STUDI DEAKTIVASI DAN REGENERASI KATALIS Ni/ZA PADA REAKSI PERENGKAHAN POLIPROPILENA

Skripsi

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

oleh
Imam Khabib
4350408025

JURUSAN KIMIA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG

2013

PERSETUJUAN PEMBIMBING

Skripsi dengan judul "Studi Deaktivasi dan Regenerasi Katalis Ni/ZA pada Reaksi Perengkahan Polipropilena" telah disetujui oleh dosen pembimbing untuk diajukan ke Sidang Panitia Ujian Skripsi Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Semarang.

Semarang, Juli 2013

Pembimbing I	Pembimbing II
Sri Kadarwati, S.Si., M.Si	Ir. Sri Wahyuni, M.Si
NIP. 198111142003122003	NIP. 196512281991022001

UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG
PERPUSTAKAAN
UNNES

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, Juli 2013

Imam Khabib
4350408025

UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG
PERPUSTAKAAN
UNNES

PENGESAHAN

Skripsi yang berjudul

Studi Deaktivasi dan Regenerasi Katalis Ni/ZA pada Reaksi Perengkahan Polipropilena

disusun oleh

Nama : Imam Khabib

NIM : 4350408025

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

Panitia:

Ketua

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

Sekretaris

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

Ketua Penguji

Drs. Subiyanto HS. M.Si.
NIP. 195104211975011002

Anggota Penguji/
Pembimbing Utama

Sri Kadarwati, S.Si., M.Si.
NIP. 198111142003122003

Anggota Penguji/
Pembimbing Pendamping

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

MOTTO DAN PERSEMBAHAN

MOTTO:

Kegagalan hanya terjadi kepada orang yang menyerah

Belilah kesulitanmu dengan bersedekah

Skripsi ini kupersembahkan untuk:

Kedua Orang Tuaku,
Kedua Kakakku,
dan
Seluruh Keluarga Besarku

UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG
PERPUSTAKAAN
UNNES

PRAKATA

Puji syukur kehadirat Allah SWT yang telah melimpahkan kasih dan kemurahan-Nya sehingga penulis dapat menyelesaikan Skripsi yang berjudul " Studi Deaktivasi dan Regenerasi Katalis Ni/ZA pada Reaksi Perengkahan Polipropilena". Selama menyusun Skripsi 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. Sri Kadarwati, S.Si., M.Si sebagai Pembimbing I yang telah memberikan ilmu, arahan, motivasi, dan membimbing dengan sabar dalam penyusunan Skripsi ini.
5. Ir. Sri Wahyuni, M.Si sebagai Pembimbing II yang telah memberikan arahan, nasihat, dan motivasi dalam penyusunan Skripsi ini.
6. Drs. Subiyanto HS. M.Si sebagai Penguji yang telah memberi pengarahan, kritikan membangun sehingga Skripsi ini menjadi lebih baik.
7. Prof. Dr. Supartono, M.S sebagai Dosen Wali yang telah banyak memberi bimbingan mulai dari semester satu hingga lulus.

PERPUSTAKAAN UNNES

8. Bapak dan Ibu Dosen Jurusan Kimia yang telah memberikan bekal ilmu kepada penulis.
9. Kedua orang tuaku dan kedua kakakku atas limpahan do'a, kasih sayang, nasihat, pengertian, dan motivasi yang diberikan kepada penulis.
10. Mbak Dian, Mas Huda, dan seluruh teknisi laboratorium Kimia UNNES atas bantuan yang diberikan selama pelaksanaan penelitian.
11. Teman-temanku Brian, Puji, Ade, Rissa dan "Big Family Of Chemistry 2008" yang selalu setia membantu dan memberi semangat.
12. Keluarga besar "CHEVENT" atas pengalaman, kebersamaan, dan kekeluargaan selama ini.
13. Teruntuk Nenk, terima kasih atas motivasi dan kasih sayangnya 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, Juli 2013

Penulis

PERPUSTAKAAN UNNES

ABSTRAK

Khabib, Imam. 2013. *Studi Deaktivasi dan Regenerasi Katalis Ni/ZA pada Reaksi Perengkahan Polipropilena*. Skripsi, Jurusan Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Negeri Semarang. Pembimbing Utama Sri Kadarwati, S.Si., M.Si dan Pembimbing Pendamping Ir. Sri Wahyuni, M.Si

Kata kunci: *deaktivasi; Ni/ZA; polipropilena; regenerasi*

Kajian tentang deaktivasi katalis Ni/ZA dan usaha regenerasinya setelah dipakai untuk reaksi perengkahan polipropilena dipelajari secara berkelanjutan. Katalis Ni/ZA dipreparasi dengan metode sonokimia dengan *total metal intake* sebesar 4%. Tujuan utama penelitian ini adalah mempelajari fenomena deaktivasi katalis dan pengaruh perlakuan regenerasi terhadap karakteristik dan aktivitas katalis Ni/ZA. Karakteristik dan aktivitas katalis *fresh*, setelah reaksi berkelanjutan (terdeaktivasi), dan setelah proses regenerasi dievaluasi untuk mendapatkan gambaran yang lebih baik tentang fenomena deaktivasi katalis. Karakteristik yang diamati meliputi: keasaman, luas permukaan, volume pori, jejari pori, kristalinitas, dan morfologi katalis. Uji aktivitas katalis Ni/ZA pada reaksi perengkahan polipropilena dilakukan pada suhu 500^0C dengan laju alir hidrogen 20 mL/menit, dan rasio katalis:umpan 1:2 (b/b) menghasilkan produk dengan fraksi C_5-C_{12} sebanyak 82,43%. Hasil penelitian menunjukkan bahwa penggunaan katalis selama lima kali *running* mengakibatkan penurunan karakteristik katalis berupa turunnya luas permukaan spesifik, volume total pori, dan keasamaan yang cukup signifikan. Proses regenerasi dengan menggunakan gas oksigen dan hidrogen secara berurutan mampu menaikkan aktivitas dan keasaman katalis masing-masing menjadi 70,44% dan 2,574 mmol/gram sedangkan karakteristik katalis berupa luas permukaan dan volume total pori mengalami penurunan masing-masing menjadi 48,52 (m^2/g) dan 123,8 (cc/g x10^{-3}).

ABSTRACT

Khabib, Imam. 2013. Study on Deactivation and Regeneration of Ni/ZA Catalyst on Polypropylene Cracking Reaction. Undergraduate Thesis, Department of Chemistry, Faculty of Mathematics and Natural Sciences, Semarang State University. Main supervisor Sri Kadarwati, S.Si., M.Si and Companion Supervisor Ir. Sri Wahyuni, M.Si

Keywords: deactivation; Ni/ZA; polypropylene; regeneration

The study about deactivation of Ni/ZA catalyst and its regeneration after being used in the continuous cracking reaction of polypropylene was performed. Catalyst Ni/ZA was prepared using sonochemical method with total metal intake of 4%. This research was aimed to study the phenomenon of catalyst deactivation and the effects of regeneration treatment on the characteristics and activity of Ni/ZA catalyst. Characteristics and activity of fresh catalyst, after continuous reaction (being deactivated), and after regeneration process were evaluated to get a better representation about the phenomenon of deactivation catalyst. Characteristics which have been observed include catalyst's acidity, surface area, pore volume, pore radius, crystallinity, and morphology. Catalytic activity test of Ni/ZA on polypropylene cracking reaction at temperature of 500^0C with H_2 flow rate of 20 mL/min and catalyst:feed ratio of 1:2 (w/w) resulted the product with the C_5-C_{12} fraction of 82.43%. The results showed that the use of the catalyst over five times running caused the decrease of some catalyst's characteristics such as specific surface area, total pore volume, and acidity. Regeneration process using oxygen and hydrogen gas has been able to increase the activity and acidity of catalyst up to 70.44% and 2.574 mmol/gram, respectively while catalyst characteristics such as surface area and total pore volume decreased up to 48.52 (m^2/g) and 123.8 (cc/g x10^{-3}), respectively.

DAFTAR ISI

Halaman

HALAMAN JUDUL i

PERSETUJUAN PEMBIMBING ii

PERNYATAAN iii

PENGESAHAN iv

MOTO DAN PERSEMBAHAN v

PRAKATA vi

ABSTRAK viii

DAFTAR ISI ix

DAFTAR TABEL xii

DAFTAR GAMBAR xiii

DAFTAR LAMPIRAN xv

BAB

1. PENDAHULUAN 1

1.1 Latar Belakang 1
1.2 Rumusan Masalah 5
1.3 Tujuan Penelitian 5
1.4 Manfaat Penelitian 5

2. TINJAUAN PUSTAKA 7

2.1 Zeolit 7
2.2 Katalis 8
2.3 Logam Ni sebagai katalis 10
2.4 Metode Sonokimia 11
2.5 Polipropilen 13
2.6 Perengkahan Katalitik 14
2.7 Deaktivasi Katalis 17

2.8 Regenerasi Katalis 18

3. METODE PENELITIAN 20

3.1 Lokasi Penelitian 20
3.2 Variabel Penelitian 20
3.3 Rancangan Penelitian 21
3.3.1 Alat dan Bahan 21
3.3.1.1. Alat-alat Penelitian 21
3.3.1.2. Bahan-bahan Penelitian 22
3.4 Prosedur Penelitian 22
3.4.1. Perlakuan Awal Zeolit Alam 22
3.4.2. Aktivasi dengan Perlakuan HF, HCl, dan NH_4Cl 22
3.4.3. Preparai Ni/Zeolit Alam dengan Metode Sonokimia 23
3.4.4. Kalsinasi, Oksidasi,dan Reduksi Sampel Katalis 23
3.4.5. Karakterisasi Katalis 23
3.4.5.1. Penentuan Kristalinitas Katalis 23
3.4.5.2. Keasaman Padatan 24
3.4.5.3. Penentuan Kadar Ni dalam Katalis 25
3.4.5.4. Penentuan Porositas Katalis 26
3.4.6. Perlakuan Awal Plastik PP dan Proses Pirolisis 27
3.4.7. Uji Aktivitas Katalis pada Perengkahan Katalitik 28
3.4.8. Regenerasi Katalis pada Perengkahan Katalitik 29

4. HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN 30

4.1 Hasil Penelitian 30
4.1.1 Preparasi Katalis..... 30
4.1.2 Karakterisasi Katalis 32
4.1.2.1 Analisis Kandungan Ni dalam Katalis Ni/ZA 32
4.1.2.2 Penentuan Jumlah Situs Asam Katalis Ni/ZA..... 32
4.1.2.3 Luas Permukaan Spesifik, Rerata Jejari Pori, dan Volume Total Pori Katalis Ni/ZA 33
4.1.2.4 Kristalinitas Katalis Ni/ZA..... 34
4.1.3 Uji Aktivitas 35
4.1.3.1 Preparasi Umpan Reaksi Perengkahan..... 35
4.1.3.2 Uji Aktivitas Katalis Ni/ZA Pada Proses Perengkahan Polipropilena 36
4.1.4 Karakteristik Katalis Ni/ZA Setelah Terdeaktivasi dan

Regenerasi 37
4.1.4.1 Keasaman Katalis 37
4.1.4.2 Luas Permukaan Spesifik, Volum Total Pori, dan Rerata Jejari Pori 38
4.1.4.3 Kristalinitas Katalis Ni/ZA 38
4.1.4.4 Karakterisasi dengan SEM-EDX 39
4.2 Pembahasan 41
4.2.1 Preparasi Katalis 41
4.2.2 Karakterisasi Katalis 44
4.2.2.1 Analisis kandungan Ni dalam Katalis Ni/ZA 44
4.2.2.2 Penentuan Jumlah Situs Asam Katalis Ni/ZA 45
4.2.2.3 Luas Permukaan Spesifik, Rerata Jejari Pori, dan Volume Total Pori Katalis Ni/ZA 46
4.2.2.4 Kristalinitas Katalis Ni/ZA 47
4.2.3 Uji Aktivitas Katalis Ni/ZA 48
4.2.4 Karakteristik Katalis Ni/ZA Setelah Terdeaktivasi dan Regenerasi 51
4.2.4.1 Keasaman Katalis Ni/ZA 51
4.2.4.2 Luas Permukaan Spesifik, Rerata Jejari Pori, dan Volume Total pori 53
4.2.4.3 Kristalinitas Katalis Ni/ZA 54
4.2.4.4 Karakterisasi dengan SEM-EDX 55

5. PENUTUP 56

5.1 Kesimpulan 56
5.2 Saran 57

DAFTAR PUSTAKA 58

LAMPIRAN 62

PERPUSTAKAAN UNNES

DAFTAR TABEL

Tabel Halaman

4.1 Distribusi logam Ni dalam katalis Ni/ZA 32

4.2 Hasil penentuan keasamaan katalis Ni/ZA 33

4.3 Hasil karakterisasi luas permukaan spesifik, volume total pori dan rerata jejari ZA, H-ZA, dan katalis Ni/ZA 34

4.4 Data 2 theta, intensitas tiga puncak tertinggi, dan ukuran kristal dalam ZA, H-ZA, dan Ni/ZA 35

4.5 Hasil analisis produk perengkahan uji aktivitas katalis berulang-ulang 36

4.6 Hasil analisis GC-MS secara kuantitatif 36

4.7 Keasaman katalis Ni/ZA sebelum digunakan, setelah terdeaktivasi dan setelah regenerasi 38

4.8 Hasil karakterisasi luas permukaan spesifik, volume total pori, dan rerata jejari pori katalis Ni/ZA sebelum digunakan, setelah terdeaktivasi dan regenerasi 38

4.9 Data 2 theta, intensitas tiga puncak tertinggi, dan ukuran kristal dalam Ni/ZA,Ni/ZA ter dan Ni/ZA reg 39

4.10 Kandungan Si, Al, O, K, Ni, dan C pada katalis Ni/ZA setelah digunakan untuk lima kali *run* 40

4.11 Karakter dari masing-masing katalis dengan metode yang berbeda 45

DAFTAR GAMBAR

Gambar Halaman

2.1. Struktur umum zeolit 8

2.2. Efek kavitasi pada irradiasi ultrasonik. Gelombang ultrasonik menyebabkan terbentuknya tekanan akustik di sekitar cairan medium 13

