemungkinan besar berasal dari kontaminasi peralatan analisis karena kedua unsur tersebut tidak ada digunakan dalam preparasi sampel. Unsur C kemungkinan berasal dari proses *coating* (pelapisan) yang dikenakan pada sampel sebelum dianalisis, sedangkan unsur F diduga berasal dari wadah sampel pada perangkat SEM/EDX.

Berdasarkan komposisi unsur ini dapat diketahui bahwa katalis terdiri dari  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  sebesar 64,74% dan Fe 35,24%. Cara perhitungan disajikan dalam Lampiran 4.

#### **D. Uji Aktivitas Katalis**

Dalam penelitian ini, uji aktivitas katalis dilakukan menggunakan reaktor seperti disajikan dalam Gambar 9 pada bagian metode percobaan.

Percobaan uji aktivitas katalis ini diawali dengan proses reduksi katalis pada temperatur  $500^\circ\text{C}$  selama satu jam dengan menggunakan gas  $\text{H}_2$  dengan laju alir 1,8 L/jam dan gas Ar dengan laju alir 1,2 L/jam. Selanjutnya katalis yang telah tereduksi tersebut dialiri dengan campuran gas  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2$  dan Ar dengan laju alir total 50 mL/menit dan perbandingan gas  $\text{CO}_2 : \text{H}_2$  adalah 1:4. Gas  $\text{CO}_2$  yang terdapat dalam campuran tersebut akan mengoksidasi katalis tereduksi sekaligus menghasilkan gas CO, mengikuti persamaan reaksi berikut.

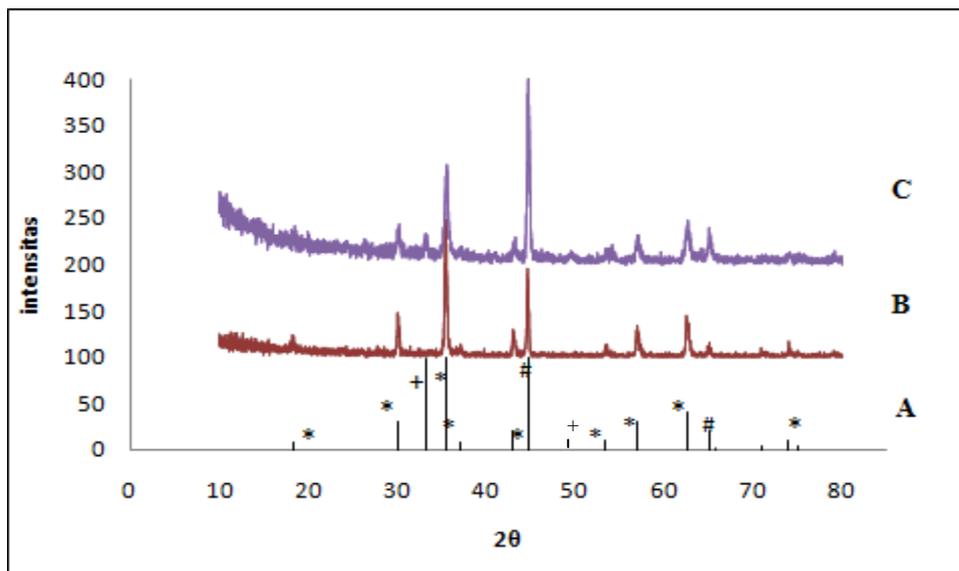


Gas CO yang terbentuk kemudian diharapkan akan bereaksi dengan gas H<sub>2</sub> untuk menghasilkan metanol, sesuai dengan persamaan reaksi berikut ini.



Dalam kimia, salah satu faktor termodinamis yang sangat berperan menentukan reaksi adalah temperatur. Atas dasar ini, dalam penelitian ini uji aktivitas katalis dilakukan pada empat temperatur yang berbeda, yakni 100, 200, 300, dan 400°C. Hasil percobaan dianalisis dengan kromatografi gas.

Analisis dengan kromatografi gas menghasilkan kromatogram tanpa adanya pita serapan untuk semua keadaan temperatur, seperti yang disajikan dalam Lampiran 6. Hasil ini menunjukkan bahwa tidak terjadi reaksi konversi menjadi metanol, seperti yang diharapkan. Tidak berlangsungnya reaksi seperti yang diharapkan diduga terdapat beberapa alasan yang melatarbelakanginya. Alasan pertama adalah kemungkinan reaksi yang berlangsung hanya sampai pada konversi gas CO<sub>2</sub> menjadi gas CO, sementara reaksi antara gas CO dan gas H<sub>2</sub> tidak berlangsung. Kemungkinan ini didukung oleh hasil analisis katalis dengan XRD, seperti disajikan dalam Gambar 20.



