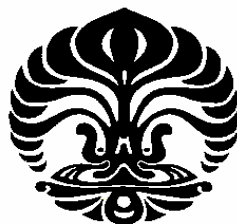


**REAKSI KATALISIS OKSIDASI STIRENA MENJADI BENZALDEHIDA  
MENGUNAKAN KATALIS  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U  
DAN  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG**

**NURHAYATI**

**0304030391**



**DEPARTEMEN KIMIA  
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM  
UNIVERSITAS INDONESIA  
DEPOK  
2008**

**REAKSI KATALISIS OKSIDASI STIRENA MENJADI BENZALDEHIDA  
MENGUNAKAN KATALIS  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U  
DAN  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG**

**Skripsi ini diajukan sebagai salah satu syarat  
untuk memperoleh gelar Sarjana Sains**

**Oleh:**

**NURHAYATI**

**0304030391**



**DEPOK**

**2008**

SKRIPSI : REAKSI KATALISIS OKSIDASI STIRENA MENJADI  
BENZALDEHIDA MENGGUNAKAN KATALIS  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$   
(1:1)-U DAN  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG

NAMA : NURHAYATI

NPM : 0304030391

SKRIPSI INI TELAH DIPERIKSA DAN DISETUJUI

DEPOK, JULI 2008



Dr. WIDAYANTI WIBOWO

PEMBIMBING

Tanggal lulus Ujian Sidang Sarjana : .....

Penguji I : .....

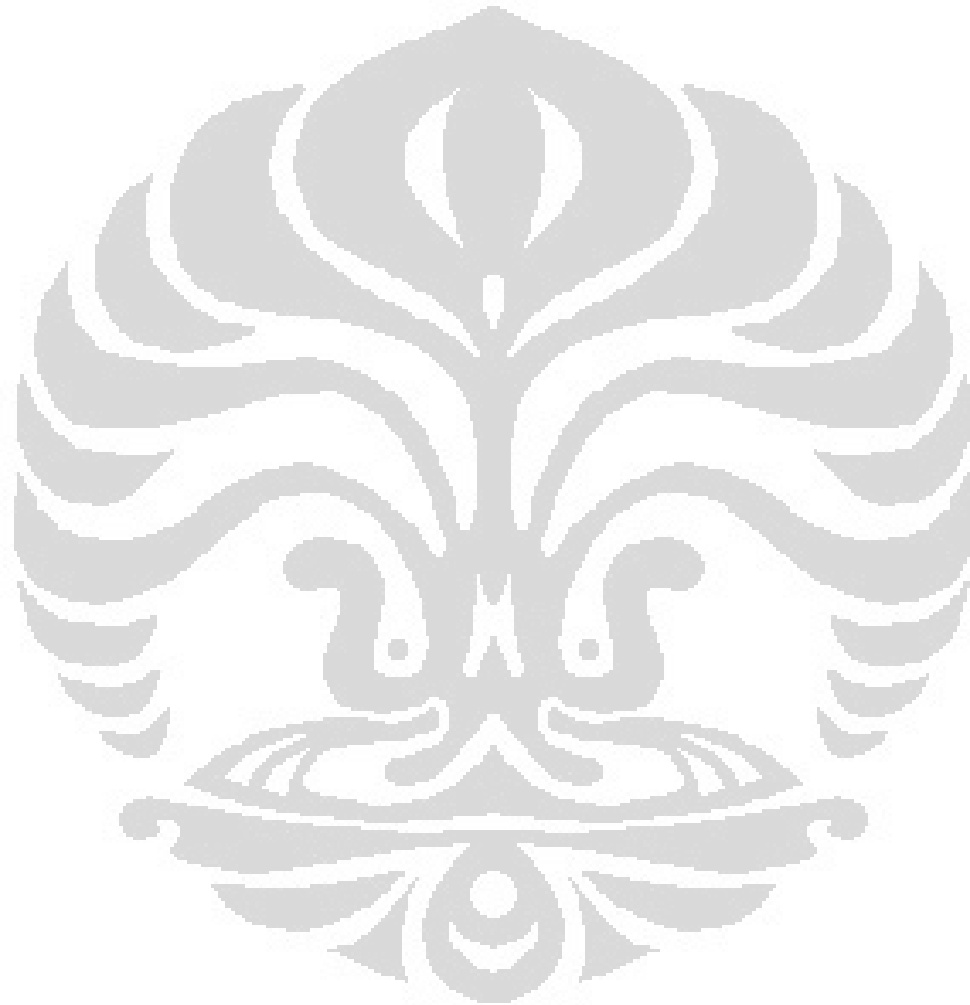
Penguji II : .....

Penguji III : .....

*Skripsi ini kupersembahkan untuk Bapak (alm.) dan Ibuku tercinta, serta kedua kakakku, A Maman dan A Akim.*

*Terima kasih untuk semua pengorbanan, kasih sayang, cinta, dan perhatian yang telah kalian berikan kepadaku.*

*Kalian adalah anugrah terindah yang Allah SWT limpahkan untukku.*



*"Ya Tuhan kami, janganlah Engkau condongkan hati kami kepada kesesatan setelah Engkau berikan petunjuk kepada kami, dan berikanlah karunia kepada kami rahmat dari sisi-Mu. Sesungguhnya Engkau Maha Pemberi."*

*(Q.S. Ali Imron : 8)*

## KATA PENGANTAR

Alhamdulillah... Segala puji dan syukur penulis panjatkan kehadiran Allah SWT, karena dengan rahmat dan ridho-Nya penulis dapat menyelesaikan skripsi ini sebagai syarat kelulusan di Departemen Kimia FMIPA UI. Terima kasih ya Allah atas semua nikmat dan karunia yang telah Engkau limpahkan kepadaku. Tak lupa pula penulis haturkan shalawat dan salam kepada junjungan kami, Nabi Muhammad SAW, suri tauladan bagi umat manusia.

Penulis mengucapkan terima kasih yang sebesar-besarnya kepada keluarga tercinta. Bapak (almarhum), terima kasih atas pengorbanan dan kerja kerasmu yang sangat berarti dalam hidupku. Maafkan aku yang belum sempat membahagiakanmu. Ibu, engkau lah pelita dalam hatiku yang telah menerangi setiap langkahku, terima kasih atas perhatian dan cinta kasihmu untukku. Untuk kedua kakakku tercinta, A Akim dan A Maman, terima kasih atas pengorbanan kalian yang telah memperjuangkan pendidikanku hingga saat ini. Untuk sepupuku yang cerewet, Arif, terima kasih atas bantuannya.

Penulis juga mengucapkan terima kasih yang sebesar-besarnya kepada Dr. Widayanti Wibowo, selaku pembimbing yang telah membimbing, memberi bantuan dan arahan selama penelitian hingga tersusunnya skripsi ini. Kepada Dr. Ridla Bakri selaku Ketua Departemen Kimia FMIPA UI, Drs. Sunardi, M.Si selaku pembimbing akademis, Dra. Tresye Utari, M.Si selaku

koordinator bidang penelitian, serta Bapak dan Ibu dosen Departemen Kimia FMIPA UI yang telah memberikan ilmunya.

Kepada Pak Hedy, Teh Ina, Teh Cucu, Pak Soleh, Pak Mardji, Mbak Ema, Mbak Tri, Mbak Ati, Kak Puji, Kak Rey, Pak Kiri, dan seluruh karyawan Departemen Kimia FMIPA UI, terima kasih atas bantuannya selama ini.

Untuk sahabat-sahabatku, Farida, Fitri, Ima, Lindi, Tya, Atul, Qq, yang telah menemani hari-hariku dan telah memberi warna dalam hidupku. Untuk rekan kerja katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ , Opik, terima kasih atas kerja sama-nya. Untuk Iman, terima kasih atas jurnalnya. Untuk Caca dan Nita, terima kasih atas sms-nya. Untuk teman seperjuangan, Bernat, Ari, Ratna, Hamim, Ami, Atri, Basit, Niezha, Nath, Lany, Kak Dina, Kak Santi, Kak Vena, Mbak Isti, Eka, Vero, Kurnia, Isal, Wakhid, Danar, Irwan, Kak Vera, yang telah membantu penulis selama penelitian. Untuk Riska, Alex, Ana, Gentur, Muris, dan teman-teman kimia 2004 dan 2005 yang selalu memberi semangat, serta semua pihak yang tidak dapat penulis sebutkan satu persatu, terima kasih atas bantuan dan dukungannya selama penelitian. Terima kasih untuk persahabatan yang begitu indah yang telah kalian berikan selama ini. Semoga tali persahabatan dan persaudaraan kita akan abadi selamanya.

Penulis menyadari bahwa skripsi ini tidak luput dari berbagai kekurangan. Namun, penulis berharap skripsi ini dapat bermanfaat bagi semua pihak.

Penulis

2008

## ABSTRAK

Reaksi katalisis oksidasi olefin menjadi aldehida merupakan salah satu reaksi yang penting dalam industri kimia. Reaksi oksidasi secara konvensional membutuhkan pereaksi yang tidak ramah lingkungan, sehingga penggunaan katalis heterogen lebih disukai. Pada penelitian ini digunakan katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U dan  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG, yang disintesis dari aluminium nitrat dan  $\text{TiCl}_4$  dengan perbandingan mol 1:1. Katalis dikarakterisasi menggunakan XRD, XRF, dan BET. Kedua katalis diuji daya katalitiknya pada reaksi oksidasi stirena dengan  $\text{O}_2$  sebagai oksidator. Reaksi katalisis dilakukan dengan beberapa variasi, yaitu variasi berat katalis (0,5 – 2 g), waktu reaksi (1 – 4 jam), dan suhu reaksi (50 – 80 °C). Produk reaksi dianalisis menggunakan kromatografi gas dan GC-MS. Hasil konversi terhadap benzaldehida optimum, yaitu sebesar 35,44%, yang diperoleh pada reaksi dengan katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG. Sedangkan dengan katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U, dihasilkan konversi sebesar 21,59%. Hasil konversi optimum kedua katalis ini diperoleh dengan bantuan 1,5 g katalis pada suhu 70°C selama 4 jam reaksi.

Kata kunci :  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ , reaksi oksidasi, oksigen, stirena, benzaldehida.

xiv + 99 hlmn.; gbr.; lamp.; tab

Bibliografi : 20 (1956 – 2006)

## DAFTAR ISI

	Halaman
<b>KATA PENGANTAR</b> .....	i
<b>ABSTRAK</b> .....	iii
<b>DAFTAR ISI</b> .....	v
<b>DAFTAR GAMBAR</b> .....	ix
<b>DAFTAR TABEL</b> .....	xi
<b>DAFTAR LAMPIRAN</b> .....	xiii
<b>BAB I. PENDAHULUAN</b> .....	1
<b>1.1 Latar Belakang Masalah</b> .....	1
<b>1.2 Tujuan Penelitian</b> .....	4
<b>BAB II. TINJAUAN PUSTAKA</b> .....	5
<b>2.1 Katalis</b> .....	5
2.1.1 Parameter Katalis .....	6
2.1.2 Jenis Katalis .....	7
2.1.3 Katalis heterogen.....	7
2.1.4 Pembuatan Katalis Heterogen .....	9
<b>2.2 Alumina (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)</b> .....	10
2.2.1 Klasifikasi Alumina .....	11



2.2.2	$\gamma$ -Alumina ( $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> ).....	12
2.2.3	Pembuatan $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> .....	14
<b>2.3</b>	<b>Titania (TiO<sub>2</sub>)</b> .....	<b>15</b>
<b>2.4</b>	<b>TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></b> .....	<b>16</b>
<b>2.5</b>	<b>Reaksi oksidasi</b> .....	<b>17</b>
<b>2.6</b>	<b>Stirena</b> .....	<b>18</b>
2.6.1	Material Safety Data Sheet (MSDS) Stirena ....	18
<b>2.7</b>	<b>Karakterisasi Katalis</b> .....	<b>19</b>
2.7.1	Difraksi Sinar-X .....	19
2.7.2	Fluoresensi Sinar-X .....	21
2.7.3	Metode BET .....	22
<b>2.8</b>	<b>Analisis Hasil Reaksi Oksidasi Katalitik Stirena</b> ....	<b>24</b>
2.8.1	Kromatografi Gas .....	24
2.8.2	Kromatografi Gas-Spektroskopi Massa .....	25
<b>BAB III.</b>	<b>METODE PENELITIAN</b> .....	<b>27</b>
<b>3.1</b>	<b>Alat dan Bahan</b> .....	<b>27</b>
3.1.1	Alat .....	27
3.1.2	Bahan.....	27
<b>3.2</b>	<b>Prosedur kerja</b> .....	<b>28</b>
3.2.1	Bagan Prosedur Kerja .....	28
3.2.2	Penyiapan Larutan.....	28

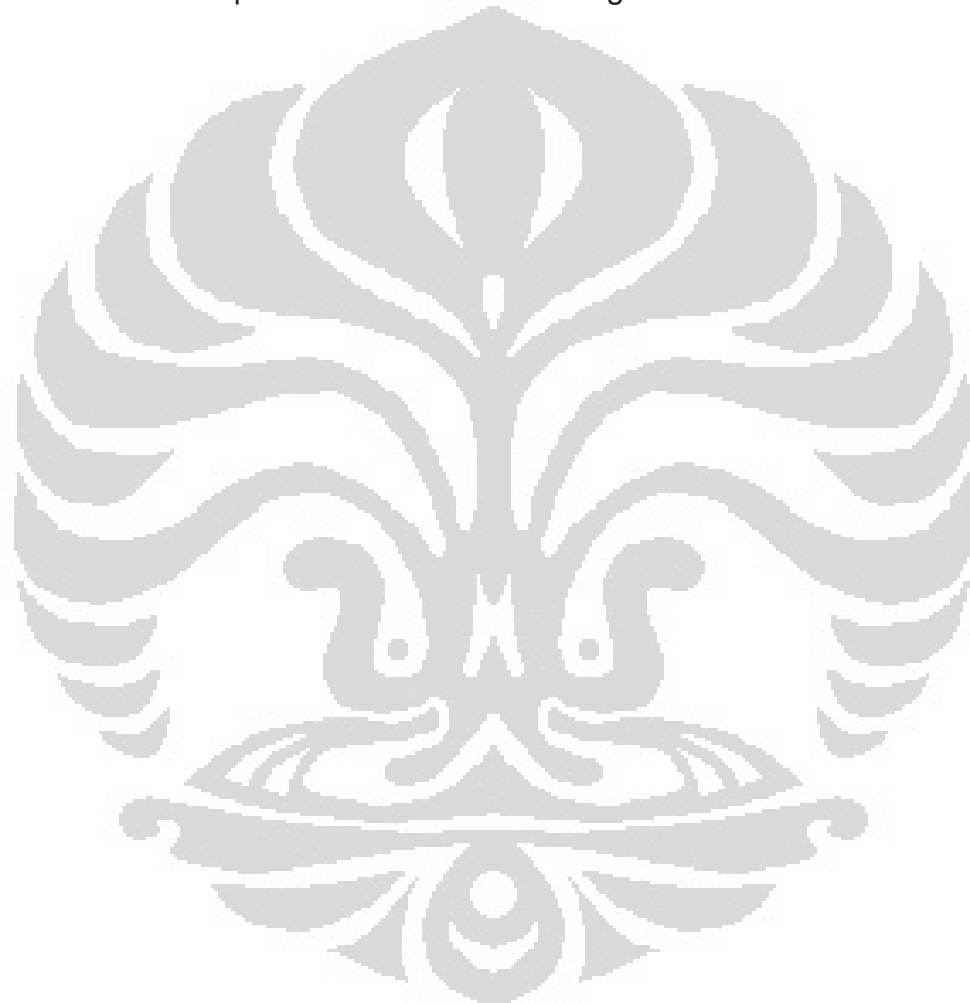
3.2.2.1 Larutan untuk Pembuatan Katalis	
TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-U .....	28
3.2.2.2 Larutan untuk Pembuatan Katalis	
TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-PEG .....	28
3.2.3 Pembuatan Katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> .....	28
3.2.3.1 Katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-U .....	28
3.2.3.2 Katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-PEG .....	29
3.2.4 Uji Daya Katalitik Katalis Melalui Reaksi	
Oksidasi Stirena .....	30
3.2.5 Regenerasi Katalis .....	32
<b>BAB IV. HASIL DAN PEMBAHASAN .....</b>	<b>33</b>
<b>4.1 Pembuatan Katalis TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> .....</b>	<b>33</b>
4.1.1 Katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-U .....	33
4.1.2 Katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-PEG .....	36
<b>4.2 Karakterisasi Katalis TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> .....</b>	<b>39</b>
4.2.1 Karakterisasi dengan Difraksi Sinar-X .....	39
4.2.2 Karakterisasi dengan Fluoresensi Sinar-X .....	43
4.2.3 Analisis BET .....	46
<b>4.3 Uji Daya Katalitik Katalis Melalui Reaksi</b>	
<b>Oksidasi Stirena .....</b>	<b>47</b>
<b>4.4 Analisis Hasil Reaksi Katalisis Oksidasi Stirena ...</b>	<b>50</b>

4.4.1 Analisis Hasil Reaksi dengan Kromatografi	
Gas .....	50
4.4.1.1 Variasi Berat Katalis .....	51
4.4.1.2 Variasi Waktu Reaksi .....	53
4.4.1.3 Variasi Suhu Reaksi .....	55
4.4.2 Analisis Hasil Reaksi dengan GC-MS .....	57
<b>4.5 Mekanisme Reaksi Oksidasi Stirena .....</b>	<b>58</b>
<b>4.6 Regenerasi Katalis .....</b>	<b>61</b>
4.6.1 Katalis Hasil Regenerasi .....	61
4.6.2 Karakterisasi Katalis Hasil Regenerasi dengan XRF .....	62
4.6.3 Uji Daya Katalitik Katalis Hasil Regenerasi .....	63
<b>BAB V. KESIMPULAN DAN SARAN .....</b>	<b>65</b>
<b>5.1 Kesimpulan .....</b>	<b>65</b>
<b>5.2 Saran.....</b>	<b>66</b>
<b>DAFTAR PUSTAKA .....</b>	<b>67</b>
<b>LAMPIRAN .....</b>	<b>69</b>

## DAFTAR GAMBAR

	Halaman
Gambar 2.1 Kurva hubungan antara katalis dengan energi aktivasi .....	6
Gambar 2.2 Skema reaksi katalitik di dalam rongga katalis .....	8
Gambar 2.3 Dua lapisan pertama pada struktur $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> .....	13
Gambar 2.4 Hubungan di antara beberapa bentuk alumina .....	14
Gambar 2.5 Struktur kristal TiO <sub>2</sub> anatase .....	16
Gambar 2.6 Reaksi oksidasi pada senyawa dengan ikatan rangkap dua .....	17
Gambar 2.7 Difraksi sinar-X pada suatu kristal .....	20
Gambar 2.8 Proses fluoresensi sinar-X .....	22
Gambar 2.9 Skema alat Kromatografi Gas.....	25
Gambar 2.10 Skema Alat GC-MS.....	26
Gambar 4.1 Reaksi pengikatan titanium hidroksida pada PEG .....	39
Gambar 4.2 Difraktogram TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-U .....	40
Gambar 4.3 Difraktogram TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-PEG .....	42
Gambar 4.4 Spektra XRF katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-U .....	44
Gambar 4.5 Spektra XRF katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-PEG .....	45
Gambar 4.6 Grafik persentase hasil konversi benzaldehida dengan variasi berat katalis .....	52

Gambar 4.7	Grafik persentase hasil konversi benzaldehida dengan variasi waktu reaksi .....	54
Gambar 4.8	Grafik persentase hasil konversi benzaldehida dengan variasi suhu reaksi .....	56
Gambar 4.9	Spektra XRF katalis hasil regenerasi .....	62



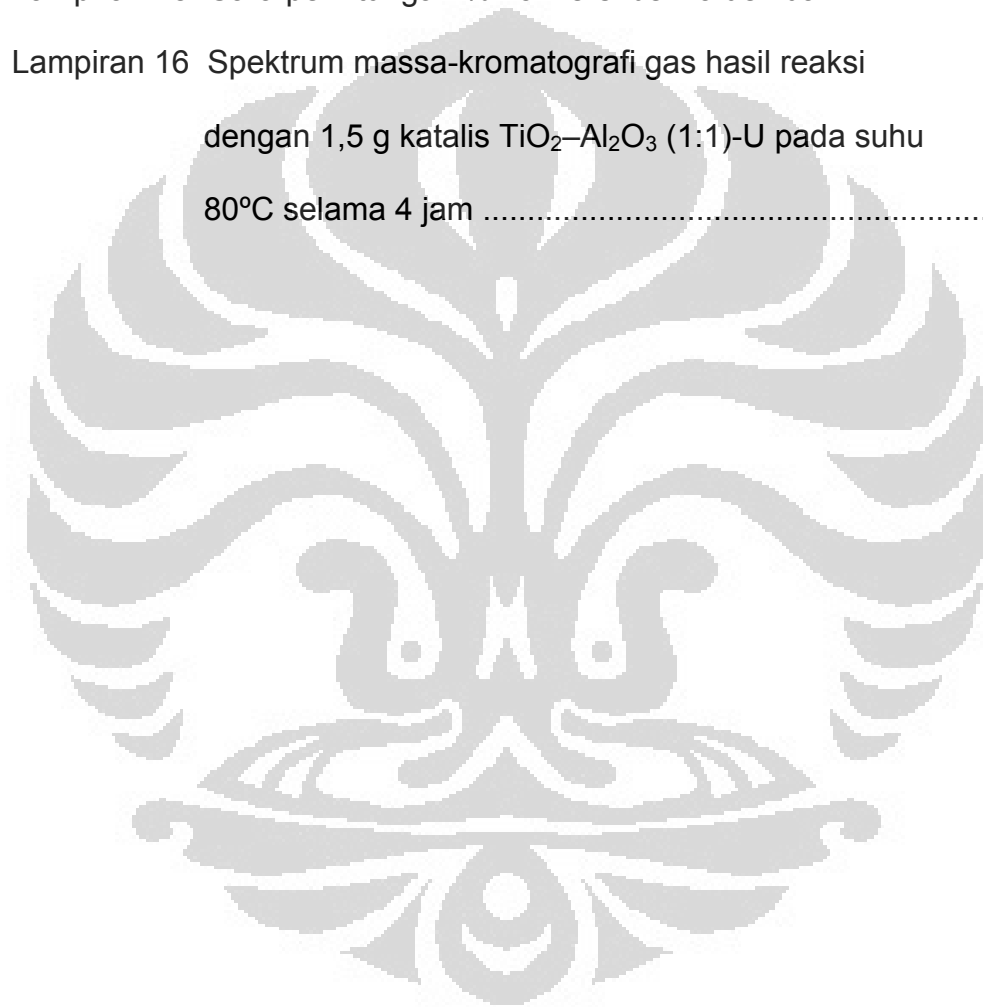
## DAFTAR TABEL

	Halaman
Tabel 4.1 Data difraksi $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-U hasil sintesis.....	41
Tabel 4.2 Data difraksi $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-PEG hasil sintesis .....	42
Tabel 4.3 Data XRF katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ hasil sintesis .....	45
Tabel 4.4 Data BET katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ .....	46
Tabel 4.5 Persen konversi benzaldehida pada reaksi oksidasi katalitik stirena dengan variasi berat katalis .....	51
Tabel 4.6 Persen konversi benzaldehida pada reaksi oksidasi katalitik stirena dengan variasi waktu reaksi .....	54
Tabel 4.7 Persen konversi benzaldehida pada reaksi oksidasi katalitik stirena dengan variasi suhu reaksi .....	56
Tabel 4.8 Data GC-MS hasil reaksi dengan 1,5 g katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-U pada $80^\circ\text{C}$ selama 4 jam .....	58
Tabel 4.9 Perbandingan data difraksi $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-PEG baru dengan hasil regenerasi .....	62

## DAFTAR LAMPIRAN

	Halaman
Lampiran 1	Bagan kerja pembuatan katalis ..... 70
Lampiran 2	Bagan kerja reaksi oksidasi katalitik ..... 72
Lampiran 3	Alat yang digunakan pada penelitian ..... 73
Lampiran 4	Spektra dan data difraksi sinar-X pada katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-U ..... 75
Lampiran 5	Spektra dan data difraksi sinar-X pada katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-PEG ..... 76
Lampiran 6	Spektra dan data difraksi sinar-X $\gamma$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> standar dan TiO <sub>2</sub> standar..... 77
Lampiran 7	Spektra dan data XRF pada katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-U ..... 78
Lampiran 8	Spektra dan data XRF pada katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-PEG ..... 79
Lampiran 9	Spektra dan data XRF pada katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-PEG hasil regenerasi ..... 80
Lampiran 10	Data hasil uji BET pada katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-U .... 81
Lampiran 11	Data hasil uji BET pada katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-PEG 82
Lampiran 12	Kromatogram hasil reaksi dengan katalis TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-U ..... 83

Lampiran 13	Kromatogram hasil reaksi dengan katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-PEG .....	88
Lampiran 14	Kromatogram standar stirena, benzaldehida, dan hasil reaksi oksidasi tanpa katalis .....	93
Lampiran 15	Cara perhitungan % konversi benzaldehida .....	94
Lampiran 16	Spektrum massa-kromatografi gas hasil reaksi dengan 1,5 g katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-U pada suhu 80°C selama 4 jam .....	95





# BAB I

## PENDAHULUAN

### 1.1 Latar Belakang Masalah

Dalam industri kimia, katalis sangat berperan sebagai pendorong dan pengarah laju pembentukan produk dengan meningkatkan laju reaksi kimia menjadi sangat cepat. Katalis merupakan suatu senyawa yang dapat menyebabkan suatu reaksi berlangsung lebih cepat mencapai kesetimbangan kimia-nya. Katalis mampu memperbesar kemungkinan terjadinya tumbukan efektif antara molekul reaktan, karena molekul-molekul reaktan akan teradsorpsi pada permukaan aktif katalis sehingga kemungkinan terjadinya tumbukan antar molekul-molekul reaktan akan semakin besar. Katalis menyediakan suatu jalur pilihan dengan energi aktivasi yang lebih rendah, sehingga dapat mengurangi energi yang dibutuhkan untuk berlangsungnya suatu reaksi.

Katalis dapat digolongkan menjadi katalis homogen, katalis heterogen, dan katalis enzim<sup>[1]</sup>. Katalis homogen ialah katalis yang mempunyai fasa yang sama dengan fasa substrat. Katalis heterogen adalah katalis yang mempunyai fasa yang berbeda dengan fasa substrat. Sedangkan katalis enzim merupakan molekul protein dengan ukuran koloid, memiliki fasa yang berada diantara katalis homogen dan heterogen.

Penggunaan katalis heterogen pada studi ini dikarenakan keunggulan dari katalis heterogen dibandingkan dengan jenis katalis lainnya. Katalis heterogen mudah dipisahkan dari produk dan reaktan, memiliki aktivitas dan selektivitas yang tinggi, dapat diregenerasi, dan aman bagi lingkungan<sup>[2]</sup>. Oleh karena itu pula, sebagian besar industri kimia menggunakan katalis heterogen dalam proses produksinya.

Reaksi katalisis oksidasi memainkan peranan penting pada industri kimia saat ini. Salah satunya adalah katalisis oksidasi pada senyawa organik seperti olefin yang merupakan salah satu reaksi yang penting dalam industri petrokimia. Sampai sekarang, beberapa tipe oksidasi olefin telah diklasifikasikan, seperti oksidasi senyawa allil, sintesis anhidrida karboksilat, oksihidrasi, dan lain-lain. Pada setiap reaksi oksidasi hampir selalu dibutuhkan energi aktivasi yang cukup tinggi, sehingga katalis sangat berperan dalam menurunkan energi aktivasi tersebut. Selain itu, reaksi oksidasi secara konvensional membutuhkan pereaksi organik yang tidak ramah lingkungan, sehingga penggunaan katalis heterogen lebih disukai.

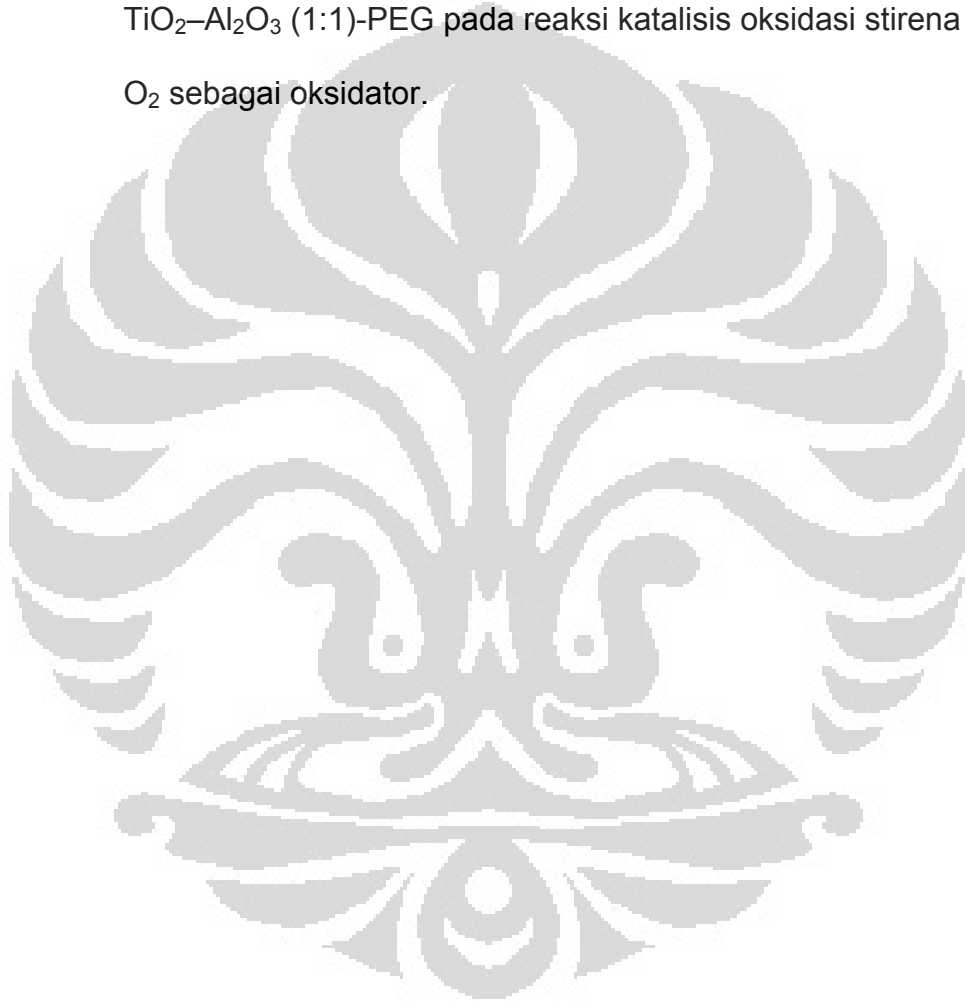
Pada penelitian, reaksi diharapkan dapat terjadi pada olefin yang lebih tinggi, yaitu stirena. Pada reaksi diharapkan terjadinya konversi dari stirena menjadi benzaldehida secara selektif dan optimum. Benzaldehida merupakan senyawa yang penting dalam industri kimia. Benzaldehida digunakan untuk mensintesis senyawa organik lain, yaitu sebagai intermediet pada pembuatan parfum sintetis<sup>[3]</sup>.