2.3. Struktur propilena dan struktur polipropilena 13

2.4. Tahap pembentukan ion karbonium 15

2.5. Tahap interaksi ion karbonium dengan reaktan 15

2.6. Tahap penataan ion karbonium melalui pemutusan beta 15

2.7. Tahap pembentukan katalis kembali 16

2.8. Mekanisme reaksi hidrogenasi alkena pada permukaan katalis 16

4.1 Proses sonikasi dan hasil pengembanan logam Ni 31

4.2 Kenampakan fisik ZA, H-ZA, dan Ni/ZA 32

4.3 Difraktogram H-Zeolit dan Ni/ZA 34

4.4 Plastik jenis PP dan hasil pirolisis polipropilena 35

4.5 Difraktogram katalis Ni/ZA, Ni/ZA terdeaktivasi dan Ni/ZA regenerasi .. 39

4.6 Kenampakan morfologi luar katalis Ni/ZA terdeaktivasi..... 40

4.7 Reaksi dealuminasi dengan HCl 42

4.8 Mekanisme deaktivasi katalis 49

4.9 Hubungan pengulangan dengan % fraksi 50

4.10 Hubungan keasaman dengan % fraksi produk 52

4.11 Hubungan kondisi katalis Ni/ZA dengan porositas katalis 54

DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran Halaman

1. Hasil penelitian pendahuluan 62
2. Diagram alir prosedur penelitian 63
3. Perhitungan-perhitungan 69
4. Data dan perhitungan keasaman katalis dengan basa amonia..... 75
5. Data dan perhitungan keasaman katalis dengan basa piridin..... 77
6. Hasil analisis XRD H-ZA 79
7. Hasil analisis XRD Ni/ZA 80
8. Hasil analisis XRD Ni/ZA terdeaktivasi 81
9. Hasil analisis XRD NI/ZA regenerasi 82
10. Hasil analisis GC umpan 83
11. Hasil analisis GC *running* 1 84
12. Hasil analisis GC *running* 2 85
13. Hasil analisis GC *running* 3 86
14. Hasil analisis GC *running* 4 87
15. Hasil analisis GC *running* 5 88
16. Hasil analisis GC *running* regenerasi 89
17. Hasil analisis SEM EDX 90
18. Hasil analisis porositas H-ZA 91
19. Hasil analisis porositas Ni/ZA 92
20. Hasil analisis porositas Ni/ZA terdeaktivasi 93

PERPUSTAKAAN UNNES

21. Hasil analisis porositas Ni/ZA regenerasi 94

22. Hasil analisis GC-MS 95

23. Dokumentasi penelitian 101

UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG
PERPUSTAKAAN
UNNES

BAB 1

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Plastik hingga saat ini masih merupakan bahan yang banyak digunakan oleh kalangan industri maupun rumah tangga. Salah satu jenis plastik yang banyak digunakan adalah jenis polipropilena (PP). Plastik jenis ini biasa kita jumpai sebagai kemasan air minum. Polipropilena sebagai bahan dasar pembuatan kantong plastik merupakan polimer termoplastik yang dapat mengalami pemutusan rantai karbon menjadi lebih pendek dengan adanya perlakuan termal ditandai dengan perubahan wujud dari padat menjadi cair. Melalui proses perengkahan katalitik, plastik PP akan mengalami pemutusan rantai karbon menjadi C_5-$C_{12,}$ sesuai fakta yang ada bahwa C_5-C_{12} merupakan fraksi bensin (Riyadi, 2002).

Beberapa cara telah dilakukan untuk mengolah sampah plastik agar tidak menimbulkan pencemaran, baik melalui proses fisika, maupun proses kimiawi. Proses kimiawi yang telah dilakukan adalah memecah rantai polimer plastik *(depolymerization)* (Joo dan Guin, 1997). Beberapa metode pemecahan rantai polimer yang pernah dilakukan adalah distilasi (Eliyana *et al*., 2000; Riyadi *et al*., 2002; Rahman *et al*., 2002) dan pirolisis (Rodiansono dan Trisunaryanti, 2005; Rodiansono *et al*., 2007a). Pemecahan rantai polimer menggunakan metode distilasi menghasilkan 31,27% cairan (Eliyana *et al*., 2000), sedangkan metode pirolisis menghasilkan 90,48% cairan (Rodiansono dan Trisunaryanti, 2005).

Merujuk dari *yield*-nya yang lebih tinggi, maka dipilih metode pirolisis dalam penelitian ini.

Logam nikel sebagai katalis logam memiliki aktivitas yang tinggi dalam proses perengkahan sampah plastik (Prasetyaningsih, 2011). Penggunaan nikel sebagai logam aktif didasarkan pada keberadaan orbital *d* yang belum terisi penuh elektron sehingga orbital *d* dan orbital *s* yang berdekatan akan mengalami keadaan *degenerate*. Pada keadaan tersebut orbital elektron akan memiliki probabilitas yang lebih tinggi dalam menyediakan situs asam Lewis. Situs tersebut merupakan bagian penting yang mampu mengadsorpsi umpan pada permukaan katalis logam (Handoko *et al*., 2009). Karenanya, jumlah situs asam (keasaman total) katalis merupakan parameter penting dalam proses konversi plastik PP menjadi fraksi bensin. Selain harganya yang relatif lebih murah, logam Ni tidak mengadsorpsi gas-gas hasil reaksi (C_5 dan *dry gas* (CO_2)) sehingga reaksi tidak terhambat (Purwono *et al.,* 2006). Akan tetapi penggunaaan katalis logam murni mempunyai beberapa kelemahan. Katalis logam lebih mudah mengalami penggumpalan selama proses katalitik dan memiliki luas permukaaan yang relatif kecil (Trisunaryanti *et al.,* 2005). Hal inilah yang mendorong usaha untuk memperbaiki kinerja dan mengatasi kelemahan katalis logam murni dengan mendispersikan komponen logam pada pengemban yang memiliki luas permukaan besar.

Zeolit alam (ZA) dalam penelitian ini digunakan sebagai pengemban untuk mendispersikan logam Ni karena menurut Liu *et al*. (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, keberadaannya di Indonesia yang cukup melimpah dan harganya yang relatif murah. Oleh karena itu, penggunaan zeolit sebagai pengemban katalis dapat menurunkan biaya produksi.

Metode yang sering digunakan dalam proses pengembanan logam adalah impregnasi. Metode ini memiliki beberapa kekurangan yaitu membutuhkan waktu lebih lama dan memerlukan kontrol suhu yang akurat. Metode lain yang lebih menjanjikan adalah metode sonokimia. Metode ini menggunakan aplikasi gelombang ultrasonik yang dapat mempengaruhi struktur molekul katalis sehingga meningkatkan luas permukaan katalis (Purwono *et al.*, 2005) serta dapat mengendalikan bentuk maupun ukuran partikel yang dihasilkan (Kurniawan, 2008). Metode ini juga mampu menghasilkan ukuran *granule* katalis yang lebih kecil dan lebih seragam (Purwanto *et al*., 2005). Hal ini disebabkan oleh fenomena kavitasi yaitu peristiwa pembentukan, pertumbuhan, dan pengempisan gelembung di dalam cairan yang terjadi pada saat katalis diberi perlakuan ultrasonik. Selain itu, penelitian pendahuluan tentang sintesis Ni/ZA dengan metode ini menunjukkan tidak adanya penurunan kristalinitas zeolit dan tidak teramati adanya kerusakan struktur zeolit (Lampiran 1).

Hingga saat ini masih terus dilakukan penelitian untuk mendapatkan katalis yang mempunyai aktivitas dan selektivitas kerja yang tinggi, stabilitas termal yang baik, dan umur katalis yang lama. Penggunaan katalis yang lama dan berulang-ulang akan menjadikan katalis terdeaktivasi. Deaktivasi katalis dapat disebabkan oleh kerusakan situs aktif karena pengaruh temperatur yang tinggi,

terbentuknya kokas yang menutupi permukaan situs aktif katalis, dan terjadinya peracunan oleh senyawa yang mengandung unsur-unsur golongan VA, golongan VIA, dan beberapa senyawa yang memiliki gugus fungsional –C=O dan–C≡N (Rodiansono dan Trisunaryanti, 2005). Deaktivasi katalis menyebabkan penurunan aktivitas katalis selama pemakaian katalis dalam mengkatalisis suatu reaksi. Deaktivasi menjadi penting untuk dipelajari karena hal ini berdampak besar pada suplai kebutuhan katalis. Semakin cepat katalis terdeaktivasi maka dibutuhkan waktu dan biaya yang semakin besar untuk mengaktifkan kembali katalis tersebut. Katalis yang telah mengalami deaktivasi dapat diaktifkan kembali (diregenerasi) berdasarkan penyebab proses deaktivasi. Deaktivasi yang disebabkan tertutupnya situs aktif oleh kokas dapat diaktifkan kembali dengan cara melakukan oksidasi dan reduksi kembali, sedangkan yang diakibatkan oleh peracunan (*poisoning*) dan penggumpalan (*sintering*) secara irreversibel biasanya tidak berhasil diregenerasi (Trisunaryanti *et al.*, 2002). Oleh karena itu, penelitian ini hanya fokus pada deaktivasi yang disebabkan oleh pembentukan karbon (*coke*) dan metode regenerasi yang memungkinkan. Aktivitas dan karakteristik katalis Ni/ZA sebelum dan setelah digunakan dalam reaksi perengkahan polipropilena serta setelah diregenerasi yang meliputi keasaman, porositas, sifat kristal, dan morfologi permukaaan katalis juga dipelajari secara detail untuk memperoleh pemahaman yang lebih baik tentang deaktivasi katalis Ni/ZA dan metode regenerasi yang sesuai.

1.2 Rumusan Masalah

Berdasarkan uraian di atas, permasalahan dalam penelitian ini adalah:

1. Bagaimanakah unjuk kerja katalis Ni/ZA pada reaksi perengkahan polipropilena sebelum dan setelah katalis terdeaktivasi?
2. Faktor apa yang mempengaruhi deaktivasi katalis Ni/ZA pada perengkahan polipropilena?
3. Bagaimanakah unjuk kerja katalis Ni/ZA pada reaksi perengkahan polipropilena setelah proses regenerasi?

1.3 Tujuan Penelitian

Tujuan dari penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Mempelajari unjuk kerja katalis Ni/ZA pada reaksi perengkahan polipropilena sebelum dan setelah terdeaktivasi.
2. Mempelajari faktor yang mempengaruhi deaktivasi katalis Ni/ZA pada reaksi perengkahan polipropilena.
3. Mempelajari unjuk kerja katalis Ni/ZA pada reaksi perengkahan polipropilena setelah proses regenerasi.

1.4 Manfaat Penelitian

Manfaat dari penelitian ini adalah memberikan informasi mengenai berapa kali katalis Ni/ZA dapat digunakan untuk perengkahan polipropilena menjadi fraksi C_5-C_{12} serta cara meregenerasi katalis. Dari informasi tersebut diperoleh paramater penting dalam pengembangan katalis untuk reaksi perengkahan polipropilena berdasarkan fenomena deaktivasi dan proses

regenerasi yang teramati. Selain itu, hasil perengkahan polipropilena dapat digunakan sebagai bahan bakar (energi) alternatif setingkat bensin, namun hal ini masih perlu penelitian lebih lanjut.

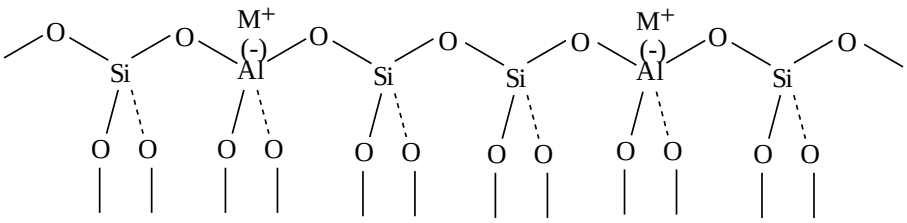
UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG
PERPUSTAKAAN
UNNES

BAB 2

TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Zeolit

Zeolit adalah suatu kelompok mineral alumina silikat hidrat yang mengandung logam alkali dan alkali tanah, dan apabila dinyatakan dalam rumus empiris adalah $M_{x/n}[(AlO_2)_x(SiO_2)_y].{}_zH_2O$, dengan M adalah kation alkali atau alkali tanah, n adalah valensi logam alkali atau alkali tanah, x dan y adalah jumlah tetrahedron per unit sel, dan z adalah jumlah molekul air per unit sel (Hamdan, 1992). Zeolit mempunyai kerangka struktur tiga dimensi yang 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, bergantung pada jenis mineralnya. Tetrahedron $(AlO_4)^{5-}$ dan $(SiO_4)^{4-}$, bilangan oksidasi Al dan Si masing-masing 3 dan 4. Dalam 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 *et al*., 1992). Struktur umum zeolit dapat disajikan pada Gambar 2.1.



Gambar 2.1. Struktur umum zeolit (Tsitsishivili *et al*., 1992)

Zeolit alam telah diketahui memiliki sifat yang cukup baik sebagai katalis maupun sebagai padatan pengemban (Rodiansono *et al*., 2007b). Penggunaan zeolit sebagai pengemban logam aktif didasarkan pada kerangka yang dimilikinya dan keberadaan situs Bronsted untuk mengarahkan terjadinya reaksi perengkahan (*cracking*) (Handoko *et al*., 2009). Kinerja zeolit alam aktif dapat ditingkatkan dengan cara mengembankan logam-logam transisi maupun oksida logam transisi. Pengembanan logam maupun oksida akan mengubah sifat permukaan zeolit alam aktif, sehingga mengubah aktivitas dan selektivitasnya (Rodiansono *et al*., 2007b).

2.2 Katalis

Katalis adalah zat yang dapat mempengaruhi laju suatu reaksi dan diperoleh kembali pada akhir reaksi. Katalis diperlukan dalam jumlah relatif sedikit untuk suatu reaksi, tidak mempengaruhi harga tetapan kesetimbangan, tidak memulai suatu reaksi tetapi hanya mempengaruhi laju reaksi, dan bekerja secara spesifik. Bekerja secara spesifik artinya hanya mengubah laju satu reaksi atau sekelompok reaksi tertentu tetapi tidak untuk reaksi yang lain. Katalis dapat juga dikatakan sebagai suatu zat yang dapat menurunkan energi aktivasi suatu

reaksi kimia, tanpa mempengaruhi harga konstanta kesetimbangan (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 cairan, sedangkan katalis heterogen memiliki fase yang berbeda dengan reaktan yang biasanya dalam fase padat untuk katalis dan fase gas atau cairan untuk reaktan (Joechim, 1998). Katalis heterogen memiliki fase yang berbeda dengan reaktan sehingga mudah dipisahkan dari reaktan setelah digunakan. Hal ini berbeda dengan katalis homogen yang memiliki fase yang sama, sehingga sulit untuk dipisahkan dari reaktan setelah digunakan. Selain itu, katalis homogen biasanya digunakan pada reaksi esterifikasi dan saponifikasi ester, sedangkan katalis heterogen digunakan pada reaksi perengkahan, hidrorengkah, dan hidrogenasi (Triyono, 2002). Dari alasan itulah dipilih katalis heterogen untuk proses perengkahan polipropilena.