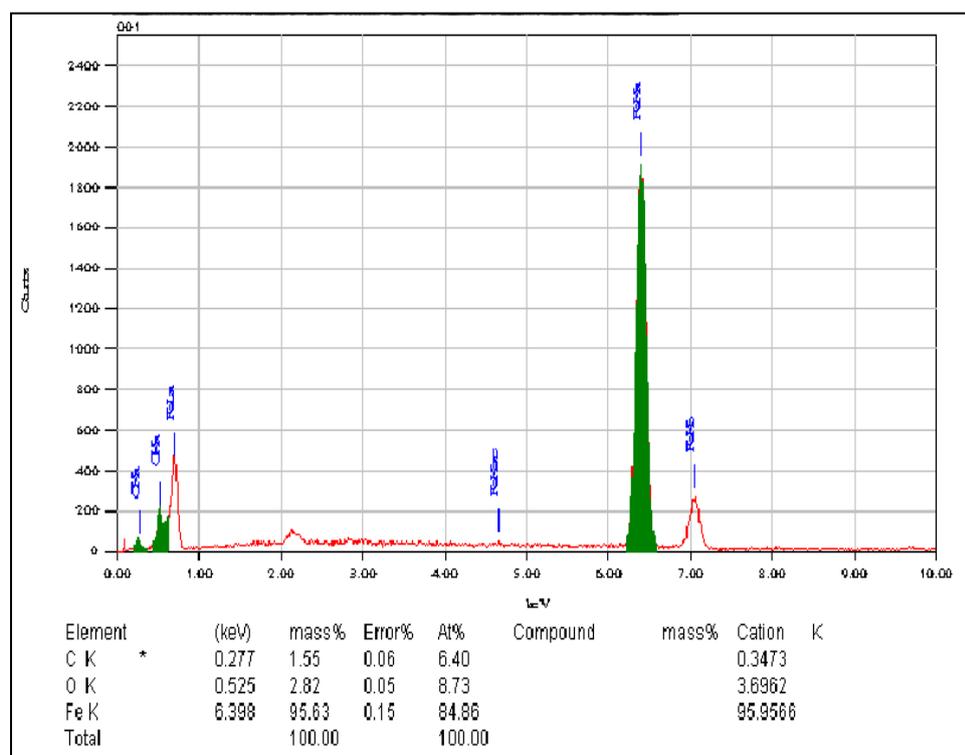
Gambar 20. Difraktogram dari katalis (C) setelah uji aktiitas (B) sebelum uji aktivitas dan (A) difraktogram standar, dimana (#) PCPDF 06-0696 untuk Fe, (\*) PCPDF 19-0629 untuk  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan (+) PCPDF 33-0664 untuk  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ .

Difraktogram sampel pada Gambar 20 menunjukkan kristalinitas sampel sebelum diuji (B) dan setelah diuji (C), serta difraktogram standar (A). Sampel sebelum digunakan diketahui terdiri dari fasa kristalin  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan Fe. Ini mengindikasikan bahwa proses pembuatan katalis berhasil dilakukan hingga 64,74%, sementara 35,24% tereduksi hingga menjadi Fe. Difraktogram untuk sampel yang sudah diuji menunjukkan adanya tiga fasa kristalin yaitu  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , dan Fe, dengan data kecocokan terhadap standar seperti disajikan dalam Tabel 4 berikut.

Tabel 4. Interpretasi antara data yang dari hasil penelitian setelah uji aktivitas dengan data standar  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  dan Fe sebagai rujukan.

Data Rujukan						Hasil Penelitian	
untuk Fe		Untuk $\text{Fe}_2\text{O}_3$		untuk $\text{Fe}_3\text{O}_4$		Intensitas Relatif (%)	2 $\theta$
Intensitas Relatif (%)	2 $\theta$	Intensitas Relatif (%)	2 $\theta$	Intensitas Relatif (%)	2 $\theta$		
-	-	-	-	30	30,13	14,11	30,186
-	-	100	33,195	-	-	8,79	33,248
-	-	-	-	100	35,46	49,95	35,580
-	-	-	-	8	37,10	7,82	43,150
100	44,732	-	-	-	-	100,00	44,723
-	-	40	49,545	-	-	4,05	49,558
-	-	-	-	10	53,46	14,75	57,035
-	-	-	-	30	57,02	18,87	62,572
20	65,113	-	-	-	-	15,03	65,097

Komposisi masing-masing fase kristalin pada katalis setelah uji aktivitas tersebut dapat diketahui berdasarkan hasil analisis EDX seperti yang disajikan pada Gambar 21.