Menurut Nie<sup>[4]</sup>, Reaksi katalisis oksidasi stirena dalam menghasilkan benzaldehida menggunakan  $O_2$  dan  $TiO_2/SiO_2$ , dapat diperoleh selektivitas benzaldehida lebih dari 97% dan konversi sebesar 36%. Berdasarkan penelitian sebelumnya oleh Puspasari<sup>[5]</sup>, katalisis oksidasi stirena menggunakan  $O_2$  dengan katalis  $\gamma-Al_2O_3$  dan  $V_2O_5-MoO_3$ , didapatkan % konversi terhadap benzaldehida yang rendah, yaitu sekitar 5% untuk katalis  $\gamma-Al_2O_3$ . Karena itu, dengan penggunaan katalis  $TiO_2-Al_2O_3$  pada reaksi oksidasi stirena dengan  $O_2$  ini, diharapkan % konversi dari benzaldehida yang diperoleh menjadi lebih besar, sehingga dapat dikatakan reaksinya selektif terhadap benzaldehida.

Pada penelitian ini, digunakan katalis  $TiO_2-Al_2O_3$  (1:1)-U dan  $TiO_2-Al_2O_3$  (1:1)-PEG. Kedua katalis ini disintesis dari  $Al(NO_3)_3 \cdot 9H_2O$  dan  $TiCl_4$  dengan perbandingan mol 1:1. Katalis dikarakterisasi menggunakan XRD (*x-Ray Diffraction*), XRF (*X-Ray Fluorescence*), dan alat uji BET. Kedua katalis diuji daya katalitiknya pada reaksi oksidasi stirena dengan melakukan variasi berat katalis, variasi waktu reaksi, dan variasi suhu reaksi agar dapat diketahui kondisi optimum reaksi. Hasil reaksi yang dihasilkan dianalisis menggunakan kromatografi gas dan kromatografi gas-spektroskopi massa.

## 1.2 Tujuan Penelitian

1. Mensintesis katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U dan  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG dari  $\text{TiCl}_4$  dan  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ .
2. Mengetahui aktivitas dan selektivitas katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U dan  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG pada reaksi katalisis oksidasi stirena dengan  $\text{O}_2$  sebagai oksidator.



## BAB II

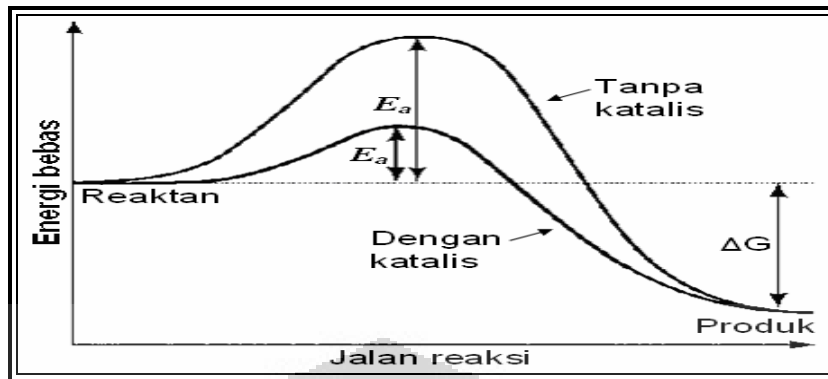
### TINJAUAN PUSTAKA

#### 2.9 Katalis

Katalis merupakan suatu senyawa yang dapat menyebabkan suatu reaksi berlangsung lebih cepat mencapai kesetimbangan kimianya. Katalis terlibat dalam proses reaksi, namun dihasilkan kembali pada akhir reaksi tanpa bergabung dengan senyawa produk reaksi. Proses reaksi menggunakan katalis disebut reaksi katalisis<sup>[6]</sup>.

Katalis ditambahkan pada suatu sistem reaksi untuk menurunkan energi aktivasi ( $E_a$ ), sehingga pereaksi mudah mencapai kompleks teraktifkan untuk menghasilkan intermediet reaktif yang akan saling berinteraksi membentuk produk. Energi aktivasi adalah energi minimum yang dibutuhkan untuk menghasilkan produk<sup>[6]</sup>.

Suatu katalis efektif dalam meningkatkan kecepatan suatu reaksi, karena katalis mampu membuat mekanisme alternatif, dimana tiap tahapan memiliki energi aktivasi lebih rendah daripada reaksi tanpa ada katalis. Selain itu, katalis juga mampu memperbesar kemungkinan terjadinya tumbukan efektif antara molekul reaktan, karena molekul-molekul reaktan akan teradsorpsi pada permukaan aktif katalis sehingga kemungkinan terjadinya tumbukan antar molekul-molekul reaktan akan semakin besar. Hubungan antara katalis dengan energi aktivasi diperlihatkan pada Gambar 2.1.



**Gambar 2.1** Kurva hubungan antara katalis dengan energi aktivasi

### 2.9.1 Parameter Katalis

Untuk menilai baik tidaknya suatu katalis, ada beberapa parameter yang harus diperhatikan, antara lain<sup>[7]</sup>:

- a. Aktivitas, yaitu kemampuan katalis untuk mengkonversi reaktan menjadi produk yang diinginkan.
- b. Selektivitas, yaitu kemampuan katalis mempercepat satu reaksi di antara beberapa reaksi yang terjadi sehingga produk yang diinginkan dapat diperoleh dengan produk sampingan seminimal mungkin.
- c. Kestabilan, yaitu lamanya katalis memiliki aktivitas dan selektivitas seperti pada keadaan semula.
- d. Rendemen katalis / Yield, yaitu jumlah produk tertentu yang terbentuk untuk setiap satuan reaktan yang dikonsumsi.
- e. Kemudahan diregenerasi, yaitu proses mengembalikan aktivitas dan selektivitas katalis seperti semula.

## 2.9.2 Jenis Katalis

Berdasarkan fasanya, katalis dapat digolongkan menjadi tiga jenis, yaitu katalis homogen, katalis heterogen, dan katalis enzim<sup>[1]</sup>. Katalis homogen ialah katalis yang mempunyai fasa yang sama dengan fasa substrat, dimana interaksi yang terjadi antara substrat dan katalis biasanya merupakan interaksi cair-cair. Katalis heterogen adalah katalis yang mempunyai fasa yang berbeda dengan fasa substrat. Sedangkan katalis enzim merupakan molekul protein dengan ukuran koloid. Katalis ini memiliki fasa yang berada diantara katalis homogen dan heterogen.

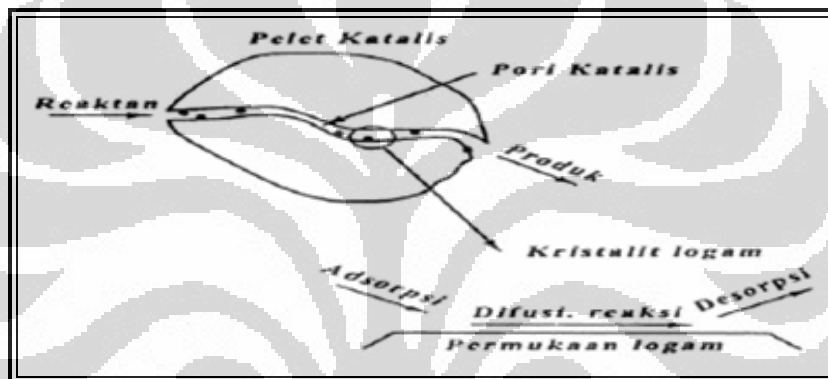
## 2.9.3 Katalis Heterogen

Katalis heterogen merupakan katalis yang berupa padatan / fasa padat, dan berinteraksi dengan reaktan yang berbeda fasa, yaitu cair atau gas, sehingga interaksi yang mungkin terjadi dapat berupa padat-gas atau padat-cair<sup>[8]</sup>. Reaksi antara reaktan dengan katalis heterogen umumnya terjadi di permukaan katalis dan disebut kontak katalis<sup>[1]</sup>.

Pada proses katalisis heterogen terjadi tahapan reaksi (siklus katalitik) tertentu<sup>[9]</sup>. Siklus katalitik tersebut didahului dengan terjadinya transfer reaktan menuju permukaan katalis. Reaktan kemudian berinteraksi dengan katalis sehingga terjadi proses adsorpsi pada permukaan katalis. Spesies yang teradsorpsi akan bereaksi untuk menghasilkan produk. Pada tahap ini

terjadi penurunan energi aktivasi reaksi. Setelah reaksi selesai, produk yang terbentuk akan terdesorpsi dari permukaan katalis, lalu menjauhi katalis.

Transfer reaktan menuju katalis maupun produk menjauhi katalis hanya merupakan suatu transport fisik. Sedangkan proses adsorpsi dan desorpsi telah melibatkan perubahan kimia, dimana terjadinya interaksi antara reaktan dan katalis. Skema reaksi katalitik di dalam rongga katalis dapat dilihat pada Gambar 2.2.



**Gambar 2.2** Skema reaksi katalitik di dalam rongga katalis<sup>[9]</sup>

Katalis heterogen banyak digunakan pada industri kimia karena mempunyai kelebihan dibandingkan jenis katalis lainnya. Katalis heterogen mempunyai aktivitas katalitik dan selektivitas yang tinggi, serta tidak mudah mengkorosi / merusak reaktor. Katalis heterogen juga mudah dipisahkan dari produk reaksi maupun reaktan setelah proses reaksi selesai. Selain itu, katalis dapat diregenerasi dan digunakan berulang kali, serta aman bagi lingkungan<sup>[2]</sup>.



Suatu katalis heterogen mempunyai dua komponen utama, yaitu fasa aktif dan penyangga. Fasa aktif berfungsi untuk mempercepat dan mengarahkan reaksi. Fasa aktif dari katalis bisa menjadi tidak aktif (terdeaktivasi) karena beberapa sebab seperti kehadiran CO, CO<sub>2</sub>, dan senyawa-senyawa sulfur, serta suhu reaksi yang terlalu tinggi. Sedangkan penyangga atau *support* berfungsi untuk memberikan luas permukaan yang lebih besar bagi fasa aktif, memperbaiki kekuatan mekanik, serta meningkatkan stabilitas termal dan efektivitas katalis.

#### **2.9.4 Pembuatan Katalis Heterogen**

Katalis logam atau oksida logam ter-*support* biasanya dibuat dengan mereduksi prekursor garam logam pada material pendukung. Perbedaan mendasar pembuatan katalis logam atau oksida logam ter-*support* adalah cara penggabungan prekursor garam dengan material pendukung, yaitu melalui metode kopresipitasi dan impregnasi.

Metode kopresipitasi / pengendapan dilakukan dengan menambahkan larutan pengendap pada larutan yang mengandung prekursor material pendukung dan katalis, sehingga terbentuk spesi logam hidroksida yang akan bereaksi dengan gugus hidroksil permukaan yang diikuti dengan lepasnya molekul air. Metode ini umumnya digunakan untuk memperoleh distribusi fasa aktif yang sangat seragam. Sedangkan pada metode impregnasi

dilakukan dengan cara perendaman, sehingga terjadi adsorpsi prekursor garam katalis pada material pendukung.

## 2.10 Alumina ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ )

Alumina merupakan suatu oksida aluminium atau  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Alumina yang ditemukan di alam berbentuk hidroksida tidak murni dan merupakan penyusun utama bauksit. Proses Bayer dilakukan untuk menghilangkan pengotor-pengotor seperti  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , dan  $\text{TiO}_2$  yang terdapat dalam bauksit, sehingga akan menghasilkan  $\text{Al}_2\text{O}_3$  dengan kemurnian 99,5%.

Alumina mempunyai sifat relatif keras secara fisik, relatif stabil pada suhu tinggi, konduktivitas listrik yang rendah, titik leleh tinggi, struktur porinya besar, serta mempunyai luas permukaan dengan kisaran  $100\text{-}200\text{ m}^2/\text{g}$ . Dengan karakteristik ini, menyebabkan alumina sering digunakan dalam industri, antara lain sebagai adsorben, amplas, katalis, dan penyangga katalis.

Sifat alumina sangat bervariasi tergantung pada cara pembuatannya<sup>[1]</sup>. Alumina bersifat amfoter, artinya mempunyai sifat keasaman dan kebasaan yang ditentukan oleh gugus atau ion permukaan yang berada di ujung mikrokristalit. Dalam bentuk aktif, alumina mempunyai permukaan polar yang mampu mengadsorpsi senyawa-senyawa polar. Sifat-sifat tersebut dapat berubah-ubah sesuai dengan suhu dan pH.

### 2.10.1 Klasifikasi Alumina

Alumina terdapat dalam bentuk anhidrat dan terhidrat.

a. Dalam bentuk hidrat (aluminium hidroksida)

Aluminium hidroksida terdiri dari kandungan gugus hidroksida dan oksida hidroksida. Yang termasuk golongan alumina hidrat antara lain Gibbsite, Bayerite, dan Boehmite.

1. Gibbsite ( $\alpha$ -aluminium trihidrat /  $\alpha$ -Al(OH)<sub>3</sub>)

Gibbsite dikenal juga sebagai hidragilit. Dalam industri,  $\alpha$ -aluminium trihidrat diperoleh melalui kristalisasi larutan NaAlO<sub>2</sub>. Ukuran partikelnya bervariasi dari 0,5-200  $\mu$ m tergantung pada metode pembuatannya.

2. Bayerit ( $\beta$ -aluminium trihidrat /  $\beta$ -Al(OH)<sub>3</sub>)

Bayerit dibuat dengan mengendapkan larutan natrium aluminat yang hasilnya berupa gel, lalu di-aging dengan penetralan garam aluminium dengan larutan amonia.

3. Boehmite ( $\alpha$ -aluminium oksida hidroksida /  $\alpha$ -AlO(OH))

Boehmite dibuat melalui perubahan hidrotermal gibbsite pada suhu di atas 150°C. Kisi boehmite terdiri dari lapisan rangkap dengan ion O<sup>2-</sup> tersusun secara kemas rapat kubus.

b. Dalam bentuk anhidrat

Yang termasuk alumina anhidrat adalah alumina stabil ( $\alpha$ -alumina) dan alumina transisi (alumina metastabil).

1. Alumina stabil ( $\alpha$ -alumina / korundum)

Alumina ini mempunyai sifat paling stabil diantara alumina lain.  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  merupakan produk akhir dari proses dekomposisi termal dan hidrotermal aluminium hidroksida pada suhu diatas  $1100^\circ\text{C}$ , yang bersifat keras, inert, kuat, dan titik lelehnya tinggi ( $2100^\circ\text{C}$ ).

2. Alumina metastabil (alumina transisi / alumina aktif)

Alumina aktif diperoleh dari hasil dehidrasi termal aluminium hidroksida pada rentang suhu  $250$ - $800^\circ\text{C}$ . Berdasarkan kisaran suhu pemanasannya, alumina aktif dikelompokkan menjadi dua, yaitu:

1. Kelompok  $-\gamma$

Kelompok ini meliputi  $\chi$ -,  $\eta$ -, dan  $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ , yang dihasilkan dari pemanasan boehmite dengan suhu dibawah  $600^\circ\text{C}$  dan berbentuk  $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot x \text{H}_2\text{O}$ .

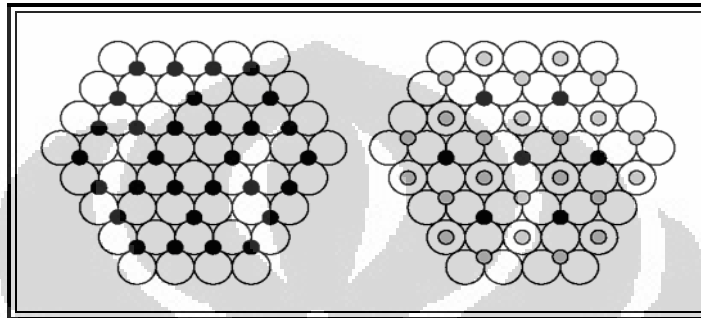
2. Kelompok  $-\delta$

Kelompok ini meliputi  $-\kappa$ ,  $-\theta$ , dan  $\delta$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ , yang diperoleh dari hasil pemanasan boehmite pada suhu  $900$ - $1000^\circ\text{C}$  dan berbentuk anhidrat.

### 2.10.2 $\gamma$ -Alumina ( $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ )

$\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  merupakan alumina transisi dan berbentuk padatan amorphous yang mempunyai struktur spinel yang cacat, dimana ion oksigen membentuk kemasan rapat kubus (ccp), yang mempunyai 16 lubang

oktahedral dan 8 lubang tetrahedral. Ion-ion  $\text{Al}^{3+}$  menempati koordinasi oktahedral dan tetrahedral dalam kisi oksigen tersebut. Struktur  $\text{Al}^{3+}$  oktahedral dikelilingi 6 atom  $\text{O}^{2-}$  dan struktur  $\text{Al}^{3+}$  tetrahedral dikelilingi 4 atom  $\text{O}^{2-}$ .



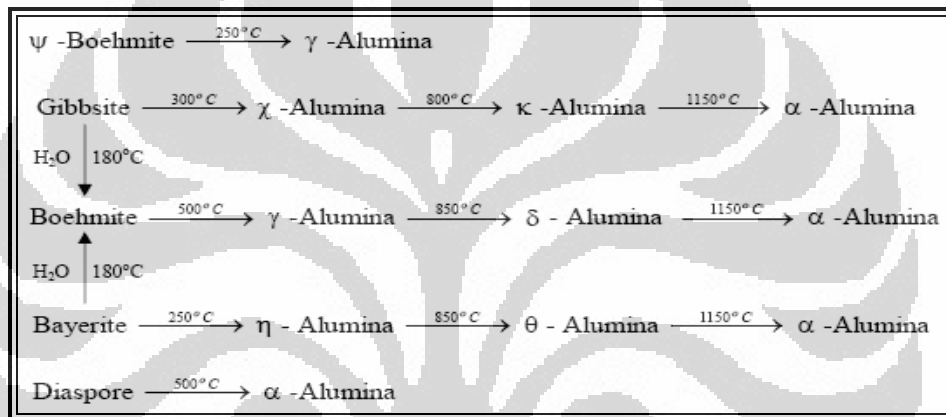
**Gambar 2.3** Dua lapisan pertama pada struktur  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$

$\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  terbentuk melalui pemanasan  $\text{Al}(\text{OH})_3$  pada suhu  $500\text{-}800^\circ\text{C}$ . Pemanasan  $\text{Al}(\text{OH})_3$  menyebabkan  $\text{Al}(\text{OH})_3$  terdekomposisi menjadi suatu oksida dengan sistem mikropori dan luas permukaan yang besar.

Alumina transisi yang paling terkenal kegunaannya sebagai katalis adalah  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  dan  $\eta\text{-Al}_2\text{O}_3$ <sup>[10]</sup>. Perbedaan antara  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  dan  $\eta\text{-Al}_2\text{O}_3$  antara lain adalah  $\eta\text{-Al}_2\text{O}_3$  lebih bersifat asam daripada  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ . Namun,  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  mempunyai luas permukaan dan pori-pori yang lebih besar daripada  $\eta\text{-Al}_2\text{O}_3$ , serta stabil dalam proses katalisis<sup>[10]</sup>. Selain itu,  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  juga tidak mahal, stabil pada suhu tinggi, stabil secara fisik dan kuat, mudah dibentuk dalam proses pembuatannya. Oleh karena itu,  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  paling banyak digunakan sebagai katalis<sup>[8]</sup>.

### 2.10.3 Pembuatan $\gamma$ -Alumina ( $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ )

Proses pembuatan alumina secara sintetik adalah melalui proses Bayer, dengan pembentukan gel dari aluminium hidroksida.  $\text{Al}(\text{OH})_3$  larut dalam asam kuat dan basa kuat, tetapi pada kisaran pH tertentu (netral) terjadi pengendapan hidroksida menghasilkan sol dan berubah menjadi gel. Hubungan beberapa bentuk alumina dapat dilihat pada Gambar 2.4.



**Gambar 2.4** Hubungan di antara beberapa bentuk alumina<sup>[1]</sup>

Pembuatan  $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  dapat dilakukan dari larutan garam yang mengandung  $\text{Al}^{3+}$  seperti aluminium klorida. Penambahan basa akan meningkatkan pH larutan dan menyebabkan terbentuknya endapan  $\text{Al}(\text{OH})_3$ . Aluminium hidroksida yang terbentuk akan berbeda sesuai dengan pH karena penambahan basa. Pada  $3 < \text{pH} < 7$ , endapan akan membentuk gel dari mikrokristal boehmite ( $\text{AlO}(\text{OH})$ ), dan dengan pemanasan lebih tinggi dari  $500^\circ\text{C}$  akan membentuk  $\gamma$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  amorf. Jika endapan terbentuk pada pH 6 - 8 maka akan membentuk endapan gel dari kristal boehmite. Setelah di-aging,

disaring, dicuci, dan dikalsinasi pada suhu 500°C, boehmite ini akan membentuk  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

## 2.11 Titania (TiO<sub>2</sub>)

Titanium (Ti) merupakan logam transisi golongan IVB dengan nomor atom 22, dengan konfigurasi elektron [Ar]3d<sup>2</sup>4s<sup>2</sup><sup>[11]</sup>. Titanium berwarna perak keabu-abuan, mempunyai sifat ringan, kuat, dan tahan korosi.

TiO<sub>2</sub> di alam mempunyai tiga bentuk kristal yaitu rutil, anatase, dan brokit. TiO<sub>2</sub> memiliki struktur kristal tetragonal dengan berat molekul sebesar 79,89 g/mol, kerapatan 3,83 g/cm<sup>3</sup>, dan indeks bias sebesar 2,49. TiO<sub>2</sub> murni tidak terdapat di alam, tetapi berasal dari rutil dan bijih ilmenit (FeTiO<sub>3</sub>).

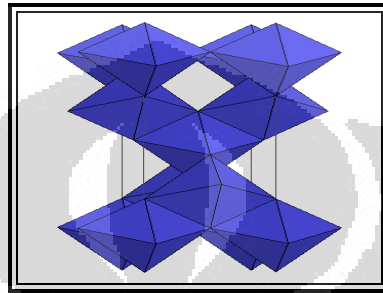
TiO<sub>2</sub> banyak digunakan sebagai fotokatalis karena sifatnya yang stabil (tahan terhadap korosi) dan harganya relatif murah. TiO<sub>2</sub> dapat dibuat melalui oksidasi TiCl<sub>4</sub> dalam fasa uap dengan O<sub>2</sub> atau dengan proses hidrolisis<sup>[11]</sup>.



Cairan TiCl<sub>4</sub> (titik didih 136°C) mudah bereaksi dengan senyawa yang mengandung atom hidrogen aktif dengan kehilangan HCl. TiCl<sub>4</sub> juga mudah terhidrolisis secara kuat tetapi tidak keras oleh air.

TiO<sub>2</sub> yang biasa digunakan sebagai katalis mempunyai struktur kristal anatase. Bentuk kristal anatase diamati terjadi pada pemanasan TiO<sub>2</sub> bubuk mulai dari suhu 120°C dan mencapai sempurna pada 500°C, sedangkan

pada suhu 700°C mulai terbentuk kristal rutil<sup>[12]</sup>. TiO<sub>2</sub> anatase tersusun atas ion Ti<sup>4+</sup> yang terkoordinasi dengan enam ion O<sup>2-</sup>, dengan luas permukaan sekitar 200-300 m<sup>2</sup>/g dan mempunyai aktivitas dan selektivitas yang tinggi untuk adsorpsi. Struktur kristal anatase dapat dilihat pada Gambar 2.5.



**Gambar 2.5** Struktur kristal TiO<sub>2</sub> anatase

## 2.12 TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Metoda untuk preparasi pembuatan katalis TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yaitu dengan teknik kopresipitasi dengan amonia atau urea. Dengan perbandingan variasi komposisi Ti:Al yang berbeda, maka sifat kimiawi dari katalis tersebut berbeda pula. Untuk teknik kopresipitasi dengan urea tidak ditemukan adanya sisi asam pada katalis, dan daya katalitik untuk reaksi oksidasi maksimum pada perbandingan Ti:Al (1:1). Untuk teknik kopresipitasi dengan amonia ditemukan keasaman maksimum pada perbandingan Ti:Al = 1:9, sedangkan pada perbandingan 1:1 sisi basa muncul<sup>[13]</sup>.

Sintesis TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dapat juga dimulai dengan pengendapan larutan basa AlO<sub>2</sub><sup>-</sup> dengan penambahan asam. Pada pH di bawah 11, pengendapan



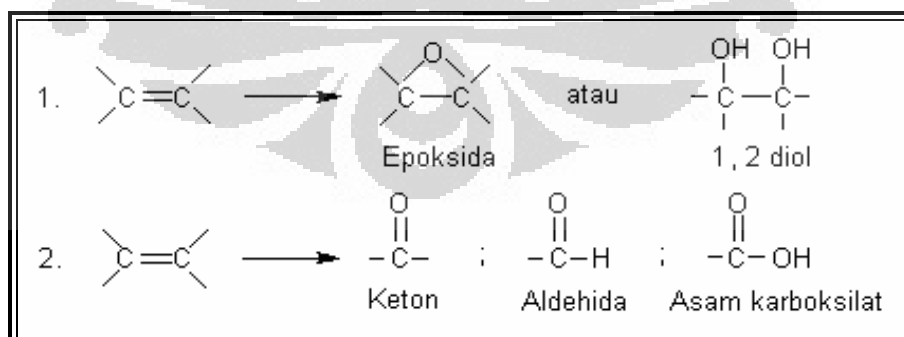
itu akan membentuk gel aluminium hidroksida (bayerite). Pada pH antara 6 sampai 8 akan membentuk gel boehmite. Aluminium hidroksida bayerite dan boehmite dapat membentuk  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  dengan pemanasan pada suhu  $500^\circ\text{C}$ .

### 2.13 Reaksi Oksidasi

Yang dinamakan reaksi oksidasi dalam kimia organik adalah penghilangan atom H atau pembentukan ikatan baru antara C dan H<sup>[14]</sup>. Oksidasi terhadap senyawa dengan ikatan rangkap dapat dibagi menjadi dua golongan.

1. Oksidasi ikatan  $\pi$  tanpa pemutusan ikatan  $\sigma$
2. Oksidasi ikatan  $\pi$  dengan pemutusan ikatan  $\sigma$

Oksidasi tanpa pemutusan ikatan akan menghasilkan epoksida atau diol, sedangkan oksidasi dengan pemutusan ikatan akan menghasilkan aldehida, keton, atau asam karboksilat, seperti yang terlihat pada Gambar 2.6.



**Gambar 2.6** Reaksi oksidasi pada senyawa dengan ikatan rangkap dua

Reaksi oksidasi pada molekul hidrokarbon dapat dibagi menjadi dua jenis, yaitu oksidasi elektrofilik dan oksidasi nukleofilik. Oksidasi elektrofilik merupakan reaksi oksidasi melalui aktivasi oksigen, yang kemudian akan menyerang ikatan molekul organik dengan kerapatan elektron terbesar, biasanya ikatan  $\pi$ . Sedangkan oksidasi nukleofilik, yaitu reaksi oksidasi yang didahului dengan aktivasi molekul hidrokarbon, kemudian diikuti dengan penambahan oksigen dan pengurangan hidrogen.

## 2.14 Stirena

### 2.14.1 Material Safety Data Sheet (MSDS) Stirena<sup>[15]</sup>

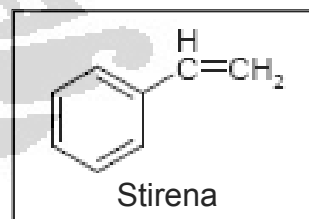
Sinonim : Phenethylene, phenylethene, phenylethylene, styrene monomer, vinylbenzene, Ethenylbenzene, styrol, styrole, styrolene, styron, vinylbenzene, vinylbenzol, cinnamene, cinnamol.

Formula molekul :  $C_8H_8$

Massa molekul relatif : 104,14 g/mol

Sifat fisika dan kimia :

Bentuk	: cairan tidak berwarna
Titik leleh	: $-31^{\circ}C$
Titik didih	: $145,2^{\circ}C$ ; $33,6^{\circ}C$ pada 1,33 kPa (10 mmHg)
Titik beku	: $-30,63^{\circ}C$
Massa jenis	: 0,91 (air = 1)



Kelarutan:

Sedikit larut dalam air (30 mg/100 mL pada 20°C), larut dalam etanol, dietil eter dan aseton, sangat larut dalam benzena dan petroleum eter.

Stabilitas:

Stabil, tetapi bisa terpolimerisasi jika terkena cahaya dan udara. Harus disimpan dalam lingkungan lembam (inert) atau dengan ditambahkan inhibitor. Hindari penambahan asam kuat, aluminium klorida, oksidator kuat, tembaga, tembaga alloy, garam logam, dan katalis polimerisasi.

*Flammable* – uapnya dijauhkan dari panas, cahaya, dan sumber api.

Toksistas:

Beracun, karsinogen, mutagen, korosif, menyebabkan iritasi kulit dan mata, sakit kepala, mual, pusing, lemah otot, penurunan sistem syaraf pusat, dan diare. Bahaya melalui inhalasi, ingesti, dan absorpsi kulit.

Kegunaan:

Merupakan bahan kimia yang penting dalam pembuatan polimer, kopolimer, dan memperkuat plastik.