Katalis padatan ada yang menggunakan pengemban dan ada yang tanpa pengemban. Pengembanaan logam yang dilakukan pada penelitian ini adalah metode sonokimia dengan tujuan agar logam aktif terdispersi secara merata sehingga permukaan situs aktif katalis menjadi semakin luas. Situs aktif merupakan titik pada permukaan katalis yang membentuk ikatan kimia kuat dengan atom atau molekul teradsorpsi. Situs aktif tersebut akan membentuk ion kabonium yang selanjutnya bereaksi dengan reaktan. Melalui reaksi tersebut rantai karbon akan terputus menjadi lebih pendek. Peningkatan jumlah situs

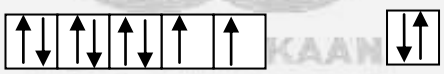
mengakibatkan kontak antara reaktan dan katalis semakin besar sehingga reaksi akan berjalan dengan cepat (Triyono, 2002).

2.3 Logam Ni sebagai katalis

Logam-logam transisi dapat digunakan sebagai katalis. Logam-logam transisi mempunyai daya adsorpsi yang kuat karena adanya elektron tak berpasangan pada orbital *d*. Logam-logam transisi secara langsung dapat berfungsi sebagai katalis tanpa diembankan terlebih dahulu pada pengemban. Akan tetapi, katalis logam murni memiliki kelemahan, diantaranya luas permukaan yang relatif kecil dan selama proses katalitik dapat terjadi penggumpalan (Trisunaryanti *et al*., 2005).

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, 1979). Dalam sistem periodik, unsur Ni merupakan logam golongan VIII B dengan konfigurasi elektron sebagai berikut.

$_{28}$Ni = [Ar] $3d^8$ $4s^2$



Atom nikel mempunyai orbital 3*d* yang belum penuh. Sesuai aturan Hund, pada orbital 3*d* ini terdapat dua elektron tak berpasangan. Oleh karena itu logam nikel mudah membentuk ikatan kovalen koordinat sehingga pembentukan zat antara pada permukaan lebih mudah (Triyono, 2002).

Logam Ni berfungsi sebagai katalis dalam proses perengkahan. Aktivitas katalitiknya memang lebih rendah dibandingkan logam Pt yang

memiliki nilai *work function* dan %-d lebih tinggi yaitu masing-masing sebesar 519 kJ/mol dan 44 %. Semakin tinggi nilai *work function* dan %-d, maka aktivitas katalitiknya juga semakin tinggi (Triyono, 2002). Hal ini karena semakin tinggi %-d akan meningkatkan tingkat koordinasi suatu atom logam yang berakibat pada kemampuannya dalam mengikat reaktan. Jika kemampuannya dalam mengikat reaktan tinggi maka jumlah reaktan yang teraktifkan akibat berikatan dengan situs aktif pada permukaan katalis juga akan meningkat, yang selanjutnya akan meningkatkan aktivitas katalis . Selain itu, karena sifatnya yang ekonomis, logam Ni banyak digunakan untuk *hydrotreating* maupun perengkahan (Trisunaryanti *et al*., 2005).

2.4 Metode Sonokimia

Metode sonokimia adalah metode yang mengaplikasikan energi suara untuk mendorong perubahan fisika dan kimia dalam medium cairan. Dimulai dengan penemuan ultrasonik *cleaning bath* sederhana yang biasanya digunakan untuk menjaga pengaruh jarak dari reaksi kimia, kemudian dikembangkan menjadi sintesis kimia dan sekarang telah diaplikasikan dalam bidang perindustrian obat-obatan dan pembersihan alat-alat medis (Kurniawan, 2008).

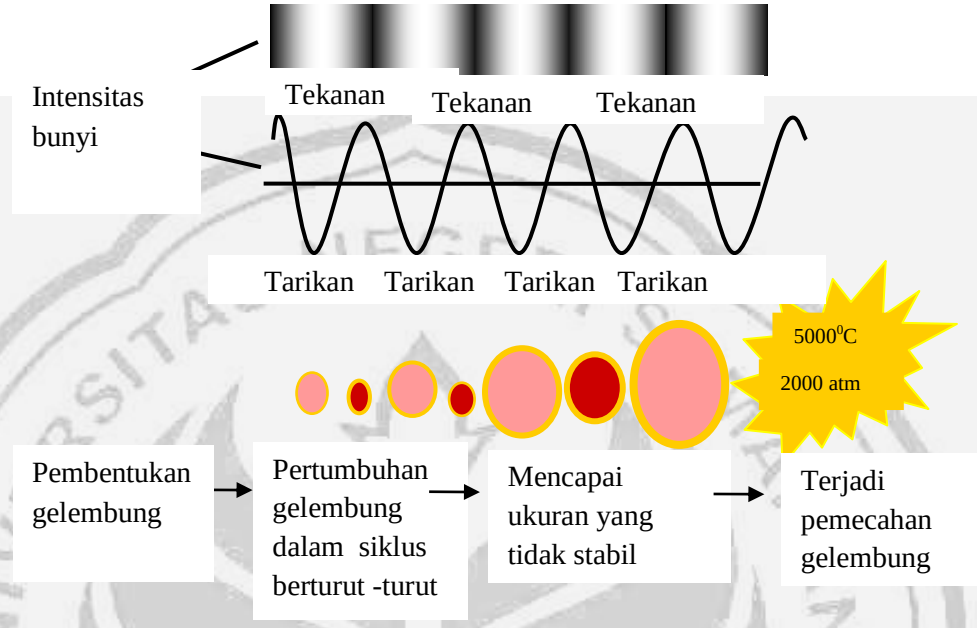
Sonokimia mengaplikasikan gelombang ultasonik untuk reaksi dan proses kimiawi. Gelombang ultrasonik ini memiliki rentang spektrum 20 kHz-10 MHz. Secara kasar, rentang gelombang ultrasonik dibagi menjadi tiga bagian penting yaitu frekuensi rendah dengan gelombang ultrasonik berkekuatan tinggi (20-100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

rendah (2-10 MHz). Frekuensi yang memiliki rentang 20 kHz-2 MHz inilah yang digunakan dalam sonokimia (Suslick *et al.*,1999).

Sonokimia umumnya dilakukan dalam medium cair, karena metode ini menggunakan prinsip getaran sehingga untuk medium cair akan lebih cepat bereaksi dibandingkan medium padatan. Seperti semua gelombang suara, gelombang 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 menggangu produksi gelembung (*cavity*) yang sangat kecil.

Suara 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°C, bertekanan 1000 atm, dan memiliki kecepatan pemanasan-pendinginan 10^{10}K/s (Suslick *et al.*,1999). 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. Gelombang ultrasonik yang cukup kuat untuk menghasilkan kavitasi dapat

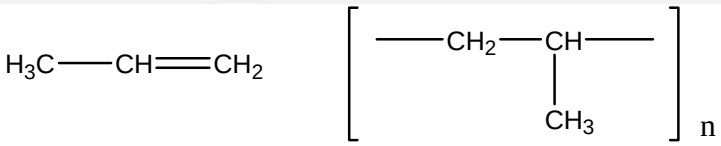
mendorong reaksi kimia seperti oksidasi, degradasi,dan dekomposisi (Yadav *et al*., 2008). Secara garis besar, efek kavitasi dapat dilihat pada Gambar 2.2.



Gambar 2.2. Efek kavitasi pada irradiasi ultrasonik: gelombang ultrasonik menyebabkan terbentuknya tekanan akustik di sekitar cairan medium

2.5 Polipropilena

Polipropilena merupakan polimer hidrokarbon yang termasuk ke dalam polimer termoplastik yang dapat diolah pada suhu tinggi. Polipropilena berasal dari monomer propilena yang diperoleh dari pemurnian minyak bumi. Struktur molekul propilena dan polipropilena dapat dilihat pada Gambar 2.3.



(a) (b)

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

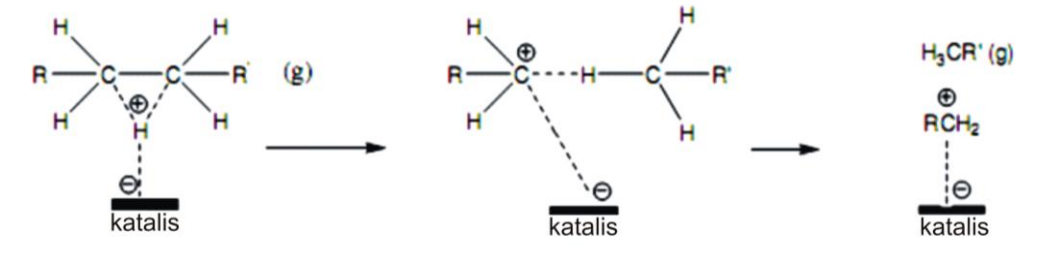
Secara industri, polimerisasi polipropilena dilakukan dengan menggunakan katalisasi koordinasi. Proses polimerisasi ini akan menghasilkan suatu rantai linear. Melalui penggabungan partikel karet, polipropilena biasa dibuat menjadi liat serta fleksibel bahkan pada suhu yang rendah. Hal ini memungkinkan polipropilena digunakan sebagai pengganti berbagai plastik teknik, seperti alkil benzena sulfonat (ABS). Polipropilen merupakan jenis bahan baku yang ringan, memiliki densitas 0,90-0,92 g/cm^3, konduktivitas 0,12 W/m, dan titik lebur 160^{0}C (320^{0}F) sebagaimana yang ditentukan dengan metode *Differential Scanning Calorimetry* (DSC). Polipropilena memiliki permukaan yang tidak rata, seringkali lebih kaku daripada beberapa plastik yang lain, cukup ekonomis, dapat dibuat bening, buram, dan atau berwarna-warni melalui penggunaan pigmen (Stevens, 2001).

2.6 Perengkahan Katalitik

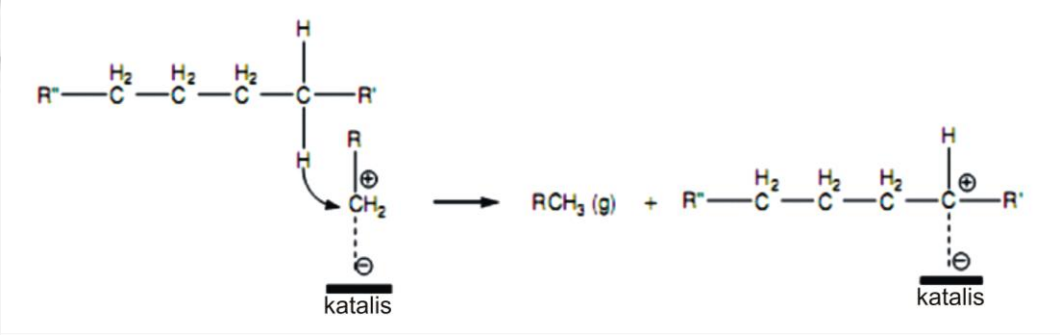
Reaksi perengkahan (*cracking)* merupakan reaksi yang mengkonversi rantai hidrokarbon panjang menjadi rantai hidrokarbon yang lebih pendek dengan bantuan panas/katalis. Menurut Gates (1991) mekanisme perengkahan senyawa rantai panjang seperti alkana pada permukaan katalis asam berlangsung melalui mekanisme pembentukan ion karbonium, sedangkan reaksi perengkahan tanpa menggunakan katalis akan melalui mekanisme pembentukan radikal bebas.

Reaksi *catalytic cracking* adalah reaksi perengkahan (*cracking*) menggunakan material katalis sebagai material yang mampu mempercepat laju reaksi untuk mencapai kesetimbangan dan dalam menghasilkan produk akhir

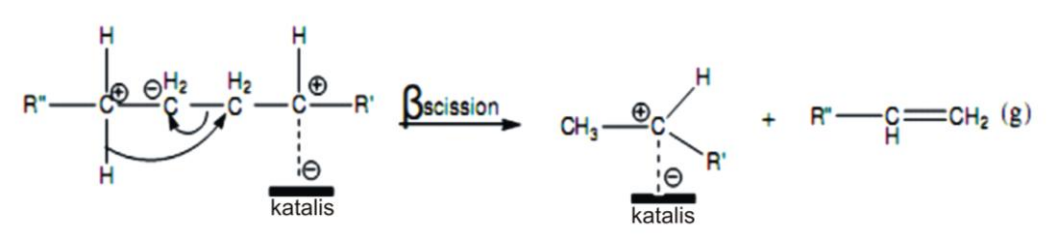
reaksi melalui mekanisme pembentukan ion karbonium. Mekanisme perengkahan menurut Handoko *et al*. (2009) tersaji pada Gambar 2.4, 2.5, 2.6, dan 2.7.



