



**PREPARASI KATALIS Ni/ZEOLIT ALAM DENGAN  
METODE SONOKIMIA UNTUK PERENGGAHAN  
KATALITIK POLIPROPILEN DAN POLIETILEN**

**Skripsi**

**disajikan sebagai salah satu syarat  
untuk memperoleh gelar Sarjana Sains  
Program Studi Kimia**

**oleh**

**Brian Irvantino**

**4350408021**

**JURUSAN KIMIA  
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM  
UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG**

**2013**

## **PERNYATAAN**

Saya menyatakan bahwa skripsi ini bukan hasil plagiat, dan apabila di kemudian hari terbukti terdapat plagiat dalam skripsi ini, maka saya bersedia menerima sanksi sesuai ketentuan peraturan perundang-undangan. Adapun kemiripan isi itu sudah mengikuti kaidah pengutipan yang benar.

Semarang, Desember 2012

Brian Irvantino  
4350408021

## **PERSETUJUAN PEMBIMBING**

Skripsi ini telah disetujui oleh pembimbing untuk diajukan ke Sidang Panitia Ujian Skripsi Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Semarang.

Semarang,

Pembimbing I

Pembimbing II

Ir. Sri Wahyuni, M.Si  
NIP. 196512281991022001

Drs. Subiyanto HS. M.Si  
NIP. 195104211975011002

## PENGESAHAN

Skripsi yang berjudul

**PREPARASI KATALIS Ni/ZEOLIT ALAM DENGAN METODE SONOKIMIA UNTUK PERENKAHAN KATALITIK POLIPROPILEN DAN POLIETILEN**

disusun oleh

Nama : Brian Irvantino

NIM : 4350408021

telah dipertahankan di hadapan sidang Panitia Ujian Skripsi FMIPA Universitas Negeri Semarang pada tanggal

Panitia:

Ketua

Sekretaris

Prof. Dr. Wiyanto, M.Si.  
NIP. 196310121988031001

Dra. Woro Sumarni, M.Si.  
NIP. 196507231993032001

Ketua Penguji

Drs. Sigit Priatmoko, M.Si.  
NIP. 196504291991031001

Anggota Penguji/  
Pembimbing Utama

Anggota Penguji/  
Pembimbing Pendamping

Ir. Sri Wahyuni, M.Si.  
NIP. 196512281991022001

Drs. Subiyanto HS. M.Si  
NIP. 195104211975011002

## MOTTO DAN PERSEMBAHAN

### **MOTTO:**

*Lakukanlah pekerjaan yang Anda hadapi dengan senang hati maka pekerjaan tersebut akan terasa ringan.*

*Kesabaran, Menerima apa adanya, Kerja keras dan Do'a dari Ibu adalah kunci kesuksesan.*

*Aku hanya pemimpi kecil yang berangan merubah nasib hidupku*

### ***Tugas Akhir II ini kupersembahkan untuk:***

*Bapak dan Ibuku tersayang*

*Zeolita lovers*

*Semua orang yang menyayangiku*

*"Arfah Ratna Puri Gustian"*

## PRAKATA

Puji syukur kehadiran Allah SWT yang telah melimpahkan kasih dan kemurahan-Nya sehingga penulis dapat menyelesaikan TA II yang berjudul ” Preparasi Katalis Ni/Zeolit Alam Dengan Metode Sonokimia Untuk Perengkahan Katalitik Plastik Polipropilen Dan Polietilen”. Selama menyusun TA II ini, penulis telah banyak menerima bantuan, kerjasama, dan sumbangan pemikiran dari berbagai pihak. Oleh karena itu, dalam kesempatan ini penulis sampaikan ucapan terima kasih kepada:

1. Dekan Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Negeri Semarang.
2. Ketua Jurusan Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Negeri Semarang.
3. Ketua Prodi Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Negeri Semarang.
4. Ir. Sri Wahyuni, M.Si\_ sebagai Pembimbing I yang telah memberikan petunjuk, arahan, motivasi dan bimbingan dalam penyusunan skripsi ini.
5. Drs. Subiyanto HS. M.Si\_ sebagai Pembimbing II yang telah memberikan arahan, nasihat, dan motivasi dalam penyusunan skripsi ini.
6. Drs. Sigit Priatmoko, M.Si sebagai Penguji yang telah memberi saran kepada penulis, sehingga dapat menyelesaikan skripsi ini.
7. Sri Kadarwati, Ssi. M,Si sebagai Dosen yang telah banyak memberi masukan dan arahan, sehingga dapat menyelesaikan skripsi ini.
8. Bapak dan Ibu Dosen Jurusan Kimia yang telah memberikan bekal dalam penyusunan skripsi ini.

9. Ketiga orang tua tersayang, (Alm.) Bapak Amin Zazin, Ibu Tri Utami, Bapak Sodikin atas kasih sayang, nasihat, pengertian, dan motivasi yang diberikan kepada penulis.
10. Mas Huda, Mbak Dian, Mbak Fitri dan seluruh laboran serta teknisi laboratorium Kimia UNNES atas bantuan yang diberikan selama pelaksanaan penelitian.
11. Teman-teman “Big Family Of Chemistry 2008” selalu setia membantu dan memberi semangat terutama Imam, Rissa, Ade, Riera, Puji, dan Arum.
12. Teman-teman kost “Re-Back” diantaranya Adit, Aji’, Awank, Doni, Eko, Jati, Joko, Wahyu, dan Yuda.
13. Teruntuk Arfah Ratna Puri Gustian terima kasih atas motivasi dan kasih sayangnta selama ini
14. Semua pihak yang telah membantu dalam penyelesaian Skripsi ini yang tidak dapat penulis sebutkan satu persatu.

Semoga Skripsi ini dapat bermanfaat bagi pembaca dan semua pihak yang membutuhkan.

Semarang, Desember 2012

Penulis

## ABSTRAK

Irvantino, Brian. 2012. *Preparasi Katalis Ni/Zeolit Alam Dengan Metode Sonokimia Untuk Perengkahan Katalitik Polipropilen Dan Polietilen*. Skripsi, Jurusan Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Negeri Semarang. Pembimbing Utama Ir. Sri Wahyuni, M.Si dan Pembimbing Pendamping Drs. Subiyanto HS. M.Si

**Kata kunci:** Ni/ZA; perengkahan; polietilen; polipropilen; sonokimia

Studi tentang preparasi katalis Ni/zeolit alam dengan metode sonokimia telah dilakukan di laboratorium Kimia Fisik Universitas Negeri Semarang. Katalis tersebut digunakan untuk perengkahan katalitik polipropilen dan polietilen. Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui karakteristik katalis yang telah disintesis. Serta mempelajari aktivitas katalis tersebut pada perengkahan polipropilen dan polietilen. Katalis dibuat dengan metode sonokimia dengan kadar 3, 4, dan 5% Ni. Karakterisasi terhadap katalis meliputi: penentuan kadar logam Ni, jumlah situs asam, kristalinitas katalis, dan luas permukaan katalis. Polipropilen dan polietilen di pirolisis terlebih dahulu. Hasil pirolisis selanjutnya diumpankan kedalam reaktor perengkahan. Proses perengkahan selanjutnya dijalankan pada temperatur 360<sup>0</sup>C. Hasil perengkahan menunjukkan bahwa katalis Ni-4%/ZA mempunyai kinerja paling baik. Katalis Ni-4%/ZA mempunyai rerata jejari pori (33,13 Å), volume pori (0,185 cc/g), dan keasaman permukaan (0,7619 mmol/g). Pada perengkahan polipropilen % fraksi kondensat paling besar yaitu 3,46. Pada perengkahan polietilen % fraksi kondensat paling besar yaitu 5,07. Adapun senyawa yang terdapat dalam produk perengkahan menghasilkan senyawa dari turunan heptana, heksena, heptana, heptena, nonana, deksena, dan undeksena.



# DAFTAR ISI

	Halaman
<b>HALAMAN JUDUL</b> .....	i
<b>PERNYATAAN</b> .....	ii
<b>PERSETUJUAN PEMBIMBING</b> .....	iii
<b>PENGESAHAN</b> .....	iv
<b>MOTO DAN PERSEMBAHAN</b> .....	v
<b>PRAKATA</b> .....	vi
<b>ABSTRAK</b> .....	viii
<b>DAFTAR ISI</b> .....	ix
<b>DAFTAR TABEL</b> .....	xii
<b>DAFTAR GAMBAR</b> .....	xiii
<b>DAFTAR LAMPIRAN</b> .....	xv
<b>BAB</b>	
<b>1. PENDAHULUAN</b> .....	1
1.1 Latar Belakang .....	1
1.2 Permasalahan .....	4
1.3 Tujuan Penelitian .....	4
1.4 Manfaat Penelitian .....	5
<b>2. TINJAUAN PUSTAKA</b> .....	6
2.1 Katalis .....	6
2.2 Zeolit .....	8
2.3 Logam Ni .....	9
2.4 Metode Sonokimia .....	10
2.5 Polipropilen.....	12
2.6 Polietilen .....	14
2.7 Pirolisis .....	16



4.1.2.3	Luas Permukaan Spesifik, Rerata Jejari Pori, dan Volume Total Pori Katalis Ni/ZA.....	38
4.1.2.4	Penentuan Jumlah Situs Asam Katalis Ni/ZA.....	39
4.1.3	Uji Aktivitas Katalis.....	40
4.1.3.1	Preparasi Umpan Reaksi.....	40
4.1.3.2	Pengaruh Variasi Katalis pada Reaksi Perengkahan Katalitik.....	41
4.1.3.3	Hasil Analisis Produk Perengkahan analisis polipropilen.....	42
4.2	Pembahasan.....	43
4.2.1	Preparasi Katalis.....	43
4.2.1.1	Perlakuan Awal Zeolit Alam.....	43
4.2.1.2	Aktivasi Zeolit Alam Dengan HF, HCl, dan NH <sub>4</sub> Cl.....	44
4.2.1.3	Pengembangan Logam Ni Menggunakan Metode Sonokimia dalam H-Zeolit Alam.....	48
4.2.1.4	Kalsinasi, Oksidasi, dan Reduksi Katalis.....	49
4.2.2	Karakterisasi Katalis.....	50
4.2.2.1	Distribusi Logam Ni dalam Katalis Ni /ZA.....	50
4.2.2.2	Pengaruh Pengembangan Logam Ni terhadap Kristalinitas Katalis Ni/ZA.....	50
4.2.2.3	Luas Permukaan Spesifik, Rerata Jejari Pori, Dan Volume Total Pori Katalis Ni/ZA.....	52
4.2.2.4	Penentuan Jumlah Situs Asam Katalis Ni/ZA.....	53
4.2.3	Uji Aktivitas Katalis.....	53
4.2.3.1	Preparasi Umpan Reaksi Perengkahan.....	53
4.2.3.2	Pengaruh Variasi Katalis pada Reaksi Perengkahan Katalitik Plastik.....	54
4.2.3.3	Analisis Hasil Perengkahan Katalitik Plastik Polipropilen.....	61
<b>5.</b>	<b>PENUTUP</b> .....	<b>60</b>
5.1	Simpulan.....	60
5.2	Saran.....	60
	<b>DAFTAR PUSTAKA</b> .....	<b>69</b>
	<b>LAMPIRAN</b> .....	<b>70</b>

## DAFTAR TABEL

Tabel	Halaman
2.1. Sifat Fisik dan Mekanik Plastik Polietilen .....	15
4.1. Distribusi logam Ni dalam katalis Ni/ZA.....	36
4.2. Data 2 theta dan Intensitas tiga puncak tertinggi H-ZA, Ni-3%/ZA, Ni-4%/ZA, dan Ni-5%/ZA.....	37
4.3. Hasil penentuan luas permukaan spesifik, rerata jejari pori, dan volume total pori katalis menggunakan metode BET.....	39
4.4. Hasil Penentuan Jumlah Situs Asam dalam Katalis Ni/ZA.....	40
4.5. % Fraksi Kondensat pada Reaksi Perengkahan Katalitik Plastik.....	42
4.6. Hasil Analisis GCMS produk perengkahan katalitik plastik polipropilen secara kuantitatif.....	43
4.7. Hasil Analisis GCMS produk perengkahan katalitik plastik polipropilen secara kualitatif.....	43
4.8. Karakterisasi Katalis Ni-3%/ZA, Ni-4%/ZA, Ni-5%/ZA dan perengkahan katalitiknya .....	58

## DAFTAR GAMBAR

Gambar	Halaman
2.1. Struktur umum Zeolit .....	12
2.2. Efek kavitasi pada iradiasi ultrasonik.....	12
2.3. Struktur propilen dan polipropilen.....	13
2.4. Struktur polietilen .....	14
2.5. Pembentukan radikal terstabilkan dan ion karbonium.....	19
2.6. Reaksi pembentukan ion karbonium dan radikal terstabilkan.....	19
2.7. Interaksi reaktan dengan ion karbonium dan radikal pada permukaan katalis.....	20
2.8. Pembentukan kembali katalis zeolit dari ion karbonium.....	20
3.1. Reaktor pirolisis plastik.....	31
3.2. Reaktor perengkahan .....	32
4.1. Perbandingan difraktrogram antara H-ZA, Ni3%/ZA, Ni4%/ZA, dan Ni5%/ZA.....	32
4.2. Perbedaan plastik sebelum dan sesudah pirolisis.....	39
4.3. Reaksi Dealuminasi dalam Zeolit dengan Bantuan HCl.....	45
4.4. Pengikatan ion $\text{NH}_4^+$ kedalam struktur zeolit.....	47
4.5. Grafik hubungan antara luas permukaan katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan polipropilen.....	55
4.6. Grafik hubungan antara rerata jari pori katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan polipropilen.....	55

4.7. Grafik hubungan antara keasaman total katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan polipropilen.....	56
4.8. Grafik hubungan antara keasaman permukaan katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan polipropilen.....	57
4.9. Grafik hubungan antara luas permukaan katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan polietilen.....	58
4.10. Grafik hubungan antara rerata jari pori katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan polietilen.....	59
4.11. Grafik hubungan antara keasaman total katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan polietilen.....	59
4.12. Grafik hubungan antara keasaman permukaan katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan polietilen.....	60
4.13. Reaksi perengkahan plastik polipropilen.....	63

## DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran	Halaman
1. Perhitungan .....	70
2. Hasil Analisis BET H-ZA, Ni-1%/ZA, Ni-2%/ZA, dan Ni-3%/ZA.....	77
3. Hasil Analisis XRD.....	98
4. Hasil Analisis GC Umpan PP,Umpan PE, dan Produk perengkahan.....	118
5. Hasil Analisis GCMS Produk Perengkahan Polipropilen.....	139
6. Dokumentasi Penelitian .....	140

# BAB 1

## PENDAHULUAN

### 1.1 Latar Belakang

Konversi fraksi hidrokarbon rantai panjang, poliaromatik maupun polimer menjadi fraksi hidrokarbon rantai pendek membutuhkan katalis perengkah yang merupakan katalis heterogen (padatan), karena dalam prosesnya katalis ini lebih menguntungkan yaitu pada akhir proses dapat diperoleh kembali tanpa tercampur oleh produk. Selain itu lebih stabil dalam temperatur tinggi. Salah satu jenis katalis untuk proses perengkahan yaitu *metal supported catalyst* yang terdiri dari logam yang diimbankan pada pengemban padat seperti silika-alumina, alumina dan zeolit.

Menurut Liu dkk. (2006) selain sebagai pengemban, zeolit di dalam sistem *metal supported catalyst* juga mempunyai aktivitas katalitik yang tinggi, menyebabkan katalis tidak mudah menggumpal, mempunyai porositas yang luas, serta stabil terhadap temperatur tinggi. Selain itu, keberadaan zeolit di Indonesia cukup melimpah dan relatif murah.

Zeolit alam banyak bercampur dengan materi pengotor berupa kation-kation  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Ba}^{2+}$ ,  $\text{Fe}^{2+}$ . Oleh karena itu, zeolit alam perlu diaktivasi dan dimodifikasi guna meningkatkan karakternya terutama aktivitas katalitiknya yaitu dengan cara perlakuan asam menggunakan HF, HCl, dan  $\text{NH}_4\text{Cl}$ .

Sebagai katalis, salah satu sifat penting dalam proses konversi plastik adalah jumlah situs asam totalnya (keasaman). Keasaman zeolit dapat



ditingkatkan dengan cara pengembanan logam-logam transisi yang memiliki orbital d belum terisi penuh seperti logam Ni. Menurut Triyono (2002), adanya orbital d belum penuh dalam logam Ni dapat meningkatkan daya adsorpsi logam terhadap reaktan.

Rodiansono dkk. (2005) melakukan preparasi katalis zeolit alam aktif (zeolit), Ni/zeolit, Ni-Mo/zeolit, Ni/zeolit-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, dan Ni-Mo/zeolit-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> yang dibuat dengan metode impregnasi. Diperoleh aktivitas dan selektivitas katalis untuk menghasilkan total hasil (yield) fraksi bensin (C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub>) dari plastik polipropilen (umpan) sebagai berikut Ni-Mo/zeolit > Ni/zeolit > Ni/zeolit-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> > Ni-Mo/zeolit-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> > zeolit.

Prasetyaningsih (2011) melakukan penelitian tentang pembuatan katalis Ni/Zeolit dengan variasi jumlah logam Ni yang diembankan yaitu 4%, 6%, dan 8%. Metode pengembanan logam Ni dilakukan dengan cara impregnasi. Pada penelitian ini didapat luas permukaan katalis terbesar yaitu katalis dengan jumlah logam Ni yang teremban 4%.

Pada preparasi katalis yaitu pada saat pengembanan logam pada zeolit metode yang sering digunakan ialah metode impregnasi, akan tetapi pada penelitian ini akan dilakukan metode pengembanan dengan cara sonokimia. Metode sonokimia belum pernah dilakukan dalam pengembanan logam terhadap zeolit alam, namun telah dilakukan studi pendahuluan oleh penulis tentang metode sonokimia untuk pengembanan logam Ni terhadap zeolit alam aktif. Hasil studi pendahuluan yang berupa katalis Ni/zeolit alam aktif lalu di uji menggunakan XRD, antara zeolit alam aktif dengan zeolit alam aktif yang sudah

teremban logam Ni muncul peak baru dan ditengarai itu merupakan peak dari logam Ni, sedangkan dari hasil uji AAS zeolit yang sudah teremban logam Ni dengan menggunakan metode pengembanan sonokimia ternyata menunjukkan adanya logam Ni yang teremban (lihat pada lampiran). Selain menjadi metode baru dalam pengembanan, metode sonokimia ini mempunyai keunggulan yaitu tidak membutuhkan waktu yang lama, tidak perlu mengontrol suhu.

Plastik merupakan salah satu jenis polimer yang bahan dasarnya secara umum adalah polipropilena (PP), polietilena (PE), polistirena (PS), poli(metil metakrilat) (PMMA), high density polyethylene (HDPE) dan polivinilklorida (PVC). Plastik hingga saat ini masih merupakan bahan yang banyak digunakan oleh kalangan industri maupun rumah. Akibat penggunaan plastik yang berlebihan menjadikan suatu masalah utama baik itu perkotaan maupun pedesaan, sisa-sisa plastik tersebut biasanya berupa limbah rumah tangga, limbah sisa industri, limbah kemasan barang ataupun makanan dan minuman. Plastik tersebut tidak dapat diuraikan oleh bakteri pengurai (mikroorganisme) dalam tanah, meskipun di buang dan tertimbun dalam tanah beberapa lamanya maka akan tetap saja utuh seperti semula dan hanya akan terjadi kerusakan fisik saja tetapi komposisi struktur masih tetap.

Berdasarkan latar belakang, maka dilakukan penelitian preparasi katalis Ni/zeolit alam menggunakan metode sonokimia dengan jumlah logam Ni teremban yang bervariasi yaitu masing-masing 3, 4, dan 5% yang kemudian dikarakterisasi. Karakterisasi katalis meliputi sifat keasaman, luas permukaan, rerata jejari dan volume pori. Pada Penelitian ini uji aktivitas katalis dilakukan

pada proses perengkahan katalitik sebagai umpan yaitu plastik polipropilen dan plastik polietilen. Produk kemudian dianalisis dengan GC (Gas-Chromatography) dan GC-MS (Gas Chromatography-Mass Spectroscopy).

## **1.2 Permasalahan**

Berdasarkan uraian di atas, permasalahan dalam penelitian ini adalah :

- a. Bagaimanakah karakteristik katalis Ni/Zeolit alam hasil preparasi menggunakan metode sonokimia?
- b. Bagaimanakah pengaruh jumlah Ni yang diembankan pada zeolit dengan metode sonokimia terhadap aktivitas perengkahan polipropilen?
- c. Bagaimanakah pengaruh jumlah Ni yang diembankan pada zeolit dengan metode sonokimia terhadap aktivitas perengkahan polietilen?