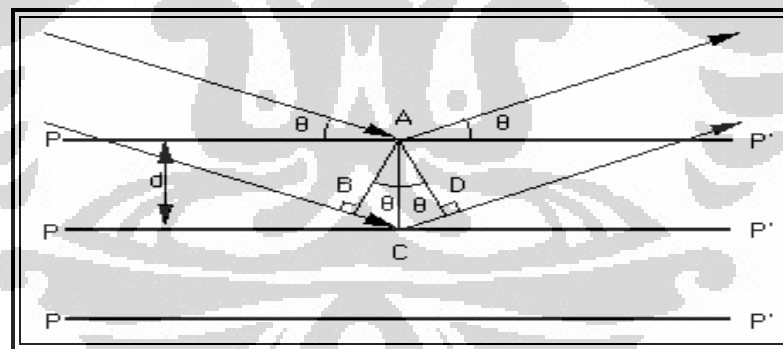
## 2.15 Karakterisasi Katalis

### 2.15.1 Difraksi Sinar-X

Difraksi sinar-X merupakan salah satu metode yang digunakan untuk menentukan struktur kristal suatu padatan dengan menggunakan alat yang disebut *X-ray Diffractometer* (XRD). Di dalam kisi kristal, terdapat bidang

kristal yang merupakan tempat kedudukan sederetan ion atau atom. Posisi dan arah dari bidang kristal ini disebut indeks miller. Setiap kristal mempunyai bidang kristal dengan posisi dan arah yang khas, sehingga akan memberikan pola difraktogram yang khas pula.

Prinsip dasar dari XRD adalah hamburan elektron yang mengenai permukaan kristal<sup>[16]</sup>. Bila sinar-X dilewatkan ke permukaan kristal, sebagian sinar tersebut akan dihamburkan dan sebagian lagi akan diteruskan ke lapisan berikutnya. Sinar yang dihamburkan akan berinterferensi secara konstruktif (menguatkan) dan destruktif (melemahkan). Hamburan sinar yang berinterferensi konstruktif inilah yang digunakan untuk analisis. Interferensi konstruktif terjadi apabila berkas sinar-X yang dihamburkan berada dalam keadaan satu fasa seperti terlihat pada Gambar 2.7.



**Gambar 2.7** Difraksi sinar-X pada suatu kristal<sup>[16]</sup>

Kondisi satu fasa tercapai apabila jarak  $BC + CD$  sama dengan harga bilangan bulat ( $n$ ) dari panjang gelombang radiasi.

$$BC + CD = n\lambda, \text{ dimana: } n = \text{orde difraksi}$$

Karena  $BC + CD = 2d \sin \theta$ , maka interferensi konstruktif dari berkas sinar-X pada sudut  $\theta$  adalah:

$$n\lambda = 2d \sin \theta$$

dengan:  $d$  = jarak antar kristal

$\theta$  = sudut pengukuran (sudut difraksi)

$\lambda$  = panjang gelombang sinar-X

Persamaan di atas dikenal sebagai persamaan Bragg.

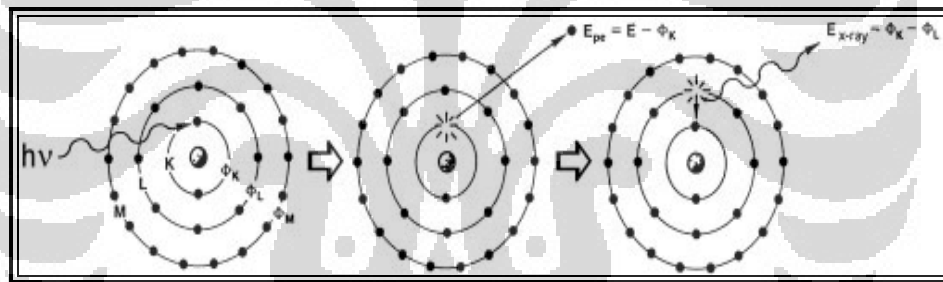
Dari hasil pengukuran XRD didapatkan nilai  $d$ , sudut  $2\theta$  dan intensitasnya. Senyawa dan struktur kristal dari sampel dapat diketahui dengan cara membandingkannya dengan data standar.

### 2.15.2 Fluoresensi Sinar-X

Fluoresensi Sinar-X merupakan metode yang digunakan untuk menentukan komposisi unsur suatu material secara kualitatif dan kuantitatif. Bahan yang dianalisis dapat berupa padat maupun serbuk. Kelemahan dari metode XRF adalah tidak dapat mengetahui senyawa dan struktur apa yang dibentuk oleh unsur-unsur yang terkandung dalam material, serta tidak dapat menganalisa unsur dibawah nomor atom 10.

Analisis menggunakan XRF dilakukan berdasarkan identifikasi dan pencacahan sinar-X karakteristik yang terjadi dari peristiwa efek fotolistrik<sup>[18]</sup>. Efek fotolistrik merupakan proses dimana sinar-X diabsorpsi oleh atom dengan mentransfer energinya pada elektron yang terdapat pada kulit yang

lebih dalam. Efek fotolistrik terjadi karena elektron dalam atom target (sampel) terkena sinar berenergi tinggi (radiasi gamma, sinar-X). Bila energi sinar tersebut lebih tinggi dari pada energi ikat elektron dalam orbit K, L, atau M atom target, maka elektron atom target akan keluar dari orbitnya, sehingga mengalami kekosongan elektron. Kekosongan elektron ini akan diisi oleh elektron dari orbital yang lebih luar diikuti pelepasan energi yang berupa sinar-X karakteristik, yang selanjutnya ditangkap detektor untuk dianalisis kandungan unsur dalam bahan sehingga akan dihasilkan puncak-puncak pada intensitas yang berbeda. Proses fluoresensi dari sinar-X diperlihatkan pada Gambar 2.8.



**Gambar 2.8** Proses fluoresensi sinar-X<sup>[17]</sup>

### 2.15.3 Metode BET

Metode BET (Brunauer-Emmet-Teller) merupakan metode yang digunakan untuk menentukan luas permukaan suatu padatan berpori, serta ukuran dan volume pori-porinya dengan menggunakan alat autosorb 6. Prinsip kerjanya berdasarkan proses adsorpsi gas  $N_2$  pada permukaan padatan berpori.

Sampel yang akan dianalisis dengan berat yang diketahui diletakkan dalam tabung yang sudah diketahui volumenya dan dipanaskan di bawah vakum ( $10^{-4}$  Torr) untuk menghilangkan gas-gas yang terdapat pada sampel. Tabung didinginkan dalam nitrogen cair, dan sejumlah gas nitrogen dimasukkan ke dalam tabung. Setelah mencapai kesetimbangan, tekanan dalam tabung diukur. Hal ini dilakukan berulang kali dengan jumlah-jumlah tertentu gas  $N_2$ . Dengan mengamati perbedaan tekanan gas terhitung dan tekanan yang diamati pada setiap penambahan dapat ditentukan jumlah  $N_2$  yang teradsorpsi.

Dengan mengekstrapolasi kurva dan menggunakan persamaan BET maka luas permukaan dapat ditentukan dengan:

$$\frac{P}{V_{ads}(P_0 - P)} = \frac{1}{V_m C} + \frac{C-1}{V_m C} x \frac{P}{P_0}$$

Dimana,  $P$  : tekanan

$V_{ads}$  : volume gas yang diadsorpsi pada tekanan  $P$

$P_0$  : tekanan jenuh, biasanya 200 – 400 Torr

$V_m$  : volume gas yang diadsorpsi pada lapisan monolayer

$C$  : tetapan BET

Dengan mengalurkan nilai sisi kiri persamaan terhadap  $P/P_0$  diperoleh persamaan garis lurus dengan:

$$\text{slope} = S = \frac{(C-1)}{V_m C}; \text{ intercept} = I = \frac{1}{V_m C}; \text{ dan } V_m = \frac{1}{S+I} \text{ (dalam m}^2\text{/g)}$$

Total luas permukaan dari sampel:  $SA = V_m \times N \times A_m \times 10^{-20}$

Dimana,  $N$  : bilangan Avogadro  $6,023 \times 10^{23}$  molekul/mol

$M$  : berat molekul adsorbat

$A_m$  : luas penampang molekul adsorbat gas  $N_2$  yaitu  $16,2 \text{ \AA}$  pada

77K

Luas Permukaan Spesifik (LPS) padatan dapat dihitung dengan cara membagi total luas permukaan dengan berat sampel  $w$ :

$$LPS = SA/w$$

## **2.16 Analisis Hasil Reaksi Oksidasi Katalitik Stirena**

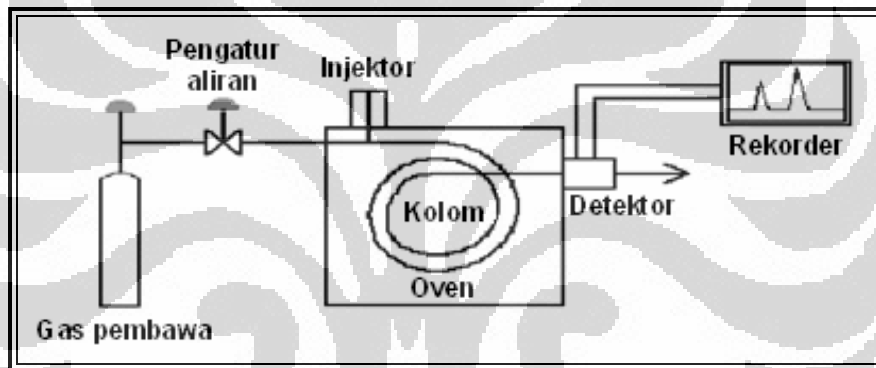
### **2.16.1 Kromatografi Gas**

Kromatografi gas merupakan metode pemisahan zat cair berdasarkan pada pendistribusian sampel di antara dua fasa, yaitu fasa diam dan fasa gerak<sup>[19]</sup>. Fasa gerak yang digunakan berupa gas sedangkan fasa diamnya berupa padatan atau cairan. Kromatografi gas digunakan untuk memisahkan dan menentukan suatu senyawa secara kualitatif maupun kuantitatif.

Identifikasi secara kuantitatif dilakukan dengan cara menghitung luas area dari sampel, sedangkan identifikasi secara kualitatif dilakukan dengan cara membandingkan waktu retensi ( $t_r$ ) sampel dengan standar. Waktu retensi adalah waktu penahanan sampel di dalam kolom.



Prinsip kerja kromatografi gas yaitu, sampel diinjeksikan ke dalam injektor. Gerbang injeksi dipanaskan sehingga sampel cair akan menguap dengan cepat. Beberapa mikroliter cairan sampel dimasukkan menggunakan *syringe* melalui suatu septum karet. Uap yang terjadi dibawa masuk ke dalam kolom oleh gas pembawa. Proses pemisahan komponen-komponen sampel berlangsung didalam kolom berdasarkan pada interaksi komponen sampel dengan fasa diam. Interaksi ini sangat menentukan berapa lama komponen sampel akan ditahan.



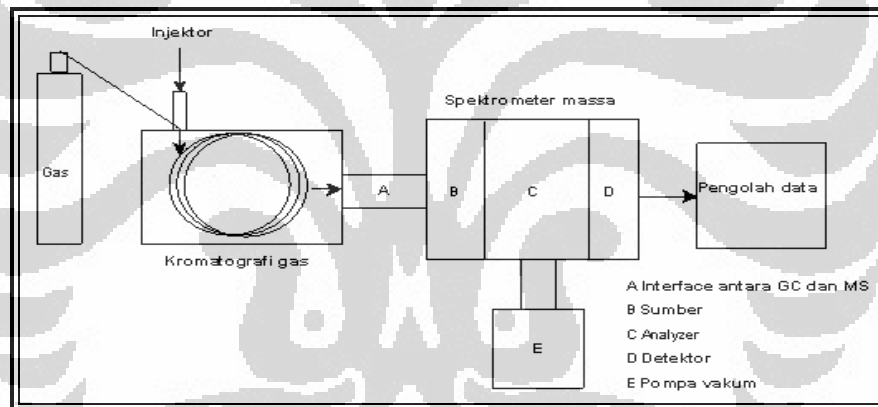
**Gambar 2.9** Skema Alat Kromatografi Gas<sup>[19]</sup>

### 2.16.2 Kromatografi Gas-Spektroskopi Massa

Kromatografi Gas-Spektroskopi Massa merupakan metode yang menggabungkan kromatografi gas dan spektroskopi massa untuk mengidentifikasi zat dalam sampel. Metode analisis dilakukan dengan membandingkan konsentrasi massa atom dari spektrum yang dihasilkan.

Prinsip kerja GC-MS yaitu, senyawa sampel ditembak oleh arus elektron sehingga menyebabkan senyawa terpisah menjadi fragmen yang

merupakan muatan ion dengan massa tertentu. Massa fragmen jika dibagi muatan disebut perbandingan massa per muatan ( $M/Z$ ), yang mewakili berat molekul fragmen. Fragmen tertentu difokuskan melewati celah menuju detektor oleh empat elektromagnet (quadropole) yang diprogram oleh komputer. Siklus quadropole disebut scan, yang berlangsung berkali-kali perdetik. Komputer merekam grafik pada setiap scan, dan grafik ini disebut spektrum massa. Komputer GC-MS memiliki literatur spektrum untuk mengidentifikasi senyawa kimia yang tidak diketahui dengan membandingkan spektrum massa dari komponen sampel dengan literatur.



**Gambar 2.10** Skema Alat GC-MS<sup>[20]</sup>

## BAB III

### METODE PENELITIAN

#### 3.3 ALAT DAN BAHAN

##### 3.3.1 Alat

Peralatan yang digunakan pada pembuatan katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U dan  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG antara lain peralatan gelas, neraca analitik, botol polipropilen, *water bath*, kertas saring, penyaring buchner, pompa vakum, crucible lid, oven, dan *furnace*. Katalis dikarakterisasi menggunakan difraktometer sinar-X (Philips PW 2213/20), fluoresensi sinar-X, dan alat uji BET (Autosorb 6). Sedangkan untuk reaksi oksidasi digunakan labu bulat leher tiga, termometer, kondensor, tabung oksigen, regulator oksigen, dan *hot plate stirrer*. Produk reaksi dianalisis menggunakan kromatografi gas (Shimadzu GC-9A) dan kromatografi gas-spektroskopi massa.

##### 3.3.2 Bahan

Bahan kimia yang digunakan pada pembuatan katalis antara lain  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  (Merck),  $\text{TiCl}_4$  (1,5 M), Polietilen glikol 1000 (PEG 1000), etanol,  $\text{NH}_4\text{OH}$  (Merck), urea p.a (Merck), dan akuades. Untuk reaksi oksidasi digunakan stirena p.a (BASF) dan gas  $\text{O}_2$ .

### 3.4 Prosedur kerja

#### 3.4.1 Bagan Prosedur Kerja

Dapat dilihat pada lampiran 1.

#### 3.4.2 Penyiapan Larutan

##### 3.2.2.1 Larutan untuk Pembuatan Katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-U

Larutan  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$  2 M : Melarutkan 75,03 g  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dalam 100 mL akuades.

##### 3.2.2.2 Larutan untuk Pembuatan Katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)- PEG

Larutan A : Melarutkan 10 g polietilen glikol dan 75,03 g  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dalam 100 mL etanol.

Larutan B : Melarutkan 10 g polietilen glikol dan 37,94 g  $\text{TiCl}_4$  dalam 100 mL etanol.

#### 3.4.3 Pembuatan Katalis

##### 3.4.3.1 Katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-U<sup>[13]</sup>

Katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U dibuat dengan cara mencampurkan larutan  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$  dan  $\text{TiCl}_4$ , melalui penambahan urea sebagai sumber basa untuk

membentuk endapan. Karena itu, notasi U digunakan untuk menunjukkan metode pengendapan dengan urea. Katalis dibuat dengan perbandingan mol yang sama, yaitu = 1:1, dimana mol yang digunakan masing-masing 0,2 mol. Dengan demikian, katalis yang dibuat pada penelitian ini adalah  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U.

Katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U dibuat dengan cara melarutkan 75,03 g  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dalam akuades, kemudian mencampurkan larutan  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$  tersebut dengan 37,94 g larutan  $\text{TiCl}_4$  dan 200 g urea. Campuran dipanaskan pada suhu  $100^\circ\text{C}$  selama 5 jam. Pada pemanasan tersebut dilakukan pengadukan menggunakan *magnetic stirrer* agar reaksi berlangsung sempurna. Endapan yang terbentuk kemudian di-aging dalam botol polipropilen yang diletakkan dalam *water bath* pada suhu  $100^\circ\text{C}$  selama 5 jam. Selanjutnya, mencuci sampai netral menggunakan akuades. Endapan yang telah netral, dikeringkan dalam oven pada suhu  $100^\circ\text{C}$  selama 24 jam untuk menghilangkan hidrat, kemudian dikalsinasi pada suhu  $500^\circ\text{C}$  selama 18 jam dalam tanur / *furnace*. Hasil yang diperoleh merupakan katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U yang selanjutnya dikarakterisasi dengan XRD, XRF, dan alat uji BET.

#### 3.4.3.2 Katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-PEG<sup>[4]</sup>

Katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG disiapkan dengan cara mencampurkan larutan A dan larutan B, sehingga diperoleh larutan C. Pada larutan C

ditambahkan  $\text{NH}_4\text{OH}$  sampai pH netral (pH 7). Gel yang terbentuk kemudian distirrer selama 72 jam pada temperatur ruang. Setelah itu, gel disaring, lalu di-aging dalam botol polipropilen yang diletakkan dalam *water bath* pada suhu  $50^\circ\text{C}$  selama 24 jam. Gel yang diperoleh lalu dioven pada suhu  $120^\circ\text{C}$  selama 4 jam. Setelah itu dilakukan kalsinasi pada suhu  $500^\circ\text{C}$  selama 18 jam. Hasil yang diperoleh merupakan katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG yang selanjutnya dikarakterisasi dengan XRD, XRF, dan alat uji BET.

#### 3.4.4 Uji Daya Katalitik Katalis Melalui Reaksi Oksidasi Stirena

Reaksi oksidasi katalitik stirena dilakukan melalui penambahan gas oksigen ( $\text{O}_2$ ) sebagai oksidator. Sebanyak 30 mL stirena direfluks dalam labu bulat leher tiga menggunakan kondensor dan *hot plate stirrer* pada suhu dan waktu tertentu. Mula-mula dialirkan gas  $\text{O}_2$  pada stirena untuk menghilangkan gas lain seperti  $\text{N}_2$ . Selanjutnya, katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U maupun  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG dengan variasi berat katalis, dimasukkan ke dalam sistem reaksi. Gas  $\text{O}_2$  terus dialirkan selama reaksi berlangsung. Pada reaksi dilakukan beberapa variasi, yaitu berat katalis (0,5 g, 1 g, 1,5 g, dan 2 g), waktu reaksi (1 jam, 2 jam, 3 jam, 4 jam, dan 5 jam), dan suhu reaksi ( $50^\circ\text{C}$ ,  $60^\circ\text{C}$ ,  $70^\circ\text{C}$ , dan  $80^\circ\text{C}$ ). Setelah reaksi selesai, suhu reaksi diturunkan sampai temperatur ruang, dan gas  $\text{O}_2$  diputuskan dari jalur reaksi. Selanjutnya hasil reaksi oksidasi katalitik stirena ini dipisahkan dari katalis dan dimasukkan ke

dalam botol vial, lalu dianalisis menggunakan kromatografi gas dan GC-MS.

Data kondisi alat kromatografi gas yang digunakan adalah:

- GC (Gas Chromatography) : Shimadzu GC-9A
- Kolom : PEG 4M63-40 Glass Fragile
- Gas pembawa : N<sub>2</sub>
- Detektor : FID
- Suhu detektor : 190°C
- Suhu injektor : 200°C
- Volume Injeksi : 1 µL

Data kondisi alat GC-MS yang digunakan adalah:

- Kolom : HP-I (60 m x 250 µm x 0,25 µm)
- Gas pembawa : He
- Flow : 1 mL/menit
- Detektor : MSD
- Suhu detektor : 300°C
- Suhu oven : 70-290°C (kenaikan 15°C/menit)
- Suhu injektor : 290°C
- Suhu MS *source* : 250°C
- Suhu MS quadropole : 150°C

### 3.4.5 Regenerasi Katalis

Regenerasi katalis hanya dilakukan terhadap katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG. Katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG yang telah digunakan pada reaksi oksidasi stirena, dicuci dengan etanol 96% untuk menghilangkan stirena maupun produk reaksi yang masih menempel pada katalis. Katalis dikalsinasi pada  $500^\circ\text{C}$  selama 5 jam untuk mengaktifkan kembali katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG. Katalis hasil regenerasi dikarakterisasi menggunakan XRF.

Pengujian daya katalitik dari katalis hasil regenerasi dilakukan pada reaksi oksidasi stirena seperti pada point 3.2.4. Katalis diuji daya katalitiknya pada kondisi reaksi yang optimum, yaitu dengan menggunakan 1,5 g katalis, suhu  $70^\circ\text{C}$ , dan waktu reaksi selama 4 jam. Hasil reaksi dianalisis menggunakan kromatografi gas.



## BAB IV

### HASIL DAN PEMBAHASAN

#### 4.2 Pembuatan Katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$

Katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  disintesis dari padatan  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dan larutan  $\text{TiCl}_4$  dengan perbandingan mol yang sama dari  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{TiCl}_4$ , yaitu 1:1. Preparasi katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  dilakukan dengan dua cara yang berbeda. Preparasi yang pertama, yaitu melalui penambahan urea. Untuk menyederhanakan penamaan katalis, notasi U digunakan sebagai penunjuk urea, sehingga katalis diberi nama  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U. Sedangkan pada preparasi yang kedua, yaitu melalui penambahan polietilen glikol (PEG). Katalis dengan penambahan PEG diberi nama  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG.

#### 4.6.4 Katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-U

Katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U disiapkan dari  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  sebagai sumber atom Al, dan  $\text{TiCl}_4$  sebagai sumber atom Ti dengan perbandingan mol  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{TiCl}_4$  adalah 1:1. Dengan menggunakan  $\text{TiCl}_4$ , diharapkan agar atom Ti dapat terdistribusi pada penyangga katalis sebagai atom Ti, dan tidak sebagai *cluster* Ti yang dapat mengurangi aktivitas katalis.

Proses pembuatan katalis dimulai dengan melarutkan 75,03 g  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dalam 100 mL  $\text{H}_2\text{O}$ , sehingga diperoleh larutan  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$  2 M. Ke dalam larutan  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$  ditambahkan 37,94 g larutan  $\text{TiCl}_4$ . Campuran

yang dihasilkan berupa larutan berwarna kuning bening. Pada larutan ditambahkan 200 g urea yang berfungsi sebagai sumber basa untuk mengendapkan campuran. Penambahan basa bertujuan untuk meningkatkan pH larutan sehingga menyebabkan terbentuknya spesi sol logam hidroksida.

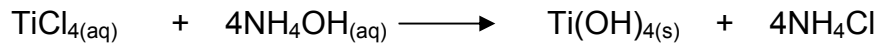
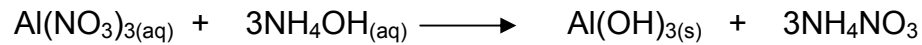
Pada tahap awal, penambahan urea belum menghasilkan pembentukan endapan logam hidroksida. Urea merupakan basa lemah dimana sifat kebasaannya baru muncul setelah terhidrolisis membentuk  $\text{NH}_3$  dan  $\text{CO}_2$ . Urea terhidrolisis menurut persamaan berikut :



Hidrolisis tersebut berlangsung lambat pada suhu ruang, tetapi agak cepat pada  $100^\circ\text{C}$ . Peningkatan pH dapat dikendalikan dengan mengatur temperatur dan lamanya pemanasan. Karena itu, campuran dipanaskan pada suhu  $100^\circ\text{C}$  selama 5 jam agar urea terhidrolisis membentuk amonia. Karena dalam sistem reaksi terdapat  $\text{H}_2\text{O}$ , maka gas  $\text{NH}_3$  yang terbentuk akan bereaksi menghasilkan  $\text{NH}_4\text{OH}$ . Proses pemanasan disertai dengan pengadukan menggunakan *hot plate stirrer*, sehingga reaksi diharapkan menjadi lebih sempurna.

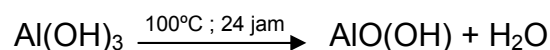
Pada satu jam pertama mulai terbentuk endapan yang ditandai dengan berubahnya warna campuran dari bening menjadi putih keruh, dan semakin lama endapan yang terbentuk menjadi semakin banyak. Pada jam kelima diperkirakan dekomposisi urea semakin meningkat sehingga pH campuran meningkat. Endapan yang terbentuk merupakan campuran sol

logam hidroksida berwarna putih, yaitu aluminium trihidroksida dan titanium hidroksida. Reaksi yang terjadi selama pemanasan adalah:

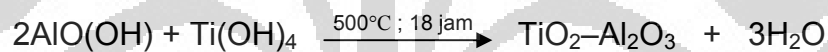


Setelah pemanasan, campuran sol logam hidroksida di-aging secara hidrotermal pada suhu 100°C selama 5 jam dalam botol polipropilen yang ditempatkan dalam penangas air. *Aging* bertujuan untuk memperoleh polimer aluminium trihidroksida yang lebih kristalin. Setelah proses aging, campuran sol logam hidroksida berubah menjadi gel yang lebih padat. Gel disaring dan dicuci sampai netral menggunakan akuades untuk menghilangkan sisa basa ( $\text{OH}^-$ ), dan ion-ion lainnya seperti  $\text{Cl}^-$  dan  $\text{NO}_3^-$ . Untuk mengujinya, digunakan kertas lakmus sebagai indikator, dengan cara mencelupkan kertas lakmus pada filtrat yang diperoleh. Pencucian dihentikan setelah filtrat yang diuji telah netral.

Endapan hasil penyaringan yang telah netral dibuat pellet. Pembuatan pellet bertujuan agar katalis dapat dipisahkan dengan mudah dari produk pada saat reaksi selesai. Pellet ditempatkan dalam *crusible lid*, lalu dipanaskan dalam oven pada suhu 100°C selama 24 jam. Pemanasan dalam oven bertujuan untuk mengeringkan gel aluminium trihidroksida, sehingga dapat mengurangi terikatnya molekul air pada padatan. Perubahan yang terjadi selama pemanasan dalam oven adalah :



Tahap selanjutnya dalam pembuatan katalis adalah kalsinasi pada 500°C. Kalsinasi bertujuan untuk menghilangkan kandungan molekul air dan fraksi-fraksi volatil yang mungkin masih terikat dalam padatan. Pemilihan suhu kalsinasi sebesar 500°C didasarkan pada pertimbangan bahwa alumina kelompok  $\gamma$ , yang sering digunakan sebagai katalis maupun pendukung katalis, terbentuk pada suhu dibawah 600°C. Selain itu, menurut Ollis *et al.*, TiO<sub>2</sub> anatase terbentuk pada suhu 120 - 500°C, dan sempurna pada suhu 500°C<sup>[12]</sup>. Pada tahap kalsinasi ini terjadi pembentukan oksida logam melalui adanya transisi fasa. Melalui kalsinasi, boehmite berubah menjadi Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, dan juga diperoleh TiO<sub>2</sub> anatase. Reaksi yang terjadi selama kalsinasi dalam tanur adalah :



Selain itu, selama kalsinasi juga terjadi reaksi oksida logam dengan penyangga, sehingga terjadi ikatan antara alumina dengan titania membentuk katalis TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (1:1)-U. Katalis yang diperoleh berupa kristal berwarna putih.

#### 4.6.5 Katalis TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (1:1)-PEG

Katalis TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (1:1)-PEG dibuat menggunakan sumber atom Al dan Ti yang sama seperti pada pembuatan katalis TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (1:1)-U. Perbedaannya adalah penggunaan etanol dan polietilen glikol (PEG) yang

ditambahkan pada  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{TiCl}_4$  sebelum keduanya dicampurkan.

Etanol berfungsi untuk melarutkan PEG dan  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ .

Proses pembuatan katalis dimulai dengan membuat larutan A dan larutan B. Larutan A terdiri dari 10 g polietilen glikol dan 37,94 g  $\text{TiCl}_4$  yang dilarutkan dalam 100 mL etanol. Sedangkan larutan B terdiri dari 10 g polietilen glikol dan 75,03 g  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  yang dilarutkan dalam 100 mL etanol. Larutan A dan larutan B dicampurkan sehingga diperoleh larutan C. Pada pencampuran ini, atom hidrogen pada etanol akan berikatan dengan atom oksigen pada PEG, melalui ikatan hidrogen. Penggunaan etanol sebagai pelarut bertujuan untuk menghindari hidrolisis  $\text{TiCl}_4$  dalam lingkungan air.

Ke dalam larutan C, dilakukan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  sedikit demi sedikit sampai campuran mencapai pH 7 (netral). Pada awalnya, larutan C berwarna kuning bening, namun setelah dilakukan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$ , campuran membentuk sol logam hidroksida yang berwarna putih.

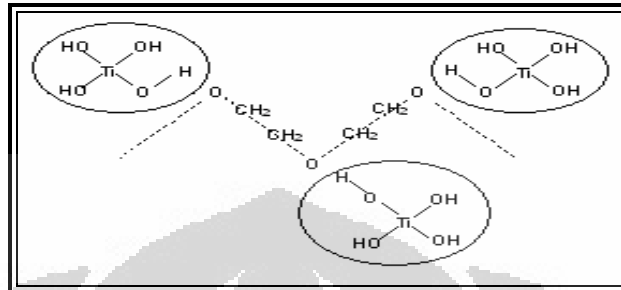
Penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  dilakukan karena pembentukan alumina diawali dari logam hidroksidanya, yang terbentuk pada pH netral. Karena itu, dilakukan netralisasi garam aluminium dengan adanya penambahan basa.

Selanjutnya, campuran distirrer selama 72 jam pada suhu ruang agar campuran menjadi lebih homogen, dan proses pembentukan sol menjadi lebih optimum. Pada tahap ini, pembentukan sol semakin meningkat. Sol yang terbentuk berupa campuran logam hidroksida yaitu  $\text{Al}(\text{OH})_3$  dan  $\text{Ti}(\text{OH})_4$ .