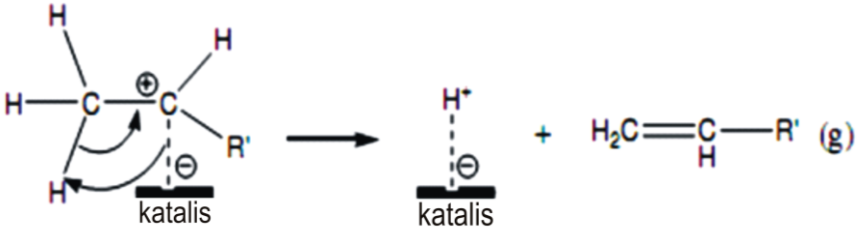
Gambar 2.4. Tahap pembentukan ion karbonium



Gambar 2.5. Tahap interaksi ion karbonium dengan reaktan

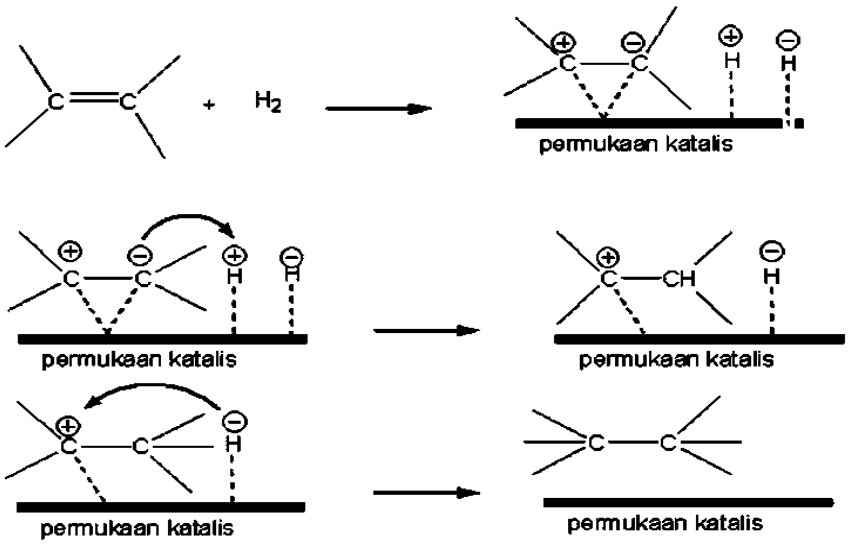


Gambar 2.6. Tahap penataan ion karbonium melalui pemutusan beta



Gambar 2.7. Tahap pembentukan katalis kembali

Hidrogenasi adalah reaksi adisi hidrogen (H_2) pada gugus etilenik atau ikatan rangkap. Reaksi hidrogenasi ini dilakukan dengan menggunakan gas hidrogen dan katalis. Kegunaan reaksi hidrogenasi adalah untuk menjenuhkan ikatan rangkap menjadi ikatan tunggal pada rantai karbonnya. Mekanisme reaksi hidrogenasi senyawa alkena pada permukaan katalis menurut Handoko *et al.* (2009) disajikan pada Gambar 2.8.



Gambar 2.8. Mekanisme reaksi hidrogenasi alkena pada permukaan katalis

2.7 Deaktivasi Katalis

Deaktivasi katalis merupakan fenomena fisis yang terjadi pada katalis yang berakibat pada penurunan aktivitas katalis selama pemakaian katalis dalam mengkatalisis suatu reaksi. Penggunaan katalis dalam waktu tertentu akan menyebabkan terjadinya perubahan karakter katalis yang selanjutnya akan berakibat pada penurunan aktivitas katalis. Hal itu disebabkan katalis mengalami pengurangan situs aktif. Berkurangnya situs aktif katalis ini disebabkan oleh adanya spesies atau senyawa yang teradsorpsi dengan kuat pada permukaan katalis sehingga situs aktif katalis tertutup oleh spesies atau senyawa tersebut. Hampir semua proses kontaminasi berlangsung secara takterbalikkan, sehingga apabila katalis mengadsorpsi spesies-spesies yang bersifat kontaminan tersebut maka jumlah situs aktif katalis akan menurun drastis (Viljava *et al*., 2000). Sebagai akibatnya, aktivitas katalis akan mengalami penurunan karena katalis telah terdeaktivasi.

Deaktivasi katalis juga dapat terjadi antara lain karena mengalami kerusakan situs aktif akibat pengaruh temperatur yang tinggi sehingga terjadi penggumpalan partikel logam aktif. Lebih lanjut pengaruh temperatur tinggi ini dapat mengakibatkan penggumpalan dan transisi fasa padat-padat pada lapisan partikel logam aktif. Penyebab deaktivasi katalis yang lain adalah peracunan oleh senyawa yang mengandung unsur N, P, As, Sb, O, S, Se, dan Te, serta beberapa senyawa yang memiliki gugus fungsional –C=O dan–C≡N. Selain itu, deaktivasi juga dapat disebabkan oleh pengotoran kokas yang menutupi situs aktif katalis. Pembentukan deposit karbon (kokas) merupakan hal yang sangat sulit dihindari

dalam reaksi katalitik. Pengotoran kokas pada katalis sistem logam pengemban dapat mengakibatkan: (1) pembelokan jalan masuk reaktan ke situs aktif katalis, (2) penutupan total pada komponen logam aktif sehingga keseluruhan komponen logam terdeaktivasi, dan (3) penyumbatan mikropori dan mesopori katalis sehingga jalan masuk reaktan ke pori terhalangi (Bartholomew, 2001).

Beberapa fenomena deaktivasi katalis tersebut akan mengakibatkan penurunan stabilitas, selektivitas, dan aktivitas katalis. Guichard *et al*. (2009) melakukan penelitian tentang pengaruh deaktivasi, aktivasi, dan regenerasi katalis Ni(Co)MoP/Al_2O_3. Hasil penelitian menunjukan bahwa penyebab utama katalis Co-Mo-P/Al_2O_3 terdeaktivasi adalah pembentukan kokas (*coke*), sedangkan deaktivasi katalis Ni-Mo-P/Al_2O_3 disebabkan oleh segregasi promotor.

2.8 Regenerasi Katalis

Kemampuan untuk meregenerasi katalis tergantung pada kapasitas katalis tersebut untuk diaktivasi kembali. Deaktivasi yang disebabkan oleh peracunan (*poisoning*) dan *sintering* secara irreversibel biasanya tidak berhasil diregenerasi. Beberapa racun dapat dibersihkan dengan cara pemanasan kimia atau oksidasi tetapi yang lainnya tidak dapat dibersihkan tanpa merusak katalis (Trisunaryanti *et al*., 2002). Dari beberapa penyebab deaktivasi, hanya deaktivasi akibat pengotor (*fouling*) karena pembentukan karbon dan *coke* saja yang mudah diregenerasi (Trisunaryanti *et al*., 2002).

Regenerasi dilakukan melalui pengaliran gas (*gas flow*) hidrogen, oksigen atau uap air (Trisunaryanti*et al*., 2002). Pada penelitian Rodiansono dan Trisunaryanti (2005), aktivitas katalis NiMo/Z mengalami penurunan setelah

pemakaian berulang-ulang karena pembentukan kokas pada permukaannya. Regenerasi katalis NiMo/Z dapat dilakukan dengan cara melakukan oksidasi dan reduksi kembali pada temperatur 400^0C. Katalis NiMo/Z hasil regenerasi menghasilkan aktivitas dan selektivitas yang hampir sama dengan katalis baru pada uji aktivitas reaksi hidrorengkah sampah plastik.

Selain itu, Trisunaryanti dan Emmanuel (2009) menyebutkan bahwa proses regenerasi katalis dengan gas O_2 pada temperatur 500^0C selama 1 jam mampu mengurangi kokas dan meningkatkan aktivitas katalis. Sedangkan penelitian Yao *et al*. (2008) menyebutkan bahwa katalis deaktivasi dapat diregenerasi dengan mengalirkan gas H_2 pada suhu 400^0C selama 2 jam. Proses regenerasi mampu mengurangi kokas yang mengendap dipermukaan katalis. Selain itu, proses regenerasi mampu meningkatkan hasil konversi. Dengan demikian, regenerasi katalis dengan menggunakan proses oksidasi dan reduksi secara berurutan disinyalir dapat mengurangi kokas secara lebih signifikan.

PERPUSTAKAAN
UNNES

BAB 3

METODE PENELITIAN

3.1 Lokasi Penelitian

Penelitian ini dilakukan di Laboratorium Universitas Negeri Semarang (UNNES), Universitas Gadjah Mada (UGM), dan Universitas Islam Indonesia (UII). Preparasi dan uji aktivitas katalis dilakukan di Laboratorium Kimia Fisik UNNES. Uji karakterisasi katalis dengan *X-Ray Diffractometer* (XRD) di lakukan di Lab Kimia UGM dan analisis produk reaksi dengan *Gas Chromatography-Mass Spectroscopy* (GC-MS) dilakukan di Laboratorium Instrumen UII. Untuk analisis produk dengan *Gas Chromatography* (GC), *Atomic Absorption Spectroscopy* (AAS), dan karakterisasi porositas katalis dengan *gas sorption analyzer* NOVA 1200e Quantachrome dilakukan di Laboratorium Kimia Instrumen UNNES, sedangkan karakterisasi morfologi katalis dengan *Scanning Electron Microscope-Energy Dispersive X-ray Spectroscopy* (SEM-EDX) dilakukan di Pusat Penelitian dan Pengembangan Geologi (P3G) Bandung.

3.2 Variabel Penelitian

a. Variabel bebas

Variabel bebas adalah variabel yang nilainya divariasi.Variabel bebas pada penelitian adalah: (i) Jumlah *running* (ii) Perlakuan regenerasi (oksidasi 4

jam, reduksi 2 jam serta temperatur dan laju masing-masing sebesar 400^0C dan 10 mL/menit).

b. Variabel terikat

Variabel terikat adalah variabel yang menjadi titik pusat penelitian. Variabel terikat pada penelitian ini adalah : (i) karakteristik katalis Ni/ZA sebelum dan setelah digunakan, (ii) karakteristik katalis Ni/ZA setelah dilakukan regenerasi, dan (iii) aktivitas katalis Ni/ZA sebelum terdeaktivasi dan setelah diregenerasi.

c. Variabel terkendali

Variabel terkendali adalah variabel yang dapat mempengaruhi hasil reaksi, tetapi dapat dikendalikan. Variabel terkendali dalam penelitian ini adalah rasio Ni/ZA 4 %, rasio katalis : umpan 1:2 (b/b), waktu reaksi 2 jam, laju alir gas hidrogen (20 mL/menit) pada tekanan atmosfer, dan suhu pada reaktor katalis 500^0C.

3.3 Rancangan Penelitian

3.3.1 Alat dan Bahan

3.3.1.1 Alat-alat Penelitian

Alat-alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah alat-alat gelas, termometer, pengayak 100 mesh, lumpang porselin, oven Precision GCA Corp, krus porselen, *furnace*, reaktor kalsinasi dan oksidasi, timbangan analitik, desikator, reaktor pirolisis, XRD Shimadzu 6000, GC Agilent 6820, GC-MS

UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG
PERPUSTAKAAN UNNES

Shimadzu QP-2010s, AAS Perkin Elmer Analyst-100, *gas sorption analyzer* NOVA 1200e Quantachrome, SEM-EDX JEOL JSM-6360LA.

3.3.1.2 Bahan-bahan Penelitian

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah zeolit alam (PT. Prima Zeolita), NH_4Cl 99,8% (E. Merck), HF 50% (E. Merck), HCl 37% (E. Merck), nikel nitrat heksahidrat $Ni(NO_3)_2.6H_2O$ p.a (E. Merck), NH_3 25% (E. Merck), $AgNO_3$ 99,8% (E. Merck), $H_3BO_3$10% (E. Merck), piridin 99,5% (E. Merck), gas hidrogen, oksigen, dan nitrogen (PT. Samator Gas), aquademin (PT. Brataco), dan plastik jenis polipropilena.

3.4 Prosedur Penelitian

3.4.1 Perlakuan awal zeolit alam

Zeolit alam (ZA) direndam dalam air bebas ion (aquademin) sambil diaduk dengan pengaduk magnet selama 24 jam pada temperatur kamar. Campuran kemudian disaring dan endapan yang diperoleh dikeringkan dalam oven pada temperatur 120ºC selama 12 jam.

3.4.2 Aktivasi zeolit dengan perlakuan HF, HCl, dan NH_4Cl

Sebanyak 150 g zeolit alam yang telah dicuci direndam dalam larutan HF 1 % dalam wadah plastik selama 30 menit, kemudian dicuci dengan aquademin dan dikeringkan dalam oven pada temperatur 120ºC selama 24 jam. Sampel lalu direndam ke dalam larutan HCl 6 N selama 30 menit pada temperatur 50ºC sambil diaduk dengan pengaduk magnet, disaring, dan dicuci berulang kali sampai tidak ada ion Cl^- (dapat dideteksi oleh larutan $AgNO_3$). Sampel dikeringkan pada temperatur 120ºC selama 3 jam dalam oven. Sampel ini direndam dalam larutan

NH_4Cl 1 N pada temperatur 90°C selama 3 jam perhari selama 7 hari sambil diaduk, kemudian disaring, dicuci, dan dikeringkan dalam oven pada temperatur 120ºC selama 12 jam (Trisunaryanti *et al.*, 2005). Sampel dihaluskan dengan ukuran lolos pengayak 100 mesh. Sampel ini diberi nama sampel H-ZA.

3.4.3 Preparasi Ni/zeolit alam dengan metode sonokimia

Sebanyak 7,9226 gram garam nikel nitrat heksahidrat $Ni(NO_3)_3.6H_2O$ ditimbang dan dilarutkan dalam 30 mL aquademin. Selanjutnya sebanyak 40 gram sampel H-ZA direndam pada larutan garam nikel nitrat yang telah disiapkan lalu disonikasi selama 1 jam dengan frekuensi 40 KHz (Wahid *et al*., 2001). Pelarut selanjutnya diuapkan dalam oven pada temperatur 120ºC selama 12 jam. Sampel ini kemudian diberi nama sampel Ni/ZA.

3.4.4 Kalsinasi, oksidasi, dan reduksi sampel katalis

Katalis Ni/ZA yang diperoleh dikalsinasi pada 500ºC selama 5 jam sambil dialiri gas nitrogen (10 mL/menit). Sampel kemudian dioksidasi dengan aliran gas oksigen dan reduksi dengan gas hidrogen (masing-masing 10 mL/menit selama 2 jam) pada temperatur 400ºC (Trisunaryanti *et al.*, 2005).

3.4.5 Karakterisasi Katalis

3.4.5.1 Penentuan Kristalinitas Katalis

Untuk mengetahui kristalinitas katalis, katalis dikarakterisasi dengan XRD. Dalam 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 2θ, dengan θ menyatakan sudut difraksi berdasarkan persamaan Bragg*:*

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (1)$$

dengan d adalah jarak antar bidang kristal dengan indeks Miller *(hkl)*, θ adalah sudut Bragg, n adalah bilangan bulat, dan λ adalah panjang gelombang (nm).

Metode yang sering digunakan untuk menentukan ukuran partikel adalah metode Scherrer. Ukuran Kristalin ditentukan berdasarkan pelebaran puncak difraksi sinar-X yang muncul. Metode ini sebenarnya memprediksi ukuran kristal dalam material, bukan ukuran partikel. Berdasarkan metode ini, makin kecil ukuran kristalin maka makin lebar puncak difraksi yang dihasilkan. Hubungan antara ukuran kristalin dan lebar puncak difraksi sinar-X dapat diaproksimasi dengan persamaan Scherrer.

$$D \approx K \frac{\lambda}{B \cos \theta_B} \quad (2)$$

dengan D adalah ukuran (diameter) kristalin (nm), λ adalah panjang gelombang sinar-X yang digunakan (nm), θ_B adalah sudut Bragg, B adalah *full width at half maximum* (FWHM) satu puncak yang dipilih (rad), dan K adalah konstanta material yang nilainya kurang dari satu. Nilai yang umumnya dipakai untuk $K \approx 0{,}9$ (Abdullah dan Khairurrijal, 2010).