## **1.3 Tujuan Penelitian**

Tujuan dari penelitian ini adalah sebagai berikut :

- a. Mengetahui karakteristik katalis Ni/Zeolit alam hasil preparasi menggunakan metode sonokimia.
- b. Mengetahui aktivitas katalis Ni/zeolit alam pada perengkahan polipropilen.
- c. Mengetahui aktivitas katalis Ni/zeolit alam pada perengkahan polietilen.

## 1.4 Manfaat Penelitian

Manfaat dari penelitian ini adalah sebagai berikut :

- a. Memberikan informasi mengenai karakteristik katalis Ni/Zeolit alam hasil preparasi menggunakan metode sonokimia..
- b. Memberikan informasi mengenai aktivitas katalis Ni/zeolit alam dalam perengkahan katalitik terhadap plastik jenis polipropilen.
- c. Memberikan informasi mengenai aktivitas katalis Ni/zeolit alam dalam perengkahan katalitik terhadap plastik jenis polietilen.

## **BAB 2**

### **TINJAUAN PUSTAKA**

#### **2.1 Katalis**

Katalis merupakan zat yang dapat meningkatkan laju reaksi dengan kondisi kimiawi tetap pada akhir proses (Triyono, 2002). Katalis tidak akan mengganggu kesetimbangan tetapi mempercepat tercapainya kesetimbangan itu dan katalis tidak memulai terjadinya reaksi. Katalis ini memberikan mekanisme reaksi baru dengan molekul reaktan pada kondisi zat antara yang memiliki energi aktivasi lebih rendah dari reaksi tanpa katalis, kemudian kondisi zat antara itu bereaksi dengan molekul reaktan lainnya membentuk produk dan katalis kembali (Triyono, 2002).

Jenis katalis dibagi menjadi dua macam yaitu katalis homogen dan heterogen. Katalis homogen memiliki fase yang sama dengan reaktan yang biasanya pada fase gas atau larutan, sedangkan katalis heterogen memiliki fase yang berbeda dengan reaktan yang biasanya dalam fase padat untuk katalis dan fase gas untuk reaktan. Katalis heterogen ini biasanya mengandung sedikitnya satu reaktan teradsorpsi yang termodifikasi sedemikian, sehingga menjadi suatu bentuk katalis yang siap bereaksi (Joechim, 1998).

Adapun tipe katalis dibedakan menjadi dua yaitu katalis dengan pengemban dan katalis tanpa pengemban. Pengemban ini dilakukan dengan mendispersikan katalis dengan banyak metode seperti metode impregnasi, impregnasi kering, metode pertukaran ion, dan salah satunya metode sonokimia

yang mengakibatkan luas permukaan situs aktif katalis menjadi semakin luas. Situs aktif merupakan titik pada permukaan katalis yang membentuk ikatan kimia kuat dengan atom atau molekul teradsorpsi. Peningkatan jumlah situs mengakibatkan kontak antara reaktan dengan katalis semakin besar sehingga reaksi akan berjalan dengan cepat.

Pemilihan pengemban harus memperhatikan beberapa hal yaitu (Anderson,1976) :

1. Memiliki luas permukaan yang besar

Luas permukaan yang besar akan memiliki situs aktif yang semakin banyak sehingga semakin banyak adsorbat yang akan diadsorpsi.

2. Memiliki porositas yang baik.

Pori-pori yang baik yaitu pori-pori yang seragam dan tetap karena keduanya akan berpengaruh pada selektifitas adsorbat.

3. Memiliki adsorptif yang baik

Adanya ruang-ruang kosong (pori) akan memungkinkan terjadinya adsorpsi, adsorpsi yang baik adalah adsorpsi yang kuat antara molekul adsorbat dan pengembannya.

4. Tahan panas

Suhu yang tinggi akan mengakibatkan struktur menjadi rusak dan aktivitas menjadi rendah.

5. Stabil secara kimia

Pada saat setelah terjadi reaksi, struktur molekul akan selalu tetap karena bila berubah akan mengakibatkan selektifitas menjadi rendah.

## 6. Reaktif

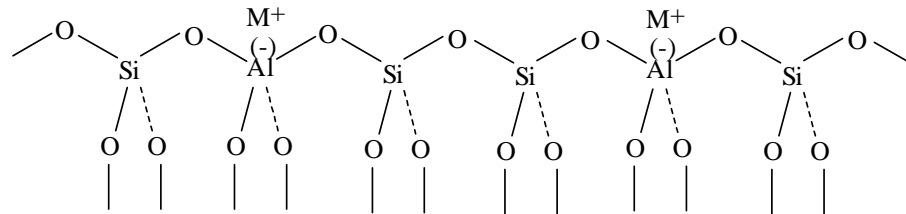
Mampu mengadakan ikatan dengan molekul adsorbat dengan baik, misalnya melalui pertukaran ion.

### 2.2 Zeolit

Zeolit ditemukan oleh seorang ahli mineral dari Swedia, bernama Baron Axel Frederick Cronstedt pada tahun 1756. Mineral zeolit berbentuk kristal yang terdapat di dalam rongga batuan basalt. Zeolit berasal dari kata zein dan lithos yang berarti batu api atau *boiling stone*. Zeolit merupakan kelompok mineral alumina silika terhidrasi yang secara umum memiliki rumus empiris  $M_x \cdot D_y \cdot (Al_{x+2y} \cdot Si_{x+2y} \cdot O_{2n}) \cdot mH_2O$ , notasi M dan D adalah K, Na, atau kation monovalen lainnya, x dan y adalah bilangan tertentu, n adalah muatan dari ion logam, dan m merupakan jumlah molekul air kristal yang selalu berubah-ubah (Susanti dan Panjaitan, 2010).

Zeolit mempunyai kerangka struktur tiga dimensi tersusun atas unit-unit tetrahedron  $(AlO_4)^{5-}$  dan  $(SiO_4)^{4-}$  yang saling berikatan melalui atom oksigen, membentuk pori-pori dengan ukuran pori antara 2 sampai 8 Å, tergantung pada jenis mineralnya. Ion Si bervalensi 4 sedangkan Al bervalensi 3. Pada struktur zeolit  $Si^{4+}$  dapat diganti dengan  $Al^{3+}$  sehingga terbentuk muatan berlebih pada Al. Hal ini mengakibatkan struktur zeolit kelebihan muatan negatif. Untuk menetralkan muatan negatif kerangka zeolit, zeolit mengikat kation-kation alkali atau alkali tanah seperti  $Na^+$ ,  $K^+$ ,  $Ca^{2+}$ , atau  $Sr^{2+}$ . Kation-kation tersebut terletak di

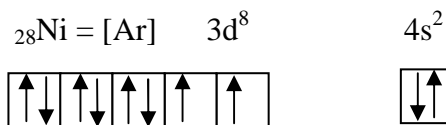
luar tetrahedral, dapat bergerak bebas dalam rongga-rongga zeolit dan dapat dipertukarkan dengan kation-kation lain (Tsitsishivili and Andronikashvili, 1992).



Gambar 2.1. Struktur umum zeolit (Tsitsishivili and Andronikashvili, 1992).

### 2.3 Logam Ni

Nikel adalah logam putih perak yang keras. Nikel bersifat liat, dapat ditempa, dan sangat kukuh. Logam ini melebur pada 1455 °C, dan bersifat magnetis (Svehla, 1990). Pada sistem periodik unsur merupakan logam golongan VIII B dengan konfigurasi elektron sebagai berikut :



Atom nikel mempunyai orbital 3d yang belum penuh. Sesuai aturan Hund, pada orbital 3d ini terdapat 2 elektron tak berpasangan. Oleh karena itu logam nikel mudah membentuk ikatan kovalen koordinat sehingga pembentukan zat antara pada permukaan katalis lebih mudah. Logam Ni berfungsi sebagai katalis dalam proses perengkahan. Sifat katalitiknya memang di bawah logam Pt, namun harga logam Ni jauh lebih murah sehingga logam Ni banyak digunakan untuk *hydrotreating* maupun perengkahan. Logam-logam ini secara langsung dapat berfungsi sebagai katalis tanpa diimbangkan terlebih dahulu, tetapi memiliki



kelemahan, diantaranya luas permukaan yang relatif kecil, dan selama proses katalitik dapat terjadi penggumpalan. (Trisunaryanti *et al.*, 2005).

#### **2.4 Metode Sonokimia**

Ahli kimia pertama yang memperkenalkan efek yang luar biasa dari gelombang suara yang kemudian disebut dengan *sonochemistry* adalah Alfred L. Loomis pada tahun 1927. Penelitian selanjutnya tidak dijumpai hampir 60 tahun. Sejak tahun 1980-an efek dari ultrasonik telah banyak digunakan oleh para ilmuwan diberbagai sektor, karena ultrasonik mempunyai dampak yang signifikan secara fisika dan kimia terhadap suatu zat (Suslick, 1994).

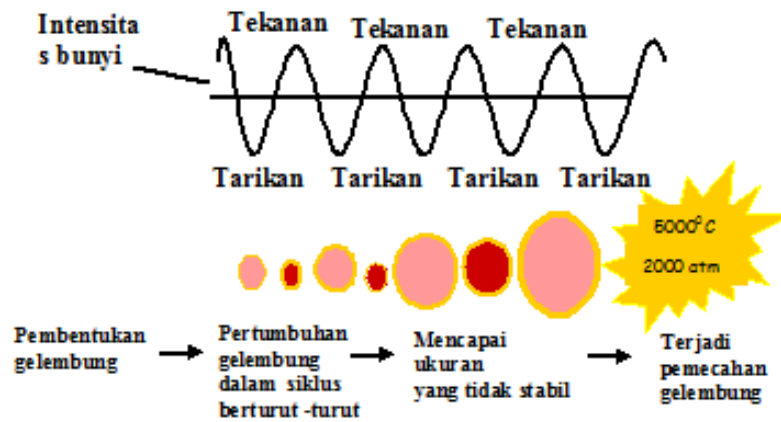
Menurut Chang (1994) Ultrasonik memiliki frekuensi diatas pendengaran manusia (di atas 16 KHz). Frekuensi yang lebih tinggi memiliki panjang gelombang yang lebih pendek.

Sonokimia adalah penggunaan energi suara untuk mendorong perubahan fisika dan kimia dalam medium cairan. Dimulai dengan penemuan ultrasonik *cleaning bath* yang sederhana, biasanya digunakan untuk menjaga pengaruh jarak dari reaksi kimia. Kemudian dikembangkan menjadi sebagai sintesis kimia dan sekarang bisa diaplikasikan dalam bidang perindustrian obat-obatan dan pembersihan alat-alat medis.

Sonokimia merupakan aplikasi ultrasonik untuk reaksi dan proses kimiawi. Ultrasonik ini memiliki rentang spektrum 20 kHz - 10 MHz. Secara kasar rentang ultrasonik dibagi menjadi tiga bagian penting yaitu frekuensi rendah dengan ultrasonik berkekuatan tinggi (20 – 100 kHz), frekuensi sedang dengan kekuatan ultrasonik sedang (100 kHz - 2 MHz), dan frekuensi tinggi

dengan kekuatan ultrasonik rendah (2 - 10 MHz). Frekuensi yang memiliki rentang 20kHz-2MHz inilah yang digunakan dalam sonokimia. Sonokimia umumnya dilakukan dalam medium cair. Seperti semua gelombang suara, ultrasonik ditransmisi melalui gelombang yang memadatkan dan melepaskan struktur dari medium yang digunakan. Setiap pelepasan fase diberikan tekanan negatif yang kuat untuk mengatasi gaya ikat intermolekuler sebuah medium fluida yang dapat mengganggu produksi gelembung (cavity) yang sangat kecil.

Gelombang ultrasonik yang menjalar di dalam medium cair memiliki kemampuan terus-menerus membangkitkan semacam gelembung atau rongga (cavity) di dalam medium tersebut yang kemudian secepat kilat meletus. Gelembung-gelembung yang meletus menghasilkan energi luar biasa besar yang berubah menjadi energi panas. Penciptaan dan luruhnya gelembung yang cepat memberikan efek transfer energi panas yang juga cepat. Gelembung-gelembung tadi mencapai suhu  $5000^{\circ}\text{C}$ , bertekanan 1000 atm, dan memiliki kecepatan pemanasan-pendinginan  $10^{10}\text{K/s}$  (Suslick dkk 1998). Selama terjadinya gelembung-gelembung, kondisi suatu reaksi bisa berubah drastis namun suhu medium teramati dingin karena proses terbentuk dan pecahnya gelembung tadi terjadi dalam skala mikroskopik. Penerapan ultrasonik dapat menyebabkan terbentuk partikel yang lebih kecil dan meningkatkan keseragaman ukuran. Secara garis besar, efek kavitasi dapat dilihat pada Gambar 2.2:

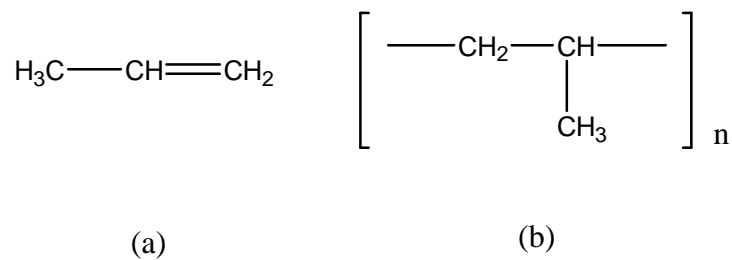


Gambar 2.2. Efek kavitasi pada irradiasi ultrasonik ([www.rsc.org](http://www.rsc.org)).

Getaran yang terjadi mengakibatkan tumbukan antara logam dengan zeolit alam dan getaran tersebut dimungkinkan juga dapat membuka pori-pori pada zeolit, sehingga logam Nikel dapat terlempar ke dalam zeolit alam. Selain itu penerapan ultrasonik dapat menyebabkan partikel menjadi lebih kecil dan meningkatkan keseragaman ukuran. Metode sonokimia disini adalah penggunaan ultrasonik dalam mensintesis bahan yang berukuran nano. Ultrasonik ini memiliki panjang spektrum 20kHz-10MHz. Hasil reaksi yang diperoleh dengan ultrasonik dapat berupa partikel nanoamorf dan nanokristalin.

## 2.5 Polipropilen

Molekul polipropilen mengandung atom karbon tersier dengan gugus metil rantai utama. Atom hidrogen terikat pada atom karbon tersier yang mudah bereaksi dengan oksigen dan ozon. Menurut proses yang serupa dengan metoda tekanan rendah untuk polietilen, mempergunakan katalis Ziegler – Natta.



Gambar 2.3. (a). Struktur Propilena dan (b). Struktur Polipropilena  
 Sumber: Stevens (2001)

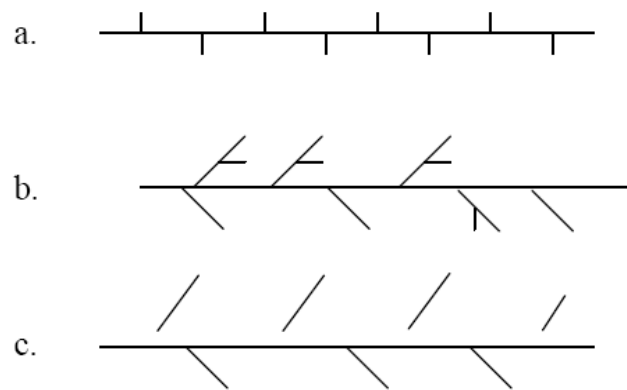
Polipropilena merupakan polimer kristalin yang dihasilkan dari proses polimerisasi gas propilena. Polipropilena mempunyai Transisi gelas ( $T_g$ ) yang cukup tinggi ( $190^\circ\text{C}$ – $200^\circ\text{C}$ ), sedangkan titik kristalisasinya antara  $130^\circ\text{C}$ – $135^\circ\text{C}$ . Polipropilena mempunyai ketahanan terhadap bahan kimia (chemical resistance) yang tinggi, tetapi ketahanan pukulnya rendah (Mujiarto, 2005). Konduktivitas terhadap panas rendah ( $0,12$  w/m), tegangan permukaan yang rendah, kekuatan benturan yang tinggi, tahan terhadap pelarut organik, bahan kimia anorganik, uap air, minyak, asam dan basa, isolator yang baik tetapi dapat dirusak oleh asam nitrat pekat, dan mudah terbakar oleh nyala yang lambat merupakan sifat yang dimiliki oleh plastik polipropilena. Faktor-faktor yang dapat mempercepat pengurangan stabilitas plastik polipropilena adalah panas (degradasi termal), penyinaran (degradasi UV), gesekan, bakteri (bio degradasi), oksigen (bahan kimia), waktu dan umur polipropilena (Hirwati, 2007).

Sifat kimia dari polipropilena mempunyai ketahanan yang sangat baik terhadap bahan kimia anorganik non pengoksidasi, deterjen, alkohol dan sebagainya. Tetapi polipropilena dapat terdegradasi oleh zat pengoksidasi seperti

asam nitrat dan hidrogen peroksida. Sifat kristalinitasnya yang tinggi menyebabkan daya regangannya tinggi, kaku dan keras (Ningsih, 2010).

## 2.6 Polietilen

Molekul polietilena merupakan atom karbon rantai panjang dengan dua atom hidrogen mengikat masing-masing setiap atom karbon. Polietilena adalah bahan termoplastik yang transparan, mempunyai titik leleh 110 - 137 °C. Umumnya polietilena bersifat resisten terhadap zat kimia. Pada suhu kamar polietilena tidak larut dalam pelarut organik dan anorganik. Polietilena dapat teroksidasi diudara pada temperatur tinggi dengan sinar ultraviolet. Struktur rantai polietilena dapat berbentuk linier, bercabang, atau berikatan silang (Billmeyer, 1984). Struktur polietilena tersebut dapat dilihat pada Gambar 4.



Gambar 2.4. Struktur polietilena a. HDPE, b. LDPE, c. LLDPE (Billmeyer,1984).

Beberapa jenis polietilena antara lain *Low Density Polyethylene* (LDPE), *High Density Polyethylene* (HDPE), dan *Linier Low Density Polyethylene* (LLDPE). LDPE memiliki struktur rantai percabangan yang tinggi dengan cabang-cabang yang panjang dan pendek. Sedangkan HDPE mempunyai struktur

rantai lurus, dan LLDPE memiliki rantai polimer yang lurus dengan rantai-rantai cabang pendek.

Polietilena merupakan polimer yang termasuk golongan polyolefin, dengan berat molekul rata-rata ( $M_w$ ) = 50.000-300.000. Jenis polietilena yang banyak digunakan adalah LDPE (*Low Density Polyethylene*) yang mempunyai rantai cabang digunakan sebagai pengemas yaitu sekitar 44,5% dari total plastik kemas kemudian diikuti HDPE (*High Density Polyethylene*) yang tidak mempunyai rantai cabang tetapi merupakan rantai utama yang lurus kurang lebih 25,4% (Masuda *et al.*, 1999). Sifat fisik dan mekanik dari LDPE dan HDPE disajikan pada Tabel 1.

Tabel 2.1. Sifat fisik dan mekanik polietilen

<b>Sifat fisik dan mekanik</b>	<b>LDPE</b>	<b>HDPE</b>
Berat jenis ( $\text{gr}/\text{cm}^3$ )	0,91-0,94	0,95-0,97
Titik leleh ( $^{\circ}\text{C}$ )	105-115	135
Kekerasan	44-48	55-70
Kapasitas panas ( $\text{kJ kg}^{-1} \text{K}^{-1}$ )	1,916	1,916
Regangan (%)	150-600	12-700
Tegangan tarik ( $\text{N mm}^{-2}$ )	15,2-78,6	17,9-33,1
Modulus tarik ( $\text{N mm}^{-2}$ )	55,1-172	413-1034
Tegangan dampak	>16	0,8-14

(Surdia dan Saito, 1995)

Secara kimia, polietilena sangat lembam. Polimer ini tidak larut dalam pelarut apapun pada suhu kamar, tetapi mengembang oleh hidrokarbon dan tetraklorometana (karbon tetraklorida). Polietilena tahan terhadap asam dan basa, tetapi dapat dirusak oleh asam nitrat pekat. Polietilena tidak tahan terhadap cahaya dan oksigen (Cowd, 1991).

## 2.7 Pirolisis

Proses peruraian suatu bahan pada suhu tinggi tanpa adanya udara atau dengan udara terbatas merupakan proses pirolisis. Sejak awal tahun 1930, teknik pirolisis telah digunakan di Jerman untuk peningkatan residu hidrogenasi yang diperoleh dari pencairan/pelelehan batu bara (coal liquefaction), selain itu teknik pirolisis juga digunakan untuk mengolah limbah plastik seperti yang telah dilakukan perusahaan BASF di Jerman.