Sol yang diperoleh kemudian di-*aging* dalam botol polipropilen selama 24 jam pada suhu 50°C. Gel disaring, dan endapannya dioven selama 4 jam pada suhu 120°C untuk menghilangkan molekul etanol yang masih terikat. Pada tahap ini, etanol yang masih terkandung pada padatan dapat menguap, dan padatan yang terbentuk berwarna putih. Kemudian dilakukan kalsinasi pada suhu 500°C selama 18 jam. Pada jam pertama, padatan berubah warna menjadi kecoklatan, lalu menjadi hitam dan disertai timbulnya asap pada oven. Perubahan warna tersebut diperkirakan karena terdekomposisinya polietilen glikol menjadi karbon. Setelah kalsinasi selesai, warna katalis menjadi putih.

Penambahan PEG pada pembuatan katalis bertujuan untuk mencegah terbentuknya *cluster* Ti yang merupakan sisi aktif katalis, sehingga Ti dapat terdistribusi merata pada padatan pendukung. Setelah proses pemanasan dalam oven, etanol akan menguap sehingga atom hidrogen dari campuran logam hidroksida,  $\text{Al}(\text{OH})_3$  dan  $\text{Ti}(\text{OH})_4$ , menggantikan etanol untuk berikatan dengan PEG. Pengikatan  $\text{Ti}(\text{OH})_4$  pada PEG dapat dilihat pada Gambar 4.1. Hal yang sama juga terjadi pada  $\text{Al}(\text{OH})_3$ , dimana ikatan yang terbentuk merupakan ikatan hidrogen. Melalui pembentukan ikatan hidrogen tersebut, dapat mencegah penggabungan antara atom-atom Ti, sehingga pembentukan *cluster* dapat dihindari. Pada saat kalsinasi, PEG akan terdekomposisi menjadi gas, sehingga PEG terlepas dari struktur kristal. Selama kalsinasi juga terjadi reaksi oksida logam dengan penyangga,

sehingga terjadi ikatan antara alumina dengan titania membentuk katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG.



**Gambar 4.1** Reaksi Pengikatan titanium hidroksida pada PEG

### 4.3 Karakterisasi Katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$

Karakterisasi katalis diperlukan untuk menentukan keberhasilan pembuatan katalis. Katalis dikarakterisasi dengan beberapa teknik, karena tidak ada satu pun teknik laboratorium yang mampu mengamati seluruh data yang diperlukan. Katalis dikarakterisasi menggunakan XRD untuk menentukan struktur kristal katalis, XRF untuk mengetahui unsur penyusun katalis, dan uji BET untuk mengetahui luas permukaan, volume pori, dan ukuran pori katalis.

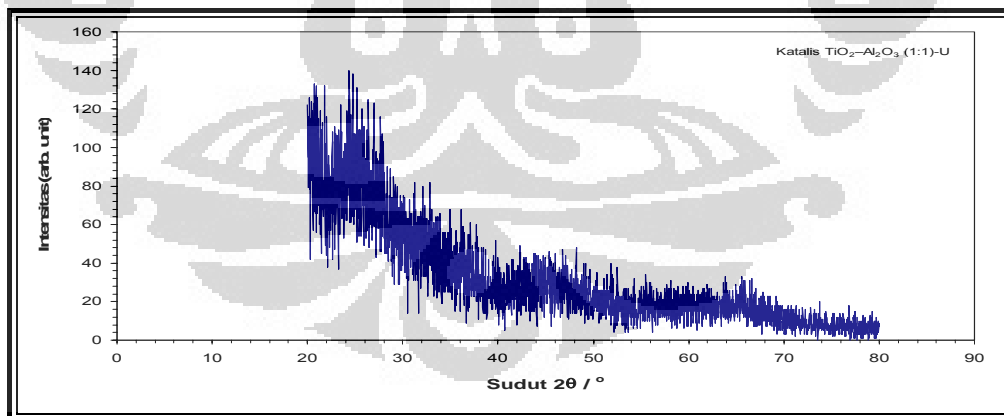
#### 4.2.1 Karakterisasi dengan Difraksi Sinar-X

Reaksi kimia yang spesifik dari katalis heterogen adalah reaksi berlangsung pada permukaan katalis, yang berhubungan dengan struktur permukaan suatu padatan. Dengan mengetahui struktur permukaan katalis,

maka dapat diramalkan kemampuan katalitiknya untuk suatu reaksi tertentu. Karena itu, katalis hasil sintesis dianalisis menggunakan alat difraksi sinar-X. Difraktometer sinar-X adalah sebuah peralatan ukur yang digunakan untuk mendapatkan karakteristik fasa dan struktur kristal suatu material kristalit dan nonkristalit.

Pada hasil analisis diperoleh data berupa puncak-puncak karakteristik pada sudut difraksi ( $2\theta$ ) dengan intensitas tertentu. Karena setiap senyawa mempunyai sudut  $2\theta$  dan intensitas yang spesifik, maka dapat dilakukan karakterisasi untuk menganalisis secara kualitatif struktur katalis hasil sintesis. Dengan demikian dapat dibuktikan struktur  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  yang terbentuk.

Pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U dihasilkan tiga puncak yang dominan seperti yang terlihat pada Gambar 4.2.



**Gambar 4.2** Difraktogram  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U

Pada Gambar 4.2 dapat diketahui bahwa puncak yang dihasilkan masih melebar. Hal itu menunjukkan bahwa katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U belum



memiliki kristalinitas yang tinggi, sehingga dapat dikatakan katalis masih bersifat amorf (mikrokristal).

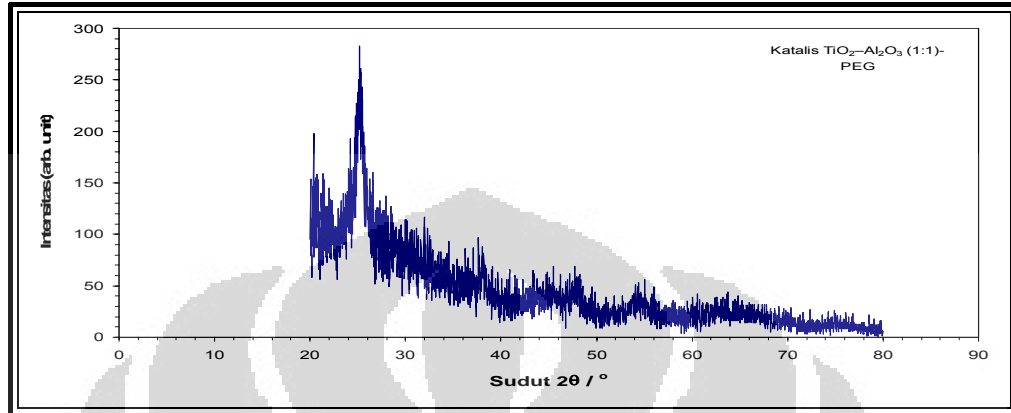
**Tabel 4.1** Data difraksi  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U hasil sintesis

Puncak	$\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ standar		$\text{TiO}_2$ anatase standar		$\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-U hasil sintesis	
	2 $\theta$	Int	2 $\theta$	Int	2 $\theta$	Int
1	31,94	20,00	25,32	100,00	24,78	100,00
2	45,86	100,00	48,07	24,92	45,95	64,42
3	67,03	100,00	62,75	11,81	65,83	70,87

Berdasarkan data hasil difraksi pada Tabel 4.1, dapat dilihat bahwa katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U mempunyai dua puncak dimana nilai sudut 2 $\theta$ -nya mempunyai kesamaan dengan data  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  standar, sedangkan satu puncak sisanya mempunyai kesamaan dengan  $\text{TiO}_2$  anatase standar. Hal ini menunjukkan bahwa katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U mengandung kedua oksida pembentuknya.

Berbeda dengan katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U, pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG dihasilkan lima puncak yang dominan. Puncak yang dihasilkan pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG lebih sempit dan lebih tajam dibandingkan katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U. Hal ini menunjukkan bahwa katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG mempunyai kristalinitas yang lebih tinggi daripada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U. Namun, katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG juga dikatakan belum

memiliki kristalinitas yang tinggi, karena puncaknya terlihat masih melebar. Spektra difraksi dari  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG dapat dilihat pada Gambar 4.3.



**Gambar 4.3** Difraktogram  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG

**Tabel 4.2** Data difraksi  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG hasil sintesis

Puncak	$\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ standar		$\text{TiO}_2$ anatase standar		$\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-PEG Hasil sintesis	
	$2\theta$	Int	$2\theta$	Int	$2\theta$	Int
1	31,94	20,00	25,32	100,00	25,23	100,00
2	37,60	80,00	37,84	19,02	38,12	25,26
3	45,86	100,00	48,07	24,92	48,04	22,21
4	60,90	30,00	53,95	15,82	54,09	24,67
5	67,03	100,00	62,75	11,81	64,43	20,49

Berdasarkan data hasil difraksi pada Tabel 4.2, dapat diketahui bahwa katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG mempunyai nilai sudut  $2\theta$  yang lebih mendekati data standar  $\text{TiO}_2$  anatase. Pada puncak yang terbentuk dihasilkan pula sudut  $2\theta$  yang mendekati nilai standar  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ , sehingga dapat diketahui bahwa pembentukan kristal  $\text{TiO}_2$  anatase lebih dominan dibandingkan  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Pembentukan  $\text{TiO}_2$  yang dominan diperkirakan karena proses pembentukan kristal  $\text{TiO}_2$  lebih cepat dibandingkan  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ , sehingga kristalinitas lebih terlihat pada  $\text{TiO}_2$ . Sedangkan  $\text{Al}_2\text{O}_3$  yang terbentuk kemungkinan masih bersifat amorf sehingga kristalinitasnya tidak terlalu terlihat. Adanya kesamaan sudut  $2\theta$  pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG dengan  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  dan  $\text{TiO}_2$  standar, menunjukkan bahwa katalis hasil sintesis tersebut mengandung kedua oksida pembentuknya.

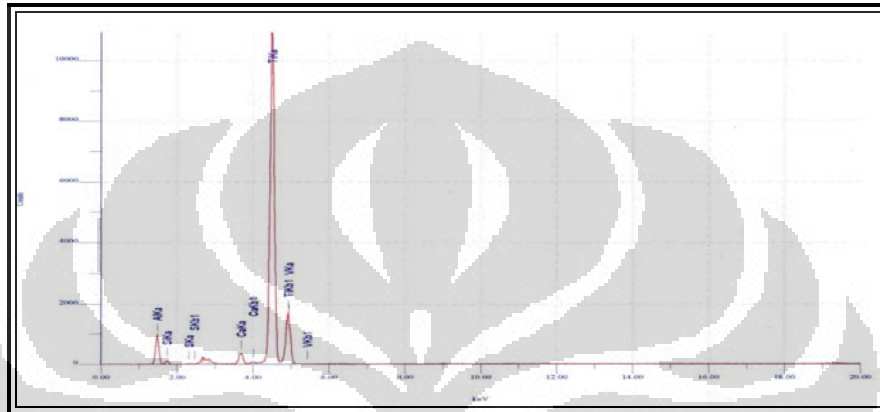
Pada penelitian ini, katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U maupun  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG mempunyai data difraksi yang hampir sama dengan data standar dari masing-masing oksida pembentuknya, sehingga dapat disimpulkan bahwa katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  mempunyai komposisi kimia yang sama dengan oksida pembentuknya.

#### **4.2.2 Karakterisasi dengan Fluoresensi Sinar-X**

Katalis yang telah dibuat pada penelitian ini, yaitu katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U dan katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG, keduanya dikarakterisasi dengan metode XRF (*X-Ray Fluorescence*) untuk mengetahui unsur penyusun serta komposisi dari kedua katalis tersebut. Data XRF yang teramati yaitu spektrum sinar-X yang berupa puncak-puncak dengan intensitas yang berbeda.

Berdasarkan data XRF, diketahui bahwa katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U mengandung unsur Al dan Ti dengan intensitas yang tinggi. Unsur Al yang

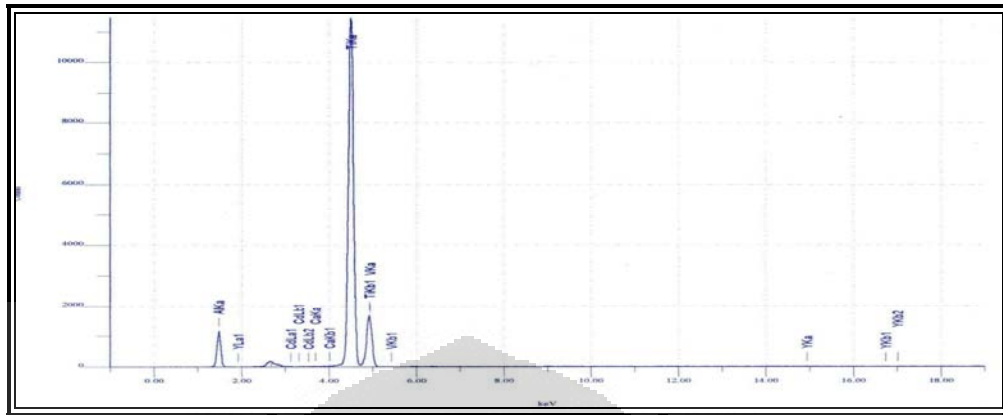
terkandung pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U sebesar 29,69%, sedangkan unsur Ti sebesar 66,10%. Berdasarkan hal tersebut, dapat diketahui bahwa unsur Ti lebih banyak daripada Al. Spektra dari katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U dapat dilihat pada Gambar 4.4.



**Gambar 4.4** Spektra XRF katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U

Berdasarkan Gambar 4.4, dapat terlihat bahwa pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U terdapat beberapa unsur selain Ti dan Al, yaitu Si, S, Ca, dan V dengan intensitas yang sangat kecil sehingga diharapkan tidak mengganggu kinerja katalis.

Pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG, terdapat pula unsur-unsur selain Ti dan Al, yaitu Ca, V, Y, dan Cd, seperti yang terlihat pada Gambar 4.5. Keberadaan unsur-unsur tersebut diperkirakan berasal dari pencucian yang kurang sempurna pada pembuatan katalis, sehingga sisa pengotor masih terdapat pada katalis. Spektra dari katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG dapat dilihat pada Gambar 4.5.



**Gambar 4.5** Spektra XRF katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG

Unsur Al yang terkandung pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG sebesar 34,52%, sedangkan unsur Ti sebesar 64,93%. Intensitas kedua unsur ini hampir sama dengan katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U.

**Tabel 4.3** Data XRF katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  hasil sintesis

Katalis	Berat (%)		Perbandingan mol (Ti : Al)	Perbandingan mol (Ti : Al) teori
	Ti	Al		
$\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-U	66,10	29,69	1,25 : 1	1:1
$\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-PEG	64,93	34,52	1,06 : 1	1:1

Berdasarkan hasil XRF pada Tabel 4.3, nilai % berat dari unsur Ti dan Al pada kedua katalis dikonversikan ke dalam bentuk mol, sehingga diperoleh perbandingan mol antara Ti dan Al. Berdasarkan perbandingan tersebut, dapat diketahui bahwa katalis hasil sintesis mempunyai perbandingan mol yang sama dengan teori, sehingga dapat disimpulkan bahwa katalis dengan perbandingan mol yang sama, yaitu 1:1, telah berhasil disintesis.

### 4.2.3 Analisis BET

Katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  hasil sintesis dianalisis menggunakan metode BET, sehingga dapat diketahui luas permukaan, volume pori, dan ukuran pori dari katalis. Hasil uji BET dapat dilihat pada Tabel 4.4 berikut.

**Tabel 4.4** Data BET katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$

Katalis	Luas Permukaan ( $\text{m}^2/\text{g}$ )	Volume Pori ( $\text{cc/g}$ )	Ukuran Pori ( $\text{\AA}$ )
$\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-U	280,70	0,10	103,00
$\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-PEG	187,70	0,07	100,40

Berdasarkan data BET pada Tabel 4.4, dapat diketahui bahwa katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U mempunyai luas permukaan, volume pori, dan ukuran pori yang lebih besar dibanding katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG. Hal tersebut disebabkan karena kemungkinan telah terjadi sintering pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG. Sintering terjadi akibat pemanasan yang terlalu lama, yaitu pada saat kalsinasi. Terjadinya sintering, dapat mengakibatkan pengecilan ukuran volume pori sehingga luas permukaannya menjadi mengecil. Sedangkan untuk  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U, besarnya luas permukaan disebabkan karena katalis masih bersifat amorf. Hal ini didasarkan pada hasil analisis dengan XRD, dimana katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U lebih bersifat amorf dibanding katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1) PEG.

Berdasarkan tabel di atas, katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U termasuk kedalam katalis yang mempunyai luas permukaan yang tinggi dan memiliki ukuran diameter pori yang sedang (mesopori). Pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG, ukuran pori yang dimiliki merupakan ukuran mesopori. Penyangga katalis umumnya dipilih dari oksida anorganik, digunakan untuk membantu penyebaran panas dari partikel logam sehingga dapat meningkatkan stabilitas termal dari logam dan menghindari hilangnya luas permukaan logam karena proses sintering.

#### **4.4 Uji Daya Katalitik Katalis Melalui Reaksi Oksidasi Stirena**

Reaksi oksidasi stirena dilakukan untuk menguji aktivitas dan selektivitas katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG dan  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U yang telah disintesis. Pada reaksi ini, katalis diharapkan dapat memutuskan ikatan rangkap rantai samping pada stirena, sehingga dapat dihasilkan konversi terhadap benzaldehida yang tinggi.

Reaksi terhadap stirena untuk memperoleh benzaldehida juga telah dilakukan oleh Puspasari<sup>[5]</sup>, yaitu reaksi oksihidrasi stirena menggunakan katalis  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  dan  $\text{V}_2\text{O}_5\text{-MoO}_3$ . Penggunaan kedua katalis tersebut menghasilkan persen konversi yang relatif rendah. Oleh karena itu, pada penelitian ini digunakan katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  agar diperoleh persen konversi terhadap benzaldehida yang lebih tinggi.

Reaksi oksidasi katalitik stirena dilakukan dalam labu bulat leher tiga yang dilengkapi dengan kondensor dan *hot plate stirrer*. Stirena dimasukkan ke dalam labu bulat leher tiga dan diberi aliran oksigen terlebih dahulu untuk mengusir  $N_2$  dan gas-gas lain yang mungkin terdapat dalam larutan. Kemudian aliran oksigen dihentikan, dan katalis dimasukkan. Aliran oksigen kembali dihubungkan pada labu. Setelah suhu mencapai  $70^\circ C$ , perhitungan waktu reaksi dimulai. Oksigen dialirkan terus-menerus selama reaksi berlangsung. Setelah reaksi selesai reaktor didinginkan ke temperatur kamar dan diputuskan dari jalur oksigen. Produk yang diperoleh kemudian dipisahkan dari katalis dan dianalisis dengan kromatografi gas. Desain reaktor oksidasi katalitik dapat dilihat pada Lampiran 3.

Menurut Nie<sup>[4]</sup>, reaksi oksidasi stirena tanpa kehadiran katalis menunjukkan adanya pembentukan benzaldehida dengan persentase yang rendah, dan sebagian besar stirena terkonversi menjadi polistirena. Pada penelitian ini juga dilakukan reaksi oksidasi stirena tanpa penambahan katalis. Kromatogram hasil oksidasi stirena tersebut dapat dilihat pada Lampiran 14.

Berdasarkan kromatogram, dapat diketahui bahwa tidak ada pembentukan benzaldehida pada reaksi tanpa penambahan katalis. Tidak terlihatnya benzaldehida sebagai produk disebabkan karena kemungkinan pembentukan benzaldehida sangat kecil sehingga tidak terdeteksi dengan alat kromatografi gas karena keterbatasan sensitivitas alat yang digunakan. Karena pembentukan polimer tidak dianalisis, maka tidak dapat diketahui



banyaknya stirena yang terkonversi menjadi polistirena. Tanpa adanya katalis, pembentukan radikal akan menginisiasi polimerisasi sehingga polimer yang terbentuk menjadi lebih banyak.

Pada reaksi dengan penambahan katalis, diharapkan bahwa katalis menyediakan suatu permukaan dimana pereaksi-pereaksi (substrat) untuk sementara teradsorpsi pada permukaan aktif katalis. Terjadinya adsorpsi memungkinkan tumbukan antar molekul reaktan yang semakin besar, dan juga meningkatkan ketepatan orientasi tumbukan. Ikatan dalam substrat-substrat menjadi lemah sedemikian sehingga memadai terbentuknya produk baru. Ikatan antara produk dan katalis lebih lemah, sehingga akhirnya terdesorpsi atau terlepas.

Aktivitas katalis untuk mengoksidasi senyawa tertentu dipengaruhi oleh beberapa faktor, yaitu senyawa aktif (katalis), muatan dan sisi oksidasi dari katalis, luas permukaan katalis dan dispersi sisi aktif, serta variasi pada kondisi operasi, seperti suhu reaksi maupun waktu reaksi. Oleh karena itu, pada reaksi katalitik oksidasi ini dilakukan beberapa variasi untuk memperoleh kondisi optimum reaksi. Variasi yang dilakukan adalah variasi berat katalis, waktu reaksi, dan suhu reaksi. Pada reaksi oksidasi stirena ini digunakan dua jenis katalis, yaitu katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U dan  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG.

Sebelum reaksi dimulai, larutan stirena berwarna bening, kemudian menjadi kekuningan setelah reaksi berlangsung selama beberapa jam. Warna kekuningan itu kemungkinan berasal dari benzaldehida, karena

benzaldehida mempunyai jangkauan warna larutan dari tidak berwarna sampai kekuningan.

Pada katalis, baik katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG maupun  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U, terjadi perubahan warna dari putih menjadi kuning setelah reaksi selesai. Terjadinya perubahan warna katalis setelah reaksi disebabkan karena kemungkinan adanya produk yang sukar terdesorpsi dari katalis.

Pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  ini, sisi aktif katalis adalah ion  $\text{Ti}^{4+}$ , sedangkan pendukung katalis yaitu  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Katalis oksida dengan katalis pendukung mempunyai beberapa keuntungan dibandingkan yang tidak berpendukung. Katalis pendukung dapat digunakan untuk memperbaiki kekuatan mekanik, stabilitas termal dan waktu hidup dari katalis. Katalis pendukung juga dapat menaikkan luas permukaan spesi aktif katalis.

#### **4.5 Analisis Hasil Reaksi Katalisis Oksidasi Stirena**

##### **4.5.2 Analisis Hasil Reaksi dengan Kromatografi Gas**

Kromatografi gas digunakan untuk analisis kualitatif dan kuantitatif terhadap produk reaksi yang dihasilkan. Analisis kualitatif dilakukan dengan cara membandingkan waktu retensi larutan sampel terhadap larutan standar. Sedangkan analisis kuantitatif diperoleh dari luas area sampel yang dianalisis. Hasil analisis dengan kromatografi gas menunjukkan waktu retensi stirena pada 4,87, sedangkan benzaldehida pada 10,59.

Berdasarkan data luas area yang diperoleh melalui analisis menggunakan kromatografi gas, dapat dihitung persen konversi benzaldehida dengan cara perhitungan yang ditunjukkan pada lampiran 15.

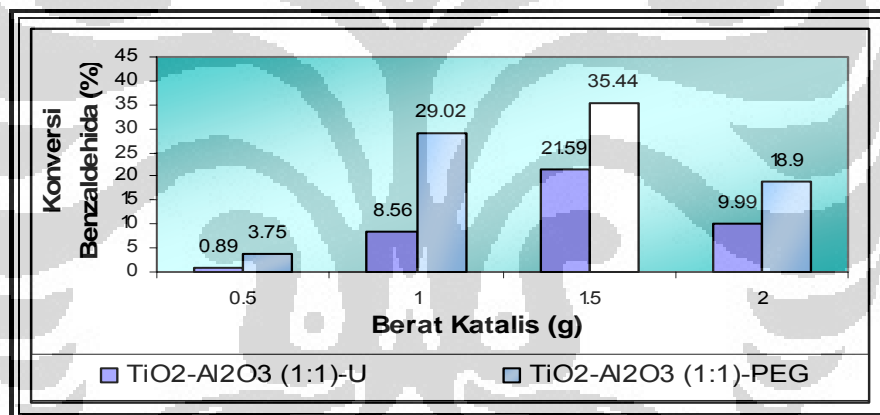
#### 4.5.2.1 Variasi Berat Katalis

Aktivitas katalis merupakan fungsi dari jumlah pusat aktif per satuan berat atau luas permukaan. Katalis yang memiliki aktivitas tinggi dapat mengkatalisis reaksi yang lebih banyak per satuan beratnya, dan ini merupakan efisiensi jumlah katalis yang digunakan. Oleh karena itu dilakukan variasi berat katalis, sehingga dapat diketahui berat katalis optimum pada reaksi oksidasi stirena. Berat katalis yang divariasikan yaitu sebesar 0,5 g, 1 g, 1,5 g, dan 2 g katalis. Data persen konversi dan selektivitas reaksi katalisis oksidasi stirena dengan variasi berat katalis dapat dilihat pada Tabel 4.5.

**Tabel 4.5** Persen konversi benzaldehida pada reaksi oksidasi katalitik stirena dengan variasi berat katalis

Berat katalis (g)	Konversi Benzaldehida (%)	
	TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-U	TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-PEG
0,5	0,89	3,75
1,0	8,56	29,02
1,5	21,59	35,44
2,0	9,99	18,90

Berdasarkan Tabel 4.5, dapat diketahui bahwa konversi benzaldehida pada reaksi oksidasi stirena menggunakan katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U dan  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG mengalami kenaikan seiring dengan kenaikan berat katalis dari 0,5 sampai 1,5 g katalis, dan menurun pada 2,0 g katalis. Konversi benzaldehida optimum diperoleh pada 1,5 g katalis, yaitu pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U sebesar 21,59%, sedangkan pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG sebesar 35,44%. Grafik persentase hasil konversi benzaldehida pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U dan  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG, dapat dilihat pada Gambar 4.6.



**Gambar 4.6** Grafik persentase hasil konversi benzaldehida dengan variasi berat katalis

Berdasarkan Gambar 4.6, diketahui bahwa pada jumlah katalis yang lebih sedikit, stirena yang terkonversi menjadi benzaldehida mempunyai nilai yang rendah. Rendahnya konversi terhadap benzaldehida disebabkan karena kurangnya sisi aktifnya dari katalis, sehingga tidak semua reaktan dapat bereaksi dengan katalis. Pada 1,5 g katalis, konversi terhadap benzaldehida

mencapai nilai optimum. Pada 2,0 g katalis, ternyata terjadi penurunan konversi benzaldehida. Semakin banyaknya jumlah katalis, maka dapat menyebabkan adanya pusat aktif yang tertutupi, sehingga proses adsorpsi reaktan terhadap katalis mengalami penurunan. Selain itu, jika berat katalis melebihi berat katalis optimum, maka sebagian dari katalis menjadi inhibitor dalam reaksi sehingga konversi menjadi lebih kecil. Oleh karena itu, berat katalis dalam suatu reaksi kimia menjadi salah satu faktor penting dalam mendapatkan kondisi yang optimum.

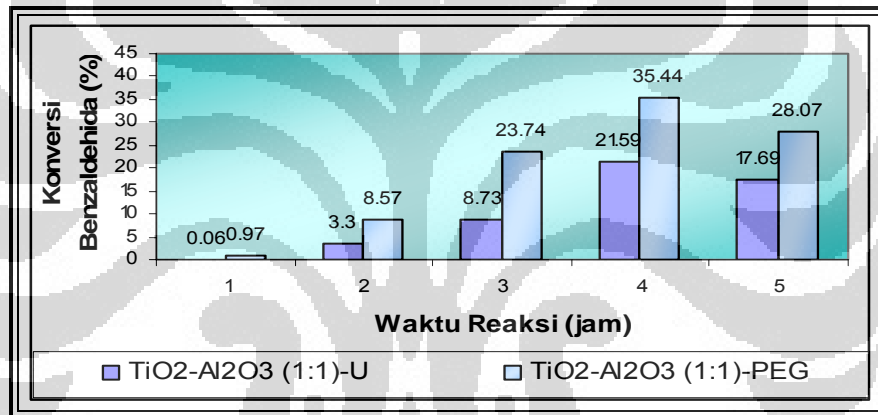
#### 4.5.2.2 Variasi Waktu Reaksi

Pada katalis, waktu kontak antara reaktan dengan katalis mempengaruhi aktivitas katalis terhadap reaksi kimia. Karena itu, dilakukan variasi waktu reaksi untuk mengetahui waktu optimum reaksi.

Reaksi oksidasi dengan variasi waktu reaksi dilakukan pada 1 jam, 2 jam, 3 jam, 4 jam, dan 5 jam reaksi. Suhu yang digunakan yaitu pada 70°C dengan menggunakan 1,5 g katalis. Penggunaan 1,5 g katalis didasarkan pada hasil reaksi sebelumnya, yaitu reaksi dengan variasi berat katalis, dimana berat katalis optimum diperoleh pada 1,5 g katalis, baik pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U maupun katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG. Persentase konversi benzaldehida pada reaksi katalisis oksidasi stirena dengan variasi waktu reaksi dapat dilihat pada Tabel 4.6.

**Tabel 4.6** Persen konversi benzaldehida pada reaksi oksidasi katalitik stirena dengan variasi waktu reaksi

Waktu (jam)	Konversi Benzaldehida (%)	
	TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-U	TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-PEG
1	0,06	0,97
2	3,30	8,57
3	8,73	23,74
4	21,59	35,44
5	17,69	28,07



**Gambar 4.7** Grafik persentase hasil konversi benzaldehida dengan variasi waktu reaksi

Berdasarkan Gambar 4.7, dapat dilihat bahwa pada reaksi selama 1 jam, diperoleh % konversi terhadap benzaldehida yang relatif rendah. Rendahnya % konversi disebabkan karena kemungkinan kurangnya waktu kontak antara katalis dengan reaktan, sehingga reaktan belum seluruhnya teradsorpsi pada katalis. Karena itu, hanya sebagian kecil dari reaktan yang bereaksi membentuk produk.