3.4.5.2 Keasamaan Padatan

Penentuan jumlah situs asam katalis dilakukan secara kuantitatif dengan metode gravimetri menggunakan piridin dan NH_3 sebagai basa adsorbatnya. Mula-mula krus porselen kosong dioven selama 2 jam pada temperatur 120ºC. Setelah dioven, krus ditimbang dan beratnya dicatat sebagai W_0. Sampel katalis Ni/ZA

seberat 0,2 gram dimasukkan ke dalam krus porselen tersebut dan krus dioven kembali pada temperatur yang sama selama 1 jam. Berat krus porselen berisi sampel ditimbang dan beratnya dicatat sebagai W_1. Krus berisi sampel dimasukkan dalam desikator, kemudian divakumkan dan dialiri dengan gas NH_3 hingga jenuh. Gas NH_3 berasal dari NH_3 25% yang dipanaskan pada temperatur 60ºC. Krus berisi sampel tersebut kemudian didiamkan selama 24 jam agar gas ammonia teradsorpsi secara sempurna. Setelah itu krus porselen yang berisi sampel tersebut diangin-anginkan selama 15 menit dan beratnya ditimbang sebagai W_2. Berat NH_3 yang teradsorpsi dalam sampel adalah sebagai berikut:

$$W_{NH3}\,(ads) = \frac{(W2 - W1)}{(W1 - W0) \times Mr\ NH3} \times 1000 \text{ mmol/gram} \qquad (3)$$

Keterangan: W_1 = berat porselin setelah diberi sampel dan dipanaskan
W_2 = berat krus setelah dialiri NH_3
W_0 = berat porselin kosong

Banyaknya jumlah uap NH_3 yang teradsorpsi menunjukkan jumlah jumlah asam total zeolit. Dengan metode yang sama, jumlah asam di permukaan zeolit ditentukan dengan menggunakan uap basa piridin sebagai basa adsorbatnya.

3.4.5.3 Penentuan Kadar Ni dalam Katalis

Kandungan logam Ni dalam katalis Ni/ZA ditentukan dengan AAS. 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 dan dimasukkan ke dalam krus teflon yang sudah dibasahi dengan

aquaregia. Ke dalam krus Teflon ditambahkan sedikit demi sedikit 8 mL larutan HF 50%, selanjutnya ditambahkan 2 mL aquaregia. Campuran ini didiamkan selama 12 jam dan setelah itu dipanaskan pada temperatur 90°C selama 2 jam di dalam oven. Setelah dingin, larutan H_3BO_3 10% ditambahkan ke dalam campuran. Larutan kemudian dipindahkan ke dalam labu ukur plastik 100 mL dan ditambahkan aquabides sampai tanda batas. Absorbansi sampel ditentukan dengan AAS.

3.4.5.4 Penentuan Porositas Katalis

Luas permukaan, volume total pori, dan rerata jejari pori didasarkan pada fenomena adsorpsi molekul gas di permukaan zat padat yang berlangsung pada temperatur konstan. Alat yang digunakan adalah *gas sorption analyzer* NOVA 1200e Quantachrome. Sampel ditimbang dan dimasukkan ke dalam wadah sampel. Sampel dipanaskan pada temperatur 200°C dengan dilakukan pengusiran gas-gas lain menggunakan gas nitrogen selama 45 menit. Sampel didinginkan menggunakan nitrogen cair sehingga temperatur sampel mencapai 77 K. Tekanan gas nitrogen diubah sehingga jumlah gas nitrogen yang terkondensasi dapat ditentukan. Dengan diperolehnya data tersebut, maka volume total pori, luas permukaan sampel, dan rerata jari pori dapat ditentukan. Luas permukaan sampel katalis ditentukan menggunakan persamaan Brunauer, Emmet, dan Teller (BET), yaitu :

$$Si = \frac{Wm.Nav.Ap}{BMN2} \quad (4)$$

Keterangan: *Nav* = Bilangan avogadro ($6{,}023 \times 10^{23}$ molekul/mol)
Ap = Luas proyeksi N_2 (16,2Å^2)
BM_{N2} = Berat molekul N_2

Analisis jejari pori katalis mengikuti persamaan BET, yaitu:

$$r = \frac{2Vp}{S} \quad (5)$$

Keterangan: *rp* = Jejari pori katalis
Vp = Volume pori
S = Luas permukaan

Analisis volume total pori mengikuti persamaan BET, yaitu:

$$Vp = \frac{Pa.Vads.Vm}{RT} \quad (6)$$

Keterangan: *Vm* = Volume molar dari nitrogen cair (34,7 cm^3/mol)
Vads = Volume nitrogen yang teradsorpsi
Pa = Tekanan pengukuran
T = Temperatur pengukuran
(Abdullah dan Khairurrijal, 2010).

3.4.6 Perlakuan awal plastik polipropilena (PP) dan proses pirolisis

Plastik yang digunakan sebagai umpan ialah plastik dengan jenis polipropilena (PP). Plastik ini diperoleh dari sampah bekas kemasan air mineral. Plastik tersebut dicuci dengan deterjen, dibilas, dan dikeringkan. Setelah kering plastik tersebut dipotong kecil-kecil sekitar 2 mm agar pirolisis berlangsung baik.

Sebanyak 500 gram plastik polipropilena dimasukkan ke dalam reaktor pirolisis. Rangkaian reaktor pirolisis plastik diadaptasi dari Rodiansono *et al.*, (2007a). Reaktor berbentuk pipa terbuat dari *stainless steel* dengan panjang 60 cm dan berdiameter 4 cm yang terhubung dengan alat pemanas. Reaktor ini memiliki dua ujung, ujung yang pertama sebagai tempat masuknya gas N_2 sedangkan ujung

yang kedua sebagai tempat keluarnya uap. Pada ujung kedua dilengkapi dengan pendingin ulir dan tempat penampung hasil pirolisis. Proses pirolisis dilakukan pada temperatur 475^0C dengan dialiri gas nitrogen (100 mL/menit). Selanjutnya cairan plastik yang terbentuk dianalisis menggunakan GC dan sebagian lagi dijadikan sebagai umpan pada proses perengkahan katalitik.

3.4.7 Uji aktivitas katalis Ni/ZA pada perengkahan katalitik plastik

Perengkahan dilakukan dalam reaktor semi alir *(semi flow-fixed bed reactor)*. Katalis ditempatkan pada reaktor *stainless steel* memiliki panjang 20 cm dan berdiameter 2 cm yang terhubung dengan alat pemanas dilengkapi dengan *termo controller*. Umpan dialirkan dalam bentuk uap oleh gas hidrogen (20 mL/menit) dari reaktor umpan yang terbuat dari labu leher tiga dengan *heating mantle* sebagai pemanasnya. Reaksi berlangsung pada temperatur 500^0C, waktu perengkahan selama ± 120 menit dan rasio katalis:umpan 1:2(b/b) untuk lima kali *running*. Cairan hasil perengkahan katalitik didinginkan dengan es menggunakan pendingin ulir dan ditampung. Produk dianalisis dengan GC, untuk sampel yang % fraksinya paling tinggi dianalisis dengan GC-MS. Dari data GC-MS akan diketahui senyawa-senyawa apa saja yang muncul, sehingga dapat langsung dijumlah berapa banyak fraksi C_5-C_{12} dan $>C_{12}$. Katalis digunakan kembali dengan reaksi yang sama sampai lima kali *run*. Katalis Ni/ZA yang telah digunakan untuk lima kali *running* tersebut dikarakterisasi keasamaan, kristalinitas, luas permukaan spesifik, volume total pori, rerata jejari pori, dan morfologi permukaan katalis menggunakan SEM-EDX.

Persen fraksi produk (C_5-C_{12}) dan persen kondensat dihitung menggunakan persamaan yang digunakan Rodiansono dan Trisunaryanti (2005).

$$persen\ fraksi = \frac{\%\ berat\ komponen\ gasoline}{\%\ berat\ komponen\ produk}\ x\ 100\% \quad (7)$$

$$persen\ kondensat = \frac{berat\ produk}{berat\ umpan}\ x\ 100\% \quad (8)$$

3.4.8 Regenerasi katalis Ni/ZA pada perengkahan katalitik plastik

Katalis yang telah terdeaktivasi kemudian diregenerasi dengan cara dioksidasi pada temperatur 400°C, aliran gas O_2 10 mL/menit selama 4 jam kemudian direduksi pada temperatur 400°C dengan aliran gas H_2 10 mL/menit selama 2 jam (Rodiansono dan Trisunaryanti, 2005). Katalis hasil regenerasi (Ni/ZA reg) kemudian diuji kembali aktivitasnya pada kondisi reaksi yang sama seperti uji aktivitas katalis sebelum terdeaktivasi. Produk reaksi yang diperoleh kemudian dianalisis menggunakan GC. Katalis Ni/ZA reg kemudian dikarakterisasi keasamaan, kristalinitas katalis dengan XRD, luas permukaan spesifik, volume total pori, dan rerata jejari pori dengan *gas sorption analyzer* NOVA 1200e Quantachrome.

PERPUSTAKAAN UNNES

BAB 4

HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN

4.1 Hasil Penelitian

4.1.1 Preparasi Katalis

Perlakuan awal terhadap zeolit alam dengan perendaman menggunakan aquademin menyebabkan larutan bewarna keruh. Hal ini dimungkinkan karena partikel-partikel pengotor yang berukuran relatif besar ikut larut membentuk suspensi akibat pencucian dan pengadukan. Selain itu, proses pencucian dengan aquademin mengakibatkan logam-logam seperti K^+, Na^+, Ca^{2+}, dan Mg^{2+} yang menempel pada zeolit juga ikut larut (Handoko, 2006).

Zeolit kemudian diaktivasi menggunakan asam berupa HF dan HCl. Pada saat perlakuan dengan HF, muncul banyak busa pada larutan tersebut. Busa tersebut dimungkinkan timbul akibat gas SiF_4 yang terbentuk sebagai hasil reaksi antara HF dan SiO_2 (Svehla, 1979). Selanjutnya saat perendaman dengan HCl, larutan menjadi berwarna kehijau-hijauan yang dimungkinkan akibat terlarutnya logam Fe menghasilkan Fe^{2+}. Selain itu, perendaman HCl berperan dalam proses dealuminasi pada zeolit (Handoko, 2006). Selain perlakuan asam, zeolit diaktivasi menggunakan garam NH_4Cl. Perlakuan ini dimaksudkan untuk menggantikan kation-kation penyeimbang dalam zeolit seperti Na^+ dan Ca^{2+} dengan NH_4^+. Zeolit kemudian dikeringkan di dalam oven sehingga melepaskan NH_3 dan terbentuk H-ZA atau yang disebut dengan zeolit alam aktif. Sampel H-ZA kemudian

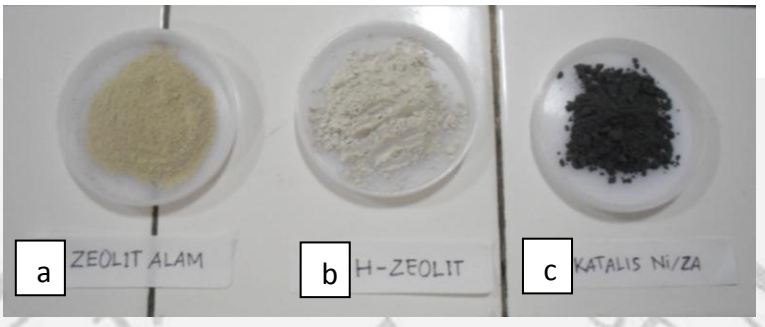
dihaluskan dan diayak sampai lolos ukuran 100 mesh. Setelah semua perlakuan selesai, zeolit menjadi berwarna putih keabu-abuan.

Zeolit hasil aktivasi kemudian dilakukan pengembanan logam Ni dengan metode sonokimia. Awalnya garam Ni dilarutkan menggunakan aquademin menghasilkan larutan berwarna hijau. Kemudian larutan tersebut dicampur dengan zeolit yang telah diaktivasi dan dimasukkan dalam alat sonikator. Selama proses pengembanan muncul gelembung-gelembung kecil. Hal ini disebabkan oleh fenomena kavitasi yaitu peristiwa pembentukan, pertumbuhan, dan pengempisan gelembung di dalam cairan yang terjadi pada saat katalis diberi perlakuan ultrasonik. Proses sonikasi dan hasil pengembanan logam Ni pada zeolit alam ditunjukan pada gambar 4.1.

Gambar 4.1 (a) proses sonikasi, (b) hasil pengembanan logam Ni

Setelah dilakukan aktivasi dan pengembanan logam Ni, kemudian dilakukan proses kalsinasi, oksidasi, dan reduksi. Proses ini dimaksudkan untuk menghilangkan pengotor-pengotor organik dan air, sehingga pori-pori zeolit terbuka dan luas spesifiknya meningkat. Setelah proses ini selesai sampel katalis Ni/ZA mengalami perubahan fisik menjadi hitam keabu-abuan. Sampel katalis

Ni/ZA kemudian diayak lagi sampai lolos ukuran 100 mesh. Berikut kenampakan fisik dari ZA, H-ZA dan Ni/ZA disajikan pada Gambar 4.2.



Gambar 4.2 Kenampakan fisik (a) ZA, (b) H-ZA, dan (c) Ni/ZA

4.1.2 Karakterisasi Katalis

4.1.2.1 Analisis Kandungan Ni dalam Katalis Ni/ZA

Dalam penelitian ini telah dilakukan preparasi katalis logam Ni yang telah diembankan pada zeolit alam menggunakan metode sonokimia. Untuk mengetahui kandungan logam yang teremban dilakukan analisis menggunakan AAS. Hasil analisis kandungan Ni dalam katalis Ni/ZA disajikan pada Tabel 4.1.

Tabel 4.1 Distribusi Logam Ni dalam Katalis Ni/ZA

Sampel	Hasil pengukuran (ppm)	Ni yang diembankan (gram)	Ni yang teremban (gram)	% efisiensi
Ni/ZA	744,8	1,6	1,489	93,06

4.1.2.2 Penentuan Jumlah Situs Asam Katalis Ni/ZA

Kinerja katalis sangat dipengaruhi oleh keasaman katalis. Hal ini karena dalam proses perengkahan polipropilena dibutuhkan situs asam pada katalis untuk membentuk ion karbonium yang selanjutnya bereaksi dengan reaktan. Apabila jumlah situs aktif besar, maka daya adsorpsi terhadap reaktan juga menjadi besar.