Menurut Agra (1995) metode pirolisis dapat merubah limbah plastik menjadi minyak pirolitik dan padatan kokas. Beberapa keuntungan dari pirolisis meliputi:

1. Konsumsi energi yang rendah (sebagai contoh, maksimal hanya sekitar 10% dari jumlah energi limbah plastik yang digunakan untuk merubah potongan sampah plastik menjadi produk petrokimia).
2. Proses beroperasi tanpa membutuhkan udara atau campuran hidrogen dan tidak melibatkan tekanan.
3. Polutan - polutan dan pengotor dari proses pirolisis terkonsentrasi di dalam sebuah *coke-like matrix* yaitu sebuah residu padat dari proses. Pirolisis ini dilakukan dalam sebuah sistem tertutup, sehingga tidak ada polutan yang dapat keluar.

## 2.8 Perengkahan Katalitik

Perengkahan (cracking) merupakan proses pemecahan molekul-molekul hidrokarbon besar menjadi molekul-molekul yang lebih kecil dengan adanya pemanasan atau katalis.

Adanya pemanasan yang cukup dan katalis maka hidrokarbon paraffin akan pecah menjadi dua atau lebih fragmen dan salah satunya berupa olefin. Semua reaksi perengkahan adalah endotermik.

Proses perengkahan meliputi:

1) Proses Perengkahan thermal murni

Proses ini merupakan proses pemecahan molekul-molekul besar dari zat hidrokarbon yang dilakukan pada suhu tinggi yang bekerja pada bahan awal selama waktu tertentu. Pada pelaksanaannya tidak mungkin mengatur produk yang dihasilkan pada suatu proses perengkahan, biasanya selain menghasilkan fraksi rantai  $C_5-C_{12}$  juga mengandung molekul-molekul yang mempunyai fraksi rantai  $C_1-C_4$  (gas) dan molekul-molekul yang mempunyai fraksi rantai  $>C_{12}$ .

2) Proses perengkahan thermal dengan katalisator

Adanya katalisator maka reaksi perengkahan dapat terjadi pada suhu yang lebih rendah. Keuntungan dari proses thermis-katalisator adalah:

1. Produk fraksi rantai  $C_5-C_{12}$  lebih banyak dibanding produk dengan fraksi rantai  $C_1-C_4$  yang disebabkan oleh pendeknya waktu perengkahan.
2. Bekerja pada suhu rendah.

Adanya katalisator dapat terjadi proses isomerisasi, alkana-alkana dengan rantai lurus diubah menjadi hidrokarbon bercabang.

3) Proses perengkahan dengan Klorida-Aluminium ( $AlCl_3$ ) yang bebas air

Bila minyak bumi dengan kadar aromatik rendah dipanaskan dengan  $AlCl_3$  bebas air pada suhu  $180-200^{\circ}C$  maka akan terbentuk fraksi rantai  $C_5-C_{12}$ . Bahan yang tidak mengandung aromatik (misalnya parafin murni) dengan 2 atau



5%  $\text{AlCl}_3$  dapat merubah sebagian besar (90%) dari bahan itu menjadi fraksi rantai  $\text{C}_5\text{-C}_{12}$ , bagian lain akan ditinggal atau sebagai arang dalam ketel. Kerugian dari proses ini adalah :

1. Mahal karena  $\text{AlCl}_3$  yang dipakai akan menyublim dan mengurai.
2. Bahan-bahan yang dapat dikerjakan terbatas.
3. Pada saat reaksi berlangsung, banyak sekali gas yang bersifat asam maka harus memakai alat-alat yang tahan korosi (Fatimah, 2003).

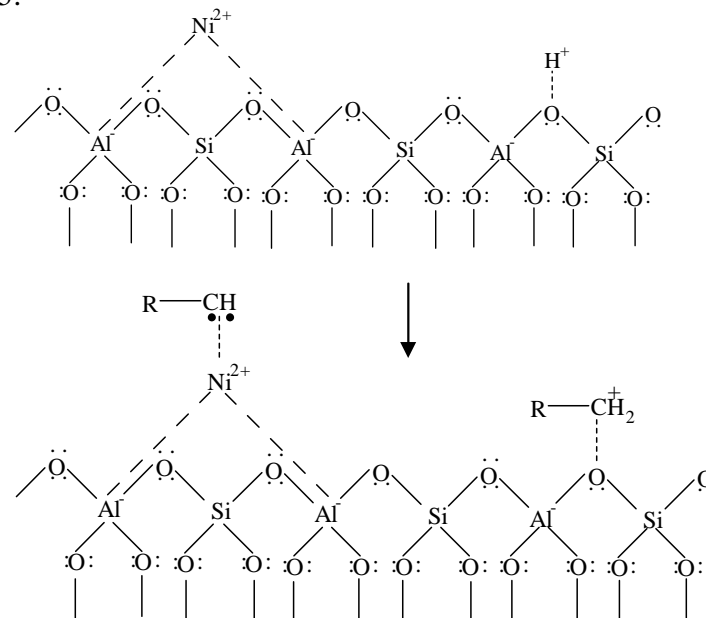
Metode perengkahan katalitik menggunakan katalis asam padat pada temperatur yang tinggi untuk menghasilkan proses pada peruraian molekul hidrokarbon yang besar menjadi yang kecil. Katalis yang biasa digunakan adalah alumina, silika, zeolit, dan beberapa jenis lainnya seperti *clay*. Selama proses perengkahan kereaktifan katalis berkurang, oleh karena itu lebih tidak stabil dan kation sementara tidak dapat bertahan lebih lama, lalu terakumulasi pada sisi aktif katalis yang menyebabkan penumpukan produk karbon yang lebih dikenal dengan kokas. Beberapa tumpukan perlu dipindahkan yang biasanya dilakukan dengan pembakaran yang bertujuan untuk meregenerasi katalis (Anonim .2012).

Pada perengkahan katalitik, katalis berpengaruh dalam sifat keasaman yang dapat dijelaskan dengan teori ion karbonium. Tahapan reaksi katalitik heterogen diawali dengan proses fisisorpsi, kemudian kemisorpsi dan membentuk produk yang selanjutnya produk akhir tersebut terlepas dari permukaan katalis (tahap desorpsi). Interaksi antara katalis dengan reaktan dapat menghasilkan senyawa yang lebih aktif sebagai zat antarats serta dapat meningkatkan kecepatan, ketepatan dan konsentrasi tumbukan (*encounter*) akibat dari lokalisasi reaktan.

Sebagai konsekuensi dari keadaan tersebut maka energi pengaktifan dari reaksi akan menjadi lebih rendah (Setyawan, *et al.*, 2009).

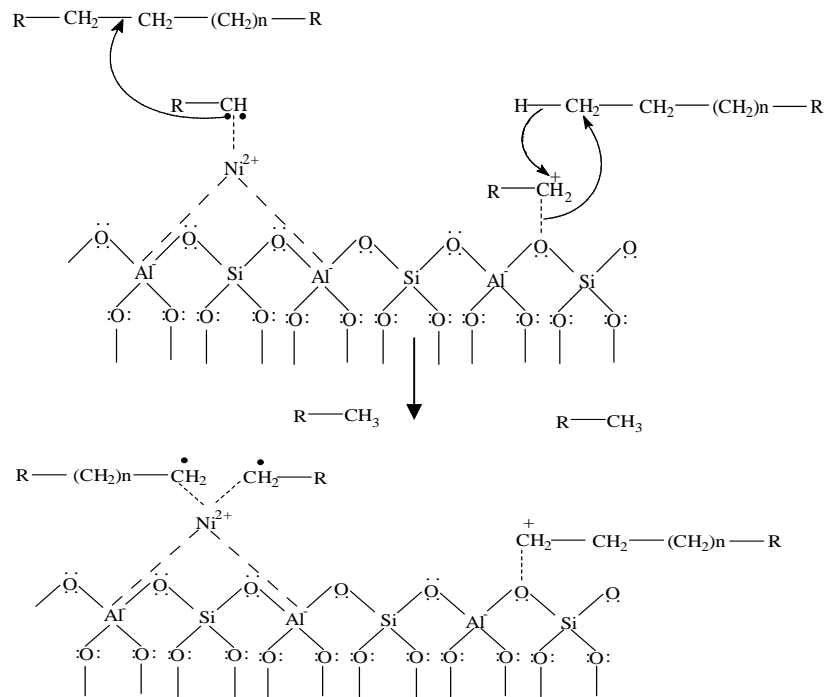
Mekanisme perengkahan adalah sebagai berikut:

Mula-mula ada katalis Ni/ZA yang sudah siap digunakan untuk proses perengkahan, lalu umpan berupa gugus fungsi metil datang membentuk ikatan dengan logam Ni dan  $H^+$ , terbentuklah radikal terstabilkan yaitu ikatan antara atom C dengan atom Ni serta terbentuk ion karbonium pada  $H^+$ , dijelaskan pada Gambar 2.5:



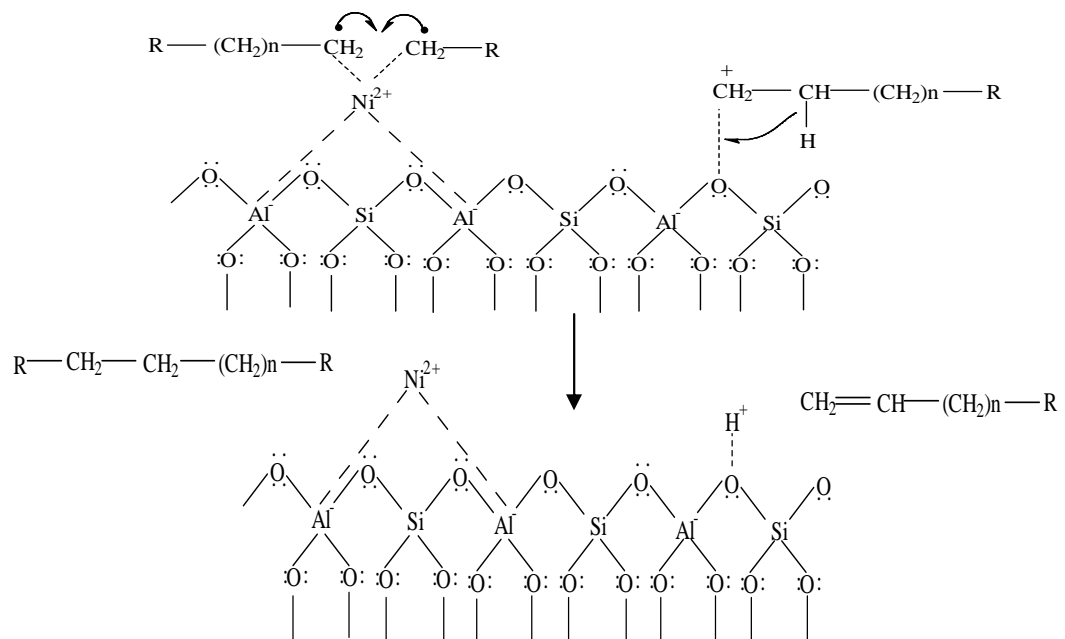
Gambar 2.5. Pembentukan radikal terstabilkan dan ion karbonium (Handoko *et al.*, 2009)

Lalu, proses berikutnya radikal terstabilkan menyerang umpan yang datang lagi, menyerang ikatan C-C pada umpan yang datang tersebut dan membentuk 2 radikal terstabilkan. Ion karbonium juga menyerang umpan yang lain akan tetapi ion karbonium menyerang ikatan C-H pada umpan tersebut dan membentuk ikatan ion karbonium dengan rantai C panjang pada umpan. Dijelaskan pada Gambar 2.6:



Gambar 2.6. Interaksi reaktan dengan ion karbonium dan radikal pada permukaan katalis (Handoko *et al.*, 2009)

Selanjutnya tahap terminasi terjadi apabila adanya penggabungan radikal terstabilkan (pada situs asam Lewis) dan terjadi pembentukan ikatan rangkap (pada situs asam Bronsted) lalu terbentuk kembali katalis Ni/ZA.



Gambar 2.7. Pembentukan kembali katalis zeolit dari ion karbonium (Handoko *et al.*, 2009).

## 2.9 Penelitian terkait

M., Abdul dkk. (2001) telah melakukan penelitian tentang pengaruh iradiasi ultrasonik pada preparasi katalis  $\text{CuO/ZnO/Al}_2\text{O}_3$  untuk reaksi hidrogenasi  $\text{CO}_2$  menjadi metanol, dalam penelitian tersebut divariasikan waktu iradiasi ultrasonik pada saat preparasi katalisnya. Adapun variasi waktunya yaitu 30, 60, dan 90 menit. Hasil penelitian menunjukkan bahwa waktu yang baik dalam iradiasi ultrasonik yaitu 60 menit yang menghasilkan luas permukaan katalis sebesar  $50,1 \text{ m}^2/\text{g}$ , sedangkan pada waktu iradiasi ultrasonik selama 30 menit menghasilkan luas permukaan katalis sebesar  $46,4 \text{ m}^2/\text{g}$  dan pada iradiasi dengan waktu 90 menit menghasilkan katalis dengan luas permukaan sebesar  $34,7 \text{ m}^2/\text{g}$ .

Rodiansono dkk. (2007) melakukan proses hidrorengkahan fraksi sampah plastik dengan jenis polipropilen menjadi fraksi bensin menggunakan katalis  $\text{NiMo/Z}$  dan  $\text{NiMo/Z-Nb}_2\text{O}_5$ . Pada penelitian ini didapatkan aktivitas katalis yang paling tinggi adalah katalis  $\text{Ni-Mo/Z}$  yaitu menghasilkan fraksi total  $\text{C}_5\text{-C}_{12}$  sebesar 64,60%. Proses perengkahan dilakukan pada suhu  $360^\circ\text{C}$  dengan rasio katalis:umpan yaitu 1:2.

Prasetyaningsih (2011) juga melakukan penelitian tentang pembuatan katalis  $\text{Ni/Z}$  untuk reaksi perengkahan katalitik limbah plastik menggunakan Fixed Bed Reactor, jenis plastik yang digunakan yaitu polipropilen dengan waktu perengkahan yaitu 2 jam. Namun pada pengembunan logam menggunakan metode impregnasi. Hasil analisis menunjukkan luas permukaan zeolit alam sebesar 40.09

m<sup>2</sup>/g sedangkan luas permukaan katalis Ni/Zeolit 4%, 6%, dan 8% berturut-turut sebesar 90,06 , 80,82 , dan 24,62 m<sup>2</sup>/g.

Uji aktivitas katalis terhadap produk katalitik perengkahan pada suhu 400<sup>0</sup>C menunjukkan katalis Ni 6%/Zeolit alam memiliki konversi terbaik dalam perengkahan limbah plastik yang mengandung polipropilen, namun pada suhu 450<sup>0</sup>C katalis Ni-4%/Zeolit alam memiliki konversi terbaik diantar katalis yang telah dipreparasi dan disintesis menggunakan metode impregnasi.

## **BAB 3**

### **METODE PENELITIAN**

#### **3.1 Lokasi Penelitian**

Penelitian ini dilakukan di Laboratorium Kimia FMIPA Universitas Negeri Semarang. Preparasi dan uji aktivitas katalis dilakukan di Laboratorium Kimia Fisik FMIPA Universitas Negeri Semarang. Uji karakteristik katalis dilakukan di Laboratorium Kimia Instrument FMIPA Universitas Negeri Semarang dan Laboratorium Anorganik Universitas Gadjah Mada, sedangkan uji terhadap produk perengkahan katalitik plastik dengan *Gas Chromatography (GC)* di Laboratorium Kimia Instrument FMIPA Universitas Negeri Semarang dan dengan *Gas Chromatography Mass Spectra (GC-MS)* di Laboratorium Kimia Organik Universitas Gadjah Mada.

#### **3.2 Variabel Penelitian**

##### **3.2.1 Variabel Bebas**

Variabel bebas adalah variabel yang nilainya divariasikan. Variabel bebas pada penelitian adalah : (i) Jumlah logam Ni yang diimbangkan pada zeolit alam aktif dengan metode sonokimia (3, 4 dan 5%) dan (ii) jenis plastik pada reaksi perengkahan katalitik yaitu plastik jenis polipropilen dan polietilen.

### **3.2.2 Variabel Terikat**

Variabel terikat adalah variabel yang menjadi titik pusat penelitian. Variabel terikat pada penelitian ini adalah karakteristik padatan Ni /Zeolit Alam yang dipreparasi dengan metode sonokimia, karakterisasi hasil perengkahan katalitik plastik polipropilen dan polietilen.

### **3.2.3 Variabel Terkendali**

Variabel terkontrol adalah faktor yang mempengaruhi hasil reaksi, tetapi dikendalikan. Variabel terkontrol dalam penelitian ini adalah waktu sonikasi 1 jam dengan kekuatan getaran 40Khz, temperatur pirolisis 475°C, rasio katalis : umpan 1:2, laju alir gas hidrogen (30 mL/menit) pada tekanan atmosfer dan suhu reaktor katalis 360°C.

### **3.3 Rancangan Penelitian**

#### **3.3.1 Alat dan Bahan**

##### **3.3.1.1 Alat Penelitian**

Alat-alat gelas, Thermometer, Pengayak 100 mesh, Lumpang porselin, Oven GCA Corp, Furnace, Reaktor kalsinasi dan oksidasi, Timbangan analitik, Desikator, Reaktor pirolisis, XRD Shimadzu XRD-6000, GC HP 5890 Series II, GC-MS Shimadzu QP-2010s, Spektrofotometer Serapan Atom (SSA) Perkin Elmer, Gas Sorption Analyzer NOVA 1200e, Sonoreaktor 40KHz.

##### **3.3.1.2 Bahan Penelitian**

Zeolit Alam (PT. Prima Zeolita),  $\text{NH}_4\text{Cl}$  (E. Merck), HF (E. Merck), HCl 6M, Nikel Nitrat Heksahidrat  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  p.a (E. Merck),  $\text{NH}_3$  25% (E. Merck), Gas hidrogen, Oksigen, dan Nitrogen (PT. Samator Gas), Aquademin, Plastik jenis polipropilen dan polietilen.



### 3.4 Prosedur Kerja

#### 3.4.1 *Perlakuan Awal Zeolit Alam*

- a. Merendam zeolit alam dalam aquademin sambil mengaduknya dengan pengaduk magnet selama sehari semalam pada temperatur kamar.
- b. Kemudian campuran disaring dan dikeringkan dalam oven pada temperatur 120°C selama 12 jam.

#### 3.4.2 *Aktivasi Zeolit dengan Perlakuan HF, HCL, dan NH<sub>4</sub>Cl*

- a. Merendam sebanyak 100 g zeolit alam dengan 250 mL larutan HF 1 % dalam wadah plastik selama 30 menit, kemudian mencucinya dengan aquademin.
- b. Kemudian dikeringkan dalam oven pada temperatur 130°C selama 24 jam.
- c. Setelah kering lalu sampel direfluks ke dalam 250 mL larutan HCl 6M selama 30 menit pada temperatur 50°C sambil diaduk, kemudian sampel disaring dan dicuci berulang kali sampai tidak ada ion Cl<sup>-</sup> (dapat dideteksi oleh larutan AgNO<sub>3</sub>).
- d. Sampel dikeringkan pada temperatur 130°C selama 3 jam dalam oven.
- e. Sampel kemudian direfluks dalam larutan NH<sub>4</sub>Cl 1N pada temperatur 90°C selama 3 jam perhari dalam 1 minggu sambil diaduk, kemudian disaring dan dikeringkan pada temperatur 130°C selama 3 jam dalam oven.
- f. Sampel dihaluskan hingga ukuran 100 mesh. Sampel ini diberi nama zeolit alam aktif .

### 3.4.3 Preparasi Ni/Zeolit alam dengan metode sonokimia

- a. Ditimbang sebanyak 30 gram zeolit alam aktif.
- b. Ditimbang lagi sebanyak 4,452 gram  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  lalu dilarutkan dalam aquademin 20 mL untuk logam Ni 3%.
- c. Samel direndam dalam larutan nikel nitrat heksahidrat  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  lalu sampel dimasukkan ke sonoreaktor dan digetarkan selama 1 jam dengan kekuatan 40KHz, kemudian pelarut dilarutkan.
- d. Mengulangi pekerjaan diatas untuk logam Ni 4% maka harus ditmbang  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  sebanyak 5,941 gram dan untuk logam Ni 5% harus ditimbang  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  sebanyak 7,427 gram.