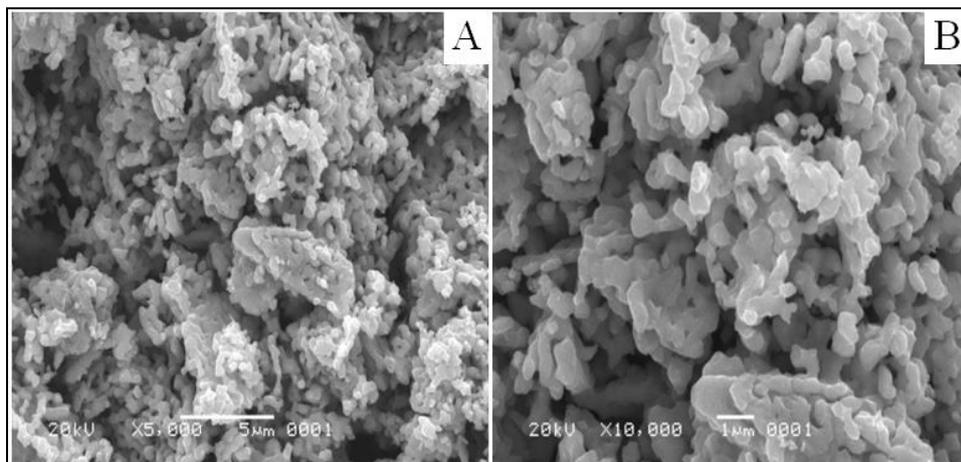


Gambar 21. Spektrum EDX dan komposisi sampel  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  hasil setelah uji aktivitas.

Mengacu pada hasil analisis EDX dalam gambar 21, diketahui bahwa komposisi unsur Fe dan O pada sampel katalis setelah melalui proses uji katalitik secara berturut-turut adalah sebesar 95,63% dan 2,82%. Berdasarkan komposisi unsur ini dapat diketahui bahwa katalis terdiri dari  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  sebesar 7,5%,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  sebesar 6,32%, dan Fe sebesar 81,8%.

Terlihat persentase Fe sebelum dan sesudah uji aktivitas mengalami kenaikan sebesar 46,56%. Hal ini memperlihatkan bahwa katalis mempunyai afinitas yang lebih besar terhadap gas  $\text{H}_2$  dari pada gas  $\text{CO}_2$  sehingga cenderung mengalami reduksi. Walaupun diketahui reaksi reduksi lebih dominan, tetapi terbentuknya fase kristalin  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  pada sampel setelah uji aktivitas, menunjukkan bahwa juga terjadi reaksi oksidasi katalis oleh gas  $\text{CO}_2$  seperti yang ditunjukkan dengan Persamaan (2). Namun demikian, gas CO yang dihasilkan tidak bereaksi dengan gas  $\text{H}_2$ , terlihat dari tidak adanya metanol yang terdeteksi dengan kromatografi gas seperti telah dipaparkan sebelumnya. Kegagalan reaksi antara gas CO dan  $\text{H}_2$  kemungkinan diakibatkan oleh pengikatan gas CO oleh permukaan katalis yang tidak mantap sehingga interaksinya dengan gas  $\text{H}_2$  menjadi sangat terbatas.

Kemungkinan lain yang patut dipertimbangkan adalah karakteristik katalis, terutama luas permukaan yang belum mampu mendukung reaksi katalitik dengan efisien. Dugaan ini didasarkan pada data analisis dengan SEM yang menunjukkan bahwa partikel-partikel katalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  membentuk suatu *cluster-cluster* yang menyebabkan berkurangnya luas permukaan katalis seperti yang telah dibahas sebelumnya pada Gambar 22 berikut.



Gambar 22. Struktur mikro katalis  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  setelah uji aktivitas (A) dengan perbesaran 5000x dan (B) dengan perbesaran 10000x.

Kemungkinan terakhir adalah reaksi yang berlangsung tidak menghasilkan metanol, tetapi produk lain yang tidak terdeteksi dengan kondisi metode analisis yang diterapkan untuk analisis metanol. Beberapa contoh senyawa yang mungkin terbentuk tetapi tidak dianalisis pada penelitian ini adalah formate, dioximetilen, formaldehida dan senyawa metoksi (Nakatsuji N., 1999).