Uji keasamaan dalam penelitian ini dilakukan menggunakan metode gravimetri dengan amoniak dan piridin sebagai basa adsorbatnya. Jumlah situs asam dengan amoniak sebagai basa adsorbat merupakan jumlah situs asam total katalis, dengan asumsi bahwa ukuran molekul NH_3 yang kecil memungkinkan masuk sampai ke dalam pori-pori katalis. Sedangkan jumlah situs asam dengan piridin sebagai basa adsorbatnya merupakan jumlah situs asam permukaan, dengan asumsi ukuran molekul piridin yang relatif lebih besar sehingga hanya dapat teradsorbsi pada permukaan (Rodiansono dan Trisunaryanti, 2005). Hasil keasaaman ZA, H-ZA, dan Ni/ZA disajikan pada Tabel 4.2.

Tabel 4.2 Hasil Penentuan Keasamaan Katalis Ni/ZA

Sampel	Keasamaan (mmol/gram)	
	Total (Amonia)	Permukaan (Piridin)
ZA	1,676	0,309
H-ZA	1,893	0,566
Ni/ZA	2.087	0,731

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

Dalam reaksi katalitik untuk dapat terjadi reaksi perengkahan, maka harus terjadi kontak antara molekul umpan hasil pirolisis polipropilena yang berukuran cukup besar dan situs aktif katalis. Semakin besar luas permukaan katalis maka peluang terjadinya reaksi perengkahan semakin besar. Selain itu, dengan ukuran jari-jari pori yang besar memberi kesempatan lebih besar bagi molekul umpan untuk dapat masuk sampai ke dalam pori. Untuk mengetahui luas permukaan, volume total pori, dan rerata jejari pori dilakukan analisis

menggunakan *gas sorption analyzer* NOVA 1200e Quantachrome. Hasil selengkapnya disajikan pada Tabel 4.3.

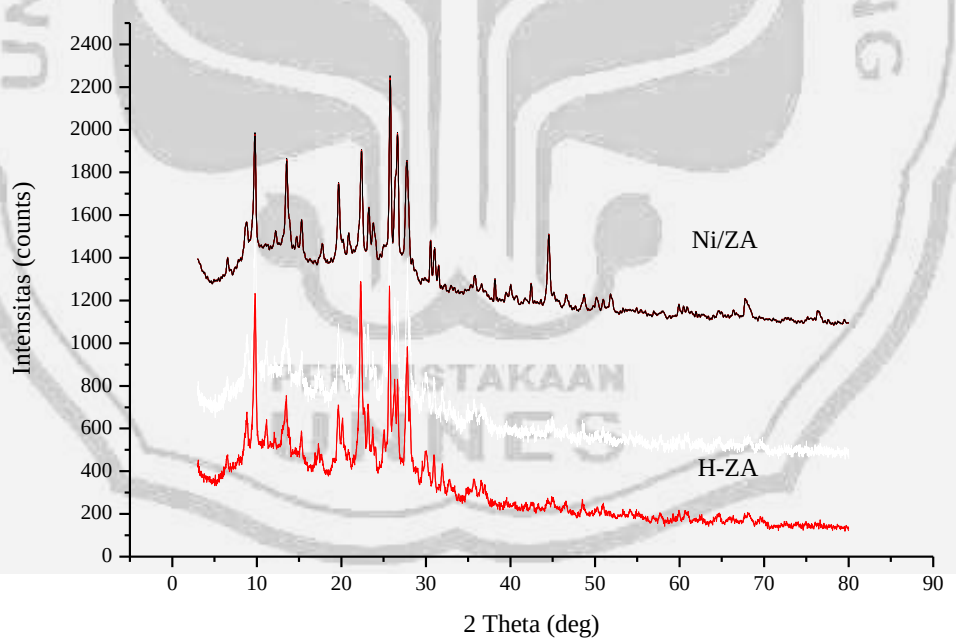
Tabel 4.3 Hasil Karakterisasi Luas Permukaan Spesifik, Volume Total Pori dan Rerata Jejari ZA, H-ZA, dan Katalis Ni/ZA

Sampel	Karakter		
	Luas Permukaan spesifik (m^2/g)	Volume total pori ($cc/g\ x10^{-3}$)	Rerata jejari pori (Å)
ZA*	35,08	70,33	40,09
H-ZA	51,167	137,0	24,09
Ni/ZA	95,746	174,8	16,66

Ket:*Penelitian Rahayu (2012)

4.1.2.4 Kritalinitas Katalis Ni/ZA

Kristalinitas katalis Ni/ZA dianalisis menggunakan XRD. Pola difraksi dari H-ZA dan Ni/ZA disajikan pada Gambar 4.3.



Gambar 4.3 Difraktogram H-ZA dan Ni/ZA

Selain berdasarkan difraktogram, kristalinitas katalis dapat diamati melalui tiga puncak tertinggi dari masing-masing padatan sedangkan untuk ukuran

kristal dapat dihitung menggunakan persamaan Scherrer (2). Masing-masing data disajikan pada Tabel 4.4.

Tabel 4.4 Data 2 Theta, Intensitas Tiga Puncak Tertinggi, dan Ukuran Kristal dalam ZA, H-ZA, dan Ni/ZA

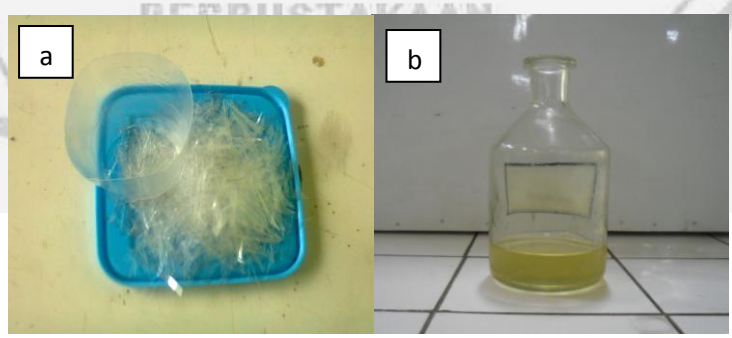
Katalis	2 Theta (deg)	Harga *d* (A)	Intensitas (counts)	Ukuran kristal (nm)	Rata-rata ukuran kristal (nm)
ZA*	25,9507	3,43069	325	74,8594661	
	22,5913	3,93268	225	58,17093625	59,66264
	28,0000	3,18409	189	45,17093625	
H-ZA	22,2885	3,98541	559	43,31733987	
	25,6798	3,46627	507	55,42632843	47,81074
	9,7753	9,04085	490	44,68857074	
Ni/ZA	25,7575	3,45599	604	64,52397806	
	26,6400	3,34347	423	69,6908815	61,81225
	9,7608	9,05425	391	51,22189331	

Ket:*Penelitian Rahayu (2012)

4.1.3 Uji Aktivitas

4.1.3.1 Preparasi Umpan Reaksi Perengkahan

Umpan dalam reaksi perengkahan ini adalah plastik jenis polipropilena yang telah dilakukan proses pirolisis terlebih dahulu menggunakan reaktor pirolisis pada suhu 475^{0}C, dan laju gas N_2 100 mL/menit selama 1,5 jam. Gambar 4.4 menunjukkan plastik jenis polipropilena sebelum dan setelah pirolisis.



Gambar 4.4 (a) plastik jenis PP, (b) hasil pirolisis PP

4.1.3.2 Uji Aktivitas Katalis Ni/ZA pada Proses Perengkahan Polipropilena

Uji aktivitas katalis Ni/ZA dilakukan dengan melakukan pirolisis plastik PP terlebih dahulu kemudian direngkah menggunakan katalis yang telah dipreparasi. Uji aktivitas katalis ini dilakukan secara berulang-ulang hingga lima kali pengulangan, serta uji aktivitas sekali setelah proses regenerasi. Proses perengkahan polipropilena ini dilakukan pada kondisi reaksi yang sama yaitu, suhu reaksi 500^0C dan laju alir H_2 20 mL/menit selama 2 jam untuk tiap reaksi. Hasil perengkahan (produk) kemudian diidentifikasi menggunakan GC. Analisis GC-MS dilakukan pada produk yang memiliki persen fraksi paling tinggi. Hasil persen fraksi perengkahan polipropilena disajikan pada Tabel 4.5.

Tabel 4.5 Hasil analisis produk perengkahan uji aktivitas katalis berulang-ulang

Sampel	% fraksi (b/b)	% Kondensat (b/b)
Umpan	44,96	-
Ni/ZA *Run* 1	87,29	15
Ni/ZA *Run* 2	96,12	5
Ni/ZA *Run* 3	80,01	25
Ni/ZA *Run* 4	70,53	5
Ni/ZA *Run* 5	65,54	15
Ni/ZA Reg	70,44	25

PERPUSTAKAAN UNNES

Untuk mengetahui komposisi senyawa kimia produk yang dihasilkan pada perengkahan polipropilena, maka dilakukan analisis GC-MS pada produk yang memiliki persen fraksi paling tinggi. Adapun hasil analisis GC-MS secara kuantitatif disajikan pada Tabel 4.6.

Tabel 4.6 Hasil analisis GC-MS secara kuantitatif

Hidrokarbon	% Area Produk
C_1-C_4	0
C_5-C_{12}	82,43
$>C_{12}$	17,57

4.1.4 Karakteristik Katalis Ni/ZA Setelah Terdeaktivasi dan Regenerasi

Dalam penelitian ini dilakukan perbandingan karakter katalis Ni/ZA antara sebelum digunakan (*fresh*) dan katalis Ni/ZA yang telah digunakan (terdeaktivasi), serta katalis Ni/ZA yang telah diregenerasi untuk mempelajari fenomena deaktivasi katalis Ni/ZA. Karakter yang dibandingkan yaitu keasamaan total, luas permukaan spesifik, volume total pori, rerata jejari pori, dan kristalinitas katalis Ni/ZA. Karakter keasaman dan porositas katalis dijadikan fokus dalam usaha regenerasi katalis karena kedua karakter tersebut merupakan karakter dasar katalis hidrorengkah. Selain itu juga dikaji morfologi luar, kandungan Si, Al, dan kokas pada katalis Ni/ZA setelah digunakan untuk lima kali *run* pada reaksi perengkahan polipropilena untuk memperoleh pemahaman yang lebih baik tentang faktor-faktor penyebab deaktivasi katalis dan pengaruhnya terhadap struktur kimia dan fisika katalis.

4.1.4.1 Keasaman Katalis Ni/ZA

Keasaman merupakan karakter yang cukup penting dalam mempelajari fenomena deaktivasi katalis karena keasaman adalah karakter kunci bagi katalis hidrorengkah. Keasaman menunjukkan jumlah situs aktif katalis yang akan berakibat langsung pada aktivitas katalis. Dengan memantau perubahan keasaman setelah reaksi dan mengamati besarnya aktivitas yang mampu dicapai akan memberikan penjelasan parsial tentang fenomena deaktivasi katalis. Hasil uji keasamaan katalis Ni/ZA sebelum digunakan, setelah terdeaktivasi, dan setelah regenerasi disajikan pada Tabel. 4.7.

Tabel 4.7 Keasaman katalis Ni/ZA sebelum digunakan, setelah terdeaktivasi dan regenerasi

Katalis Ni/ZA	Keasamaan (mmol/gram)	
	Total (Amonia)	Permukaan (Piridin)
Sebelum digunakan	2,087	0,731
Setelah terdeaktivasi	1,858	0,463
Setelah regenerasi	2,574	0,599

4.1.4.2 Luas Permukaan Spesifik, Volume Total Pori, dan Rerata Jejari Pori

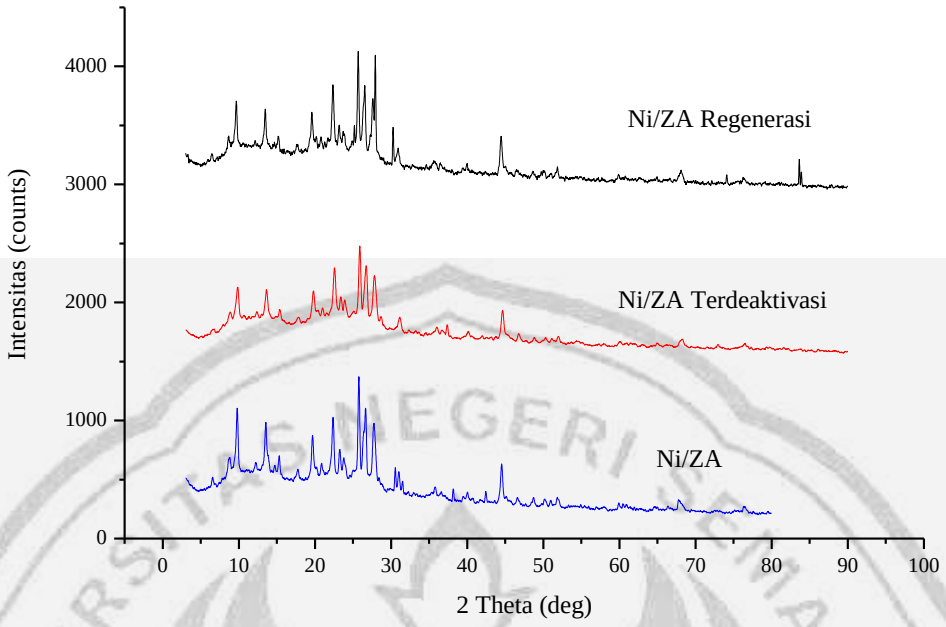
Dalam proses reaksi katalisis heterogen, luas permukaan kontak menjadi faktor yang menentukan untuk proses katalitik walaupun tidak selalu berbanding lurus dengan aktivitas katalis. Luas permukaan katalis yang tinggi akan memberikan luas kontak yang besar antara molekul reaktan dan katalis. Hasil karakterisasi terhadap luas permukaan spesifik, rerata jejari pori, dan volume total pori katalis selengkapnya disajikan pada Tabel 4.8.

Tabel 4.8 Hasil karakterisasi luas permukaan spesifik, volume total pori, dan rerata jejari pori katalis Ni/ZA sebelum digunakan, setelah terdeaktivasi dan regenerasi.