### 3.4.4 Kalsinasi, Oksidasi, dan Reduksi Katalis

- a. Sampel-sampel katalis dimasukkan dalam reaktor, lalu dikalsinasi pada  $500^\circ\text{C}$  sambil dialiri gas nitrogen selama 5 jam dengan tujuan untuk memperbaiki dispersi logam.
- b. Kemudian sampel-sampel katalis dioksidasi dengan aliran gas oksigen pada temperatur  $400^\circ\text{C}$  selama 2 jam berfungsi untuk mengubah kompleks logam menjadi oksida logam. dan sampel-sampel katalis direduksi dengan gas hidrogen pada temperatur  $400^\circ\text{C}$  selama 2 jam dengan tujuan untuk mengubah ion logam menjadi atom logam.

### 3.4.5 *Karakterisasi Katalis*

#### 3.4.5.1 *Penentuan Kadar Ni dalam Katalis*

Untuk penentuan kandungan logam Ni, dapat ditentukan dengan spektrofotometer serapan atom (AAS). Pada penentuan kandungan logam Ni, analisis dilakukan secara berurutan terhadap larutan blanko, standar, dan cuplikan. Penyiapan standar dilakukan dengan cara mengencerkan larutan standar Ni(II) 1000 mg/L. Dari larutan tersebut dibuat larutan standar dengan konsentrasi 2, 4, 6, 10, dan 12 mg/L. Penyiapan larutan cuplikan yaitu dengan menimbang 1 g sampel kemudian dimasukkan ke dalam krus teflon yang sudah dibasahi dengan aquaregia. Ke dalam krus teflon ditambahkan sedikit demi sedikit 8 mL larutan HF 48%, selanjutnya ditambahkan 2 mL aquaregia. Campuran ini kemudian dibiarkan selama 12 jam dan setelah itu dipanaskan pada temperatur 90°C selama 2 jam di dalam oven, setelah dingin ditambahkan larutan H<sub>3</sub>BO<sub>3</sub> 10%. Larutan kemudian dipindahkan ke dalam labu ukur plastik 100 mL, lalu ditambahkan aquademin sampai tanda batas. Satu mL larutan cuplikan diencerkan lagi sebanyak 100 kali.

#### 3.4.5.2 *Penentuan Kristalinitas Katalis*

Kristalinitas katalis dapat diketahui dengan karakterisasi dengan XRD. Pada analisis XRD, kristal katalis mendifraksi sinar-X yang dikirimkan dari sumber dan diterima oleh detektor. Pola difraksi diplotkan berdasarkan intensitas puncak yang menyatakan peta parameter kisi kristal atau indeks *Miller (hkl)* sebagai fungsi  $2\theta$ ,  $\theta$  menyatakan sudut difraksi berdasarkan persamaan *Bragg*.

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

dengan  $d$  adalah jarak antar bidang kristal dengan indeks *Miller* ( $hkl$ ),  $\theta$  adalah sudut *Bragg*,  $n$  adalah bilangan bulat, dan  $\lambda$  adalah panjang gelombang (Abdullah dan Khairurrijal, 2010).

#### **3.4.5.3 Luas Permukaan, Volume Pori, dan Rerata Jejari**

Sifat permukaan dari katalis yang paling penting adalah luas permukaan spesifik maupun volume pori. Penentuan luas permukaan spesifik maupun volume pori terdiri dari dua tahapan yaitu preparasi dan analisa sampel. Sampel dipreparasi untuk membersihkan kontaminan (air atau molekul lain) yang mungkin teradsorpsi oleh sampel ketika penyimpanan. Preparasi (degassing) dilakukan kombinasi pemanasan, pemvakuman dan pengaliran gas nitrogen, sedangkan analisa sampel dengan adsorpsi  $N_2$  pada temperatur 77 C. gas nitrogen digunakan karena inert, non korosif dan dapat bersaing dengan material pembentuk. Selain gas nitrogen gas lain yang dapat digunakan adalah n-butana, karbondioksida, krypton, dan argon. Temperatur 77 C dipilih karena merupakan titik didih dari nitrogen cair pada keadaan standar.

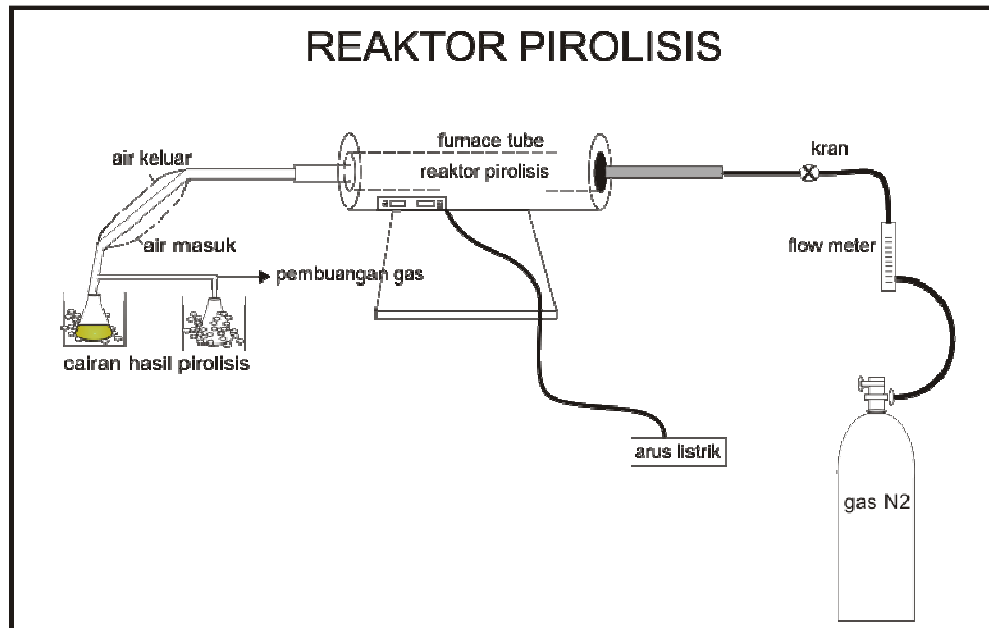
Luas permukaan spesifik katalis ditentukan berdasarkan jumlah gas nitrogen yang diperlukan untuk membentuk “*monolayer*” pada permukaan dan pori katalis pada tekanan relatif ( $P/P_0$ ) 0,05-0,35. Jumlah gas yang teradsorpsi pada tekanan tertentu didefinisikan sebagai isotherm adsorpsi. Diantara isotherm adsorpsi yang dikenal, isotherm adsorpsi yang diusulkan oleh Brunauer-Emmet-Teller (BET). Merupakan metode yang sering digunakan terutama untuk analisa mikropori (Adamson,1976).

#### **3.4.5.4 Keasaman Katalis (Keasaman Total dan Keasaman Permukaan)**

Penentuan jumlah situs asam katalis secara kuantitatif dengan metode gravimetri menggunakan piridin dan  $\text{NH}_3$  sebagai basa adsorbatnya. Sejumlah gram sampel dalam porselin telah diketahui beratnya dipanaskan pada temperatur  $120^\circ\text{C}$  selama 2 jam. Kemudian didinginkan dalam desikator diulangi hingga 3kali, ditimbang hingga berat tetap. Sampel dalam porselin ditempatkan dalam desikator kembali dan desikator divakumkan, lalu sampel dalam porselin dialiri gas  $\text{NH}_3$  yang berasal dari  $\text{NH}_3$  25% yang dipanaskan pada temperatur  $60^\circ\text{C}$  sehingga kelihatan uap di dalam desikator (kondisi penuh). Kemudian didinginkan selama 24 jam. Setelah itu ditimbang hingga diperoleh berat. Setelah itu diangin-anginkan selama 15 menit dan ditimbang berulang-ulang tiap 15 menit hingga diperoleh berat tetap. Ulangi pekerjaan sebelumnya dengan mengganti uap  $\text{NH}_3$  dengan piridin. Berat  $\text{NH}_3$  yang teradsorpsi dalam sampel. Berat uap  $\text{NH}_3$  yang teradsorpsi menunjukkan banyaknya jumlah asam total zeolit, sedangkan banyaknya uap basa piridin menunjukkan banyaknya jumlah asam yang teradsorpsi dipermukaan.

#### **3.4.6 Perlakuan Umpan Plastik dan Proses Pirolisis**

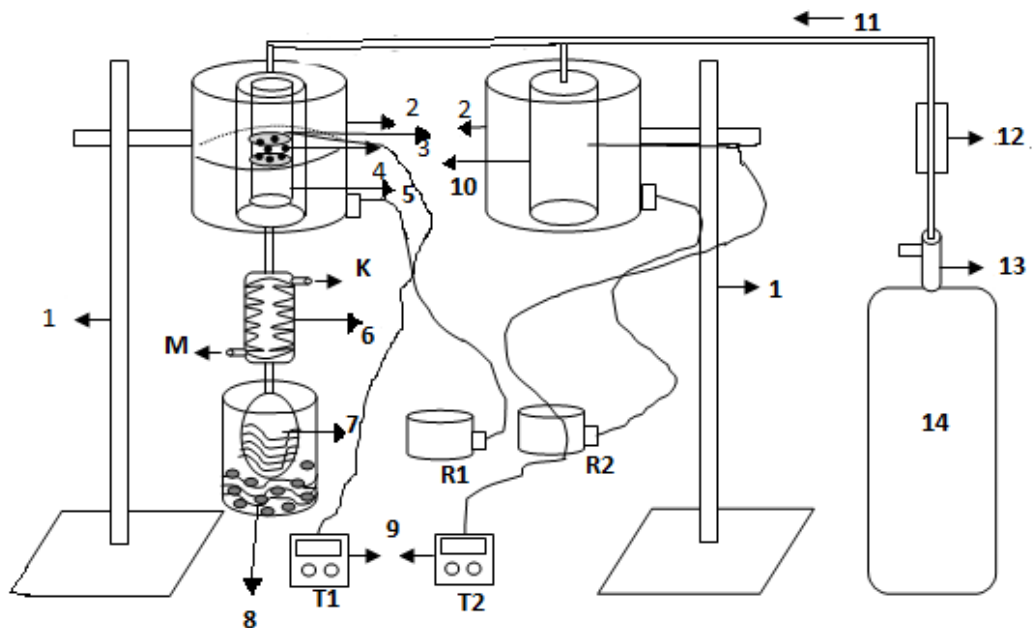
- a. Menyiapkan rangkaian alat pirolisis (ditunjukkan pada gambar 3.1.)
- b. Memasukkan plastik polipropilen sebanyak 500 gram ke dalam reaktor pirolisis.
- c. Menjalankan proses pirolisis pada temperatur  $475^\circ\text{C}$  dengan mengalir gas nitrogen (100 ml/menit).
- d. Melakukan langkah-langkah sebelumnya untuk jenis plastik polietilen.



Gambar 3.1. Reaktor Pirolisis Plastik (Rodiansono *et al.*, 2007)

#### 3.4.7 Uji Aktivitas Katalis dalam Perengkahan Katalitik

- a. Menyiapkan rangkaian alat perengkahan katalitik (ditunjukkan pada Gambar 3.2.).
- b. Menyiapkan hasil pirolisis (umpan) dan ditimbang terlebih dahulu sebelum di masukkan dalam reaktor
- c. Mengalirkan umpan dalam bentuk uap dari reaktor yang terbuat dari stainless steel bersama gas hidrogen dengan laju alir 30 mL/menit.
- d. Kemudian mengalirkan uap hasil perengkahan ke kondensator sehingga menghasilkan produk dalam fase cair.
- e. Kemudian mengkarakterisasi produk dengan GC HP 5890 Series II untuk mengidentifikasi fraksi yang terbentuk, sedangkan senyawa apa saja yang terkandung dalam produk dianalisis dengan GC-MS shimadzu QP-2010.



Keterangan :

M = Air Pendingin (masuk)

K = Air Pendingin (keluar)

R1 dan R2 = Regulator Listrik

T1 dan T2 = Termometer

1 = Statif

2 = Furnace Tube

3 = Tempat Katalis

4 = Katalis

5 = Reaktor Uji Katalis

6 = Pendingin Ulir

7 = Tempat Produk

8 = Air Es + Garam Dapur

9 = Termometer

10 = Tempat Umpan

11 = Aliran Gas  $H_2$  dan Umpan (Gas)

12 = Flowmeter Gas  $H_2$

13 = Regulator

14 = Tabung Gas  $H_2$

Gambar 3.2. Diagram Rangkaian Alat Uji Perengkahan Katalitik (Modifikasi Rodiansono *et al.*, 2007)

## **BAB 4**

### **HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN**

Penelitian tentang preparasi katalis Ni/Zeolit alam dengan metode sonokimia untuk perengkahan katalitik plastik polipropilen dan polietilen yang telah dilakukan di Laboratorium Kimia Fisik Jurusan Kimia Universitas Negeri Semarang. Penelitian yang dilakukan meliputi preparasi dan karakterisasi katalis hasil pengembanan logam Ni ke dalam zeolit alam menggunakan metode sonokimia, kajian tentang kemampuan katalis dalam reaksi perengkahan katalitik plastik jenis polipropilen dan polietilen.

Pada penelitian ini telah dilakukan preparasi dan karakterisasi logam Ni yang diembankan dalam bahan pengembanan zeolit alam. Zeolit alam yang digunakan adalah zeolit alam Wonosari dari PT Prima Zeolita, Yogyakarta. Zeolit alam kemudian diaktivasi menggunakan perlakuan asam dan garam kemudian dilakukan pengembanan menggunakan logam Ni dengan metode sonokimia. Untuk mengetahui kualitas dan karakteristik katalis yang telah dibuat, dilakukan karakterisasi katalis yang meliputi kristalinitas, keasaman, distribusi logam Ni, serta porositas katalis.

Umpan yang digunakan dalam penelitian ini adalah plastik jenis polipropilen dan polietilen yang sebelumnya telah dilakukan proses pirolisis, plastik direngkah menggunakan katalis Ni/zeolit alam dan produk dianalisis menggunakan GC dan GC-MS.



## **4.1 Hasil Penelitian**

### **4.1.1 Preparasi Katalis**

#### ***4.1.1.1 Perlakuan Awal Zeolit Alam***

Pada tahap ini zeolit alam yang berasal dari PT. Prima Zeolita berasal dari daerah Yogyakarta merupakan zeolit yang masih kotor warna zeolit alam adalah coklat gelap, sehingga diperlukan perlakuan untuk membersihkan zeolit tersebut. Sebelum diaktivasi, zeolit alam diberi perlakuan awal yaitu direndam dengan aquademin sambil diaduk dengan pengaduk selama 24 jam pada temperatur kamar, kemudian disaring dan endapan zeolit dikeringkan di dalam oven pada temperatur 130<sup>0</sup>C. Hasilnya menunjukkan bahwa setelah pencucian warna aquademin menjadi keruh dan setelah pengeringan, zeolit menjadi bersih yaitu berwarna putih kehijauan.

#### ***4.1.1.2 Aktivasi Zeolit Alam dengan HF, HCl, dan NH<sub>4</sub>Cl***

Zeolit yang telah dicuci menggunakan aquademin lalu dikeringkan, kemudian diayak dan diaktivasi menggunakan larutan asam yaitu HF 1% setelah perlakuan dengan HF 1% selesai selanjutnya dikeringkan pada oven dengan suhu 130<sup>0</sup> C dan zeolit alam berwarna putih agak keruh, proses selanjutnya yakni merefluks zeolit menggunakan HCl 6N, larutan HCl 6N yang mulanya jernih setelah direfluks dengan zeolit alam maka menjadi berwarna kuning kehijauan dan zeolitnya berwarna kehijauan, setelah aktivasi dengan menggunakan HF 1% dan HCl 6N yang diikuti dengan proses pengeringan dalam oven selama 3 jam dengan temperatur 130<sup>0</sup>C menjadi berwarna lebih putih.

Proses aktivasi selanjutnya yaitu perlakuan garam menggunakan larutan  $\text{NH}_4\text{Cl}$ . Setelah zeolit alam diberi perlakuan asam lalu direfluks menggunakan larutan  $\text{NH}_4\text{Cl}$  selama 7 hari, dan setiap hari dilakukan refluks menggunakan  $\text{NH}_4\text{Cl}$  selama 3 jam dengan suhu  $50^\circ\text{C}$  sambil diaduk setiap 10 menit sekali supaya pemanasan merata. Perendaman dengan larutan  $\text{NH}_4\text{Cl}$  ini dimaksudkan untuk menggantikan kation-kation penyeimbang dalam zeolit seperti  $\text{Na}^+$  dan  $\text{Ca}^{2+}$  dengan  $\text{NH}_4^+$ . Zeolit kemudian dikeringkan di dalam oven selama 3 jam dengan temperatur  $130^\circ\text{C}$  sehingga terbentuk H-Zeolit.

#### ***4.1.1.3 Pengembanan Logam Ni menggunakan Metode Sonokimia dalam H-Zeolit***

Setelah zeolit alam diaktivasi, logam Ni diembankan pada zeolit alam dengan metode sonokimia dengan variasi jumlah logam Ni yang diembankan (3, 4, dan 5%). Tujuannya yaitu untuk mengetahui karakteristik katalis dengan adanya penambahan logam Ni. Adanya perbedaan jumlah logam yang diembankan menyebabkan katalis yang dipreparasi mempunyai warna yang berbeda pula. Adapun perbedaan dari jumlah logam Ni yang diembankan yaitu untuk Ni 3% warna larutan hijau pudar, untuk Ni 4% larutan berwarna hijau, dan untuk larutan 5% warna larutan hijau pekat.

Sampel H-ZA direndam dalam larutan nikel nitrat heksahidrat dan disonikasi selama 1 jam kemudian dikeringkan dalam oven. Zeolit alam yang semula berwarna putih kecoklatan berubah menjadi kehijauan setelah pengembanan logam Ni. Perbedaan yang tampak yaitu warna pada Sampel Ni 3%

cokelat kehijauan pudar, pada sampel Ni 4% cokelat kehijauan, sedangkan pada sampel Ni 5% berwarna cokelat kehijauan pekat.

#### ***4.1.1.4 Kalsinasi, Oksidasi, dan Reduksi Katalis***

Setelah dilakukan aktivasi serta sonikasi logam Ni pada zeolit alam, dilakukan proses kalsinasi, oksidasi, dan reduksi secara berurutan. Kalsinasi katalis dilakukan dengan pemanasan pada temperatur 500°C dengan aliran gas N<sub>2</sub> selama 5 jam dengan tujuan untuk memperbaiki dispersi logam. Oksidasi katalis dilakukan pada temperatur 400°C selama 2 jam dengan aliran gas O<sub>2</sub> untuk mengubah kompleks logam menjadi oksida logam. Reduksi dilakukan pada 400°C dengan aliran gas H<sub>2</sub> selama 2 jam dengan tujuan untuk mengubah ion logam menjadi atom logam. Setelah proses kalsinasi, oksidasi, dan reduksi katalis Ni/ZA yang semula berwarna putih berubah menjadi keabu-abuan.

### **4.1.2 Karakterisasi Katalis**

#### ***4.1.2.1 Distribusi Logam Ni dalam Katalis Ni /Zeolit Alam***

Telah dikemukakan bahwa kualitas katalis antara lain ditentukan oleh kualitas dispersi logam dalam zeolit, sedangkan kualitas dispersi dipengaruhi oleh jumlah logam tersebut (Trisunaryanti *et al.*, 2005). Oleh karena itu, uji untuk mengetahui besarnya distribusi logam Ni dalam katalis yang telah dipreparasi menjadi sangat penting. Pengujian dilakukan menggunakan AAS, hasilnya disajikan pada Tabel 4.1.