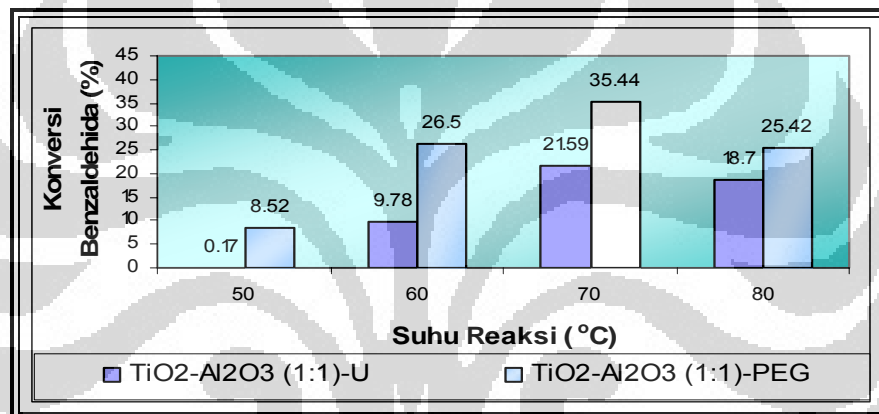
Semakin bertambah lamanya waktu reaksi, maka semakin tinggi % konversi, dan akan optimum pada waktu tertentu, lalu mengalami penurunan kembali. Persen konversi optimum diperoleh pada 4 jam reaksi, yaitu dengan % konversi benzaldehida sebesar 21,59% pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U, dan 35,44% pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG. Pada 5 jam reaksi, % konversi mengalami penurunan karena pada tahap ini telah dihasilkan produk samping yang kemungkinan tidak terdeteksi pada alat kromatografi gas. Produk samping yang dihasilkan yaitu berupa formaldehida yang kemungkinan berada dalam fasa gas. Produk samping lainnya dapat berupa polistirena yang yang tidak dapat dianalisis menggunakan kromatografi gas.

#### 4.5.2.3 Variasi Suhu Reaksi

Reaktivitas dari katalis berhubungan dengan suhu reaksi, dimana katalis mulai memiliki aktivitas yang berarti. Karena itu dilakukan variasi suhu reaksi untuk mengetahui suhu optimum reaksi. Suhu reaksi yang digunakan, yaitu 50, 60, 70, dan 80°C. Ketika suhu masih rendah, kemungkinan belum terjadi reaksi oksidasi, atau bisa saja terjadi reaksi tetapi dalam jumlah yang relatif kecil. Semakin tinggi suhu yang digunakan, reaksi yang terjadi juga bertambah banyak. Reaksi semakin meningkat sampai suhu tertentu di mana katalis telah mencapai aktivitas maksimumnya yang ditunjukkan oleh persen konversi yang optimum.

**Tabel 4.7** Persen konversi benzaldehida pada reaksi oksidasi katalitik stirena dengan variasi suhu reaksi

Suhu (°C)	Konversi Benzaldehida (%)	
	TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-U	TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-PEG
50	0,17	8,52
60	9,78	26,50
70	21,59	35,44
80	18,70	25,42



**Gambar 4.8** Grafik persentase hasil konversi benzaldehida dengan variasi suhu reaksi

Pada suhu 50°C, diperoleh persen konversi yang relatif rendah. Hal itu disebabkan karena pada suhu yang rendah, energi kinetiknya juga rendah, sehingga jumlah tumbukan yang terjadi antara reaktan dan katalis lebih kecil. Hal itu menyebabkan reaktan tidak seluruhnya teradsorpsi pada katalis, sehingga stirena tidak seluruhnya terkonversi menghasilkan produk. Selain itu, laju reaksi juga menjadi lambat. Kenaikan persen konversi optimum diperoleh saat reaksi dilakukan pada 70°C.



Pada suhu 80°C, persen konversi menurun. Penurunan itu disebabkan karena pada suhu yang lebih tinggi, energi kinetiknya meningkat sehingga jumlah tumbukan menjadi lebih sering terjadi. Hal itu menyebabkan terjadinya reaksi lebih lanjut, dimana produk yang telah dihasilkan akan bereaksi kembali dengan reaktan sehingga dihasilkan produk samping, seperti terbentuknya polistirena akibat dihasilkannya radikal oksidatif yang dapat menginisiasi pembentukan polimer.

#### 4.5.3 Analisis Hasil Reaksi dengan GC-MS

Berdasarkan hasil analisis menggunakan kromatografi gas, diketahui bahwa hasil oksidasi stirena yang utama adalah benzaldehida. Hal itu dapat diketahui dengan membandingkan waktu retensi sampel dengan standar benzaldehida. Namun, ternyata pada suhu yang lebih tinggi dihasilkan produk reaksi selain benzaldehida, karena terdapat puncak-puncak lain pada kromatogram. Oleh karena itu, untuk mengetahui spesi apa yang terbentuk pada suhu yang lebih tinggi, maka dilakukan analisis dengan GC-MS.

Sampel yang dianalisis dengan GC-MS adalah sampel hasil reaksi oksidasi stirena pada suhu 80°C dengan menggunakan katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U, yang mempunyai puncak terbanyak pada analisis dengan kromatografi gas. Dengan demikian dapat diketahui produk samping apa saja yang terdapat pada hasil reaksi oksidasi stirena. Gambar spektrum GC-MS hasil oksidasi stirena dapat dilihat pada Lampiran 16.

Analisis dengan GC-MS menghasilkan spektrum dengan waktu retensi tertentu. Dengan membandingkan spektrum massa dari komponen sampel dengan literatur pada komputer GC-MS, maka senyawa kimia yang tidak diketahui dapat diidentifikasi.

Pada kromatogram GC-MS, diketahui bahwa waktu retensi stirena adalah pada 5,27, sedangkan benzaldehida pada 5,92. Berdasarkan kromatogram ini, diketahui bahwa pada reaksi dengan suhu 80°C telah terbentuk pula formaldehida, fenil asetaldehida, stirena oksida, asetofenon, dan asam benzoat yang berjumlah sangat sedikit, seperti yang terlihat pada Tabel 4.8.

**Tabel 4.8** Hasil GC-MS pada reaksi dengan 1,5 g katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U pada 80°C selama 4 jam

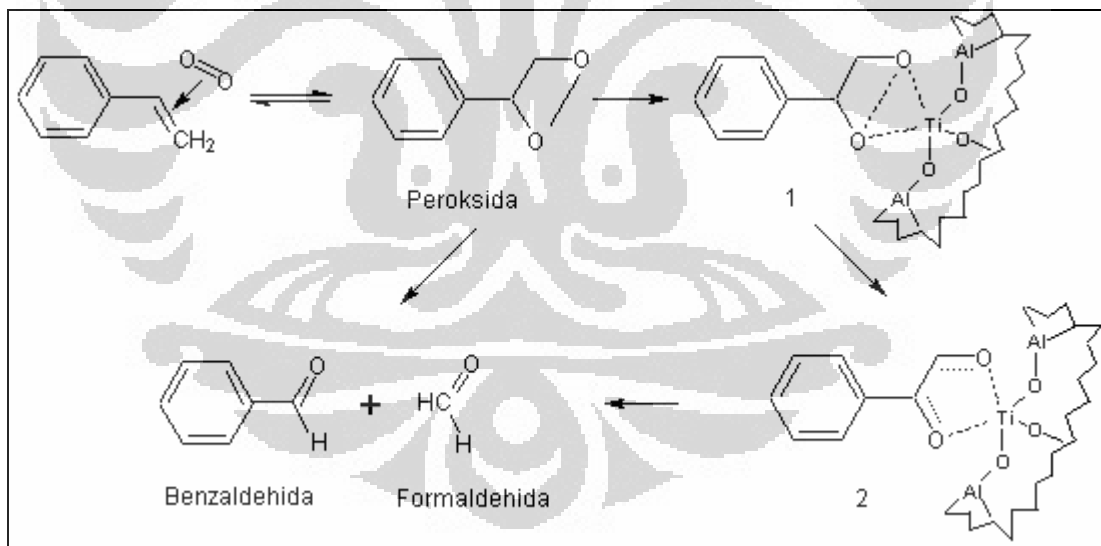
No	Waktu retensi	% area	Identifikasi
1	3,78	0,26	Formaldehida
2	5,27	21,13	Stirena
3	5,92	9,63	Benzaldehida
4	6,81	0,22	Fenil asetaldehida
5	7,02	1,35	Stirena oksida
6	7,31	0,44	Asetofenon
7	8,22	0,04	Asam benzoat

#### 4.6 Mekanisme Reaksi Oksidasi Stirena<sup>[4]</sup>

Reaksi oksidasi pada permukaan katalis mungkin melibatkan beberapa tahap mekanisme tergantung pada katalis dan senyawa yang

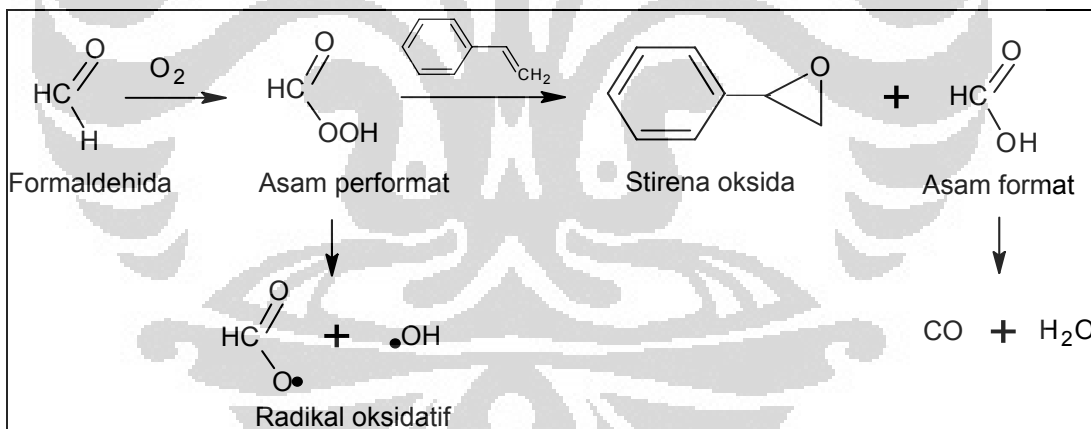
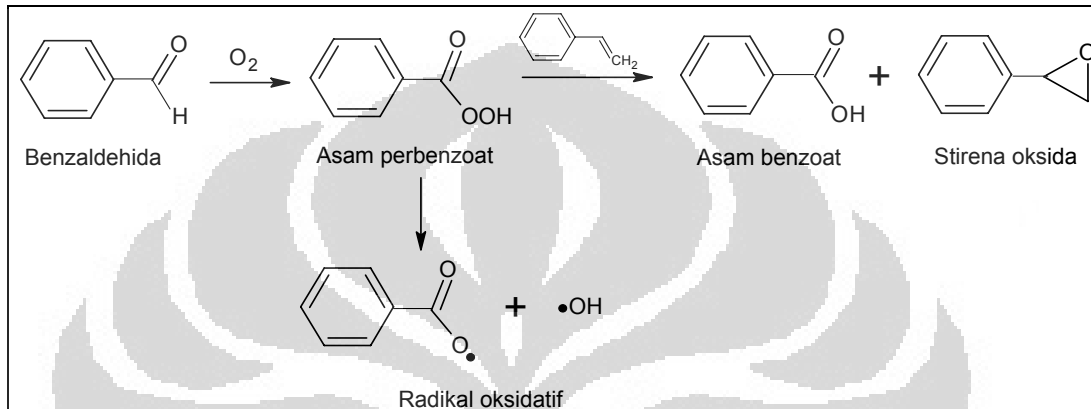
bereaksi. Pada reaksi katalitik oksidasi stirena ini diusulkan mekanisme reaksi sebagai berikut: Pada tahap awal, oksigen yang mempunyai pasangan elektron bebas akan menyerang ikatan rangkap pada reaktan yang mempunyai kerapatan yang lebih rendah, sehingga terjadi reaksi auto-oksidasi non katalitik, yang membentuk peroksida yang akan terdekomposisi menjadi benzaldehida dan formaldehida.

Sedangkan dengan kehadiran katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ , maka peroksida akan berinteraksi dengan sisi aktif  $\text{Ti}^{4+}$  dengan menempati orbital kosong pada  $\text{Ti}^{4+}$  sehingga membentuk intermediet 1 dan 2, dan akan memecah ikatan C-C dan O-O membentuk benzaldehida dan formaldehida dengan cepat. Mekanisme dari reaksi oksidasi stirena adalah sebagai berikut:

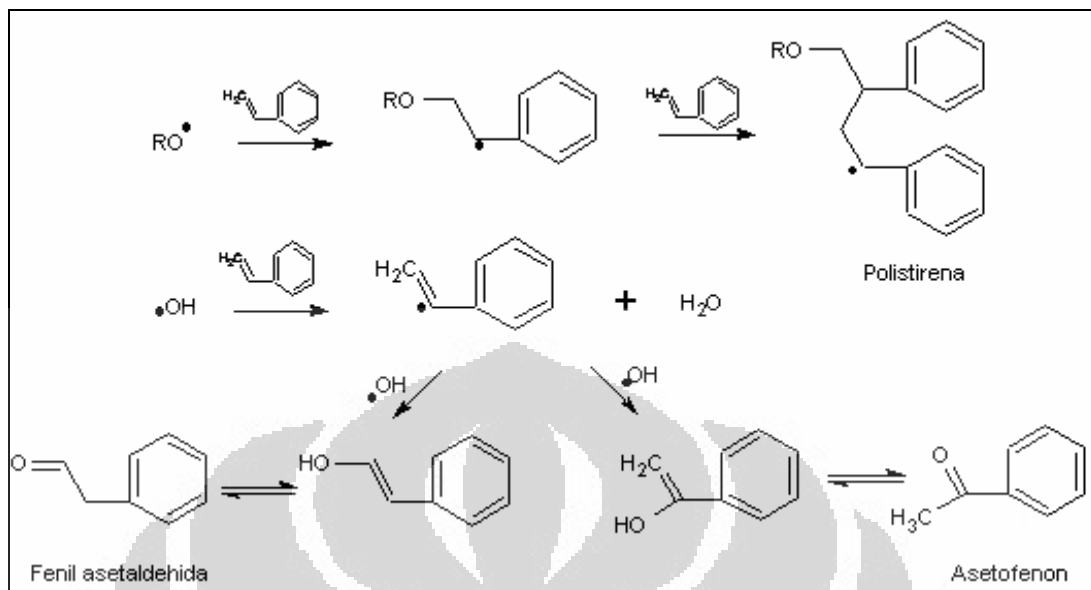


Jika reaksi dilakukan pada suhu yang lebih tinggi, laju reaksi pembentukan produk akan meningkat, sehingga diperkirakan akan terjadi reaksi lebih lanjut sehingga pembentukan produk samping akan meningkat. Produk reaksi seperti benzaldehida dan formaldehida akan bereaksi kembali

dengan reaktan yang masih tersisa sehingga dihasilkan produk samping. Benzaldehida akan bereaksi dengan molekul oksigen membentuk asam perbenzoat. Asam perbenzoat akan bereaksi kembali dengan stirena sisa membentuk asam benzoat dan stirena oksida.



Selain itu, asam perbenzoat juga akan terdekomposisi membentuk radikal oksidatif. Radikal oksidatif ini dapat menginisiasi polimerisasi stirena untuk membentuk polistirena. Selain itu, pembentukan OH radikal dapat membentuk produk samping lain seperti fenil asetaldehida dan asetofenon.



## 4.7 Regenerasi Katalis

### 4.7.2 Katalis Hasil Regenerasi

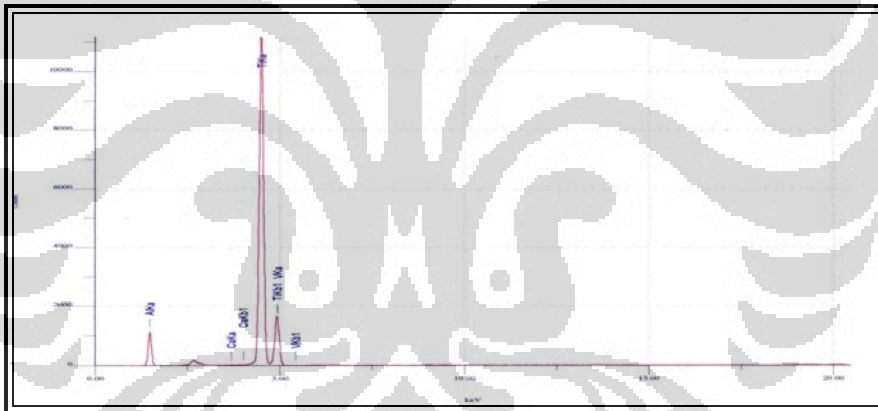
Salah satu kelebihan dari katalis heterogen adalah kemudahannya diregenerasi setelah digunakan untuk suatu reaksi. Regenerasi adalah proses mengembalikan aktivitas dan selektivitas katalis seperti semula. Katalis yang telah diregenerasi dapat digunakan kembali untuk reaksi selanjutnya.

Regenerasi katalis hanya dilakukan terhadap katalis  $TiO_2-Al_2O_3$  (1:1)-PEG, karena katalis ini mempunyai daya katalitik yang lebih bagus dibandingkan dengan katalis  $TiO_2-Al_2O_3$  (1:1)-U. Regenerasi katalis dilakukan dengan cara mencuci katalis yang telah terpakai menggunakan etanol 96% untuk menghilangkan sisa stirena maupun produk reaksi yang

masih menempel pada katalis. Katalis dikalsinasi pada 500°C selama 5 jam untuk mengaktifkan kembali katalis TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (1:1)-PEG. Melalui pemanasan pada 500°C, diharapkan katalis terbebas dari pengotor dan sisa reaktan maupun produk yang masih menempel pada katalis.

#### 4.7.3 Karakterisasi Katalis Hasil Regenerasi dengan XRF

Katalis hasil regenerasi dikarakterisasi menggunakan XRF untuk mengetahui apakah kandungan unsur Al dan Ti dalam katalis mengalami perubahan atau tidak.



**Gambar 4.9** Spektra XRF katalis hasil regenerasi

**Tabel 4.9** Perbandingan data difraksi TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (1:1)-PEG baru dengan hasil regenerasi

Katalis	Berat (%)		Perbandingan mol (Ti : Al)
	Ti	Al	
TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-PEG	64,93	34,52	1,06 : 1
TiO <sub>2</sub> -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (1:1)-PEG hasil regenerasi	65,15	34,62	1,06 : 1

Berdasarkan data XRF diketahui bahwa komposisi unsur Al maupun Ti tidak mengalami perubahan yang signifikan, sehingga diharapkan katalis hasil regenerasi ini mempunyai daya katalitik yang tidak jauh berbeda dengan katalis baru.

#### **4.7.4 Uji Daya Katalitik Katalis Hasil Regenerasi**

Katalis yang telah diregenerasi lalu diuji daya katalitiknya pada reaksi oksidasi stirena yang mempunyai hasil yang optimum, yaitu reaksi oksidasi pada 70°C selama 4 jam reaksi dengan menggunakan 1,5 g katalis. Berdasarkan kromatogram, reaksi tersebut menghasilkan % konversi benzaldehida sebesar 34,93%. Sebelum regenerasi, hasil konversi yang diperoleh sebesar 35,44%. Reaksi menggunakan katalis hasil regenerasi ini menghasilkan % konversi yang lebih rendah dibandingkan katalis sebelum regenerasi. Penurunan % konversi diperkirakan karena adanya sedikit penurunan daya katalitik dari katalis hasil regenerasi.

## BAB V

### KESIMPULAN DAN SARAN

#### 2.17 Kesimpulan

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan, dapat ditarik beberapa kesimpulan sebagai berikut:

1. Katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U dan  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG dapat disintesis dari  $\text{Al}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{TiCl}_4$ .
2. Reaksi katalisis oksidasi stirena dapat dilakukan dengan katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U maupun  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG, dan memiliki selektivitas yang tinggi terhadap benzaldehida.
3. Uji daya katalitik katalis melalui reaksi katalisis oksidasi stirena, menghasilkan persen konversi optimum sebesar 21,59% pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U, dan 35,44% pada katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG, menggunakan masing-masing 1,5 g katalis pada suhu  $70^\circ\text{C}$  selama 4 jam reaksi.



## 2.18 Saran

1. Melakukan analisis kromatografi online sehingga produk reaksi dapat sepenuhnya dianalisis tanpa adanya produk yang menguap atau berubah menjadi produk lain.
2. Melakukan variasi waktu kalsinasi pada pembuatan katalis agar diperoleh waktu kalsinasi yang optimum.



## DAFTAR PUSTAKA

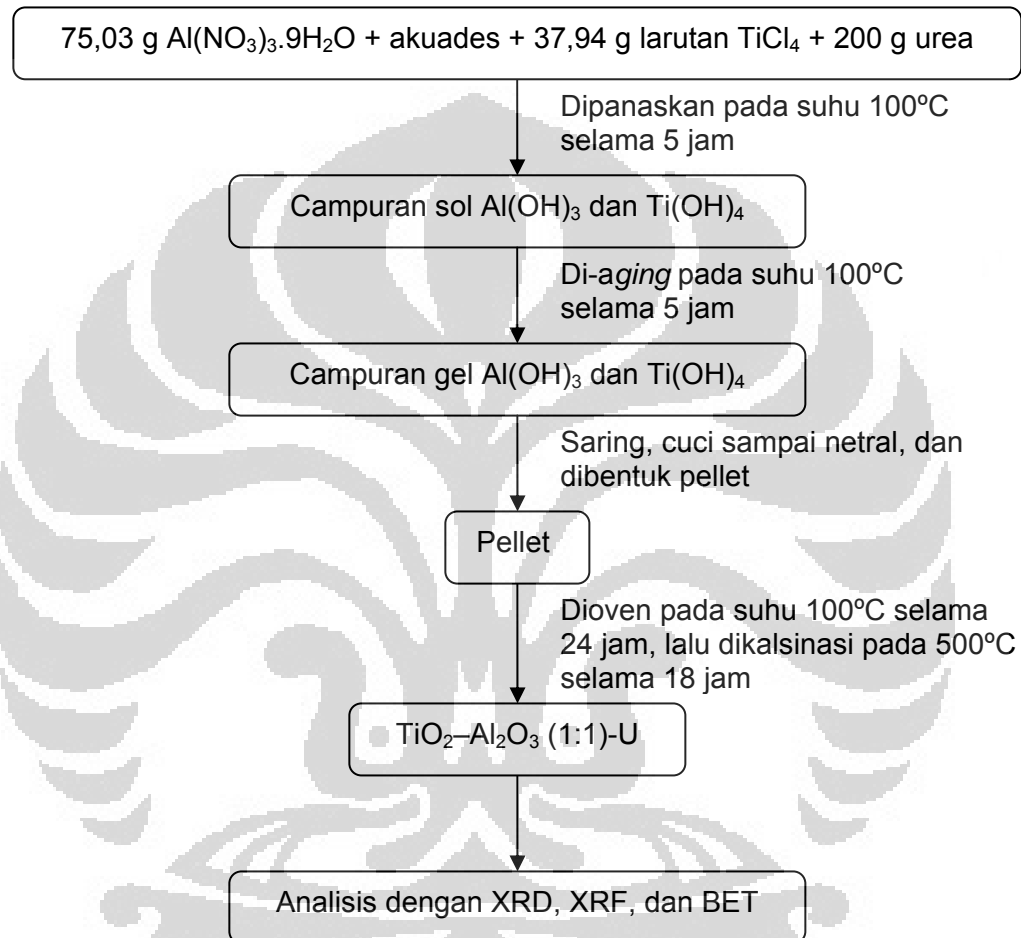
1. Augustine, R.L., 1996. *Heterogenous Catalysis for the Synthetic Chemistry*, first edition, Marcel Dekker Inc. New York.
2. Tanabe, K., et al. *Solid Acid and Base Catalyst, Catalyst Science and Technology, Vol. 2*. New York.
3. <http://www.wikipedia.org/wiki/benzaldehyde>. (14 Mei 2008, 10.13 am)
4. Nie, Liang., et al. 2006. *Benzaldehyde synthesis from styrene oxidation by O<sub>2</sub> over TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>*. OLCC-Lindsay (Oakley-Lindsay Center), 274.
5. Puspasari, Khumaira. 2002. *Pembuatan Katalis dan untuk Studi Banding Daya Katalitiknya Terhadap Reaksi Oksihidrasi Stirena Menjadi Benzaldehyda*. Skripsi Sarjana Kimia FMIPA UI.
6. Atkins, P.W. 1997. *Kimia Fisik Jilid 2. Edisi keempat*. Jakarta: Penerbit Erlangga.
7. Handoko, D. Setyawan P. 2003. *Aktivitas Katalis Cr/Zeorlit dalam Reaksi Konversi Katalitik Fenol dan Metil Isobutil Keton*. Jember: Jurnal Ilmu Dasar Vol. 4 No. 2: 70-76.
8. <http://www.dielselset.com>. *Catalyst Fundamental*. (24 September 2007, 09.36 am)
9. Gates, B.C. 1979. *Chemistry and Catalytic Process*. New York: Mc Graw Hill.

10. Satterfield, C. N. 1991. *Chemistry and Catalyst in Industrial Practice*. New York: Mc Graw Hill.
11. Cotton, F. Albert., Wilkinson, Geoffrey. 1989. *Kimia Anorganik Dasar*. Jakarta: Penerbit Universitas Indonesia (UI-Press).
12. Ollis, D.F., & Al-Ekabi (editor). 1993. *Photocatalytic Purification and Treatment of Water and Air*, Elsevier, Amsterdam.
13. Rodenas, Elvira., et al. 1981. *Surface and Catalytic Properties of TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>*. *Journal of Catalysis* 69, 432-444.
14. Fessenden dan Fessenden. 1991. *Kimia Organik. Jilid 1. Edisi ketiga*. Jakarta: Penerbit Erlangga.
15. <http://www.wikipedia.org/wiki/styrene>. (10 Mei 2008, 9.23 am)
16. Cullity, B.D. 1956. *Elements of X-Ray Diffraction*. Massachusetts: Addison-Wesley Publishing Company, Inc.
17. [http://www.rigaku.com/xrf/about\\_tech](http://www.rigaku.com/xrf/about_tech). (24 Mei 2008, 11.25 am)
18. Wibowo, Widayanti. 2004. *Hand Out Kuliah Kapita Selekt Kimia Fisik III: Katalis Heterogen dan Reaksi Katalisis*. Depok: Departemen Kimia FMIPA UI.
19. Sunardi. 2006. *Penuntun Praktikum Kimia Analisa Instrumentasi*. Depok: Departemen Kimia FMIPA UI.
20. <http://www.chemsoc.org/GC-MS>. (16 Mei 2008, 10.28 am)

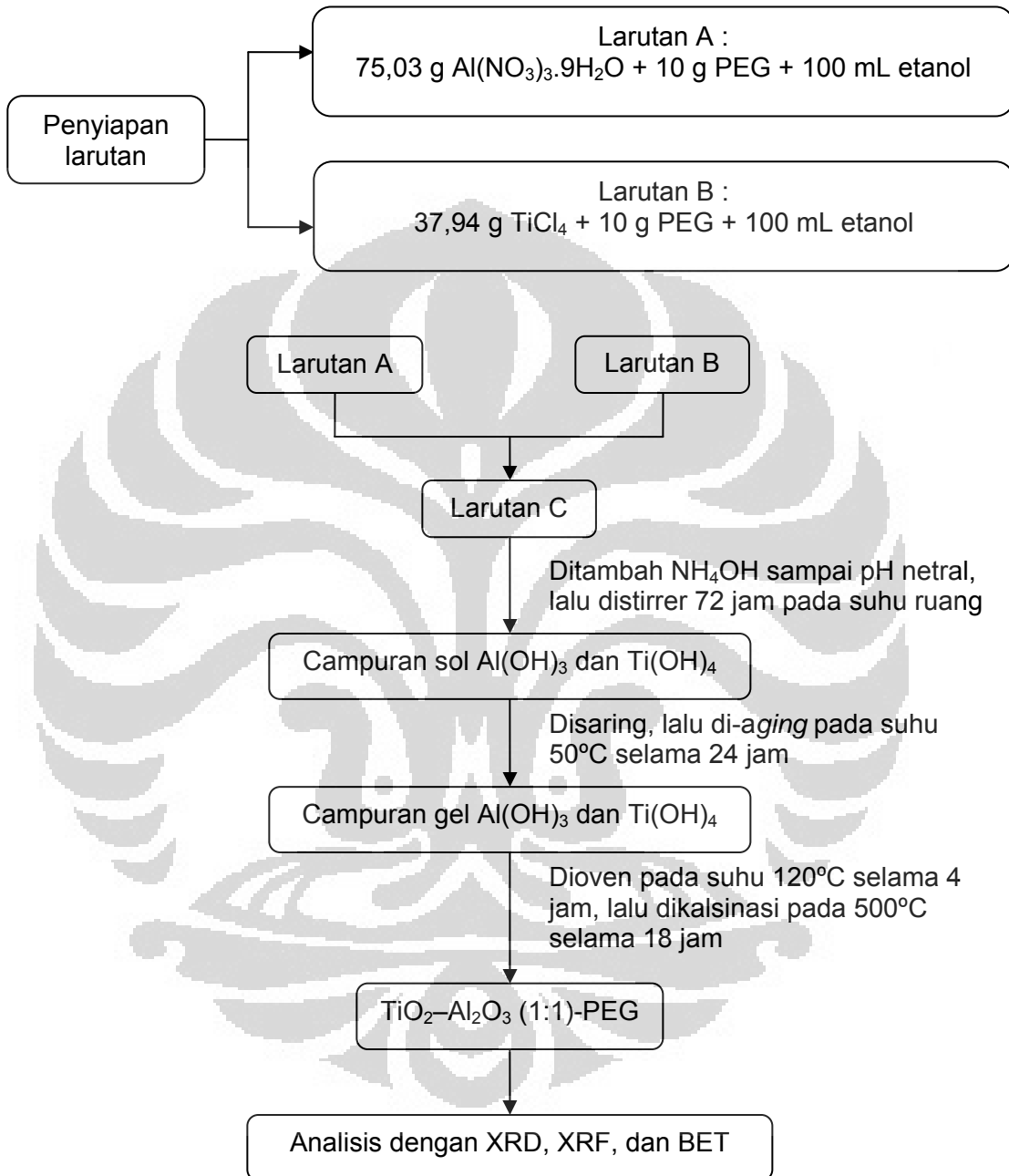


## LAMPIRAN 1: Bagan Kerja Pembuatan Katalis

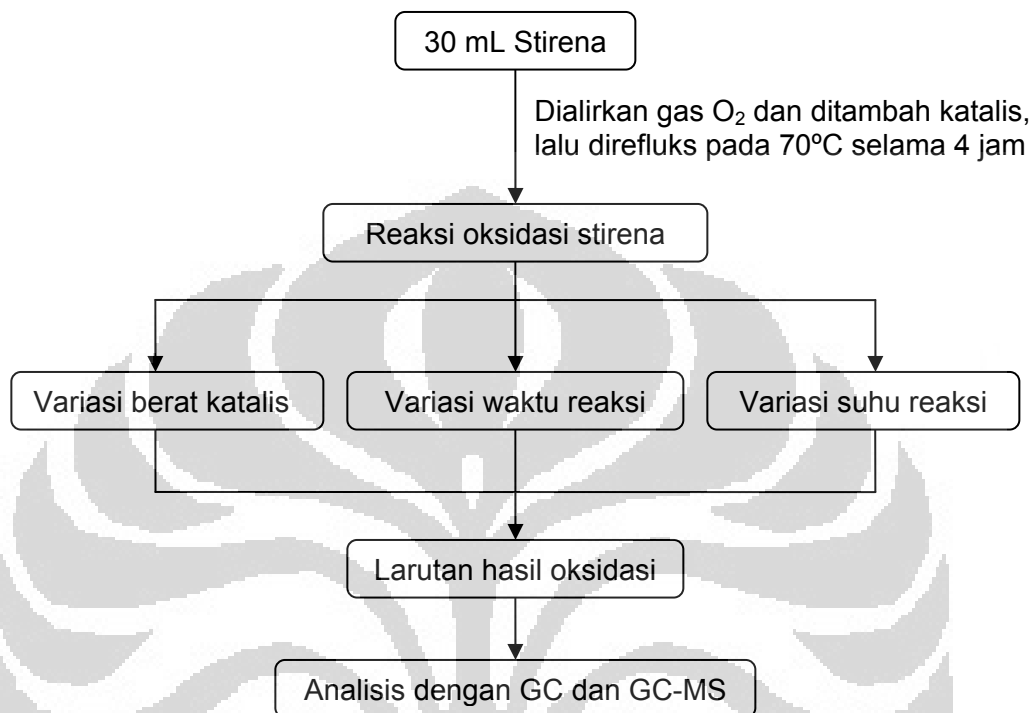
- $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-U



- Katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG

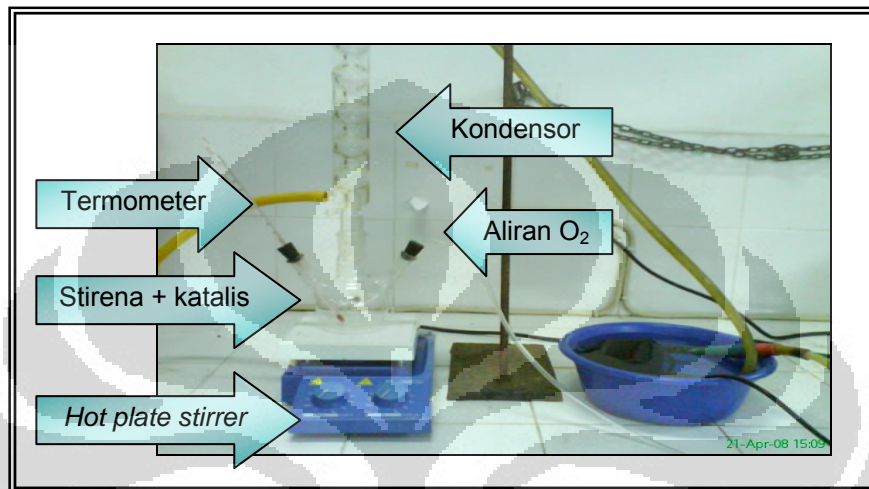


## LAMPIRAN 2: Bagan Kerja Reaksi Oksidasi Katalitik



### LAMPIRAN 3: Alat yang Digunakan pada Penelitian

- Desain reaktor oksidasi katalitik



- Peralatan *aging*





- Instrumen XRD (*X-Ray Diffraction*)



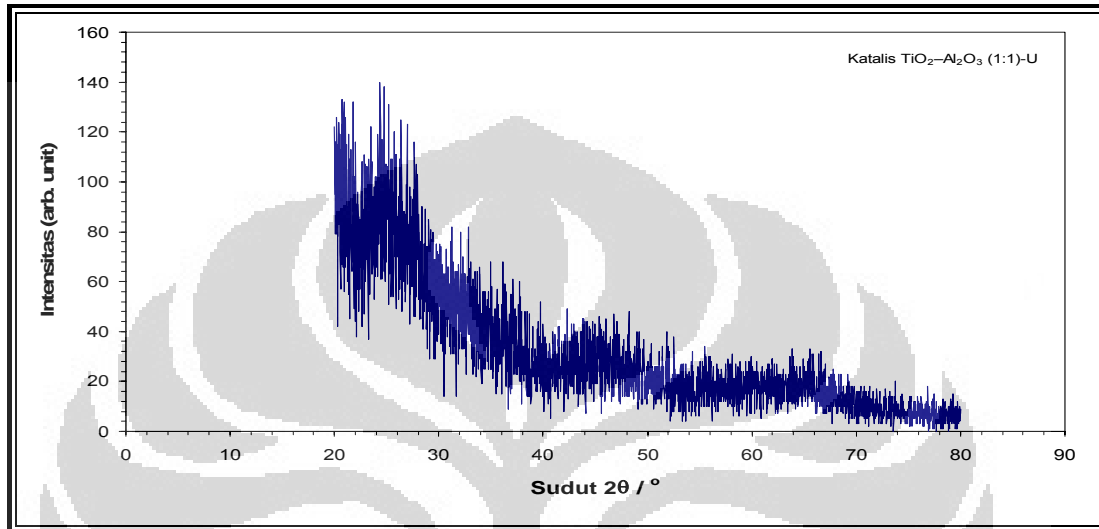
- Instrumen XRF (*X-Ray Fluorescence*)



- Instrumen Kromatografi Gas



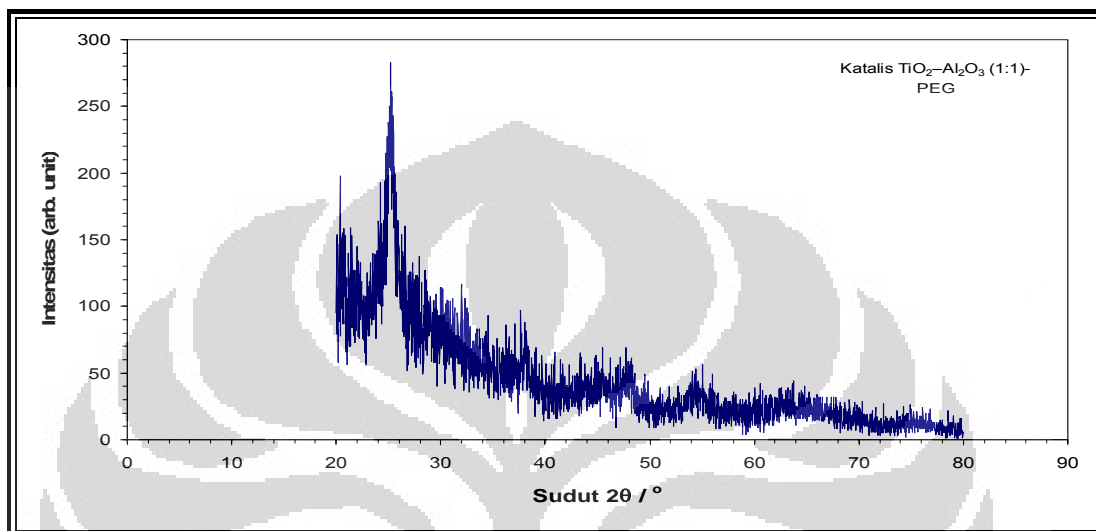
**LAMPIRAN 4: Spektra dan Data Difraksi Sinar-X pada Katalis TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>  
(1:1)-U**



No.	Pos. [°2Th.]	FWHM [°2Th.]	Area [cts*°2Th.]	Backgr. [cts]	d-spacing [Å]	Height [cts]	Rel. Int. [%]
1	24.7783	3.072	15.91	10	3.5903	3.88	100
2	45.9461	7.68	25.62	5	1.97362	2.5	64.42
3	65.8336	6.144	22.55	4	1.4175	2.75	70.87

## LAMPIRAN 5: Spektra dan Data Difraksi Sinar-X pada Katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$

### (1:1)-PEG

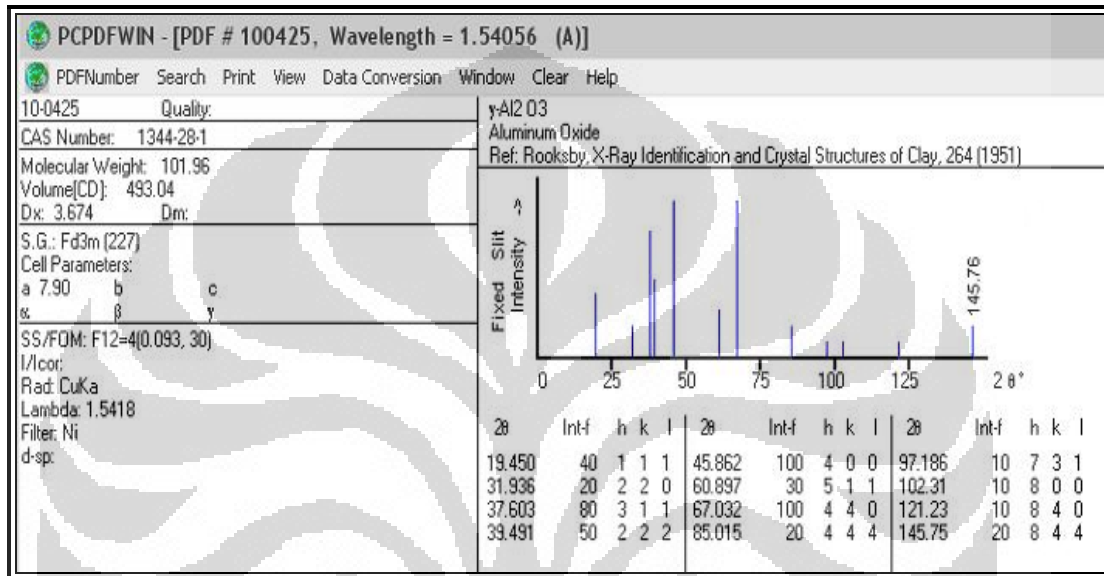


No.	Pos. [°2 $\theta$ .]	FWHM [°2 $\theta$ .]	Area [cts*°2 $\theta$ .]	Backgr. [cts]	d-spacing [Å]	Height [cts]	Rel. Int. [%]
1	25.2275	1.152	38.36	11	3.52738	24.97	100
2	38.1237	1.152	9.69	8	2.35862	6.31	25.26
3	48.0444	2.304	17.04	6	1.89221	5.55	22.21
4	54.0891	2.304	18.93	4	1.69414	6.16	24.67
5	64.4282	7.68	52.39	4	1.44498	5.12	20.49

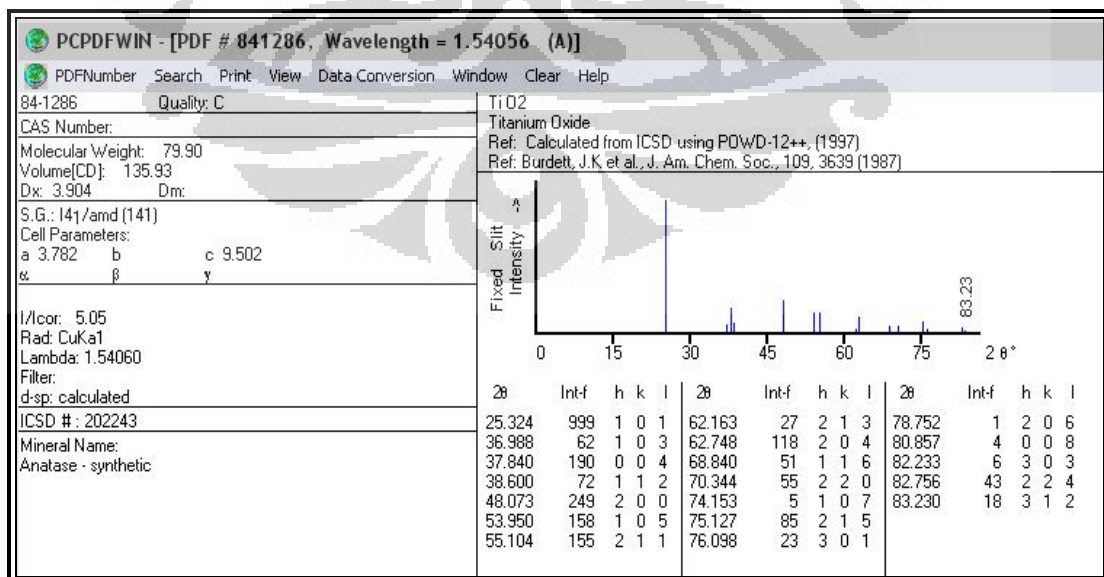
## LAMPIRAN 6: Spektra dan Data Difraksi Sinar-X $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Standar dan

### TiO<sub>2</sub> Anatase Standar

#### $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Standar

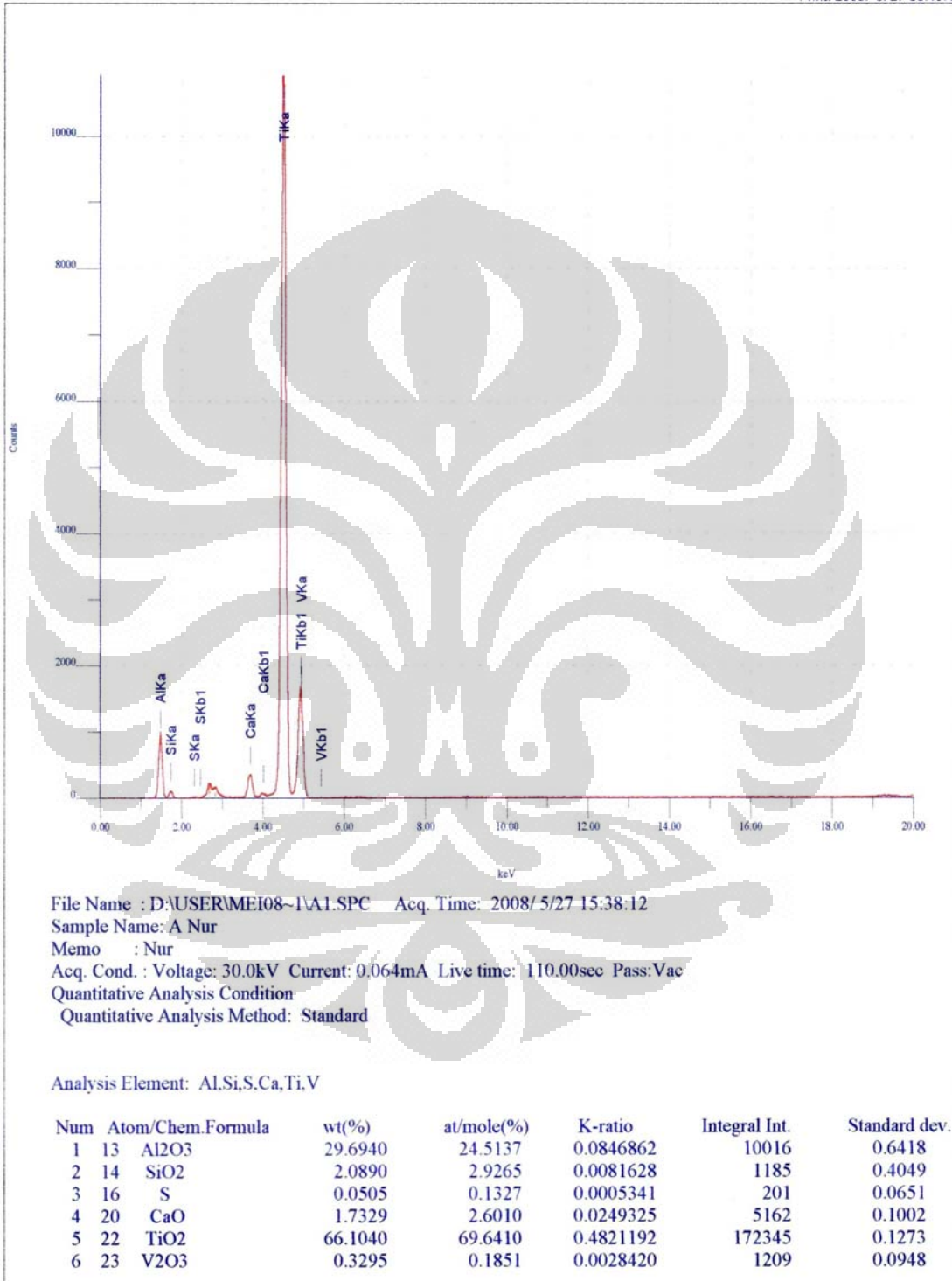


#### TiO<sub>2</sub> Anatase Standar



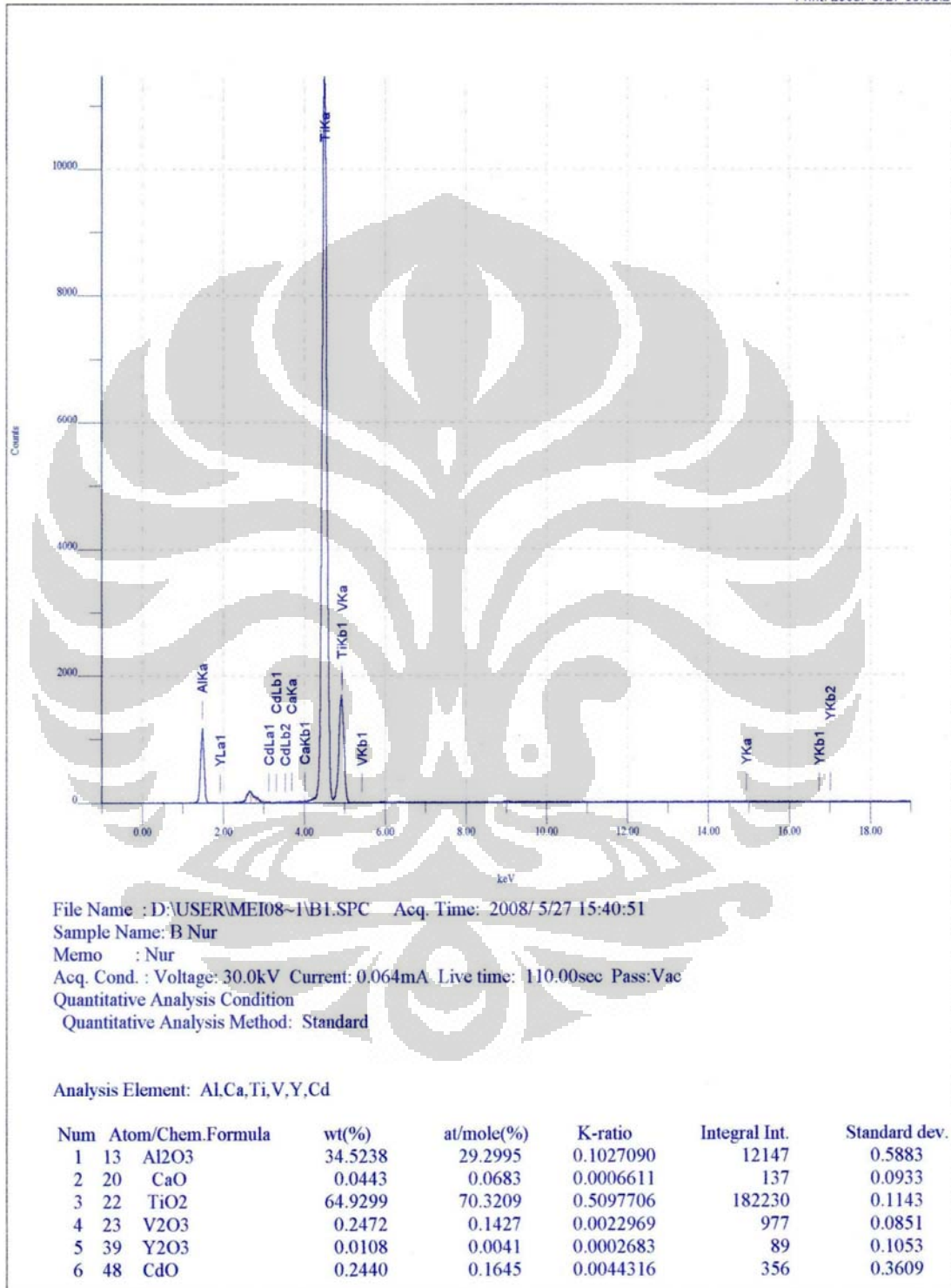
## LAMPIRAN 7: Spektra dan Data XRF pada Katalis TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (1:1)-U

Print: 2008/ 5/27 15:49:46



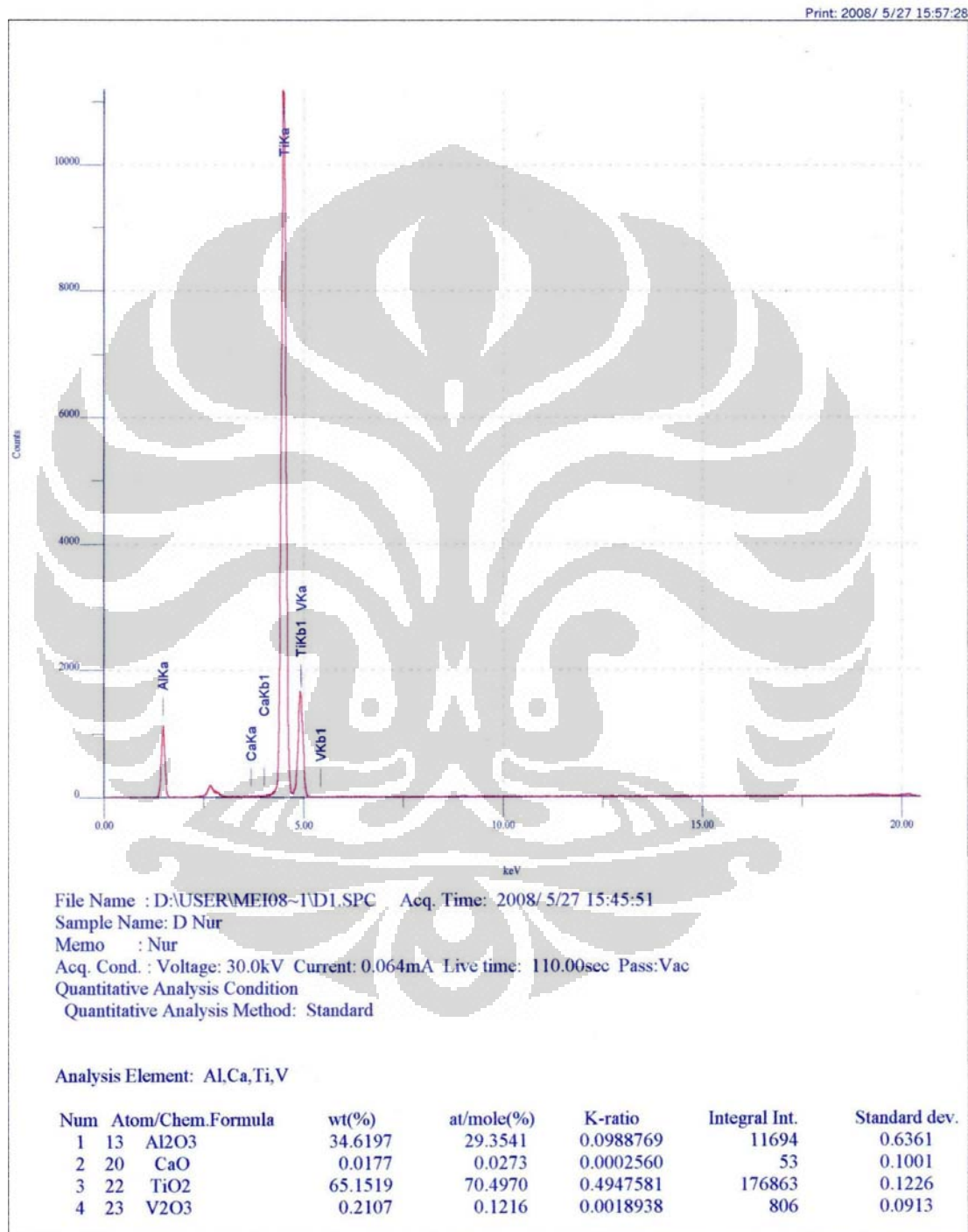
## LAMPIRAN 8: Spektra dan Data XRF pada Katalis TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (1:1)-PEG

Print: 2008/ 5/27 15:51:21





## LAMPIRAN 9: Spektra dan Data XRF Katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ (1:1)-PEG Hasil Regenerasi



# LAMPIRAN 10 : Data Hasil Uji BET pada Katalis TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (1:1)-U

Date: 06/12/2008		Page 1			
Quantachrome Corporation Quantachrome Autosorb Automated Gas Sorption System Report Autosorb for Windows® for AS-3 and AS-6 Version 1.23					
Sample ID	Sampel A				
Description	Mipa				
Comments					
Sample Weight	0.9203 g	Outgas Temp	250.0 °C	Operator	Jajat
Adsorbate	NITROGEN	Outgas Time	2.0 hrs	Analysis Time	103.1 min
Cross-Sec Area	16.2 Å <sup>2</sup> /molecule	P/Po Toler	3	End of Run	06/12/2008 11:11
NonIdeality	6.580E-05	Equil Time	2	File Name	A8612015.RAW
Molecular Wt	28.0134 g/mol	Bath Temp.	77.40	PC SW Version	Pre-1.20
Station #	5				
AREA-VOLUME-PORE SIZE SUMMARY					
SURFACE AREA DATA					
Multipoint BET.....	2.137E+02	m <sup>2</sup> /g			
Langmuir Surface Area.....	3.315E+02	m <sup>2</sup> /g			
t-Method External Surface Area.....	2.073E+02	m <sup>2</sup> /g			
t-Method Micro Pore Surface Area.....	6.407E+00	m <sup>2</sup> /g			
DR Method Micro Pore Area.....	2.807E+02	m <sup>2</sup> /g			
PORE VOLUME DATA					
t-Method Micro Pore Volume.....	1.665E-03	cc/g			
DR Method Micro Pore Volume.....	9.977E-02	cc/g			
HK Method Cumulative Pore Volume.....	8.522E-02	cc/g			
SF Method Cumulative Pore Volume.....	8.727E-02	cc/g			
PORE SIZE DATA					
DR Method Micro Pore Width .....	1.030E+02	Å			
DA Method Pore Diameter (Mode).....	1.840E+01	Å			
HK Method Pore Width (Mode).....	1.408E+01	Å			
SF Method Pore Diameter (Mode).....	2.630E+01	Å			
DATA REDUCTION PARAMETERS					
Thermal Transpiration : OFF					
Last Po Acquired 760.04 mm Hg					
Additional Initialization Information Not Recorded.					
BJH/DH Moving Average Size : 1					
Interaction Constant (K) 2.9600 nm <sup>3</sup> x kJ/mol					



# LAMPIRAN 11 : Data Hasil Uji BET pada Katalis TiO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (1:1)-PEG

Date: 06/12/2008		Page 1	
Quantachrome Corporation Quantachrome Autosorb Automated Gas Sorption System Report Autosorb for Windows® for AS-3 and AS-6 Version 1.23			
Sample ID	B		
Description	MIPA		
Comments			
Sample Weight	0.4015 g		
Adsorbate	NITROGEN	Outgas Temp	150.0 °C
Cross-Sec Area	16.2 Å <sup>2</sup> /molecule	Outgas Time	2.0 hrs
NonIdeality	6.580E-05	P/Po Toler	3
Molecular Wt	28.0134 g/mol	Equil Time	2
Station #	4	Bath Temp.	77.40
		Operator	Jajat
		Analysis Time	55.4 min
		End of Run	06/11/2008 14:19
		File Name	A8611014.RAW
		PC SW Version	Pre-1.20
AREA-VOLUME-PORE SIZE SUMMARY			
SURFACE AREA DATA			
Multipoint BET.....	1.434E+02	m <sup>2</sup> /g	
Langmuir Surface Area.....	2.239E+02	m <sup>2</sup> /g	
t-Method External Surface Area.....	1.363E+02	m <sup>2</sup> /g	
t-Method Micro Pore Surface Area.....	7.105E+00	m <sup>2</sup> /g	
DR Method Micro Pore Area.....	1.877E+02	m <sup>2</sup> /g	
PORE VOLUME DATA			
t-Method Micro Pore Volume.....	2.605E-03	cc/g	
DR Method Micro Pore Volume.....	6.669E-02	cc/g	
HK Method Cumulative Pore Volume.....	5.743E-02	cc/g	
SF Method Cumulative Pore Volume.....	5.884E-02	cc/g	
PORE SIZE DATA			
DR Method Micro Pore Width .....	1.004E+02	Å	
DA Method Pore Diameter (Mode).....	1.780E+01	Å	
HK Method Pore Width (Mode).....	1.842E+01	Å	
SF Method Pore Diameter (Mode).....	3.497E+01	Å	
DATA REDUCTION PARAMETERS			
Thermal Transpiration : OFF			
Last Po Acquired 751.50 mm Hg			
Additional Initialization Information Not Recorded.			
BJH/DH Moving Average Size : 1			
Interaction Constant (K) 2.9600 nm <sup>3</sup> x kJ/mol			