Katalis Ni/ZA	Karakter		
	Luas permukaan spesifik (m^2/g)	Volume total pori ($cc/g \times 10^{-3}$)	Rerata jejari pori (Å)
Sebelum digunakan	95,75	174,8	16,66
Setelah terdeaktivasi	72,24	169,4	46,89
Setelah regenerasi	48,52	123,8	51,04

4.1.4.3 Kristalinitas Katalis Ni/ZA

Pola difraksi dan tiga puncak tertinggi dari masing-masing katalis Ni/ZA, Ni/ZA terdeaktivasi, dan Ni/ZA setelah regenerasi pada reaksi perengkahan polipropilena disajikan pada Gambar 4.5 dan Tabel 4.9.



Gambar 4.5 Difraktogram katalis Ni/ZA, Ni/ZA Terdeaktivasi, dan Ni/ZA Regenerasi

Tabel 4.9 Data 2 Theta, Intensitas Tiga Puncak Tertinggi, dan Ukuran Kristal dalam Ni/ZA, Ni/ZA Ter, dan Ni/ZA Reg

Katalis	2 Theta (deg)	Harga *d* (A)	Intensitas (counts)	Ukuran kristal (nm)	Rata-rata ukuran kristal (nm)
Ni/ZA	25,7575	3,45599	604	64,52397806	
	26,6400	3,34347	423	69,6908815	61,81225
	9,7608	9,05425	391	51,22189331	
Ni/ZA Ter	25,8745	3,44062	432	52,48357266	
	26,6562	3,34147	327	36,29451707	44,79686
	22,5545	3,93901	293	45,61250124	
Ni/ZA Reg	27,9107	3,19406	653	108,5965470	
	25,6697	3,46761	593	75,80020372	91,48444
	26,5400	3,35584	400	90,05657037	

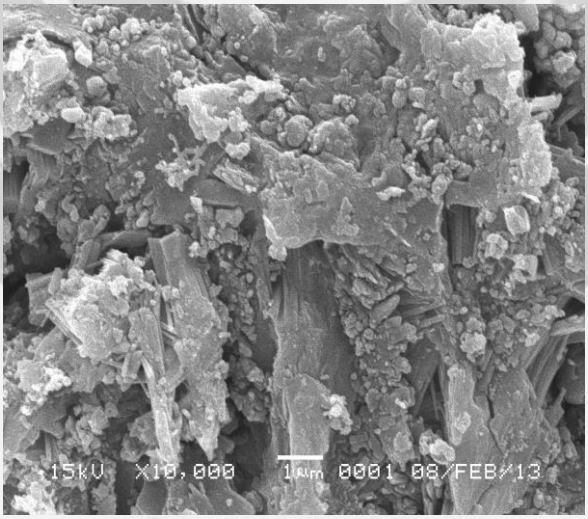
4.1.4.1 Karakterisasi Morfologi dan Komposisi Pemukaan Katalis dengan SEM-EDX

Morfologi dan komposisi permukaan katalis dapat dipelajari menggunakan SEM-EDX. Analisis semikuantitatif EDX memberikan informasi tentang komposisi unsur pada permukaan katalis. Dari karakterisasi SEM-EDX

diperoleh data tentang kandungan Si, Al, O, K, Ni, dan C (kokas) pada katalis Ni/ZA setelah digunakan untuk lima kali *run* pada Tabel 4.10 dan kenampakan morfologi luar katalis pada Gambar 4.6.

Tabel 4.10 Kandungan Si, Al, O, K, Ni, dan C pada katalis Ni/ZA setelah digunakan untuk lima kali *run*

Komponen	Massa (%)
Si	28,70
Al	4,04
O	37,81
K	1,28
Ni	4,61
C	23,56



Gambar 4.6 Kenampakan morfologi luar Ni/ZA Terdeaktivasi

4.2 Pembahasan

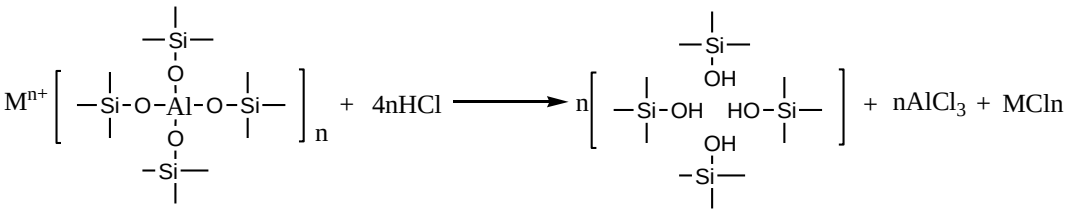
4.2.1 Preparasi Katalis

Perlakuan awal ini bertujuan untuk menghilangkan partikel pengotor yang ada pada zeolit alam. Hasilnya setelah pencucian dengan aquademin zeolit alam bebas dari pengotor karena terpisah pada waktu pencucian, pengadukan, dan penyaringan. Sehingga zeolit yang awalnya berwarna coklat keruh menjadi coklat muda.

Aktivasi dengan HF 1% bertujuan untuk melarutkan oksida-oksida pengotor seperti CaO, MgO, Na_2O, dan K_2O serta menghilangkan silika (SiO_2) dan alumina (Al_2O_3) bebas di sekitar zeolit (Handoko, 2006) sehingga pori-pori zeolit lebih terbuka. Berikut reaksi antara HF dengan SiO_2 (Svehla, 1979):

$$SiO_{2(s)} + 4HF_{(aq)} \longrightarrow SiF_{4(g)} + 2H_2O_{(l)}$$

Perendaman dengan larutan HCl 6M (dealuminasi) bertujuan untuk mengoptimalkan kandungan alumunium dalam zeolit sehingga zeolit dapat lebih stabil pada temperatur tinggi. Selain itu proses dealuminasi juga menyebabkan Al dalam kerangka (Al *framework*) menjadi alumunium di luar kerangka membentuk $AlCl_3$. Menurut Lestari (2010), zeolit alam setelah mengalami perlakuan asam, terjadi peningkatan rasio Si/Al sehingga meningkatkan keasaman dan selektivitas dari zeolit. Selain itu, HCl juga melarutkan logam-logam Fe^{2+} yang terdapat dalam zeolit membentuk $FeCl_2$ ditandai dengan larutan bewarna kehijau-hijauan. Proses pelepasan Al dalam kerangka menjadi Al di luar kerangka adalah seperti pada Gambar 4.7.



Gambar 4.7 Reaksi Dealuminasi dengan HCl (Handoko, 2002)

Selama perendaman dengan HCl, zeolit menjadi bersifat asam. Sisa-sisa ion Cl^- dalam zeolit kemudian dinetralkan dengan pencucian menggunakan aquademin. Pencucian ini dilakukan berulang-ulang hingga tidak terdapat ion Cl^- dalam larutan. Adanya ion Cl^- dapat dideteksi menggunakan larutan $Ag(NO)_3$, yaitu jika diteteskan ke dalam larutan sampel terbentuk endapan AgCl yang bewarna putih. Jika endapan putih tersebut sudah tidak lagi terbentuk maka larutan tersebut sudah bebas dari ion Cl^-. Langkah selanjutnya adalah perendaman dengan NH_4Cl 1N yang bertujuan untuk menggantikan kation-kation penyeimbang dalam zeolit seperti Na^+ dan Ca^{2+} dengan NH_4^+. Tahap ini melibatkan proses pertukaran kation penyeimbang dengan NH_4^+ untuk membentuk NH_4-Zeolit Alam. Ketika NH_4-Zeolit Alam dipanaskan maka akan melepaskan molekul NH_3, sehingga hanya meninggalkan H^+ pada zeolit alam (H-ZA). Aktivasi tahap ini dimaksudkan untuk membentuk situs asam Bronsted dengan adanya proton H^+ (Handoko, 2006).

Keasaman katalis merupakan jumlah total situs asam Lewis dan Bronsted yang terdapat dalam katalis. Situs asam Lewis akan meningkat dengan meningkatnya kandungan Ni di dalam katalis. Hal ini dikarenakan adanya orbital *d* pada logam Ni yang belum terisi penuh oleh elektron. Meningkatnya situs asam Lewis tidak mempengaruhi jumlah situs Bronsted yang terdapat dalam katalis

(Handoko, 2006). Proses pengembanan menggunakan metode sonokimia. Metode ini dipilih karena memiliki beberapa kelebihan dibandingkan dengan impregnasi yaitu waktu yang lebih cepat dan tanpa harus mengontrol suhu. Selain itu, metode ini juga dapat mengendalikan bentuk maupun ukuran partikel yang dihasilkan sehingga ukuran *granule* katalis lebih kecil dan lebih seragam (Purwanto *et al*., 2005).

Selanjutnya dilakukan proses kalsinasi selama 4 jam dengan temperatur 500^0C sambil dialiri gas N_2. Proses ini bertujuan untuk menghilangkan pengotor-pengotor organik sehingga mulut pori zeolit terbuka. Hal ini mengakibatkan luas permukaan spesifiknya meningkat. Selain itu, proses kalsinasi juga berfungsi untuk memperbaiki dispersi logam pada permukaan zeolit (Trisunaryanti *et al*., 2005). Oksidasi katalis dilakukan selama 2 jam dengan temperatur 400^0C sambil dialiri gas O_2. Proses ini bertujuan untuk mengubah logam Ni yang semula berbentuk kompleks Ni agar terpecah menjadi oksida logam Ni yang sederhana. Selanjutnya proses reduksi dilakukan selama 2 jam dengan temperatur 400^0C sambil dialiri gas H_2 proses ini bertujuan untuk mereduksi logam-logam yang diembankan pada zeolit sehingga bermuatan nol (Trisunaryanti *et al*., 2005). Proses ini harus berurutan karena jika setelah kalsinasi langsung dilakukan proses reduksi maka logam Ni yang semula berbentuk kompleks tidak bisa dibuat bermuatan nol tanpa dipecah menjadi logam Ni yang sederhana terlebih dahulu melalui proses oksidasi (Trisunaryanti *et al*., 2005).

4.2.2 Karakterisasi Katalis

4.2.2.1 Analisis Kandungan Ni dalam Katalis Ni/ZA

Berdasarkan data yang ditunjukkan pada Tabel 4.1 dapat dilihat bahwa efisiensi pengembanan logam Ni pada Ni/ZA adalah 93,06% dari 1,6 gram logam Ni. Berdasarkan penelitian Irvantino (2013) (kondisi reaksi: suhu reaksi 360^0C, katalis:umpan 1:2 (b/b), dan rasio Ni/ZA 4%) dengan metode yang sama (sonokimia) dan penelitian Prasetyaningsih (2011) (kondisi reaksi: suhu reaksi 400^0C, katalis:umpan 1:2 (b/b), dan rasio Ni/ZA 4%) menggunakan metode yang berbeda (impregnasi) masing-masing memiliki efisiensi pengembanan yang tidak jauh beda. Selain itu, dilihat dari karakteristik katalis yang meliputi keasaman dan porositas katalis masing-masing memberikan hasil yang tidak jauh beda pula seperti yang ditunjukkan pada Tabel 4.11. Hal ini menandakan jika metode sonokimia memiliki kemampuan yang tidak jauh beda dengan metode impregnasi dalam proses pengembanan logam sehingga metode sonokimia dapat dijadikan salah satu pilihan alternatif dalam proses pengembanan logam. Meski demikian, metode sonokimia memberikan keunggulan tersendiri yakni mampu meningkatkan luas permukaan katalis dan dispersi logam (Purwanto *et al*., 2005) dan menghasilkan ukuran katalis menjadi lebih kecil dan lebih seragam akibat penggunaan iradiasi ultrasonik dalam preparasinya, serta mampu meningkatkan hasil konversi (Purwanto *et al*., 2005).

Tabel 4.11 Karakter dari masing-masing katalis dengan metode yang berbeda

Sampel	Karakter			
	Logam Ni yang teremban (%)	Keasaman Total (mmol/gram)	Luas Permukaan Spesifik (m^2/g)	% Fraksi
Ni/ZA[1]	93,06	2,087	95,746	87,29
Ni/ZA[2]	95,3	3,985	118,6	3,46
Ni/ZA[3]	80,6	-	90,06	11,55

[1]Data Primer, 2013 (sonokimia)
[2]Irvantino, 2013 (sonokimia)
[3]Prasetyaningsih, 2011 (impregnasi)

4.2.2.2 Penentuan Jumlah Situs Asam Katalis Ni/ZA

Data hasil penentuan jumlah situs asam untuk masing-masing katalis memiliki pola yang sama, baik menggunakan amoniak maupun piridin sebagai basa adsorbatnya. Berdasarkan data yang ditunjukan pada Tabel 4.2 sampel ZA memiliki keasaman yang relatif rendah. Hal ini dimungkinkan karena ZA masih banyak mengandung oksida-oksida pengotor seperti Al_2O_3, SiO_2, CaO, MgO, Na_2O, dan K_2O di permukaan sehingga menutupi pori-pori katalis (Handoko, 2006). Akibatnya daya adsorpsi terhadap basa adsorbat kurang maksimal. Berbeda dengan zeolit yang telah dilakukan aktivasi (H-ZA), pori-pori zeolit menjadi lebih terbuka dan permukaan zeolit menjadi lebih luas akibat perlakuan dengan HF dan HCl. Perlakuan ini mengakibatkan berkurangnya oksida-oksida pengotor sehingga lebih efektif dalam mengadsorpsi basa adsorbat (Handoko, 2006). Hal ini yang mengakibatkan keasamannya lebih tinggi dari ZA. Keasaman tertinggi dimiliki oleh katalis Ni/ZA. Hal ini disebabkan adanya pengembanan logam Ni dalam katalis. Adanya pengembanan logam Ni yang dimungkinkan tersebar secara merata menyebabkan kenaikan keasaman katalis karena logam Ni mempunyai orbital *d* yang belum terisi penuh sehingga efektif untuk menerima pasangan

elektron dari basa adsorbat. Sumbangan jumlah situs asam logam Ni ini merupakan situs asam Lewis.