Tabel 4.1. Distribusi Logam Ni dalam Katalis Ni/Zeolit Alam

Sampel	Hasil pengukuran (ppm)	Ni yang diembankan (gram)	Ni yang teremban (gram)	% efisiensi
Ni-3% /ZA	5,72	0,9	0,86	95%
Ni-4% /ZA	7,63	1,2	1,14	95,3%
Ni-5% /ZA	9,81	1,5	1,44	98%

#### 4.1.2.2 Pengaruh Pengembanan Logam Ni terhadap Kristalinitas Katalis Ni/Zeolit Alam

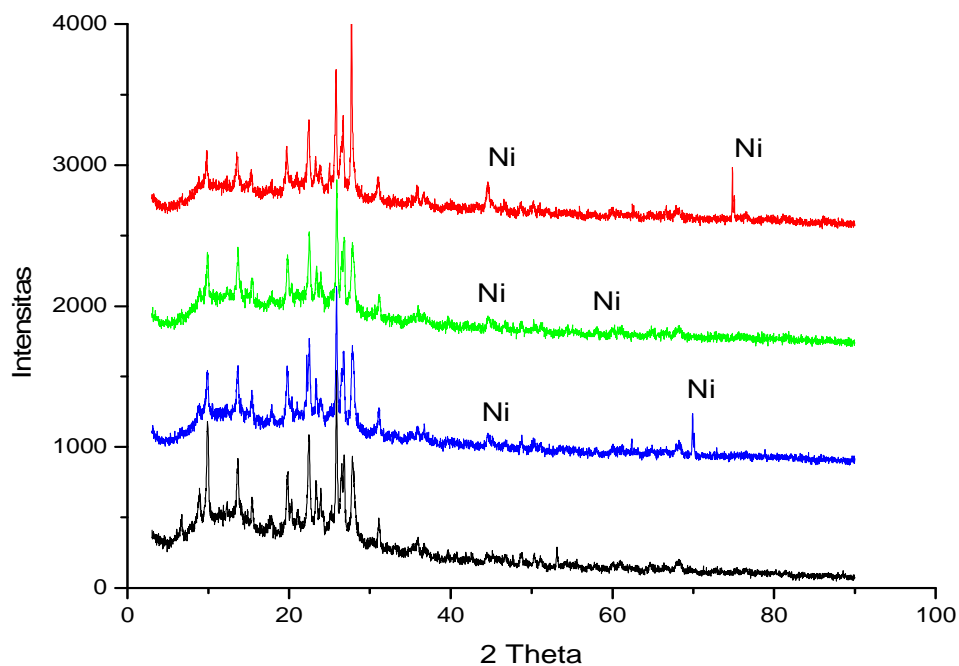
Analisis menggunakan XRD untuk masing-masing katalis dapat dilihat dari  $2\theta$  dan intensitasnya. Tiga puncak tertinggi digunakan untuk menentukan kristalinitas dan ukuran kristal pada masing-masing katalis, dapat dilihat pada Tabel 4.2.

Tabel 4.2. Data  $2\theta$ , Intensitas Tiga Puncak Tertinggi, dan ukuran Kristal dalam H-ZA, Ni-3%/ZA, Ni-4%/ZA dan Ni-5%/ZA

Katalis	$2\theta$	Harga $d$ (Å)	Intensitas	Ukuran kristal (nm)	Rata-rata ukuran kristal (nm)
H-ZA	25,8454	3,44443	699	33,76758981	15,60384
	9,8940	8,93265	455	6,771706051	
	22,4393	3,85985	450	6,272222916	
Ni-3%/ZA	25,8448	3,44451	571	32,43680026	14,45227
	27,8485	3,20106	355	4,040490883	
	22,4719	3,95330	344	6,879515762	
Ni-4%/ZA	25,8778	3,44019	543	30,56765469	20,60341
	26,7800	3,32631	326	24,14027596	
	22,4811	3,95170	304	7,102291708	
Ni-5%/ZA	27,7058	3,21722	1195	31,17288718	36,32349
	25,7612	3,45550	567	36,92101100	
	26,6800	3,33855	340	40,87656407	

Gambar 4.1, menunjukkan perbandingan difraktogram antara H-ZA dengan katalis Ni-3%/ZA, katalis Ni-4%/ZA dan katalis Ni-5%/ZA. Dengan membandingkan difraktogram H-ZA dengan katalis dapat diketahui pengaruh pengembanan logam Ni terhadap kristalinitas zeolit alam aktif serta dapat

mengetahui secara kualitatif ada atau tidaknya logam Ni dalam zeolit alam setelah proses pengembunan dengan metode sonokimia.



Gambar 4.1. Perbandingan Difraktogram antara H-ZA (hitam), Ni-3%/ZA (biru), Ni-4%/ZA (hijau), Ni-5%/ZA (merah)

#### 4.1.2.3 Luas Permukaan Spesifik, Rerata Jejari Pori, dan Volume Total Pori Katalis Ni /ZA

Semakin besar luas permukaan katalis maka peluang terjadinya reaksi perengkahan semakin besar. Selain itu, dengan ukuran jari-jari pori yang besar memberi kesempatan lebih bagi molekul umpan untuk dapat masuk sampai ke dalam pori. Hasil karakterisasi terhadap luas permukaan spesifik, rerata jejari pori, dan volume total pori katalis selengkapnya disajikan pada Tabel 4.3.

Tabel 4.3. Hasil Penentuan Luas Permukaan Spesifik, Rerata Jejari Pori, dan Volume Total Pori Katalis Menggunakan Metode BET

Sampel	Luas Permukaan Spesifik (m <sup>2</sup> /g)	Rerata Jejari Pori (Å)	Volume Pori (cc/g)
H-ZA	107	25,5	0,1325
Ni-3%/ZA	127,8	23,34	0,1360
Ni-4%/ZA	118,6	33,14	0,1850
Ni-5%/ZA	168,8	18,88	0,1510

#### 4.1.2.4 Penentuan Jumlah Situs Asam Katalis Ni /ZA

Keasaman katalis berkaitan dengan jumlah situs aktif dalam katalis. Apabila jumlah situs aktif besar, maka daya adsorpsi terhadap reaktan juga menjadi besar. Untuk mengetahui jumlah situs asam dalam katalis dilakukan adsorpsi basa adsorbat pada katalis. Jumlah situs asam dengan basa adsorbat piridin merupakan jumlah situs asam di permukaan dengan asumsi bahwa dengan ukuran molekul yang besar piridin hanya dapat sampai ke permukaan katalis, sedangkan jumlah situs asam dengan amoniak sebagai basa adsorbatnya merupakan jumlah situs asam total dengan asumsi bahwa NH<sub>3</sub> dengan ukuran molekul yang kecil dapat masuk sampai ke dalam pori-pori katalis. Polietilen dan polipropilen yang merupakan umpan dalam penelitian ini merupakan molekul dengan ukuran besar, sehingga umpan hanya mampu berinteraksi dengan situs aktif dipermukaan, karena tidak memungkinkan untuk masuk ke dalam rongga katalis. Hasil pengukuran keasaman katalis disajikan pada Tabel 4.4.

Tabel 4.4. Penentuan Jumlah Situs Asam dalam Katalis H-ZA, Ni-3%/ZA, Ni-4%/ZA dan Ni-5%/ZA

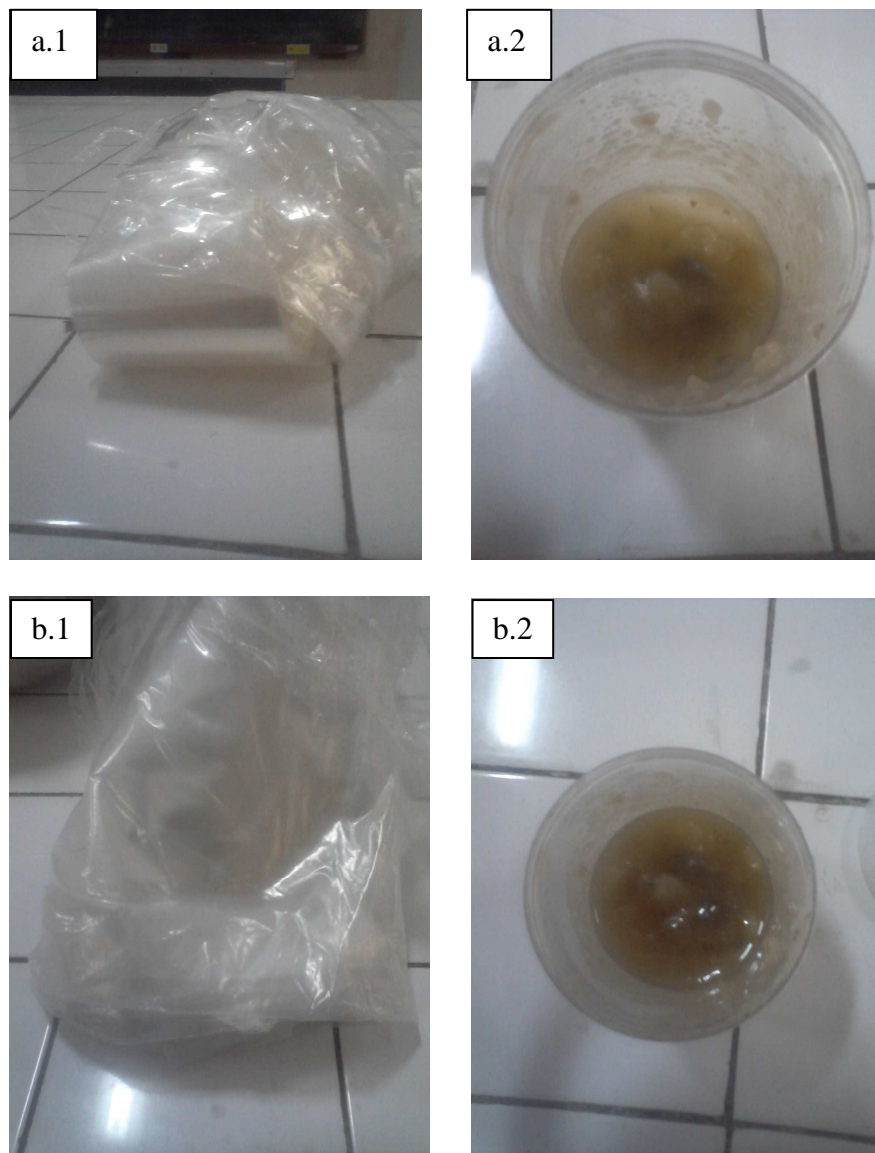
Sampel	Jumlah Situs Asam (mmol/gram)	
	Amonia (Total)	Piridin (Permukaan)
H-ZA	2,7314	0,2547
Ni-3%/ZA	3,1125	0,5096
Ni-4%/ZA	3,9855	0,7618
Ni-5%/ZA	5,6255	0,3911

#### 4.1.3 Uji Aktivitas Katalis

Uji aktivitas Katalis Ni/ZA dengan cara mengolah plastik (pirolisis) terlebih dahulu kemudian baru direngkahkan dengan katalis yang telah dipreparasi. Perengkahan plastik dilakukan dengan cara menguapkan hasil pirolisis pada suhu 250 °C dan dialirkan ke reaktor dengan katalis yang bervariasi dengan bantuan gas H<sub>2</sub> sebagai gas pembawa. Produk diidentifikasi menggunakan GC.

##### 4.1.3.1 Preparasi Umpan Reaksi Perengkahan

Umpan dalam reaksi perengkahan ini adalah hasil pirolisis plastik, proses pirolisis dilakukan di dalam reaktor pirolisis dengan suhu 475<sup>0</sup>C dan di aliri gas nitrogen dengan laju alir 100 ml/menit. Plastik yang dipirolisis yaitu jenis polipropilen dan polietilen, semula plastik berbentuk padat setelah dilakukan proses pirolisis menjadi semacam cairan lilin dan berbentuk lembek. Perbedaan plastik sebelum dan sesudah proses pirolisis ditunjukkan pada Gambar 4.2.



Gambar 4.2. Perbedaan Plastik Sebelum dan Sesudah Proses Pirolisis  
a.1 Plastik Polipropilen a.2 Hasil Pirolisis Plastik Polipropilen  
b.1 Plastik Polietilen b.2 Hasil Pirolisis Plastik Polietilen

#### ***4.1.3.2 Pengaruh Variasi Katalis pada Reaksi Perengkahan Katalitik Plastik***

Konversi total produk hasil perengkahan ditentukan dari besarnya produk yang terkonversi dari plastik. Penentuan konversi total ini dapat diketahui berdasarkan kromatogram produk perengkahan. Produk hasil perengkahan



katalitik plastik dalam penelitian ini adalah produk yang terbentuk setelah proses perengkahan menggunakan katalis (% fraksi kondensat). Proses perengkahan dilakukan dengan variasi jumlah logam Nikel pada masing-masing katalis, serta jenis umpan yang digunakan pada proses perengkahan katalitik plastik. Pada penelitian ini produk gas serta kokas hasil reaksi tidak ditentukan. Pengamatan menunjukkan bahwa warna katalis berubah warna dari abu-abu menjadi hitam yang diperkirakan terdapat kokas. % Fraksi kondensat yang dihasilkan dari reaksi perengkahan katalitik plastik disajikan dalam Tabel 4.5.

Tabel 4.5. Fraksi C<sub>5</sub>-C<sub>12</sub> Reaksi Perengkahan Katalitik Plastik

Katalis	%Fraksi Kondensat (berat/berat)	
	Polipropilen	Polietilen
Zeolit Alam	1,86	3,20
Ni-3%/Zeolit Alam	2,80	4,01
Ni-4%/Zeolit Alam	3,46	5,07
Ni-5%/Zeolit Alam	2,58	3,51

#### 4.1.3.3 Hasil Analisis Produk Perengkahan Katalitik Plastik Polipropilen

Produk yang dihasilkan selanjutnya di analisis menggunakan GC-MS untuk mengetahui komposisi senyawa kimia penyusunnya. Hasil analisis GCMS secara kuantitatif dan kualitatif disajikan dalam Tabel 4.6 dan Tabel 4.7.

Tabel 4.6. Hasil Analisis GCMS produk perengkahan katalitik plastik polipropilen secara kuantitatif.

Hidrokarbon	% Area Produk
C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub>	0,01
C <sub>5</sub> -C <sub>12</sub>	30,85
>C <sub>12</sub>	69,14

Tabel 4.7. Hasil Analisis GCMS produk perengkahan katalitik plastik polipropilen secara kualitatif

Waktu Retensi	Mr	Senyawa
4,692	114	4-metil-heptana
6,050	128	2,4-dimetil-heptana
6,308	126	4,4,5-trimetil-2-heksena
6,383	128	3,5-dimetil-heptana
6,467	126	2,4-dimetil-1-heptena
6,567	126	2,6-dimetil-3-heptena
10,725	156	2,6-dimetil-nonana
10,825	156	4-metil-deksena
11,808	168	2,2-dimetil-3-deksena
16,500	186	7-metil-1-undeksena

## 4.2 Pembahasan

### 4.2.1 Preparasi Katalis

#### 4.2.1.1 *Perlakuan Awal Zeolit Alam*

Tahap awal aktivasi zeolit alam yaitu dengan cara mencuci zeolit alam dengan aquademin, pada penelitian ini zeolit alam yang diaktivasi sebanyak 300 gram. Zeolit alam terdapat tidak dalam bentuk murninya, oleh karena itu zeolit alam sebelum dicuci berwarna coklat. Keberadaan senyawa pengotor menyebabkan zeolit tidak berwarna putih bersih. Warna zeolit alam kotor tergantung pada derajat kemurnian dan tingkat oksidasi  $Fe^{3+}$  pada zeolit tersebut. Sehingga perlu dilakukan aktivasi.

Pada pembersihan zeolit alam dilakukan dengan menggunakan aquademin, hal ini agar tidak ada lagi pengotor yang akan tertinggal pada zeolit,

selain itu pengotor-pengotor organik yang terdapat pada zeolit dapat terbawa dan larut oleh perlakuan dengan penambahan aquademin karena sifatnya yang polar.

Zeolit alam direndam dengan aquademin dalam jumlah yang cukup banyak karena untuk mempermudah pengotor-pengotor pada zeolit larut dengan aquademin. Selain itu perlu dilakukan pengadukan pada tahap pembersihan ini agar mempercepat pengotor-pengotor untuk terbawa oleh aquademin, selain itu perlakuan pengadukan juga merupakan salah satu cara fisika untuk perlakuan awal zeolit alam sebelum diaktivasi, karena dengan adanya pengadukan bertujuan untuk memperluas permukaan dan menghilangkan pengotor.

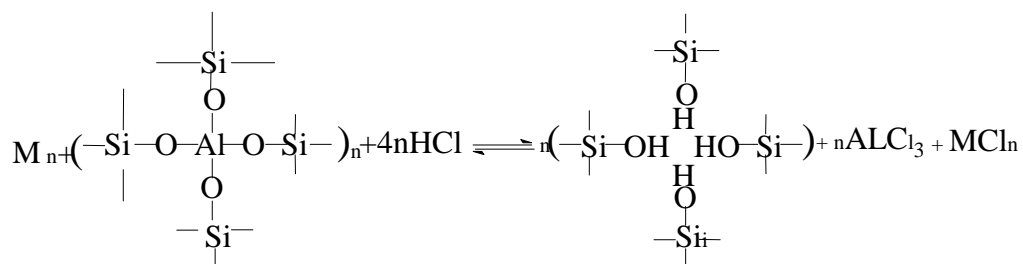
Setelah proses pencucian selesai, selanjutnya dilakukan pengeringan. zeolit alam yang telah kering berwarna putih kehijauan. Hal ini disebabkan oleh hilangnya pengotor organik yang telah larut bersama aquademin ketika proses pencucian.

#### **4.2.1.2 Aktivasi Zeolit Alam Dengan HF, HCl, dan NH<sub>4</sub>Cl**

Untuk meningkatkan kinerja dari zeolit alam maka perlu diaktivasi. Zeolit alam yang telah kering selanjutnya diaktivasi dengan perendaman HF 1% bertujuan untuk menghilangkan pengotor-pengotor dalam zeolit yang belum hilang saat pencucian dengan aquademin serta menghilangkan Si di luar *framework*. Setelah pengeringan warna zeolit menjadi putih agak keruh, hal ini disebabkan pengotor-pengotor zeolit alam ada yang larut ketika perlakuan HF 1%, dan hilangnya Si yang berada di luar *framework* pada zeolit alam yang digunakan.

Tahap selanjutnya yaitu merefluks zeolit alam dengan larutan HCl 6N. Penambahan HCl ini selain untuk membersihkan pori dari pengotor juga bertujuan

untuk menyerang kation-kation dan pengotor anorganik yang tidak larut dalam aquademin. Penambahan HCl dengan konsentrasi yang tinggi akan membuat kerangka zeolit alam akan mengalami perubahan atau kerusakan, yaitu kerangka Si dan Al berubah, tetapi apabila konsentrasi HCl yang digunakan rendah maka kerangka Si dan Al pada zeolit alam tidak mengalami perubahan. Larutan HCl dengan konsentrasi rendah hanya mengusir kation-kation yang ada di zeolit alam seperti  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$  dan  $\text{Fe}^{2+}$ . sehingga muatan Al dan  $\text{AlO}_4$  ternetralkan oleh  $\text{H}^+$  dari asam membentuk unikation. Dealuminasi yaitu proses penghilangan ion  $\text{Al}^{3+}$  diluar *framework* zeolit. Reaksi dealuminasi dalam zeolit alam disajikan menurut reaksi pada Gambar 4.3.



Gambar 4.3. Reaksi Dealuminasi dalam Zeolit dengan Bantuan HCl  
(Setyawan, 2002)

Sedangkan penggunaan HCl dengan konsentrasi tinggi dapat menyebabkan perubahan struktur Al, yaitu atom Al dalam zeolit akan terionisasi menjadi  $\text{Al}^{3+}$ , dan HCl pekat dapat mengeluarkan atom Al dari rangka. Dealuminasi ini dilakukan dengan menggunakan asam, tetapi tidak semua asam dapat digunakan secara optimal, yang paling baik dan optimal digunakan adalah HF, HCl, dan  $\text{NH}_4\text{Cl}$ . Sedangkan HBr maupun  $\text{H}_2\text{SO}_4$  tidak bisa dipakai karena termasuk asam kuat dan kurang optimal.

Pada saat aktivasi zeolit alam dengan HCl digunakan temperatur  $50^{\circ}\text{C}$  karena perlakuan pemanasan menyebabnya terlepasnya air yang terdapat dalam pori kristal zeolit sehingga luas permukaan zeolit menjadi meningkat.

Pada proses aktivasi menggunakan HCl 6N, HCl sebelum dilarutkan dalam zeolit alam berwarna jernih, sedangkan warna zeolit alam berwarna putih keruh. Ketika HCl dilarutkan pada zeolit alam, HCl akan mengalami perubahan warna menjadi kuning kehijauan. Warna kuning yang terjadi pada HCl merupakan tanda bahwa pengotor telah terikat dengan HCl, warna kemerahan kemungkinan adalah ion  $\text{Fe}^{3+}$  dan  $\text{Fe}^{2+}$  yang telah ikut larut dalam HCl.