## LAMPIRAN 12: Kromatogram Hasil Reaksi dengan Katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$

(1:1)-U

Hasil Reaksi dengan Variasi Berat Katalis

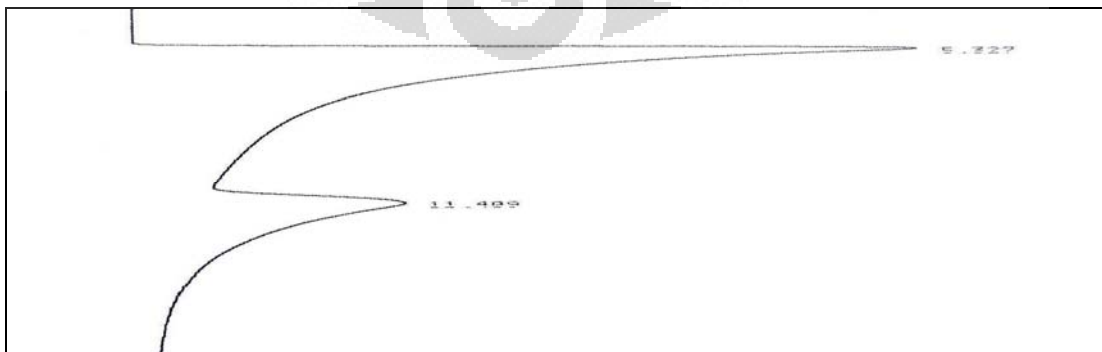
- 0.5 g



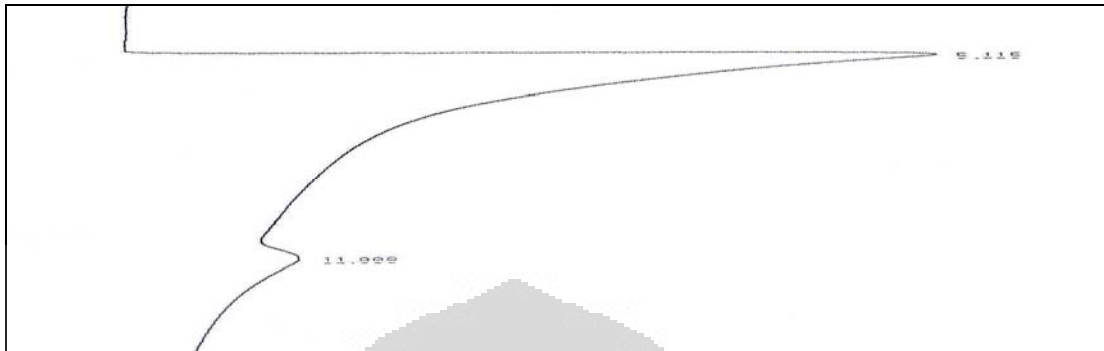
- 1 g



- 1,5 g

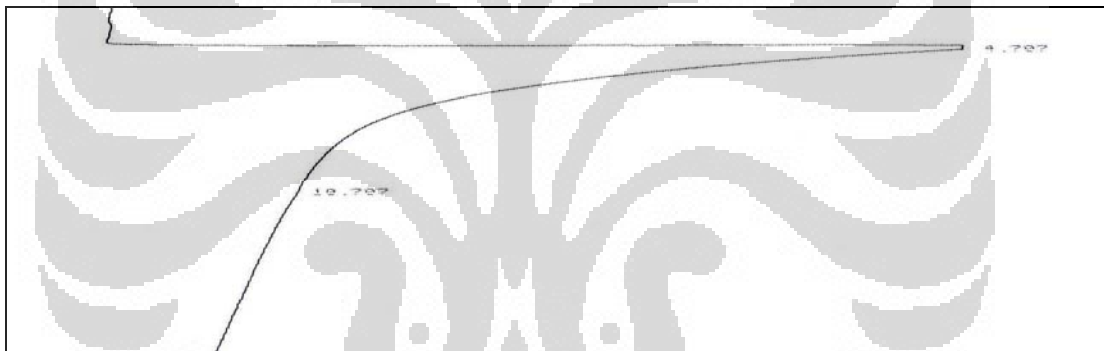


- 2 g

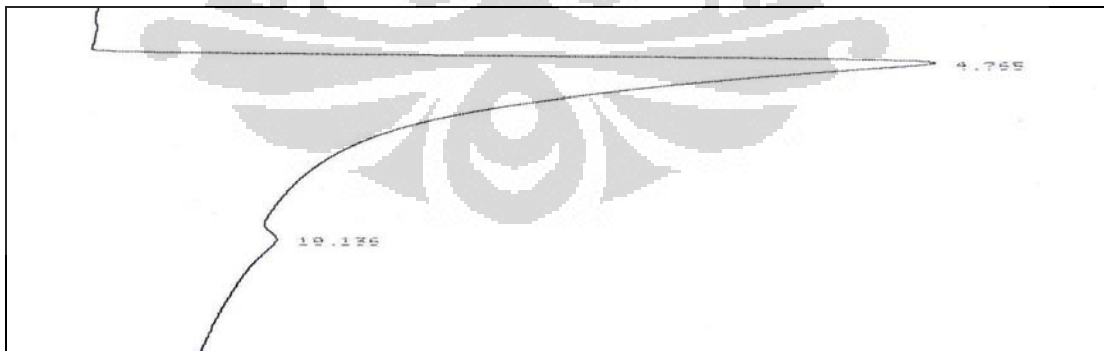


Hasil Reaksi dengan Variasi Waktu Reaksi

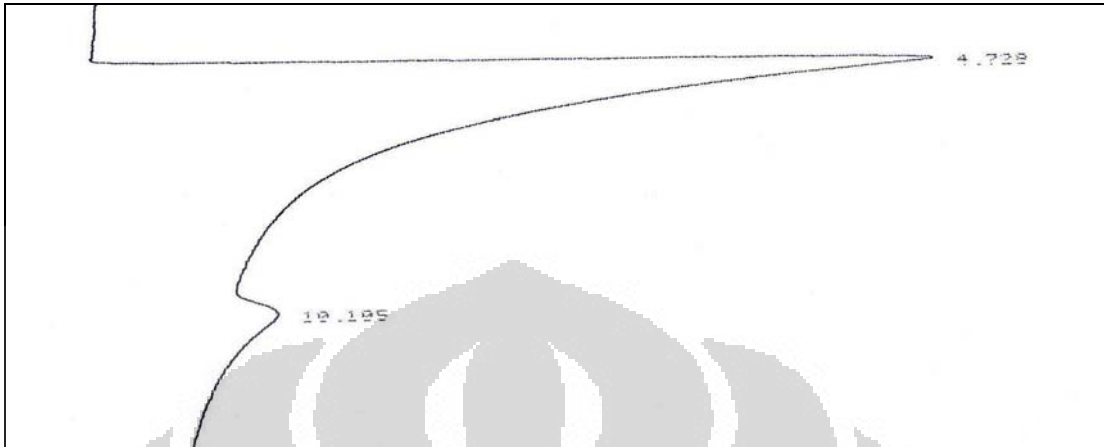
- 1 jam



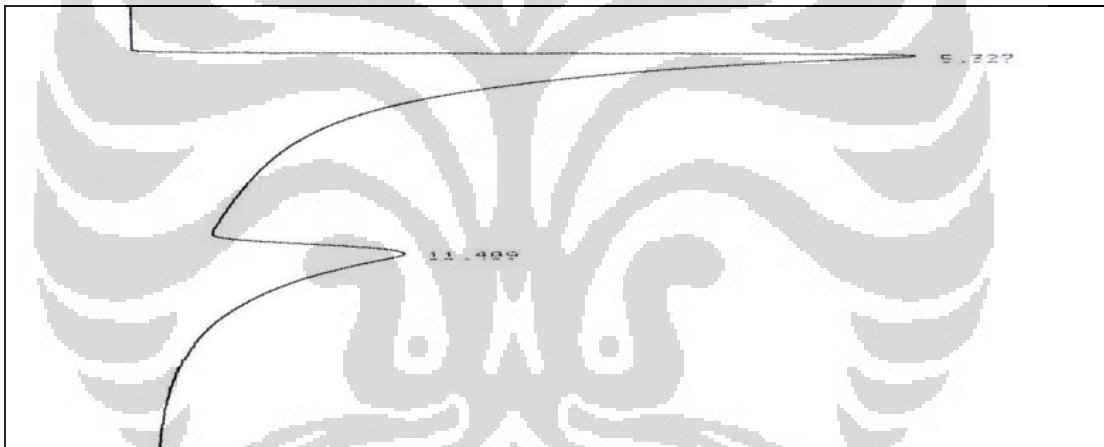
- 2 jam



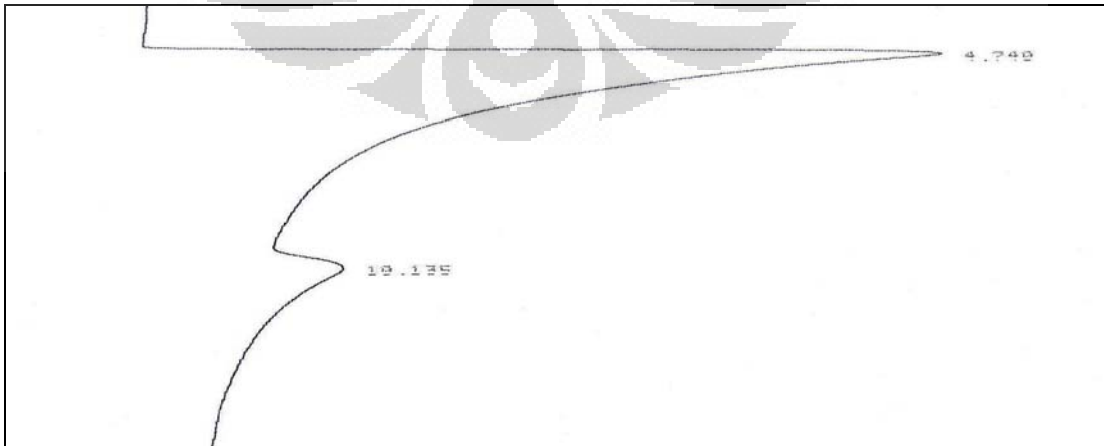
- 3 jam



- 4 jam

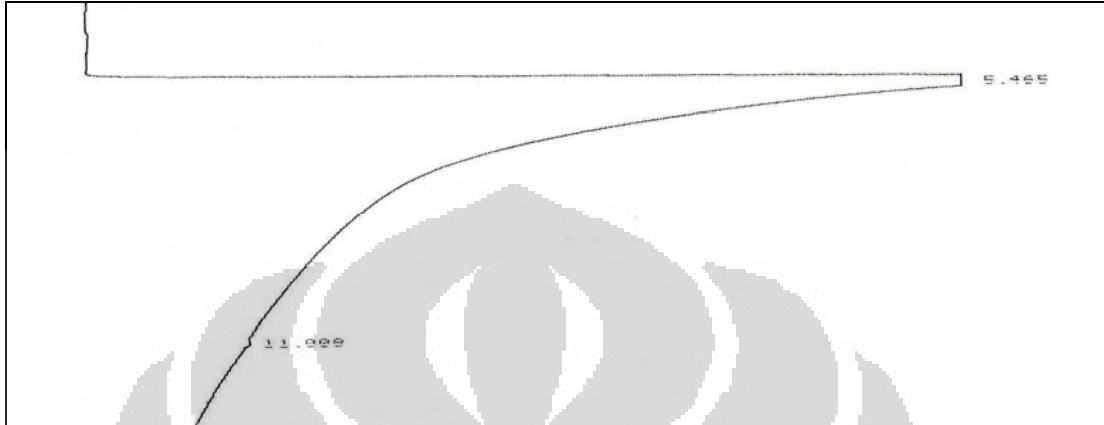


- 5 jam

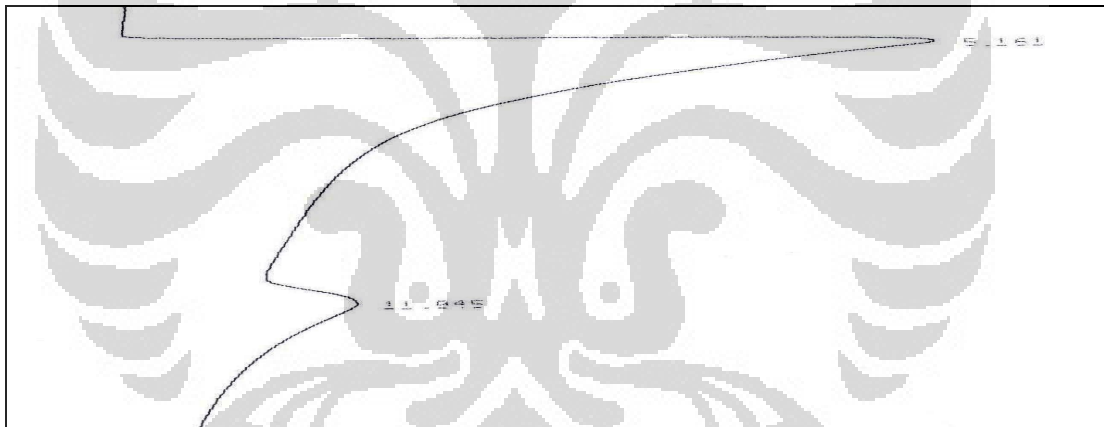


## Hasil Reaksi dengan Variasi Suhu Reaksi

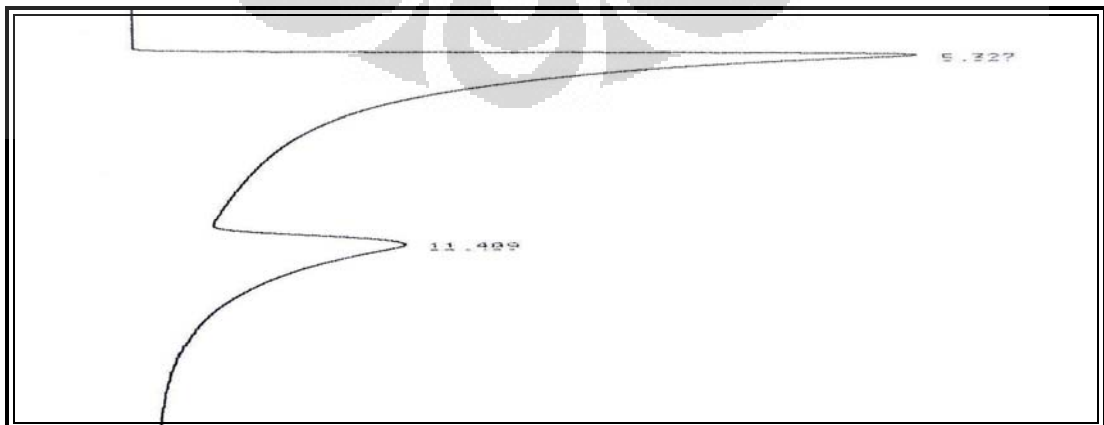
- 50°C



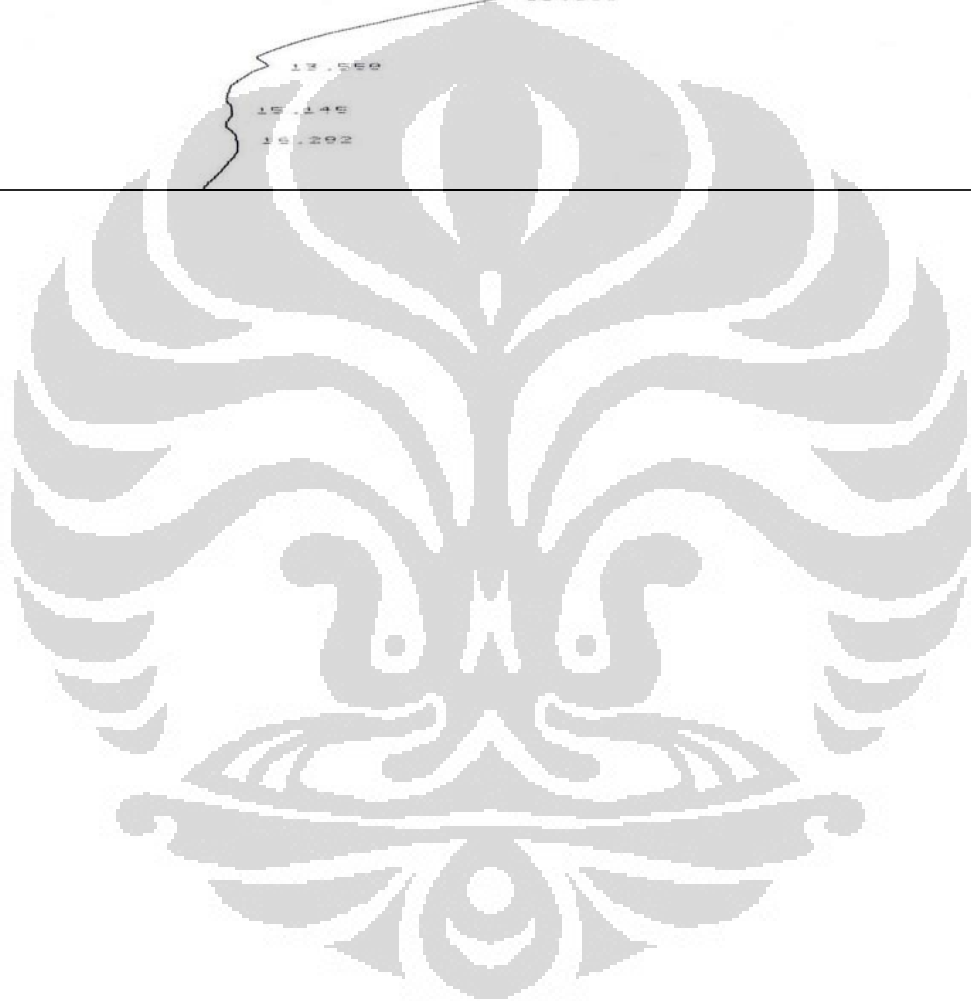
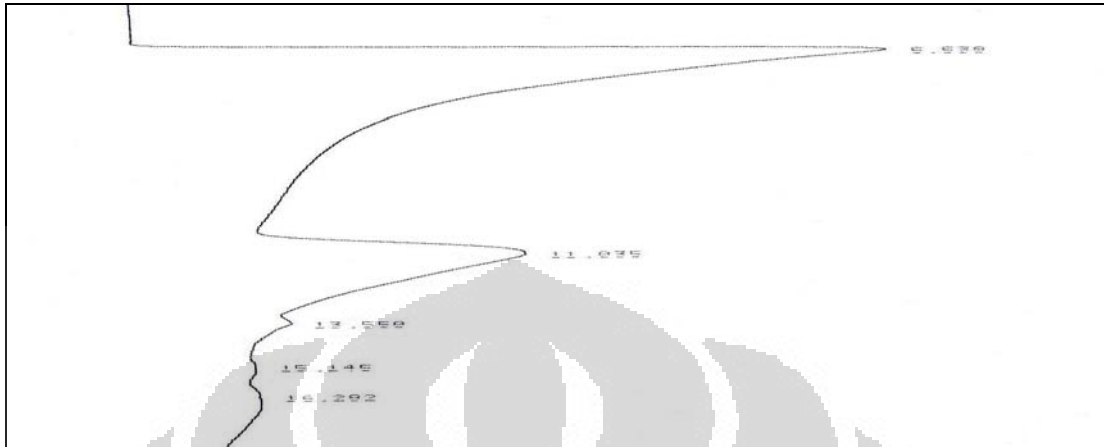
- 60°C