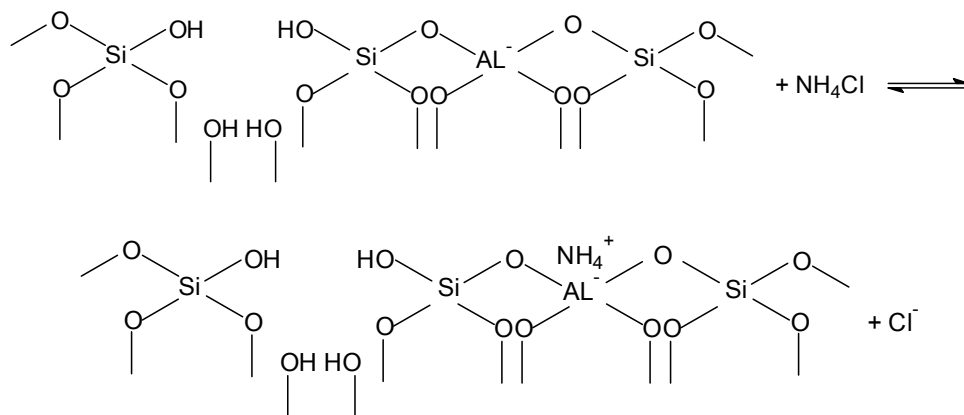
Pencucian zeolit alam setelah direfluks dengan HCl 6N dilakukan dengan menggunakan aquademin, pencucian ini sangat lama kira-kira 1 minggu dan dengan pengadukan yang stabil hal ini dikarenakan agar ion  $\text{Cl}^{-}$  yang telah meresap ke dalam zeolit alam dapat lepas kembali dengan pencucian. Lalu air bekas pencucian zeolit yang telah direfluks menggunakan HCl 6 N di uji menggunakan larutan  $\text{AgNO}_3$  untuk menguji apakah ion  $\text{Cl}^{-}$  sudah hilang atau belum, dengan cara air bekas cucian zeolit alam diambil kira-kira 10 mL lalu ditetesi menggunakan  $\text{AgNO}_3$ . Apabila terbentuk endapan putih ( $\text{AgCl}$ ) maka ion  $\text{Cl}^{-}$  belum hilang dari zeolit alam tersebut, sedangkan jika tidak terbentuk endapan putih maka ion  $\text{Cl}^{-}$  sudah hilang dari zeolit alam.

Sebelum dilakukan pengembanan dengan logam aktif pada zeolit alam, zeolit alam dilakukan refluks menggunakan  $\text{NH}_4\text{Cl}$  1 N, penambahan  $\text{NH}_4\text{Cl}$  sama fungsinya dengan penambahan HCl yaitu bertujuan untuk memperluas permukaan, memperbesar pori, serta menghilangkan pengotor anorganik. Zeolit

alam haruslah bebas dari ion  $\text{Cl}^-$ , karena ion  $\text{Cl}^-$  dapat mengganggu kerja dari zeolit yang akan digunakan untuk katalis. Pencuci zeolit dilakukan sampai berulang-ulang kali karena agar mempercepat hilangnya ion  $\text{Cl}^-$ , kemudian diuji pHnya sekitar 5-6.

Pada proses aktivasi menggunakan  $\text{NH}_4\text{Cl}$  akan terjadi pengikatan ion  $\text{NH}_4^+$  pada struktur zeolit alam yang kemudian  $\text{NH}_4^+$  ini disubstitusi oleh ion  $\text{Ni}^{2+}$ . Dua ion  $\text{NH}_4^+$  disubstitusi oleh satu ion  $\text{Ni}^{2+}$ , karena untuk menyetarakan muatan sehingga dapat terikat oleh ion  $\text{Al}^-$  yang ada dalam struktur zeolit alam.

Reaksi yang terjadi sebagai berikut :



Gambar 4.4. Pengikatan ion  $\text{NH}_4^+$  kedalam struktur zeolit.

Pada reaksi diatas dapat dilihat bahwa ion  $\text{NH}_4^+$  akan mengisi ke dalam struktur zeolit dengan posisi  $\text{NH}_4^+$  seperti posisi logam-logam pengotor yang ada sebelum pencucian dengan  $\text{HCl}$ , tetapi hasil samping dari reaksi dengan  $\text{NH}_4\text{Cl}$  mengakibatkan terbentuknya ion  $\text{Cl}^-$ , sehingga ion  $\text{Cl}^-$  harus dihilangkan dengan pencucian dengan aquademin dan pemanasan.

Adanya pemanasan akan menghilangkan ion  $\text{Cl}^-$  yang tidak hilang ketika pencucian, selain itu akan membentuk H-ZA sehingga ion  $\text{NH}_4^+$  yang terkandung di dalam zeolit, ion  $\text{NH}_4^+$  berubah menjadi gas ammonia yang menguap.

Warna H-ZA setelah diaktivasi menggunakan asam dan garam menjadi putih bersih, hal ini menunjukkan bahwa pengotor-pengotor yang ada pada zeolit alam telah hilang, sehingga akan mempermudah proses pengembanan logam Ni ke dalam zeolit alam.

#### ***4.2.1.3 Pengembanan Logam Ni menggunakan Metode Sonokimia dalam H-Zeolit***

Logam nikel berfungsi untuk meningkatkan jumlah situs asam atau situs aktif. Hal ini dikarenakan adanya orbital  $d$  yang belum terisi penuh oleh elektron. Ion-ion logam dengan konsentrasi rendah lebih leluasa untuk bergerak masuk ke dalam pori dibandingkan dengan konsentrasi ion logam yang besar. Hal ini mengakibatkan ion-ion logam tidak dapat masuk sampai ke dalam pori secara merata.

Pada pengembanan ini larutan ion Ni dibuat tidak terlalu encer dan tidak terlalu pekat. Larutan ion Ni dicampur dengan H-ZA hingga berbentuk seperti bubuk (H-ZA terendam larutan ion Ni) untuk memaksimalkan pengembanan logam ke dalam H-ZA. Mula-mula H-ZA berwarna putih bersih lalu direndam pada larutan nikel nitrat heksahidrat yang berwarna hijau pekat. Ketika zeolit alam direndam larutan nikel nitrat heksahidrat, warna ketiga katalis menjadi putih kehijauan dan katalis Ni-5%/zeolit alam warna kehijauannya lebih pekat dibanding dengan katalis lainnya, karena pada katalis Ni-5%/zeolit lebih banyak

mengandung logam Ni dan warna kehijauan itu menandakan bahwa ada logam Ni yang telah teremban pada zeolit alam aktif tersebut. Setelah disonikasi selama 1 jam kemudian pelarut diuapkan, warna putih kehijauan menjadi memudar, ini memendakan bahwa pelarut telah menguap dan yang tertinggal ialah ion logam Ni.

#### ***4.2.1.4 Kalsinasi, Oksidasi, dan Reduksi Katalis***

Setelah dilakukan aktivasi serta pengembanan logam Ni dalam zeolit alam, dilakukan proses kalsinasi, oksidasi, dan reduksi. Pada saat katalis dikalsinasi katalis masih berwarna putih kehijauan, gas N<sub>2</sub> masuk kedalam pori-pori katalis membersihkan pori-pori katalis yang masih kotor oleh pengotor organik, pengotor-pengotor tersebut didesak keluar oleh gas N<sub>2</sub>. Warna katalis masih tetap seperti semula. Pada saat proses oksidasi, katalis yang semula berwarna putih kehijauan berubah menjadi warna coklat. Hal ini dikarenakan hilangnya ligan H<sub>2</sub>O dalam ion kompleks logam yang masih cukup kuat menempel dalam pori katalis, sedangkan pada proses reduksi, katalis yang semula berwarna coklat berubah menjadi abu-abu untuk katalis Ni-3%/ZA, abu-abu kehitaman untuk katalis Ni-4%/ZA, dan hitam untuk katalis Ni-5%/ZA hal ini dikarenakan berubahnya ion logam Ni menjadi atom logam (bermuatan netral/nol), adanya perbedaan jumlah logam Ni yang teremban pada masing-masing katalis yang menyebabkan perbedaan warna katalis semakin banyak logam yang teremban katalis akan berwarnan hitam.



## **4.2.2 Karakterisasi Katalis**

### ***4.2.2.1. Distribusi Logam Ni dalam katalis Ni /Zeolit Alam***

Berdasarkan Tabel 4.1, Katalis Ni-5%/ZA mempunyai konsentrasi 9,51 ppm dibandingkan dengan katalis Ni-3%/ ZA dan Ni-4%/ ZA. Hal ini dikarenakan jumlah logam Ni yang teremban dalam katalis Ni-5%/ ZA lebih banyak dibandingkan dengan katalis yang lain.

Persentase efisiensi pengembanan logam Ni pada katalis Ni-3%/ZA, Ni-4%/ZA, dan Ni-5%/ZA beerturut-turut yaitu 95, 95,3 dan 98%. Hal ini menunjukkan pada katalis Ni-5%/ZA mampu menerima donor elektron dari logam Ni lebih banyak dari pada katalis yang lain.

### ***4.2.2.2. Pengaruh Pengembanan Logam Ni terhadap Kristalinitas Katalis Ni/Zeolit Alam***

Berdasarkan data pada Tabel 4.2 dapat dilihat bahwa dengan adanya pengembanan logam Ni tidak menurunkan kristalinitas zeolit. Meskipun terjadi penurunan intensitas pada katalis yang telah diembankan, namun puncak-puncak tersebut masih runcing dan tinggi sehingga kristalinitas zeolit tidak rusak akibat pengembanan logam Ni tersebut. Kristalinitas pengembanan zeolit sangat penting dalam mempengaruhi sifat katalis. Apabila kristalinitas tinggi maka dapat diketahui bahwa pengembanan tersebut bebas dari pengotor serta sifat-sifat fisiknya tidak terganggu (sifat katalitik tinggi, stabil pada suhu tinggi, dan porositas yang luas) dan akan mempengaruhi hasil pada proses perengkahan katalitik plastik polipropilen maupun polietilen.

Pada gambar 4.1 ditunjukkan gambar difraktogram antara H-ZA, Ni-3%/ZA, Ni-4%/ZA, Ni-5%/ZA, dengan membandingkan difraktogram antar H-ZA dengan ketiga katalis yang dibuat maka dapat diketahui kristalinitas zeolit alam aktif setelah pengembanan logam Ni dan dapat mengetahui secara kualitatif ada tidaknya logam Ni yang diembankan menggunakan metode sonokimia.

Pada katalis Ni-3%/ZA terlihat bahwa adanya penurunan intensitas pada beberapa puncak difraktogram dibandingkan dengan difraktogram H-ZA. Namun penurunan ini tidak mempengaruhi kristalinitas dari katalis secara signifikan karena puncak-puncak difraktogram Ni-3%/ZA masih runcing yang mengindikasikan bahwa material tersebut merupakan kristalin. Puncak baru muncul pada  $2\theta$   $71^\circ$  dan  $63^\circ$  yang merupakan puncak dari difraksi logam Ni.

Begitu juga pada Katalis Ni-4%/ZA terjadi penurunan intensitas dan muncul *peak* baru pada  $2\theta$   $45^\circ$  dan  $63^\circ$  namun intensitasnya kecil dibanding dengan katalis Ni-3%/ZA. Hal ini dikarenakan pada katalis Ni-4%/ZA terjadi *sintering* atau penggumpalan sehingga sampel yang diambil untuk diuji menggunakan XRD kebetulan kurang baik.

Sedangkan katalis Ni-5%/ZA mempunyai intensitas yang tinggi yaitu pada  $2\theta$   $27,5^\circ$  dibanding dengan katalis Ni-3%/ZA dan Ni-4%/ZA. Pada katalis Ni-5%/ZA juga muncul *peak* baru yaitu pada  $2\theta$   $44,5^\circ$  dan  $75^\circ$ .

Gambar 4.1 menunjukkan adanya kecenderungan bahwa logam yang diembankan berlebih menyebabkan pergeseran pola difraksi. Hal ini karena logam yang diembankan akan mengalami proses termal lebih banyak yang dapat mempengaruhi dispersi logam serta distribusinya di dalam katalis. Munculnya

puncak baru, pergeseran puncak, serta kenaikan intensitas puncak pada Gambar 4.1 mengindikasikan adanya distribusi logam Ni pada permukaan katalis setelah proses pengembanan dengan metode sonokimia. Hasil ini diperoleh dengan membandingkan puncak baru pada difraktogram katalis dengan JCPDS logam Ni.

#### **4.2.2.3. Luas Permukaan Spesifik, Rerata Jejari Pori, dan Volume Total Pori**

Tabel 4.3 menunjukkan bahwa luas permukaan yang besar mempunyai volum pori dan ukuran pori yang kecil hal ini dikarenakan logam Ni yang diembankan pada zeolit alam terdistribusi merata sehingga terjadi pembentukan permukaan baru menutupi pori-pori zeolit alam. Pada katalis Ni-5%/ZA mempunyai luas permukaan lebih besar bila dibandingkan dengan Ni-3%/ZA, Ni-4%/ZA dan H-ZA sedangkan rerata jejari porinya dan volume pori katalis kecil. Pada katalis Ni-4%/ZA mempunyai luas permukaan yang lebih kecil bila dibandingkan dengan katalis yang lain akan tetapi mempunyai volume pori dan jari-jari pori yang paling besar, hal ini disebabkan Logam Ni hanya membentuk luas permukaan yang kecil sehingga pori-pori zeolit tidak tertutup oleh logam Ni.

Pada reaksi perengkahan plastik polipropilen dan polietilen, umpan yang mempunyai molekul berukuran besar memungkinkan terjadinya kontak antara reaktan dengan katalis. Oleh karena itu, volume pori katalis yang berukuran besar memberikan kesempatan yang lebih besar pada reaktan untuk dapat masuk ke dalam pori katalis sehingga jumlah molekul reaktan yang di adsorpsi pada pori-pori katalis akan meningkat sehingga reaksi akan lebih cepat. Semakin banyak umpan yang teradsorpsi maka akan semakin banyak reaksi yang terjadi, sehingga produk yang dihasilkan semakin banyak.

#### 4.2.2.4. Penentuan Jumlah Situs Asam Katalis Ni /Zeolit Alam

Tabel 4.4 menunjukkan bahwa baik katalis Ni-3%/ZA, Ni-4%/ZA maupun Ni-5%/ZA mengalami kenaikan jumlah situs asam bila dibandingkan dengan H-ZA. Berdasarkan data pada Tabel 4.4 kenaikan situs asam dengan menggunakan basa piridin maupun amonia memiliki pola yang sama untuk masing-masing katalis. Hal ini disebabkan karena adanya pengembunan logam Ni dalam katalis. Distribusi logam yang tersebar merata pada permukaan zeolit akan meningkatkan keasaman katalis karena adanya orbital  $d$  yang belum penuh pada logam Ni yang efektif untuk menerima pasangan elektron dari basa adsorbat. Berdasarkan Tabel 4.4 jumlah situs asam total yang paling besar adalah pada katalis Ni-5%/ZA yaitu sebesar 5,6255 mmol/gram akan tetapi keasaman permukaannya kecil. Sedangkan katalis Ni-4%/ZA mempunyai keasaman total yang tidak begitu besar akan tetapi keasaman permukaannya besar yaitu 0,7618 mmol/gram. Menurut Satarno, *et al.*, (2003), semakin tinggi keasaman suatu padatan (katalis), semakin tinggi pula rasio Si/Al nya dan semakin besar pula luas permukaan katalis tersebut karena dengan semakin tinggi rasio Si/Al, maka keteraturan kristal mesopori akan semakin meningkat. Pada reaksi perengkahan katalitik ini, aktivitas terbaik diperoleh oleh katalis Ni-4%/ZA. Hal ini menunjukkan bahwa dalam reaksi perengkahan ini tidak hanya situs aktif total saja yang berperan, melainkan juga situs aktif di permukaan juga. Pada umumnya reaksi perengkahan dapat berlangsung dengan keasaman total antara 0,9 mmol/gram sampai 3 mmol/gram (Rodiansono *et al.*, 2007; Trisunaryanti *et al.*, 2005).

### **4.2.3 Uji Aktivitas Katalis**

#### ***4.2.3.1. Preparasi Umpan Reaksi Perengkahan***

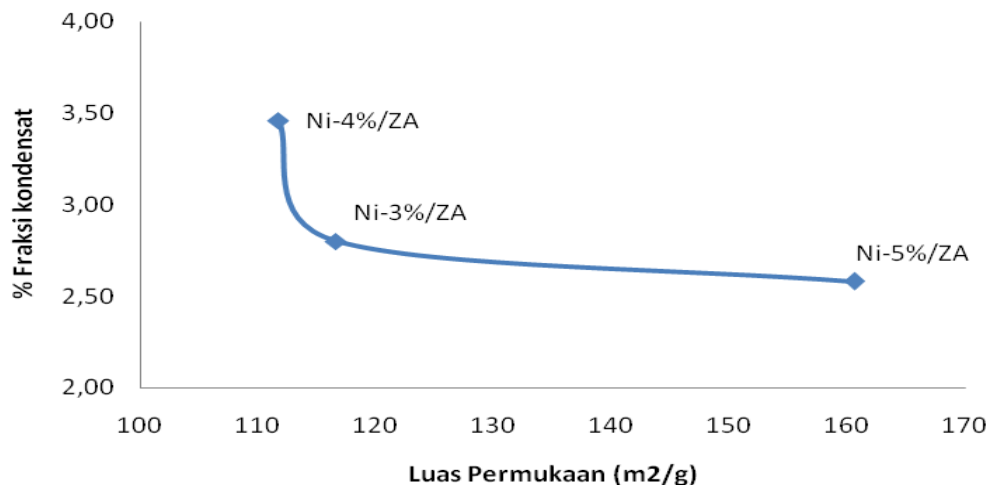
Plastik yang semula berbentuk padatan setelah dilakukan pirolisis ini menjadi cairan plastik, pemanasan pada suhu tinggi menyebabkan rantai atom C terputus dengan atom C yang lain yang menyebabkan plastik tidak akan memadat lagi. Plastik polipropilen maupun polietilen dipirolisis dengan suhu 475 °C karena pada suhu tersebut merupakan temperatur dimana plastik tersebut meleleh dan menguap.

#### ***4.2.3.2. Pengaruh Variasi Katalis pada Reaksi Perengkahan Katalitik Plastik***

Sifat-sifat katalis yang penting pada proses konversi plastik antara lain jumlah situs asam totalnya (keasaman), luas permukaan, rerata jari pori dan distribusi logam pada katalis. Keasaman zeolit dapat ditingkatkan dengan cara pengembanan logam-logam transisi yang memiliki orbital d belum terisi penuh. Aktivasi katalis dapat meningkatkan rasio Si/Al, sehingga meningkatkan keasaman dan luas permukaan pada katalis. Variasi jumlah logam Ni yang diembankan mempengaruhi jumlah keasaman suatu katalis, baik itu keasaman total maupun keasaman permukaan. Begitu pula dengan luas permukaan katalis dapat ditingkatkan dengan pengembanan logam transisi pada zeolit.

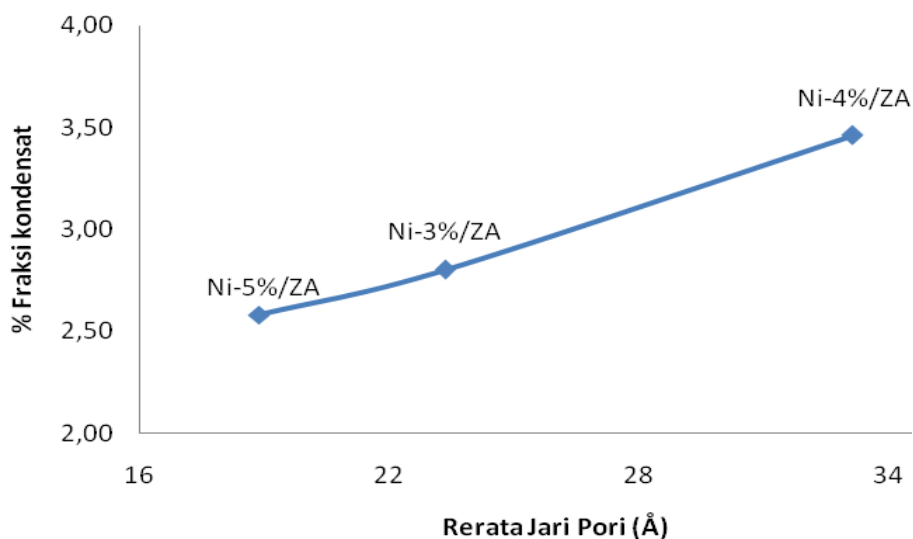
Pada penelitian ini aktivitas relatif total katalis didefinisikan sebagai kemampuan katalis dalam memecah rantai C panjang menjadi rantai C pendek. Pada Tabel 4.3 menjelaskan karakterisasi menggunakan BET dan Tabel 4.5 menjelaskan % fraksi kondensat hasil perengkahan plastik. Kedua data dapat

dibuat tabel hubungan antara luas permukaan, jejari rerata, dan volume pori dengan % fraksi kondensat hasil perengkahan plastik polipropilen. Grafik hubungan antara luas permukaan dengan % fraksi perengkahan plastik polipropilen disajikan pada Gambar 4.5:



Gambar 4.5. Grafik hubungan antara luas permukaan katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan plastik polipropilen

Sedangkan hubungan rerata jari pori katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan plastik polipropilen disajikan pada Gambar 4.6:

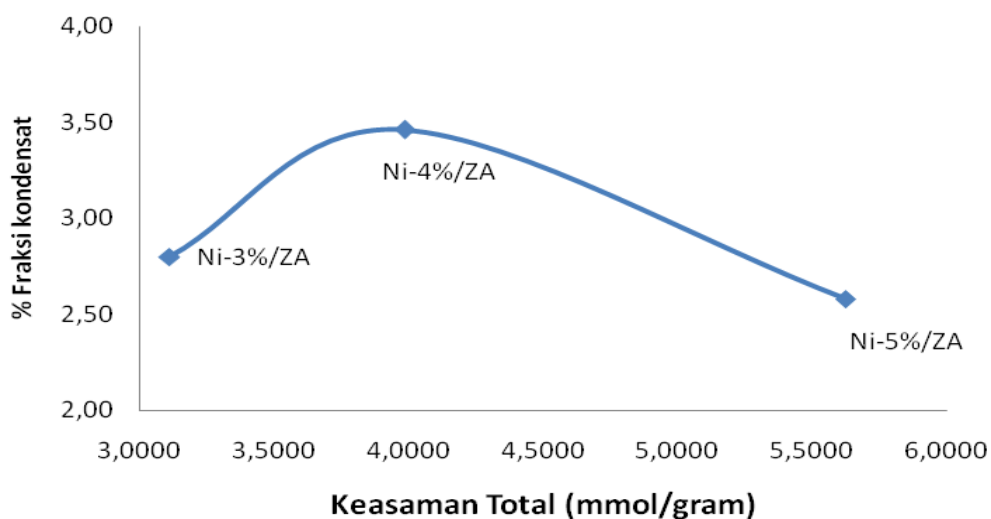


Gambar 4.6. Grafik hubungan antara rerata jari pori katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan plastik polipropilen

Pada Gambar 4.5 dapat disimpulkan bahwa semakin besar luas permukaan berbanding terbalik dengan jumlah % fraksi kondensat perengkahan plastik polipropilen, hal ini dikarenakan bahwa pada proses perengkahan, molekul polipropilen (umpan) yang masuk kedalam katalis berukuran besar sehingga pori katalis yang mempunyai ukuran kecil tidak dapat dilewati molekul polipropilen sehingga menyebabkan % fraksi kondensat perengkahannya menjadi sedikit. Bila dibandingkan dengan Gambar 4.6 maka rerata jejari pori berbanding lurus dengan % fraksi perengkahan, hal ini karena volume pori yang besar menyebabkan molekul polipropilen dapat leluasa masuk kedalam pori katalis, sehingga terjadilah pemutusan rantai atom C pada molekul polipropilen oleh katalis didalam pori-pori katalis.

Peningkatan keasaman katalis menunjukkan kekuatan asam pada permukaan katalis. Meskipun kekuatan asam tidak selalu sinergis dengan

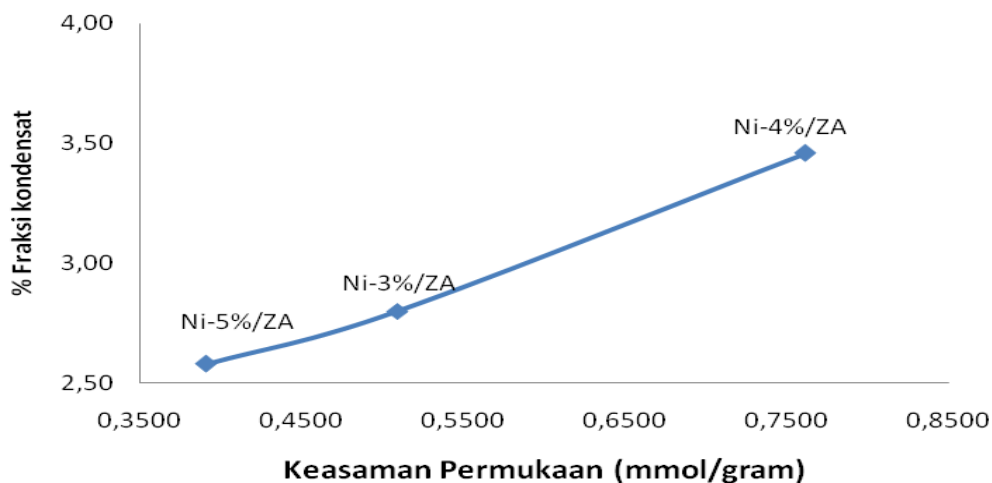
peningkatan jumlah situs asam Bronsted dan Lewis secara kuantitatif, hal ini ditunjukkan pada grafik hubungan antara keasaman total dengan % fraksi kondensat perengkahan, yang disajikan pada Gambar 4.7.



Gambar 4.7. Grafik hubungan antara keasaman total katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan plastik polipropilen

Tidak hanya keasaman total yang berpengaruh pada proses perengkahan katalitik akan tetapi keasaman permukaan katalis juga berpengaruh dalam proses perengkahan katalitik. Grafik 4.8 akan menjelaskan pengaruh keasaman permukaan pada katalis terhadap % fraksi perengkahan plastik polipropilen:





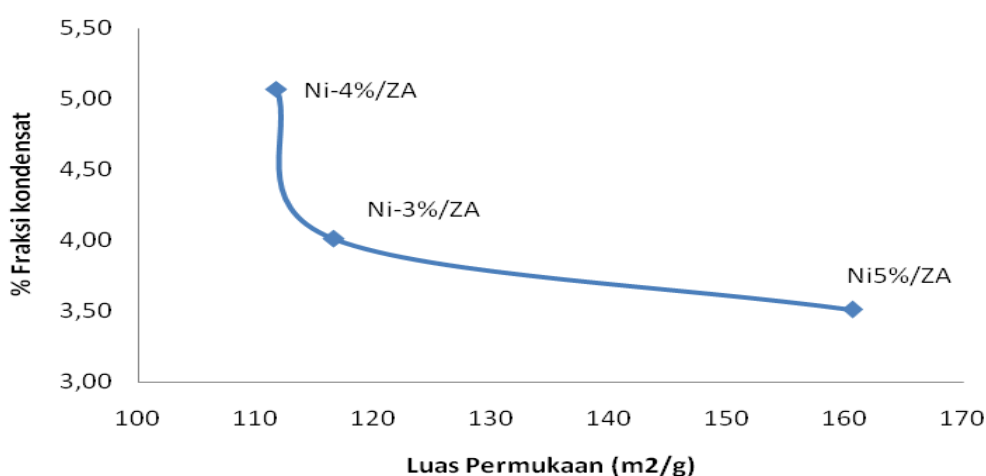
Gambar 4.8. Grafik hubungan antara keasaman permukaan katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan plastik polipropilen

Pada gambar 4.7 dan gambar 4.8 dapat dijelaskan bahwa keasaman total tidak berpengaruh dengan besarnya % fraksi kondensat perengkahan akan tetapi keasaman permukaan justru mempengaruhi besarnya % fraksi kondensat, hal ini dikarenakan bahwa pada keasaman permukaan katalis basa adsorbat (piridin) mampu masuk kedalam pori katalis yang berukuran lebih besar dibanding piridin, sehingga pada katalis Ni-4%/ZA yang mempunyai ukuran pori besar mampu mengadsorpsi basa adsorbat dari piridin, sedangkan pada katalis Ni-5%/ZA yang mempunyai ukuran pori kecil hanya mampu mengadsorpsi basa adsorbat piridin dengan jumlah sedikit, dalam proses perengkahan plastik polipropilen ternyata rerata jejari pori dan volume pori yang berpengaruh dalam proses perengkahan katalitiknya.

Keasaman total katalis menunjukkan bahwa keasaman total tidak mempengaruhi hasil % fraksi kondensat perengkahan katalitik plastik polipropilen. Basa adsorbat (amonia) mampu diadsorpsi oleh katalis, katalis

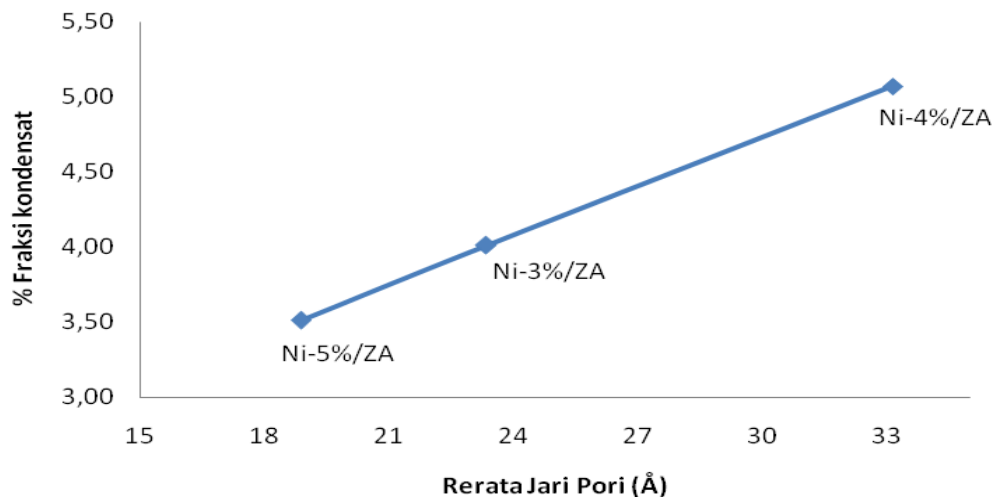
dengan luas permukaan besar mampu mengadsorpsi amonia dengan jumlah yang besar hal ini karena ukuran molekul amonia kecil sehingga permukaan katalis mampu mengadsorpsi amonia. Akan tetapi pada proses perengkahan katalitik polipropilen, ukuran umpan sangat besar sehingga membutuhkan jejari pori dan volume pori yang besar untuk berinteraksi dengan umpan. Sehingga katalis dengan luas permukaan yang besar belum tentu selektif terhadap umpan plastik polipropilen.

Sama halnya dengan polipropilen, pada polietilen juga dibuat hubungan antara Luas permukaan dengan % fraksi kondensat polietilen yang sudah terjadi perengkahan. Gambar 4.9 menjelaskan hubungan luas permukaan dengan % fraksi kondensat.



Gambar 4.9. Grafik hubungan antara luas permukaan katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan plastik polietilen

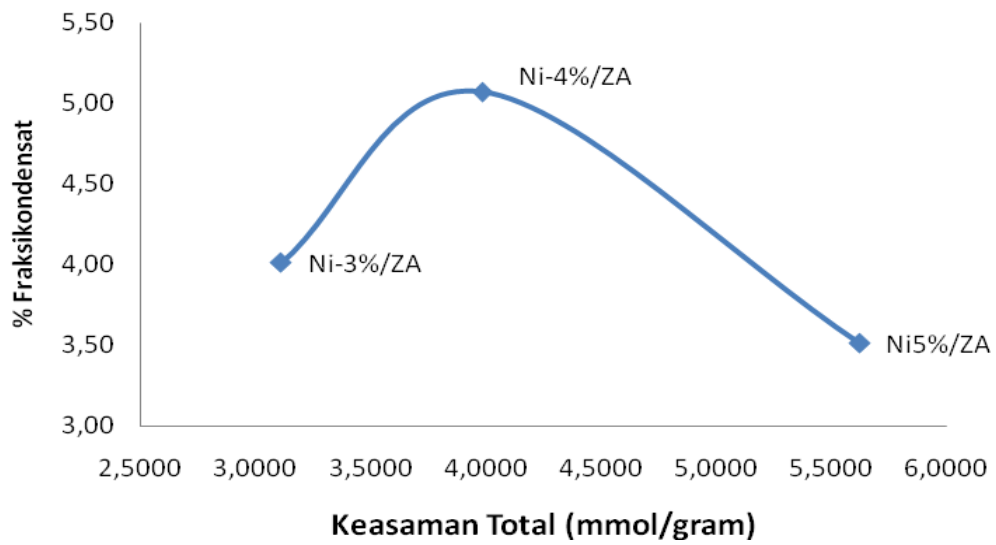
Sedangkan hubungan rerata jari pori katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan plastik polietilen disajikan pada Gambar 4.10.



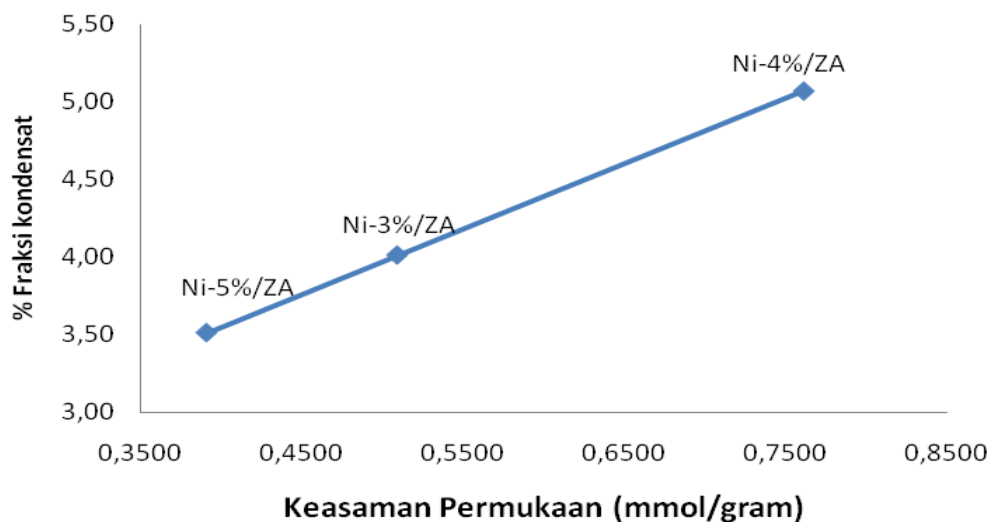
Gambar 4.10. Grafik hubungan antara rerata jari pori katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan plastik polietilen

Seperti halnya dengan perengkahan katalitik polipropilen, pada polietilen juga mempunyai ukuran umpan yang besar sehingga rerata jejari pori katalis sangat berpengaruh terhadap % fraksi kondensat perengkahan polietilen, jejari pori yang besar mampu menyediakan tempat untuk interaksi katalis dengan umpan sedangkan luas permukaan yang besar yang mempunyai jejari pori kecil hanya mampu menyediakan tempat untuk berinteraksi di permukaan saja sehingga produk yang dihasilkan sedikit.

Untuk hubungan keasaman total dengan % fraksi kondensat dan hubungan keasaman permukaan dengan % fraksi kondensat pada perengkahan katalitik polietilen, dapat dijelaskan dengan Gambar 4.11 dan 4.12.



Gambar 4.11. Grafik hubungan antara keasaman total katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan plastik polietilen



Gambar 4.12. Grafik hubungan antara keasaman permukaan katalis dengan % fraksi kondensat perengkahan plastik polietilen

Pada perengkahan polietilen didapat hasil % fraksi kondensat perengkahan terbesar menggunakan katalis Ni-4%/ZA sebesar 5,07 % hal ini menunjukkan selisih dengan % fraksi kondensat perengkahan plastik polipropilen.

Hal ini disebabkan bahwa pada plastik polipropilen memiliki berat molekul yang lebih besar daripada plastik polietilen. Serta rantai cabang pada polipropilen mempengaruhi proses perengkahan katalitik, rantai cabang tersebut mengakibatkan molekul umpan melimpah (bulky) sehingga katalis akan lebih sering berinteraksi terhadap umpan yang kurang melimpah.

Karakterisasi katalis yang telah disintesis meliputi luas permukaan, volume pori, rerata jejari pori, keasaman total, dan keasaman permukaan, serta % fraksi kondensat dari plastik polipropilen dan polietilen dapat dirangkum dalam tabel 4.8 adalah sebagai berikut:

Tabel 4.8. Karakteristik Katalis Ni-3%/ZA, Ni-4%/ZA, dan Ni-5%/ZA dan Perengkahan Katalitik Polipropilen dan polietilen

Sampel	Luas permukaan (m <sup>2</sup> /g)	Volume pori (cc/g)	Rerata jejari pori (Å)	Keasaman Total (mmol/gram)	Keasaman Permukaan (mmol/gram)	% Fraksi Kondensat (berat/berat)	
						PP	PE
Ni-3%/ZA	127,8	0,136	23,34	3,1125	0,5096	2,80	4,01
Ni-4%/ZA	118,6	0,185	33,13	3,9855	0,7619	3,46	5,07
Ni-5%/ZA	168,8	0,151	18,88	5,6255	0,3911	2,58	3,51

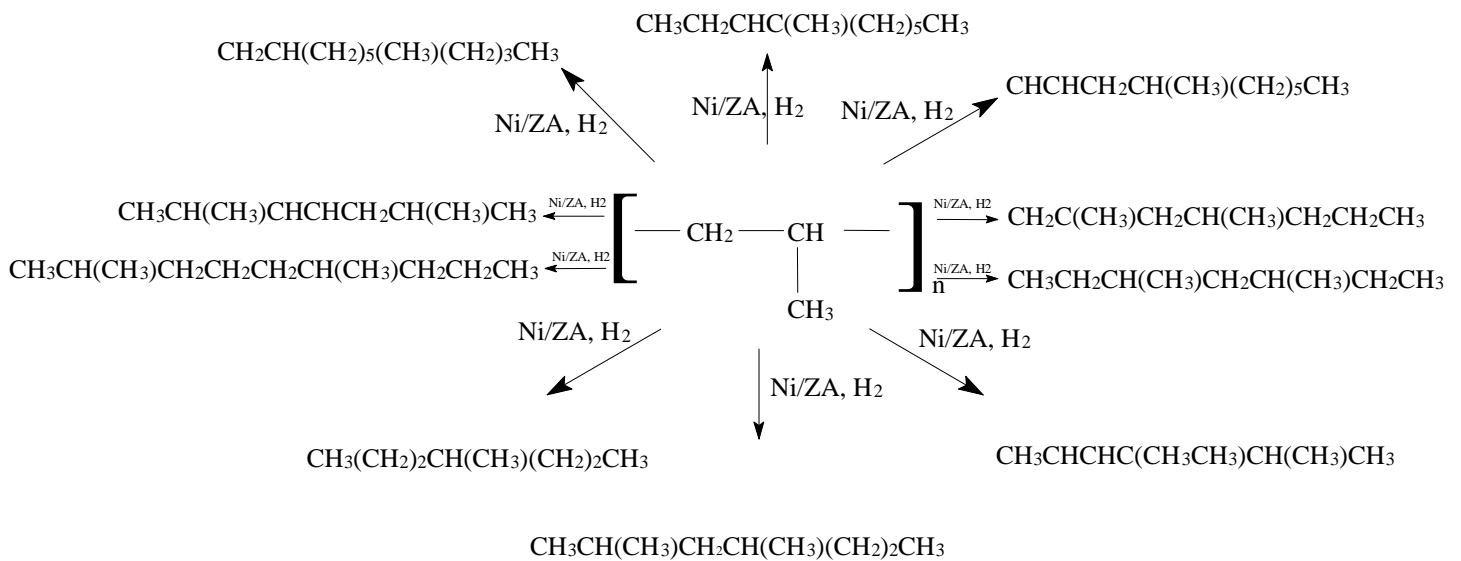
Dapat disimpulkan bahwa volume pori, rerata jejari pori, dan keasaman permukaan berpengaruh dalam proses perengkahan katalitik plastik polipropilen dan polietilen, hal tersebut dapat dilihat dari % fraksi kondensat yang diperoleh dari analisis menggunakan GC. Jumlah % fraksi kondensat terbesar dari plastik polipropilen yaitu 3,46 % sedangkan % fraksi kondensat terbesar dari plastik polipropilen yaitu 5,07 % menggunakan katalis Ni-4%/ZA dengan volume pori, rerata jejari pori, dan keasaman permukaan yang paling besar dibanding dengan katalis Ni-3%/ZA dan Ni-5%/ZA. Hal ini dikarenakan plastik polipropilen maupun polietilen (umpan) yang digunakan mempunyai ukuran molekul besar

sehingga molekul yang besar tersebut dapat masuk ke pori-pori katalis, dan didalam pori-pori katalis terjadi pemutusan rantai C-C pada umpan. Sedangkan pada katalis yang mempunyai ukuran pori kecil, molekul umpan yang besar tidak dapat masuk ke dalam pori-pori katalis sehingga reaksi hanya terjadi pada permukaan saja dan dimungkinkan pada katalis ketika pemutusan rantai C-C kurang selektif.

#### ***4.2.3.3. Analisis Hasil Perengkahan Katalitik Plastik Polipropilen***

Pada proses perengkahan plastik polipropilen umpan hasil pirolisis yang digunakan terlebih dahulu dianalisis menggunakan GC, setelah itu produk yang dihasilkan dari proses perengkahan menggunakan katalis Ni-3%/ZA, Ni-4%/ZA, dan Ni-5%/ZA dianalisis menggunakan GC juga. Pada Tabel 4.6 dijelaskan bahwa analisis GC-MS secara kuantitatif dihasilkan % area produk sebesar 30,85% untuk yang berisi 10 senyawa yang telah disajikan pada Tabel 4.7. Senyawa yang dihasilkan berupa alkana dan alkena, sehingga dapat diketahui adanya proses pemutusan rantai C panjang pada polipropilen menghasilkan rantai C yang lebih pendek.