- 70°C



- 80°C-U

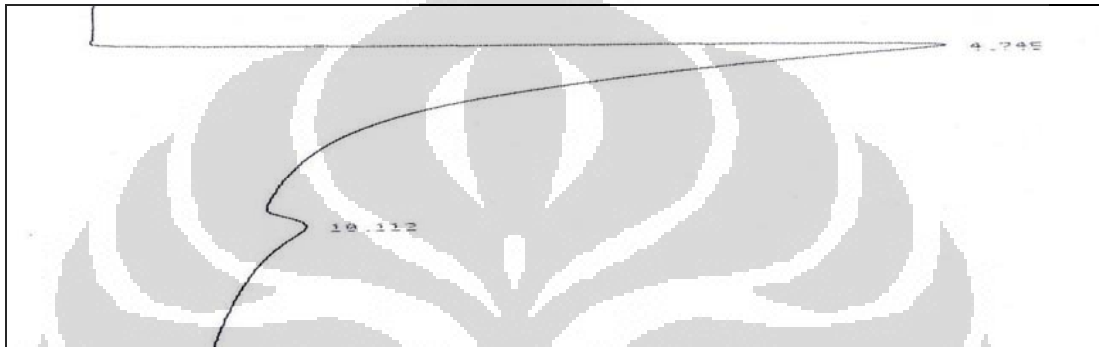


### Lampiran 13: Kromatogram Hasil Reaksi dengan Katalis $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$

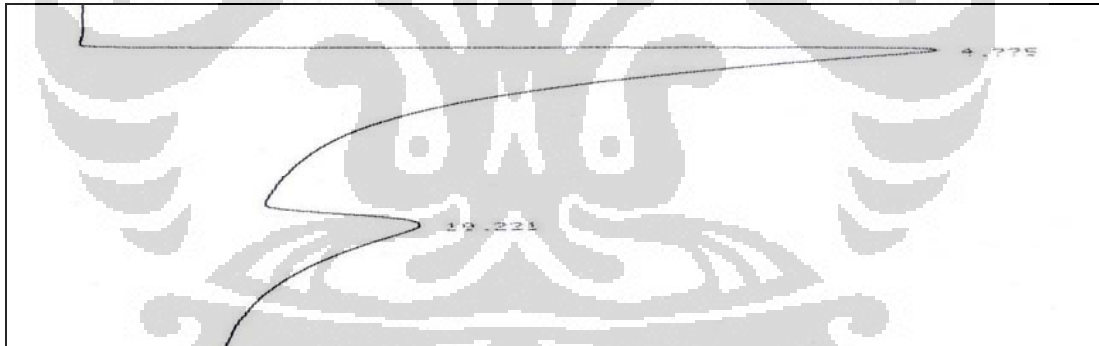
(1:1)-PEG

#### Hasil Reaksi dengan Variasi Berat Katalis

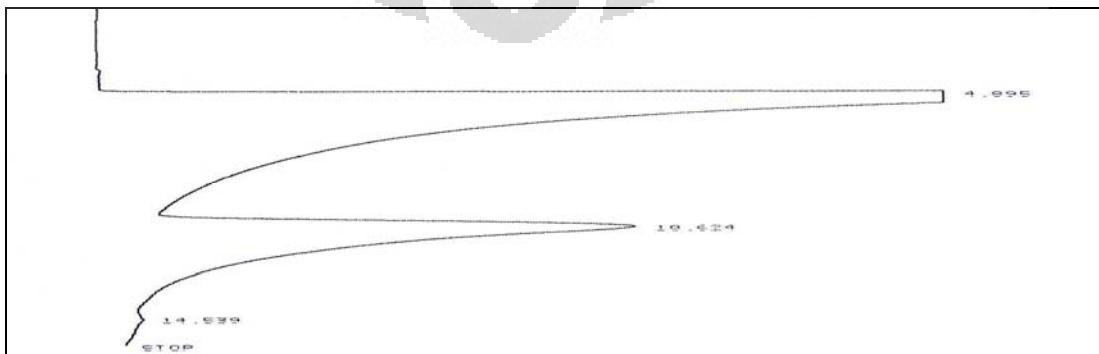
- 0.5 g



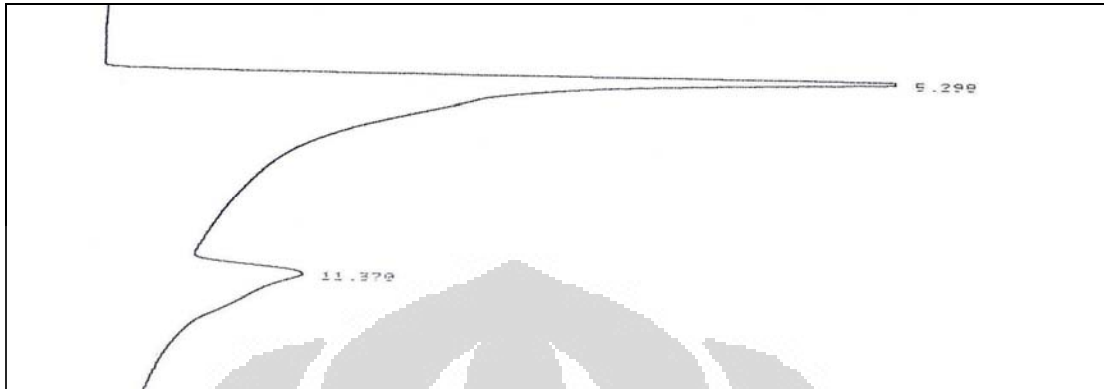
- 1 g



- 1,5 g

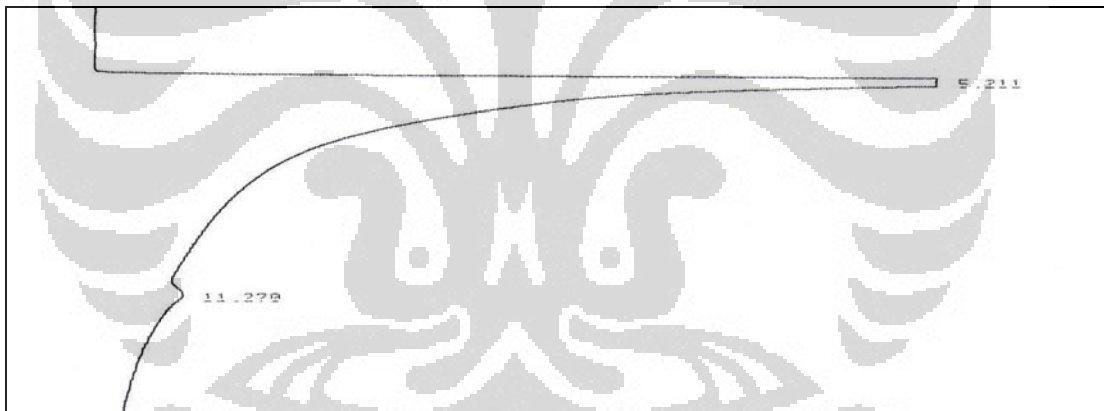


- 2 g

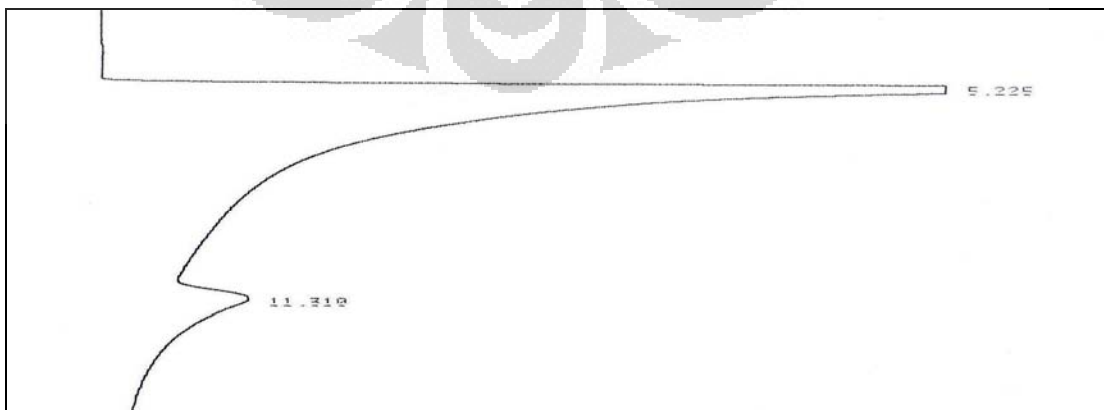


Hasil Reaksi dengan Variasi Waktu Reaksi

- 1 jam

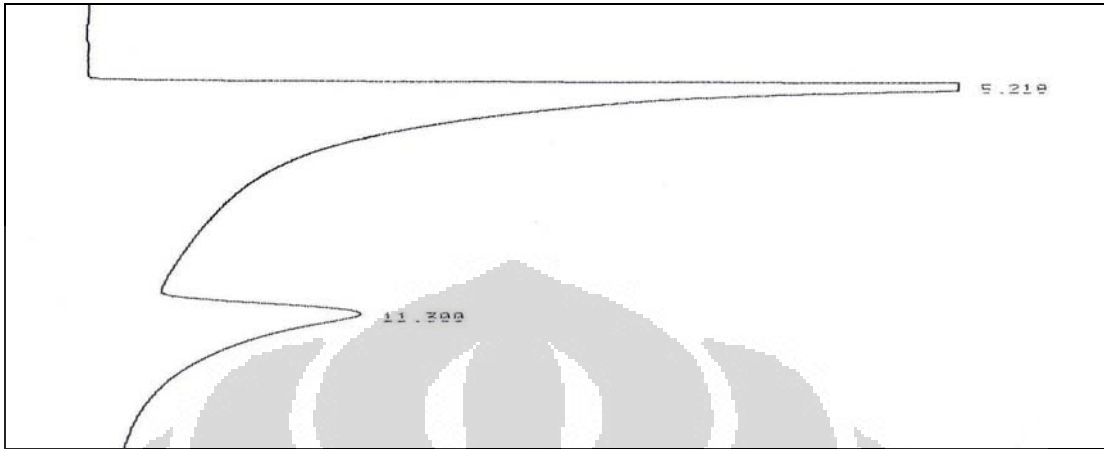


- 2 jam

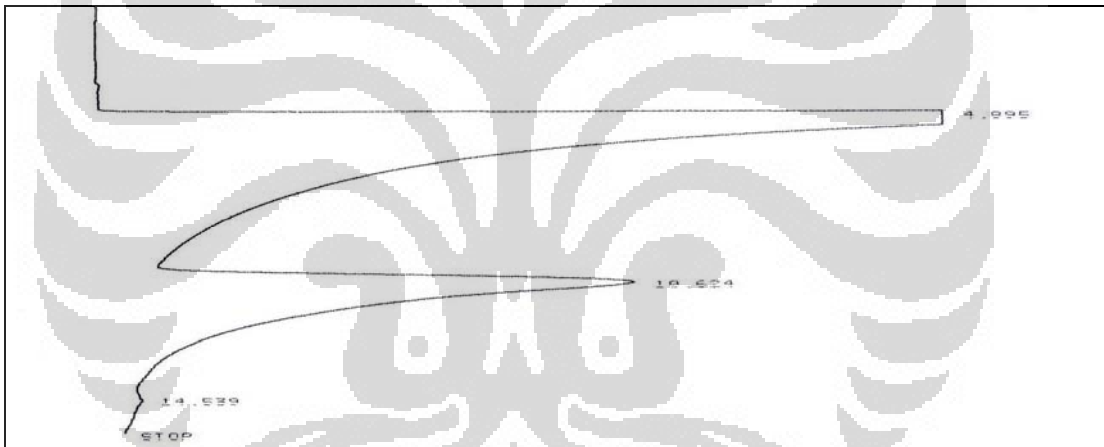




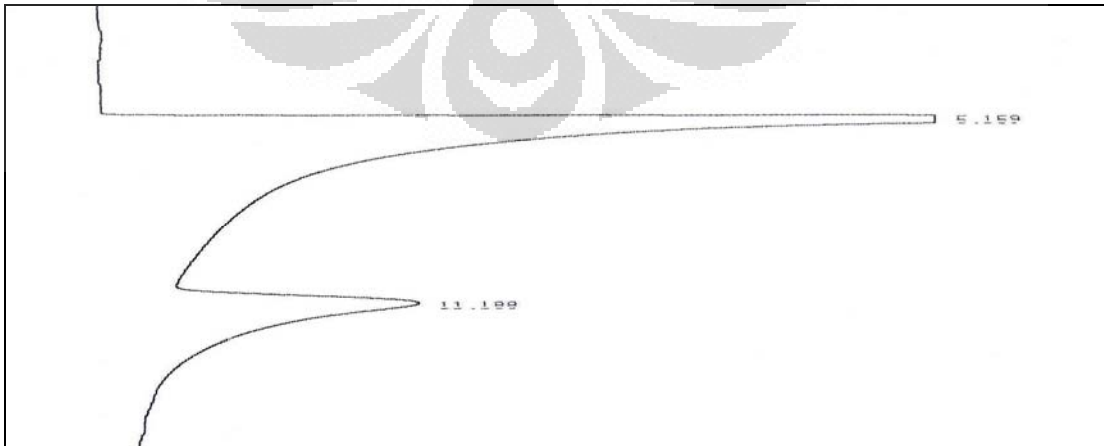
- 3 jam



- 4 jam

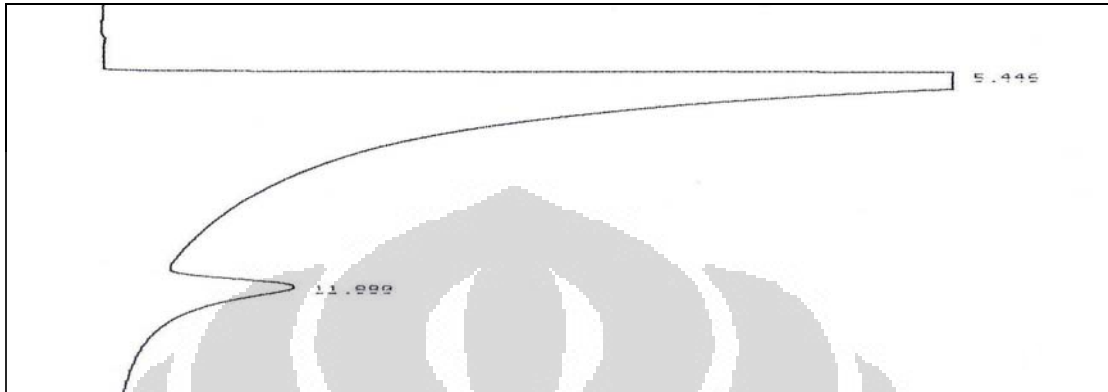


- 5 jam

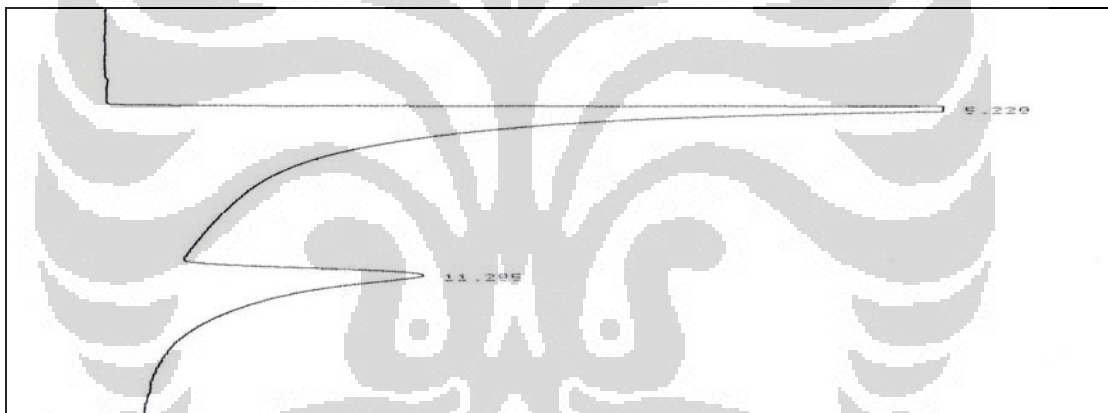


## Hasil Reaksi dengan Variasi Suhu Reaksi

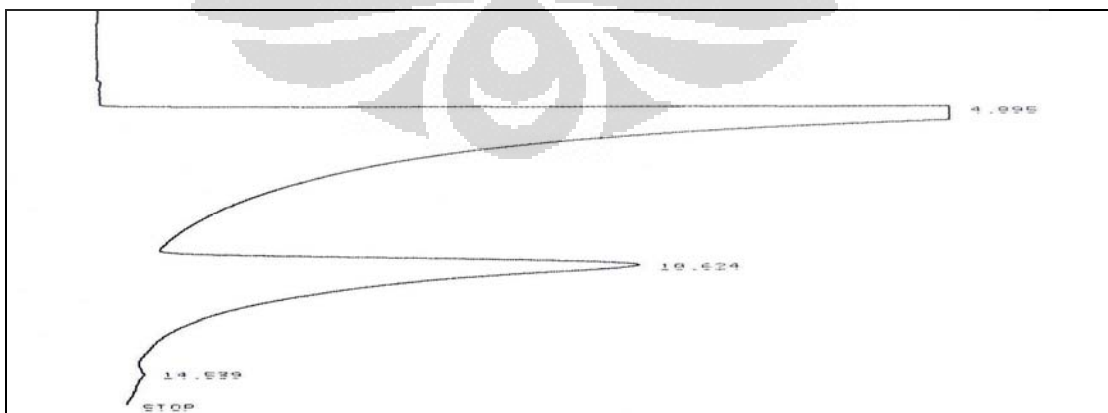
- 50°C



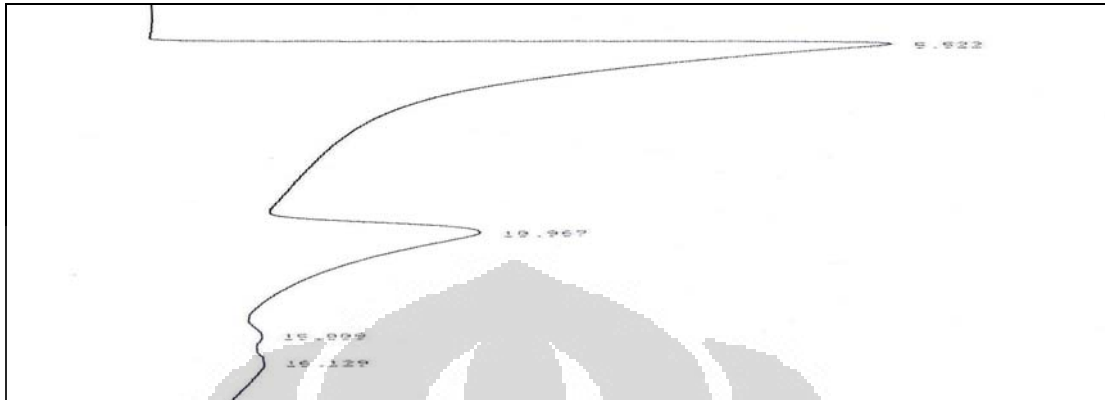
- 60°C



- 70°C

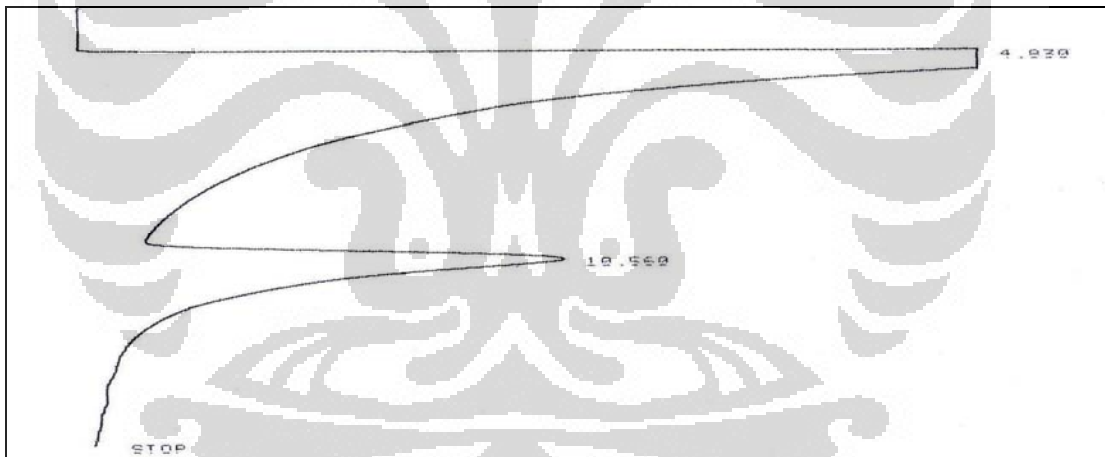


- 80°C



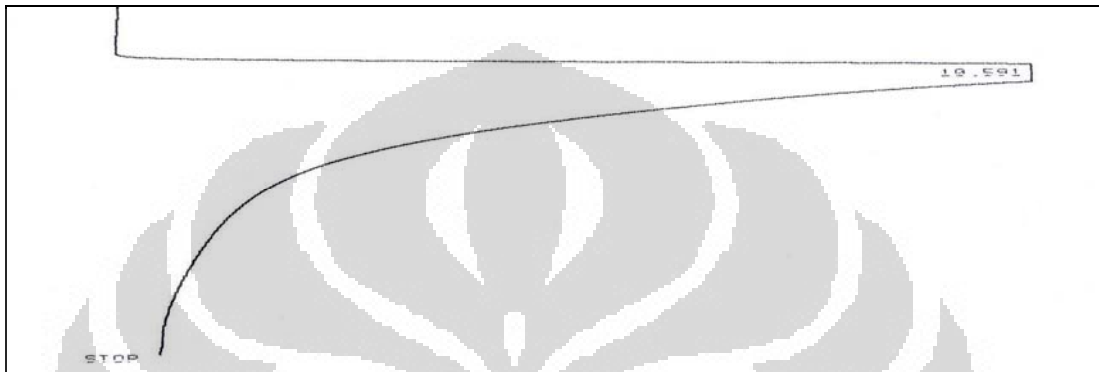
Hasil Reaksi dengan Katalis  $\text{TiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$  (1:1)-PEG

Hasil Regenerasi

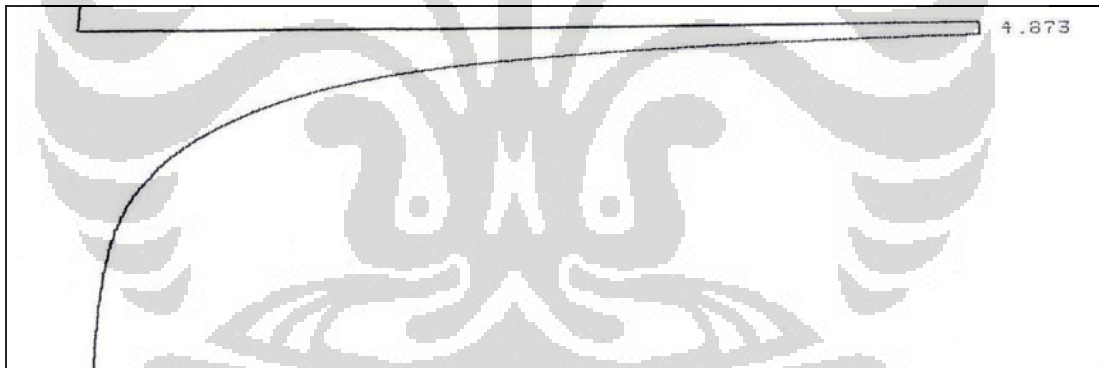


**LAMPIRAN 14: Kromatogram Standar Stirena, benzaldehida, dan Hasil  
Reaksi Oksidasi Tanpa Katalis**

Standar Benzaldehida



Standar Stirena



Hasil reaksi tanpa katalis



## LAMPIRAN 15: Cara Perhitungan % Konversi Benzaldehida

$$\% \text{ Konversi Benzaldehida} = \frac{\text{Luas area benzaldehida}}{\text{Luas area total}} \times 100\%$$

Contoh perhitungan :

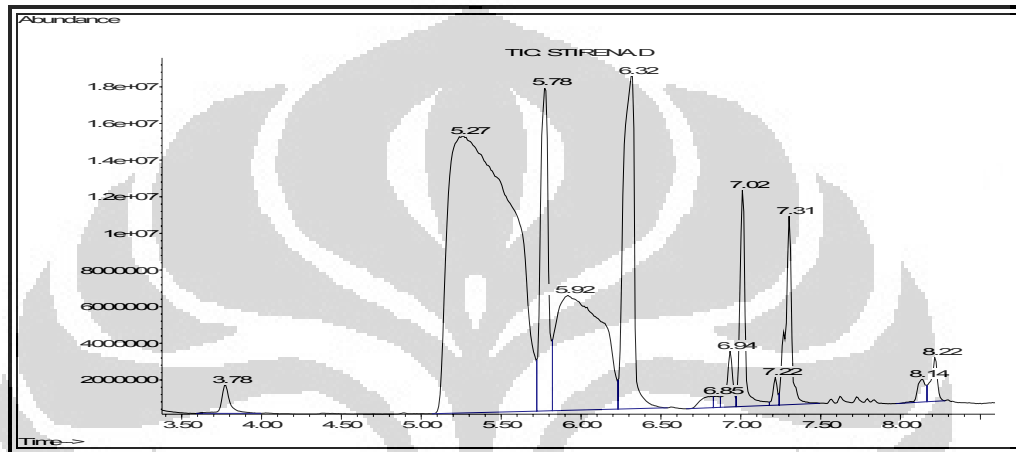
- Luas area benzaldehida = 1048962
- Luas area total = 4859645

Maka :

$$\% \text{ Konversi Benzaldehida} = \frac{1048962}{4859645} \times 100\% = 21,59\%$$

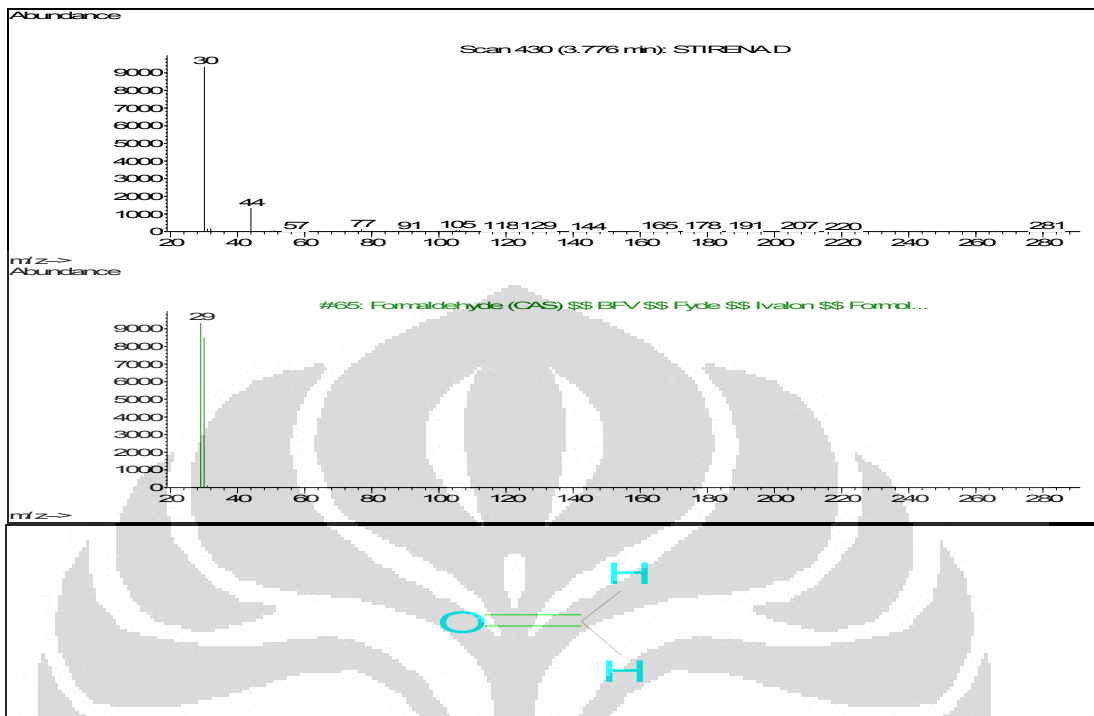
**LAMPIRAN 16: Spektrum Massa-Kromatografi Gas Hasil Reaksi dengan  
1,5 g Katalis  $TiO_2-Al_2O_3$  (1:1)-U pada Suhu  $80^\circ C$  selama  
4 jam**

Spektrum kromatografi gas

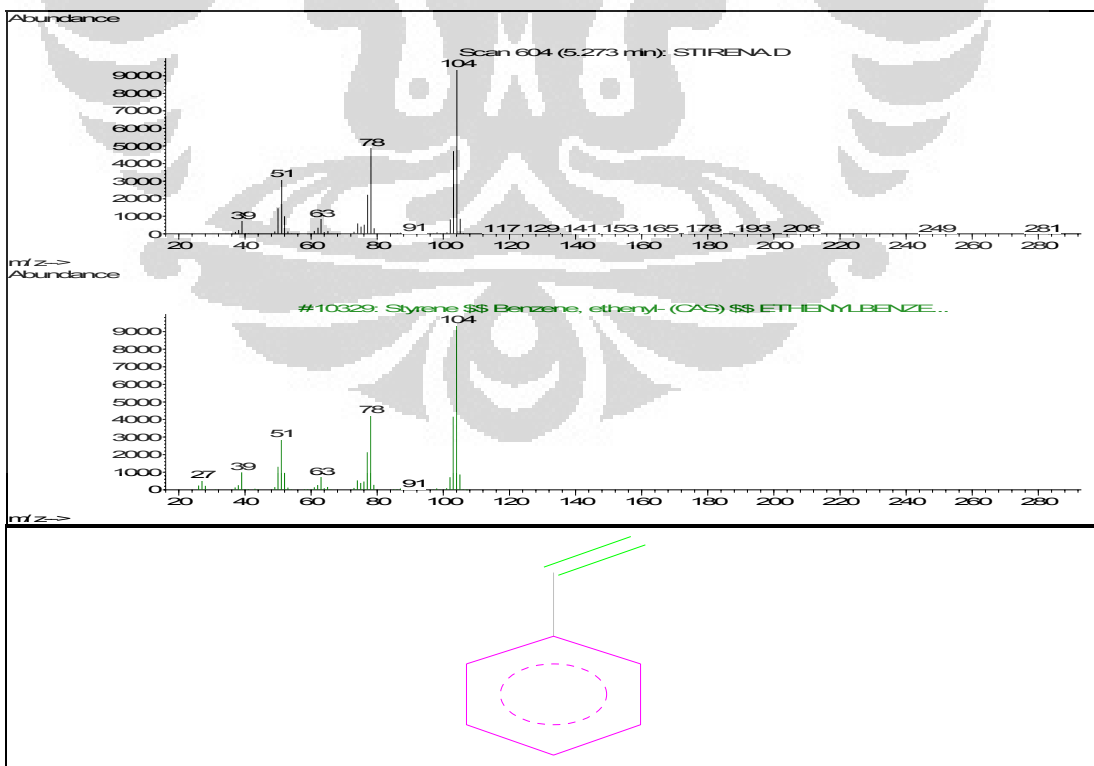


No	Waktu retensi	% area	Identifikasi
1	3,78	0,26	Formaldehida
2	5,27	21,13	Stirena
3	5,92	9,63	Benzaldehida
4	6,81	0,22	Fenil asetaldehida
5	7,02	1,35	Stirena oksida
6	7,31	0,44	Asetofenon
7	8,22	0,04	Asam benzoat

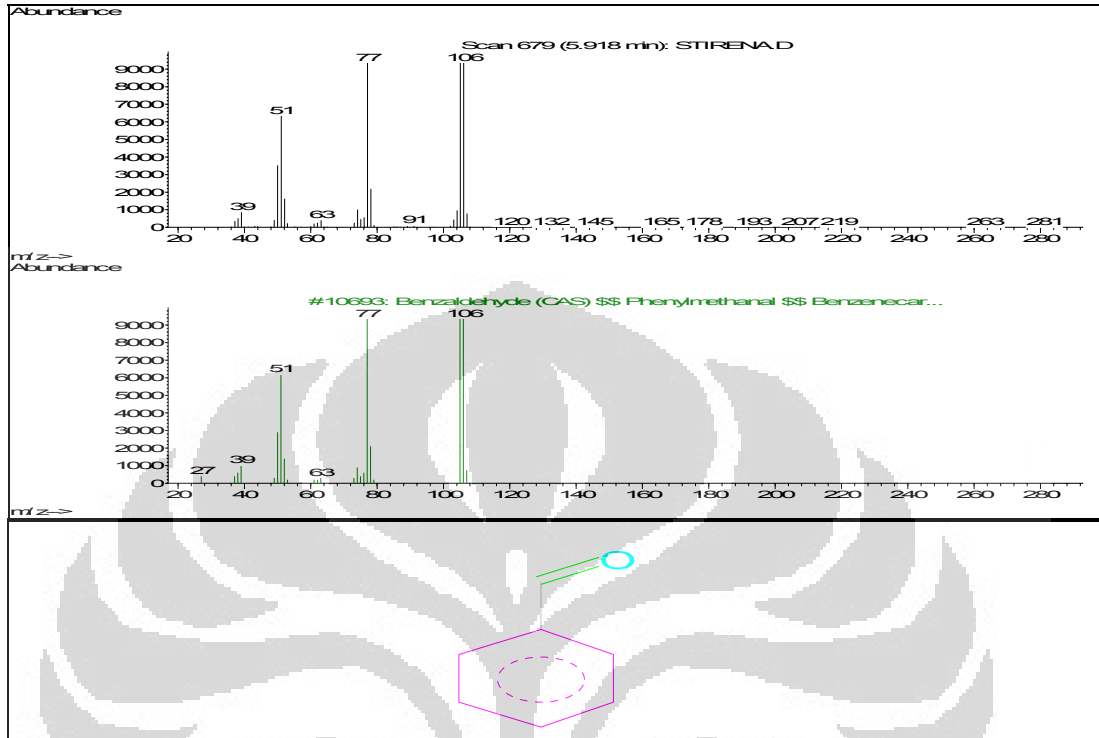
## Spektrum Massa Formaldehida



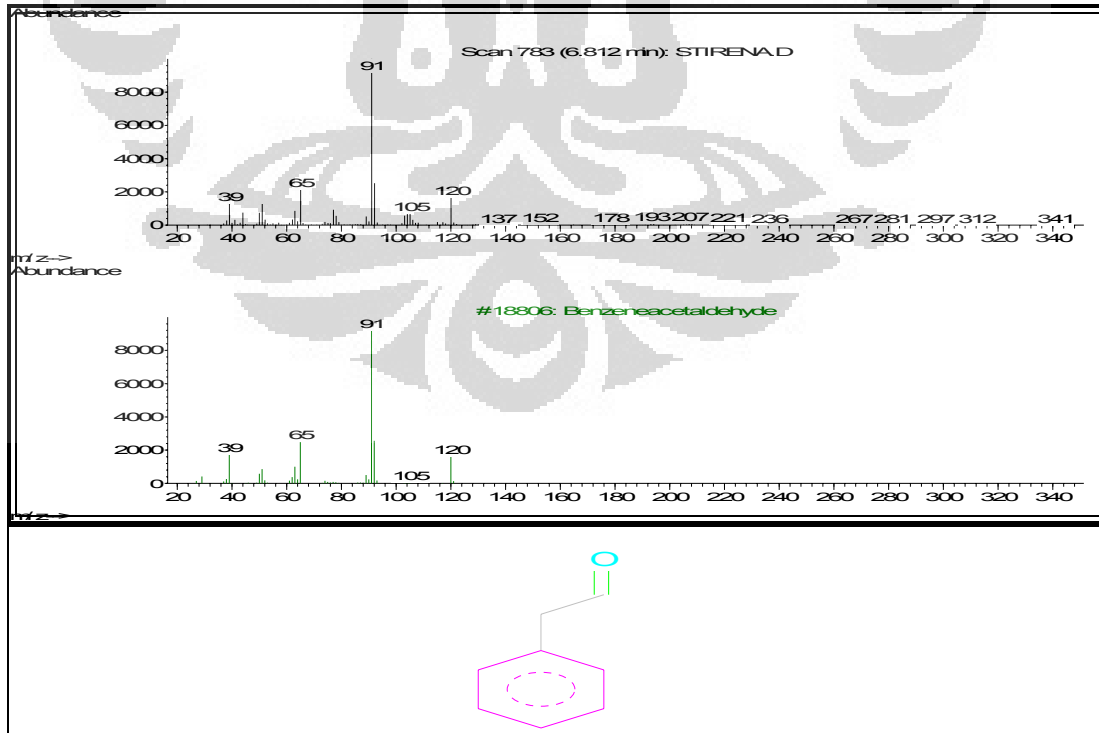
## Spektrum Massa Stirena



## Spektrum Massa Benzaldehida

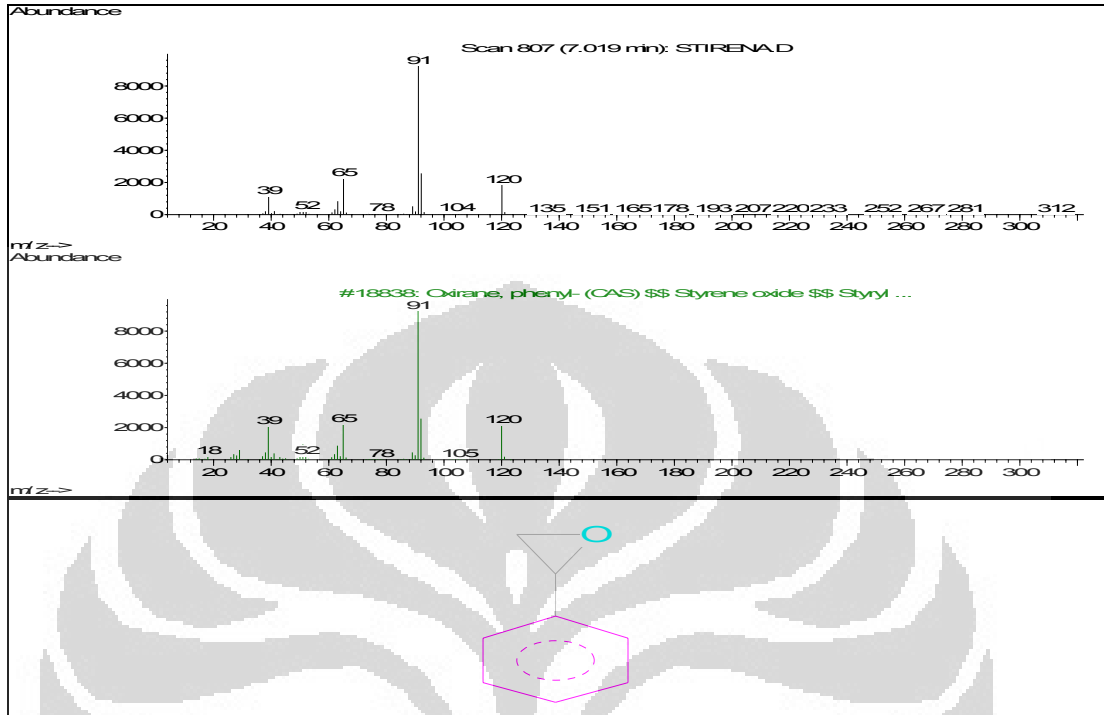


## Spektrum Massa Fenil asetaldehida

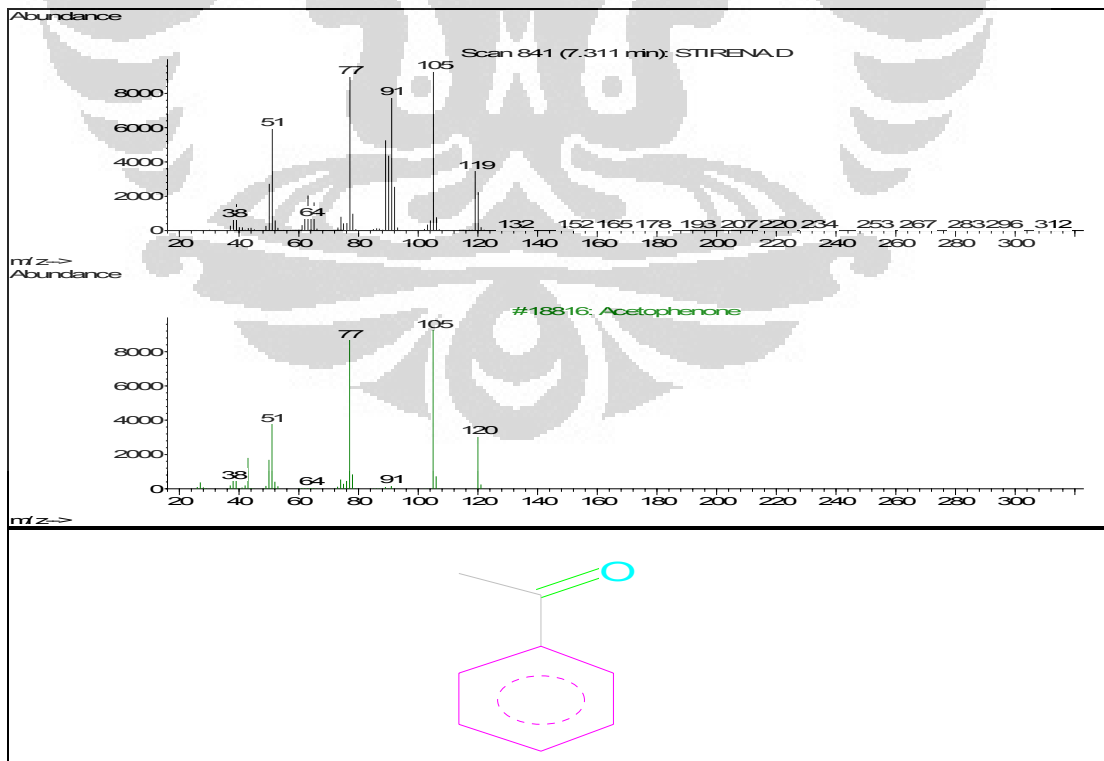




## Spektrum Massa Stirena Oksida



## Spektrum Massa Asetofenon



## Spektrum Massa Asam Benzoat