Reaksi dari proses perengkahan plastik polipropilen dapat dijelaskan pada Gambar 4.13.



Gambar 4.13. Reaksi perengkahan katalitik polipropilen (Clark, 2003 termodifikasi)

Pada reaksi tersebut katalis Ni/Zeolit Alam menyerang umpan berupa gugus metil yang datang membentuk ikatan dengan logam Ni dan  $\text{H}^+$ , terbentuklah radikal terstabilkan yaitu ikatan antara atom C dengan atom Ni serta terbentuk ion karbonium pada  $\text{H}^+$ . Lalu, proses berikutnya radikal tersabilkan menyerang umpan yang datang lagi, menyerang ikatan C-C pada umpan yang datang tersebut dan membentuk 2 radikal terstabilkan. Ion karbonium juga menyerang umpan yang lain akan tetapi ion karbonium menyerang ikatan C-H pada umpan tersebut dan membentuk ikatan ion karbonium dengan rantai C panjang pada umpan. Selanjutnya tahap yang terakhir terjadi apabila adanya penggabungan radikal terstabilkan (pada situs asam Lewis) dan terjadi pembentukan ikatan rangkap (pada situs asam Bronsted) lalu terbentuk kembali katalis Ni/Zeolit alam.

Pada fraksi yang lebih dari  $C_{12}$  dihasilkan % fraksi kondensat sebesar 69,14%, hal ini dimungkinkan bahwa masih adanya atom C yang masih panjang dan belum terputus ketika proses perengkahan katalitik, hal ini dimungkinkan karena adanya beberapa faktor yang mempengaruhi proses perengkahan katalitik diantaranya reaktor yang digunakan mungkin saja reaktor yang digunakan masih ada beberapa kekurangan misalnya panas dalam reaktor kurang merata sehingga pemutusan rantai C panjang menjadi rantai C pendek tidak berjalan optimal. Faktor yang lain yaitu kurang optimalnya kondensor (pendingin) yang digunakan, sehingga produk yang berbentuk gas apabila melewati kondensor yang kurang optimal maka gas yang lewat tidak akan menjadi produk berbentuk cair.



## **BAB 5**

### **PENUTUP**

#### **5.1 Kesimpulan**

Berdasarkan hasil penelitian dan pembahasan, maka dapat diambil kesimpulan sebagai berikut:

1. Karakteristik katalis Ni/ZA yang telah dipreparasi menggunakan metode sonokimia yang mempunyai jumlah logam Ni teremban paling banyak ialah katalis Ni-5%/ZA yaitu sebesar 1,44 gram dengan besar persentase efisiensi 98% dan jumlah situs asam paling besar diantar katalis Ni-3%/ZA dan Ni-4%/ZA yaitu 5,6255 mmol/gram dan memiliki luas permukaan spesifik besar yaitu 168,8 m<sup>2</sup>/gram. Untuk rerata jejari pori dan volume pori paling besar dari ketiga katalis yang telah dipreparasi yaitu katalis Ni-4%/ZA, dengan rerata jejari pori sebesar 33,14 Å dan volume pori sebesar 0,185 cc/g.
2. Aktivitas katalis Ni/ZA pada proses perengkahan polipropilen menunjukkan adanya produk yang dihasilkan dari proses perengkahan tersebut dengan % fraksi kondensat terbesar yaitu 3,46 % menggunakan katalis Ni-4%/ZA dan menghasilkan senyawa antara lain dari turunan heptana, heksena, heptana, heptena, nonana, deksena, dan undeksena.

3. Aktivitas katalis Ni/ZA pada proses perengkahan polietilen menunjukkan adanya produk yang dihasilkan dari proses perengkahan terbesar dengan % fraksi kondensat terbesar yaitu 5,07 % menggunakan katalis Ni-4%/ZA.

## **5.2 Saran**

Berdasarkan hasil penelitian yang dilakukan, penulis dapat memberikan saran sebagai berikut:

1. Perlu dilakukannya modifikasi alat reaksi perengkahan plastik agar jumlah produk yang dihasilkan dapat maksimal.
2. Perlu dilakukannya kajian tentang aktivasi serta pengembanan logam Ni pada zeolit alam dengan menggunakan metode sonokimia agar didapatkan katalis unggul.

## DAFTAR PUSTAKA

- Abdullah, Mikrajuddin dan Khairurrijal. 2010. Karakterisasi Nanomaterial Teori, Penerapan, dan Pengolahan Data. Bandung: CV. Rezeki Putera
- Adamson, A.W. 1976. *Physical Chemistry of Surface*. Canada : John Wiley and Sons
- Agra, I.B., 1995, Penyulingan Kering Sampah Plastik, *Karya Penelitian*
- Anderson, R, B. and dawson, P.T. 1976. *Experimenral Methods in Catalytic Research. Vol 2: Preparation and Examination of Practical Catalysts*. London. Academic Press Inc
- Anonim. 2012. CrackingPerengkahan (<http://righthandwriter.blogspot.Com/2010/04/cracking-perengkahan.html>) (Diakses pada 1 Februari 2012)
- Billmeyer, W.F, 1994, *Textbook of Polimer Science*, 3rd ed, Jhon Wiley & Son, New York
- Chang, Raymond. “*Chemistry*”, Fifth Ed. Mcgraw-Hill, Inc. (1994)
- Clark, Jim. 2003. Cracking alkanes. [http:// www.chemguide.co.uk/cracking-alkanes. htmdiunduh tanggal 19-20 oktober 2012.](http://www.chemguide.co.uk/cracking-alkanes.htm)
- Cowd, M. A, 1982, *Polymer Chemistry*, John Murray Ltd., London.
- Fatimah, Cut Zuhra, 2003 Penyulingan, Pemrosesan dan Penggunaan Minyak Bumi, *Jurnal Jurusan Kimia FMIPA Universitas Sumatera Utara*.
- Handoko, D. S. P., 2006. Mekanisme Reaksi Konversi Katalitik Jelantah menjadi Senyawa Fraksi Bahan Bakar Cair dengan Katalis Ni/H<sub>5</sub>-NZA dan Reaktor *Flow Fixed-Bed*. *Jurnal ILMU DASAR*, 7(1): 42-51.
- Hirwati. 2007. *Stabilisasi Panas Polipropilena dengan Antioksidan Butil Hidroksi Toluena dan Residu Asap Cair Hasil Pirolisis Cangkang Kelapa Sawit*. Sekolah Pasca Sarjana Universitas Sumatera Utara. Tersedia di <http://www.repository.usu.ac.id/> [diakses tanggal 28 Maret 2011].
- Jocheim, Jorgen. 1998. *The Dependence of The Conversion Performance of Different Type of diesel Catalysts as a Funcional of Operation Properties*. Jerman : Vom Fechberlich Chemie der Niversitat Hannover

- Liu, J., Cao, Z., Xu, X. 2006. Hydro – upgrading of FCC Gasoline on Ni-Mo-P/USY Catalyst. *Buletin of the Catalysis Society of India*
- M., Abdul Wahid, Nasikin M., R., Suhaeri R., 2001. Pengaruh Iradiasi Ultrasonik Pada Preparasi Katalis CuO/ZnO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Untuk Reaksi Hidrogenasi CO<sub>2</sub> Menjadi Metanol. *Jurnal Teknologi*, Edisi No.4, Tahun XV
- Mujiarto, Imam. 2005. Sifat dan Karakteristik Material Plastik dan Bahan Aditif. *Traksi*. Vol. 3. No. 2, Desember 2005 pp.65-73. Tersedia di <http://www.mesinunimus.files.wordpress.com/.../sifat-karakteristik-material-plastik.pdf>.
- Ningsih, Sri Widya. 2010. Optimasi Pembuatan Bioplastik Polihidroksialkanoat Menggunakan Bakteri Mesofilik Dan Media Limbah Cair Pabrik Kelapa Sawit. *Jurnal Universitas Sumatera Utara*
- Prasetyaningsih, Fransiska Eka. 2011. Pembuatan Katalis Ni/Zeolit Untuk Reaksi Perengkahan Katalitik Limbah Plastik Menggunakan Fixed Bed Reactor. *Skripsi S-1*, Universitas Diponegoro, Semarang
- Rodiansono, 2007, Pembuatan, Karakterisasi dan Uji Aktivitas Katalis NiMo/Z dan NiMo/Z-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> pada Reaksi Hidrorengkah Fraksi Sampah Plastik Menjadi Fraksi Bensin, *Tesis S-2*, UGM, Yogyakarta
- Sutarno., Yateman Arryanto., Stefani Wigati. 2003. Pengaruh Rasio Mol Si/Al Larutan Prekursor pada Karakter Struktur MCM-41 dari Abu Layang. *Indonesi Indonesian Journal of Chemistry*, 3(2): 126-13
- Setyawan, P.H.D., 2009. Aktivitas Katalis Ni/Zeolit Pada Konversi Katalitik Metil Ester Minyak Goreng Jelantah (MEWCO) Pada Temperatur 450 °C menjadi Senyawa Fraksi Bahan Bakar. *Jurnal ILMU DASAR*, 8(1)
- Skoog, D. A., West, D.M., dan Holler, F.J., 1996, *Fundamental of Analytical Chemistry*, Philadelphia; Saunder Collage Pub
- Stevens, M.P. 2001. *Polymer Chemistry*: Diterjemahkan oleh Iis Sopyan. 2001. Jakarta: PT Pradnya Paramita.
- Surdia dan Saito, 1995, *Pengetahuan Bahan Teknik*, Pradnya Paramita, Jakarta
- Susanti, D. P. dan Panjaitan, S. 2010. Manfaat Zeolit dan Rock Phosphat Dalam Pengomposan Limbah Pasar. *Prosiding PPI Standarisasi*, Banjarmasin, 4 Agustus 2010

- Suslick, K. S. "*The Chemistry of Ultrasound*", The Yearbook Of Science & The Future 1994. *Encyclopedia Britanica* : Chicago
- Suslick, K. S. Dudenko, Y. Fang, MM. Hyeon, T. Kolbeck, KJ. William, B. Mdeleleni, MM. Wong, M. 1998. *Acoustic Cavitation And It Chemical Consequences*. Phil. Trans. Ray. Soc
- Svehla, G., 1990, *Analisis Anorganik Kualitatif Makro dan Semimikro*, Kalman Media Pusaka, Jakarta
- Trisunaryanti, W., Triwahyuni, E., dan Sudiono, S., 2005, Preparasi, Modifikasi dan Karakterisasi Katalis NiMo/zeolit alam dan Mo-Ni/Zeolit alam, *TEKNOIN*, Vol. 10, No. 4
- Triyono, 2002, *Kimia Katalis*, Yogyakarta : FMIPA UGM
- Tsitsishivili and Andronikashvili, 1992, *Natural Zeolites*, Ellis Horwood Limited, England

## Lampiran

### A. Perhitungan pembuatan larutan HF 1%

HF 50%

$$\%_1 \cdot V_1 = \%_2 \cdot V_2$$

$$50 \cdot V_1 = 1 \cdot 1000$$

$$V_1 = 20$$

Diambil larutan HF 50% sebanyak 20 mL lalu dilarutkan menggunakan aquadest dalam gelas ukur 1000 mL.

### B. Perhitungan pembuatan larutan HCl 6N

$$M = \frac{\rho \cdot 10\%}{\frac{Mr \text{ HCl}}{1,19 \cdot 10 \cdot 37}}$$

$$M = 12,06$$

$$M_1 \cdot V_1 = M_2 \cdot V_2$$

$$12,06 \cdot V_1 = 6 \cdot 250$$

$$V_1 = 124,3$$

Diambil larutan HCL 12,06M sebanyak 124,3 mL lalu dilarutkan menggunakan aquadest dalam labu ukur 250 mL sampai tanda batas.

### C. Perhitungan pembuatan larutan NH<sub>4</sub>Cl 1N

$$N = M \cdot \text{val}$$

$$1 = M \cdot 1$$

$$M = 1$$

$$M = \frac{\text{gram}}{\frac{Mr}{53,5} \cdot \frac{1000}{1000}}$$

$$\text{gram} = 53,5 \text{ gr}$$

Ditimbang sebanyak 53,5 gram padatan NH<sub>4</sub>Cl, kemudian dilarutkan dalam aquadest sebanyak 1000 mL pada labu ukur.

### D. Perhitungan pembuatan larutan standar Nikel pada uji AAS

100 ppm

$$\text{ppm Ni} = \frac{Ar \text{ Ni}}{Mr \text{ Ni(NO}_3)_2 \cdot 6H_2O} \cdot m \text{ gram}$$

$$100 = \frac{58,71}{290,71} \cdot m \text{ gram}$$

$$m \text{ gram} = 493,22$$

$$\text{gram} = 0,493 \text{ gr}$$

Timbang garam  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  sebanyak 0,493 gr lalu dilarutkan kedalam 1000 mL aquades pada labu ukur hingga tanda batas.

20 ppm

$$M_1 \cdot V_1 = M_2 \cdot V_2$$

$$100 \cdot V_1 = 20 \cdot 50$$

$$V_1 = 10$$

Larutan standar Nikel 100 ppm diambil sebanyak 10 mL kemudian diencerkan menggunakan aquades dalam labu ukur 50 mL sampai tanda batas.

16 ppm

$$M_1 \cdot V_1 = M_2 \cdot V_2$$

$$20 \cdot V_1 = 16 \cdot 10$$

$$V_1 = 8$$

Larutan standar Nikel 20 ppm diambil sebanyak 8 mL kemudian diencerkan menggunakan aquades dalam labu ukur 10 mL sampai tanda batas.

12 ppm

$$M_1 \cdot V_1 = M_2 \cdot V_2$$

$$20 \cdot V_1 = 12 \cdot 10$$

$$V_1 = 6$$

Larutan standar Nikel 20 ppm diambil sebanyak 6 mL kemudian diencerkan menggunakan aquades dalam labu ukur 10 mL sampai tanda batas.

8 ppm

$$M_1 \cdot V_1 = M_2 \cdot V_2$$

$$20 \cdot V_1 = 8 \cdot 10$$

$$V_1 = 4$$

Larutan standar Nikel 20 ppm diambil sebanyak 4 mL kemudian diencerkan menggunakan aquades dalam labu ukur 10 mL sampai tanda batas.

4 ppm

$$M_1 \cdot V_1 = M_2 \cdot V_2$$

$$20 \cdot V_1 = 4 \cdot 10$$

$$V_1 = 2$$

Larutan standar Nikel 20 ppm diambil sebanyak 2 mL kemudian diencerkan menggunakan aquades dalam labu ukur 10 mL sampai tanda batas.

- E. Perhitungan banyaknya garam Nikel Nitrat Heksahidrat saat diembankan pada zeolit alam aktif

Ni 3%

ZA = 30 gram

$$\frac{\text{Ni}}{\text{ZA}} \cdot 100\% = 3\%$$

$$\text{Ni} = \frac{90}{100}$$

$$\text{Ni} = 0,9$$

$$Ni = \frac{Ar Ni}{Mr Ni(NO_3)_2 \cdot 6H_2O} \cdot m \text{ garam}$$

$$m \text{ garam} = Ni \cdot \frac{Mr Ni(NO_3)_2 \cdot 6H_2O}{Ar Ni}$$

$$m \text{ garam} = 0,9 \cdot \frac{290,71}{58,71}$$

$$m \text{ garam} = 4,452 \text{ gram}$$

Timbang garam Nikel nitrat heksahidrat sebanyak 4,452 gram kemudian dilarutkan dalam 20 mL aquadest.

Ni 4%

ZA = 30 gram

$$\frac{Ni}{ZA} \cdot 100\% = 4\%$$

$$Ni = \frac{120}{100}$$

$$Ni = 1,2$$

$$Ni = \frac{Ar Ni}{Mr Ni(NO_3)_2 \cdot 6H_2O} \cdot m \text{ garam}$$

$$m \text{ garam} = Ni \cdot \frac{Mr Ni(NO_3)_2 \cdot 6H_2O}{Ar Ni}$$

$$m \text{ garam} = 1,2 \cdot \frac{290,71}{58,71}$$

$$m \text{ garam} = 5,941 \text{ gram}$$

Timbang garam Nikel nitrat heksahidrat sebanyak 5,941 gram kemudian dilarutkan dalam 20 mL aquadest.

Ni 5%

ZA = 30 gram

$$\frac{Ni}{ZA} \cdot 100\% = 5\%$$

$$Ni = \frac{150}{100}$$

$$Ni = 1,5$$

$$Ni = \frac{Ar Ni}{Mr Ni(NO_3)_2 \cdot 6H_2O} \cdot m \text{ garam}$$

$$m \text{ garam} = Ni \cdot \frac{Mr Ni(NO_3)_2 \cdot 6H_2O}{Ar Ni}$$

$$m \text{ garam} = 1,5 \cdot \frac{290,71}{58,71}$$



$$m \text{ garam} = 7,427 \text{ gram}$$

Timbang garam Nikel nitrat heksahidrat sebanyak 7,427 gram kemudian dilarutkan dalam 20 mL aquadest.

#### F. Perhitungan persentase keberhasilan dalam pengembanan

$$y = 0,011x + 0,012$$

$$\text{Absorbansi Ni 3\%/ZA} = 0,075$$

$$0,075 = 0,011x + 0,012$$

$$x = 5,72 \text{ ppm} \longrightarrow \text{pengenceran } 100x$$

$$5,72 \cdot 100 = 572 \text{ ppm}$$

$$\frac{572}{1000} \cdot 50 = 28,63 \text{ m gram}$$

$$0,02863 \cdot 30 = 0,86$$

persentase pengembanan

$$\frac{0,86}{0,9} \cdot 100\% = 95\%$$

$$\text{Absorbansi Ni 4\%/ZA} = 0,096$$

$$0,096 = 0,011x + 0,012$$

$$x = 7,63 \text{ ppm} \longrightarrow \text{pengenceran } 100x$$

$$7,63 \cdot 100 = 763 \text{ ppm}$$

$$\frac{763}{1000} \cdot 50 = 38,15 \text{ m gram}$$

$$0,03815 \cdot 30 = 1,1445 \text{ gram}$$

persentase pengembanan

$$\frac{1,1445}{1,2} \cdot 100\% = 95,3\%$$

$$\text{Absorbansi Ni 5\%/ZA} = 0,120$$

$$0,120 = 0,011x + 0,012$$

$$x = 9,81 \text{ ppm} \longrightarrow \text{pengenceran } 100x$$

$$9,81 \cdot 100 = 981 \text{ ppm}$$

$$\frac{981}{1000} \cdot 50 = 49,09 \text{ m gram}$$

$$0,04909 \cdot 30 = 1,47$$

persentase pengembanan

$$\frac{1,47}{1,5} \cdot 100\% = 98\%$$

### G. Perhitungan Keasaman total dan keasaman permukaan

Keasaman total

$$W \text{ ads} = \frac{W_2 - W_1}{(W_1 - W_0) \cdot Mr \text{ NH}_3} \cdot 1000 \text{ mmol/gr} \quad Mr \text{ NH}_3 = 17,03$$

Sampel	W <sub>0</sub>	W <sub>1</sub>	W <sub>2</sub>	W ads
Zeolit Alam Aktif	36,8011	37,3022	37,3254	2,7314
Ni3%/ZA	35,5911	36,5322	36,5911	3,1125
Ni4%/ZA	37,1631	38,2150	38,2864	3,9855
Ni5%/ZA	36,1203	37,0461	37,1348	5,6255

Keasaman permukaan

$$W \text{ ads} = \frac{W_2 - W_1}{(W_1 - W_0) \cdot Mr \text{ Piridin}} \cdot 1000 \text{ mmol/gr} \quad Mr \text{ Piridin} = 74,1$$

Sampel	W <sub>0</sub>	W <sub>1</sub>	W <sub>2</sub>	W ads
Zeolit Alam Aktif	34,1230	35,2461	35,2687	0,2547
Ni3%/ZA	26,3122	27,4359	27,4811	0,5096
Ni4%/ZA	28,7180	29,9210	29,9935	0,7618
Ni5%/ZA	35,6143	36,8813	36,9205	0,3911

## Dokumentasi Penelitian



Perendaman menggunakan aquademin



Perendaman menggunakan HF



Aktivasi dengan HCl



Perendaman dengan NH<sub>4</sub>Cl



Pengembangan Logam dengan sonorektor



Katalis Ni/ZA



Hasil pirolisis



Uji aktivitas katalis