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

Hasil yang diperoleh pada Tabel 4.3 menunjukkan bahwa luas permukaan spesifik dan volume total pori dari ZA, H-ZA, dan katalis Ni/ZA mengalami peningkatan. Hal ini dimungkinkan karena pori-pori zeolit yang semula tertutupi oleh pengotor menjadi lebih terbuka setelah diaktivasi dengan HF dan HCl. Setelah pengembanan logam Ni, luas permukaan spesifik dan volume total pori katalis meningkat. Hal ini terjadi karena logam Ni yang teremban dimungkinkan terdistribusi merata pada permukaan zeolit dan meningkatkan luas pemukaannya. Menurut Handoko, (2006) peningkatan luas permukaan spesifik katalis disebabkan karena pembukaan pori-pori zeolit dan distribusi logam Ni yang lebih merata. Selain itu, semakin banyak jumlah pori-pori yang dimiliki, semakin besar luas permukaan total yang dimiliki katalis (Lestari, 2010). Dengan adanya luas permukaan dan volume pori yang besar memungkinkan adanya situs aktif yang lebih banyak, sehingga reaksi yang terjadi antara umpan dan katalis juga lebih banyak sehingga produk yang dihasilkan juga semakin banyak. Tabel 4.3 juga menunjukkan adanya penurunan rerata jejari pori katalis. Hal ini dimungkinkan karena logam yang teremban menempati makropori zeolit sehingga pori yang terukur adalah rerata jejari mikropori zeolit. Selain itu jejari pori erat hubungannya dengan volume pori. Semakin besar volume pori maka rerata jejari porinya semakin kecil (Trisunaryanti *et al*., 2002).

Berdasarkan penelitian Rahmawati *et al*. (2012) katalis Ni-Mo/ZA memiliki luas permukaan spesifik dan volume total pori yang lebih besar dibandingkan dengan H-ZA. Hal ini sama dengan penelitian ini yaitu Ni/ZA dan H-ZA masing-masing memiliki luas permukaan dan volume total pori sebesar 95,746 m^2/g; 174,8x10^{-3} cc/g dan 51,167 m^2/g; 137,0 x10^{-3} cc/g.

4.2.2.4 Kritalinitas Katalis Ni/ZA

Gambar 4.3 menunjukkan pola difraktogram H-ZA dan Ni/ZA. Dapat teramati bahwa kedua difraktogram memiliki pola yang hampir sama. Hanya saja ada beberapa pergeseran nilai d. Adanya pergeseran d menunjukkan bahwa logam telah teremban di dalam pori zeolit sehingga menyebabkan jarak antarkisi zeolitnya akan bertambah (Nugrahaningtyas *et al*., 2009). Namun perubahan tersebut tidak signifikan. Oleh karena itu, dapat dikatakan bahwa kristalinitas dari H-ZA tidak mengalami kerusakan setelah proses pengembanan logam Ni yang dapat dilihat dari tiga puncak terkuat yang hampir sama.

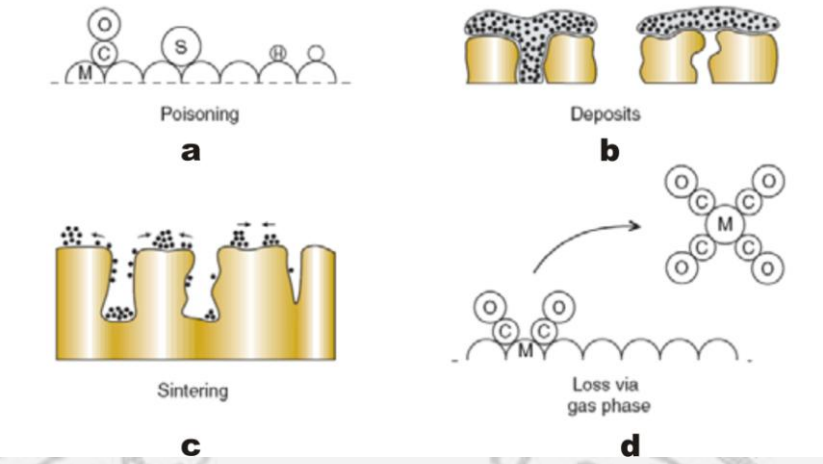
Tiga puncak terkuat dari H-ZA pada Tabel 4.4 yaitu pada 2θ= 22,2885 (d= 3,98541), 2θ= 25,6798 (d= 3,46627) dan 2θ= 9,7753 (d= 9,04085), serta tiga puncak terkuat Ni/ZA 2θ= 25,7575 (d= 3,45599), 2θ= 26,6400 (d= 3,34347) dan 2θ= 9,7608(d= 9,05425). Setelah dicocokkan dengan JCPDF logam Ni yang teremban ditunjukkan pada 2θ= 38,1482 (d= 2,35717), 2θ= 38,4285 (d= 2,34062), 2θ= 40,5600 (d= 2,22239), 2θ= 40,7200 (d= 2,21403), 2θ= 41,7033 (d= 2,16407), 2θ= 53,3137 (d= 1,71694), 2θ= 53,6283 (d= 1,70761).

Dengan demikian dapat dikatakan bahwa zeolit alam yang telah mengalami modifikasi dengan pengembanan logam Ni tidak mengalami perubahan tingkat kristalinitas yang berarti.

4.2.3 Uji Aktivitas Katalis Ni/ZA

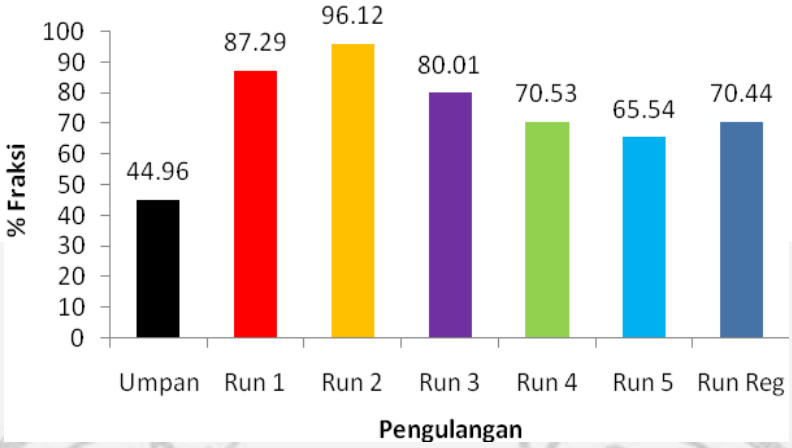
Berdasarkan data yang ditunjukkan Tabel 4.5 terlihat bahwa pada *run* 1 ke *run* 2 mengalami peningkatan persen fraksi. Peningkatan persen fraksi ini terjadi karena pada permukaan katalis Ni/ZA masih terdapat reaktan dan atau produk fraksi berat yang belum terdesorpsi sehingga pada saat katalis Ni/ZA digunakan lagi menghasilkan persen fraksi yang lebih besar. Pada *run* 3 sampai *run* 5 persen fraksi terjadi penurunan. Hal ini karena katalis yang sama apabila digunakan berulang kali untuk mengkatalisis suatu reaksi akan mengalami penurunan situs aktif, sehingga fraksi yang dihasilkan juga akan mengalami penurunan (deaktivasi). Deaktivasi katalis dapat disebabkan karena terjadinya pengotoran pada permukaan katalis. Pengotoran ini terjadi karena adanya sejumlah senyawa yang teradsorpsi secara fisik maupun kimia. Keadaan ini akan mengurangi luas permukaan dan menutupi situs-situs aktif katalis. Senyawa-senyawa pengotor ini berasal dari produk samping reaksi perengkahan, seperti karbon atau kokas dan senyawa-senyawa lain hasil perengkahan polipropilena yang terbentuk selama reaksi dan sulit terdesorpsi kembali pada fasa fluida. Selain itu, kokas hasil deaktivasi menyebabkan katalis berwarna lebih hitam setelah digunakan. Mekanisme deaktivasi katalis ditunjukkan pada Gambar 4.8.

PERPUSTAKAAN UNNES



Gambar 4.8 Mekanisme deaktivasi katalis: (a) peracunan katalis, (b) pengotoran oleh *coke*, (c) penggumpalan partikel logam aktif (Trisunaryanti dan Emmanuel, 2009)

Setelah diregenerasi, katalis diuji kembali aktivitasnya. Hasil uji katalis yang telah diregenerasi tampak pada Tabel 4.5 poin terakhir. Pada uji regenerasi ini, tampak kenaikan persen fraksinya. Hal ini dimungkinkan karena berkurangnya deposit kokas dan naiknya jumlah situs asam yang dibuktikan dengan uji keasaman pada permukaan katalis akibat adanya oksidasi dan reduksi pada permukaan katalis. Proses regenerasi ini menyebabkan terbukanya pori-pori katalis (Yao *et al*., 2008). Akan tetapi, kenaikan persen fraksinya kurang signifikan. Hal ini dapat disebabkan adanya kokas yang masih tertinggal pada permukaan katalis sehingga menutupi sisi-sisi aktif dari katalis (Trisunaryanti dan Emmanuel, 2009). Setelah diperoleh persen fraksi yang paling tinggi kemudian produk dianalisis menggunakan GC-MS. Hasilnya terlihat pada Tabel 4.6 menunjukkan bahwa hidrokarbon C_5-C_{12} memiliki persen area produk sebesar 82,43%. Berikut hubungan antara proses pengulangan dan hasil persen fraksi disajikan pada Gambar 4.9.



Gambar 4.9 Hubungan pengulangan dengan % fraksi

Trisunaryanti dan Emmanuel (2009) memaparkan bahwa agen pengoksidasi katalis yang dapat digunakan yaitu O_2, N_2, CO_2, H_2, maupun udara. Akan tetapi reaktivitas dari agen pengoksidasi tersebut dalam mengurangi jumlah deposit kokas cukup berbeda. Urutan reaktivitas agen pengoksidasi dapat digunakan dalam deposit kokas pada katalis yaitu O_2> udara > CO_2> H_2> N_2. Karenanya dalam penelitian ini menggunakan oksigen sebagai agen pengoksidasi. Reaksinya adalah sebagai berikut:

$C_{(s)} + O_2 \longrightarrow CO_2$ ΔH^o_{800} = -394,5 KJ/mol

$C_{(s)} + 2H_2 \longrightarrow CH_4$ ΔH^o_{800} = -87,3 KJ/mol

$C_{(s)} + CO_2 \longrightarrow 2CO_2$ ΔH^o_{800} = +172,5 KJ/mol

Perbedaan nilai ΔH^o_{800} menunjukkan bahwa semakin negatif nilainya maka reaksi yang terjadi akan semakin spontan karena harga ΔG^o juga semakin negatif. Proses regenerasi dimulai dengan oksidasi terlebih dahulu menggunakan O_2, kemudian dilanjutkan dengan reduksi menggunakan hidrogen (H_2). Hal ini dimaksudkan

untuk menghilangkan kokas yang dimungkinkan masih ada pada permukaan katalis.

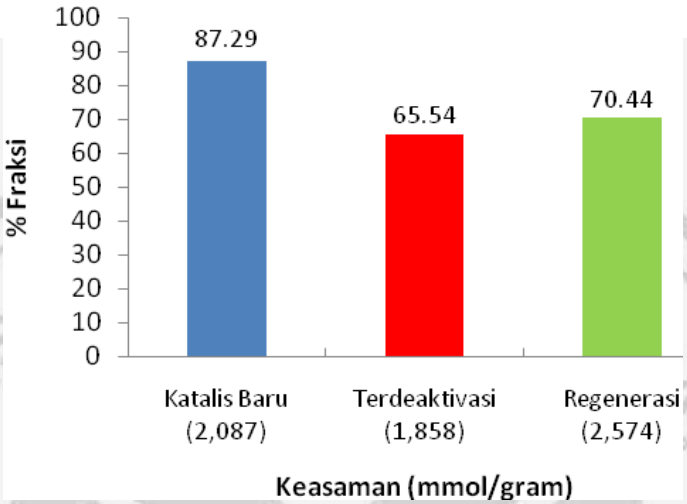
Berdasarkan penelitian Trisunaryanti *et al*. (2002) dan Rodiansono dan Trisunaryanti (2005) menyebutkan bahwa katalis yang terdeaktivasi mengalami penurunan persen area produk jika dibandingkan dengan katalis *fresh* dan mengalami peningkatan persen area produk lagi setelah proses regenerasi. Hal ini sama dengan hasil penelitian ini bahwa katalis Ni/ZA terdeaktivasi memiliki persen fraksi dibawah katalis Ni/ZA dan meningkat lagi seteleh diregenerasi. Berikut besaran persen fraksi masing-masing katalis, Ni/ZA (87,29%), Ni/ZA ter (65,54%), dan Ni/ZA reg (70,44%).

4.2.4 Karakteristik Katalis Ni/ZA Setelah Terdeaktivasi dan Regenerasi

4.2.4.1 Keasaman Katalis Ni/ZA

Pada Tabel 4.7 terlihat adanya penurunan keasaman katalis setelah digunakan sebanyak lima kali *running* (Ni/ZA Terdeaktivasi). Hal ini dimungkinkan akibat terbentuknya kokas yang menutupi situs aktif katalis sehingga jumlah basa yang teradsorpi oleh katalis berkurang. Seperti pada Tabel 4.10 yang menunjukkan terbentuknya kokas pada katalis sebesar 23,56%. Katalis yang telah mengalami deaktivasi kemudian diregenerasi dengan perlakuan oksidasi pada suhu 400^0C selama 4 jam dan reduksi pada suhu 400^0C selama 2 jam. Perlakuan tersebut diharapkan mampu mengubah seluruh kokas yang terbentuk teroksidasi menjadi CO_2 (Trisunaryanti dan Emmanuel, 2009). Setelah diregenerasi, keasaman katalis menjadi naik. Hal ini dimungkinkan karena berkurangnya kokas yang menutupi situs aktif. Selain itu, karena jejari katalis

Ni/ZA regenerasi bertambah besar sehingga daya adsopsi terhadap basa adsorbat lebih maksimal. Gambar 4.10 menyajikan hubungan antara keasaman dan hasil persen fraksi produk.



Gambar 4.10 Hubungan keasaman dengan % fraksi produk

Berdasarkan Gambar 4.10 katalis baru memiliki keasaman tinggi (2,087 mmol/g) sehingga menghasilkan persen fraksi yang tinggi pula (87,29%). Hal ini karena dengan keasaman yang tinggi maka akan memiliki jumlah situs aktif yang besar sehingga daya adsorpsi terhadap reaktan juga menjadi besar. Katalis Ni/ZA setelah digunakan lima kali pengulangan (Ni/ZA terdeaktivasi) mengalami penurunan keasaman. Hal ini yang mengakibatkan persen fraksinya juga mengalami penurunan. Persen fraksi meningkat lagi setelah katalis Ni/ZA dilakukan proses regenerasi. Hal ini terjadi karena katalis Ni/ZA regenerasi mengalami kenaikan keasamannya.

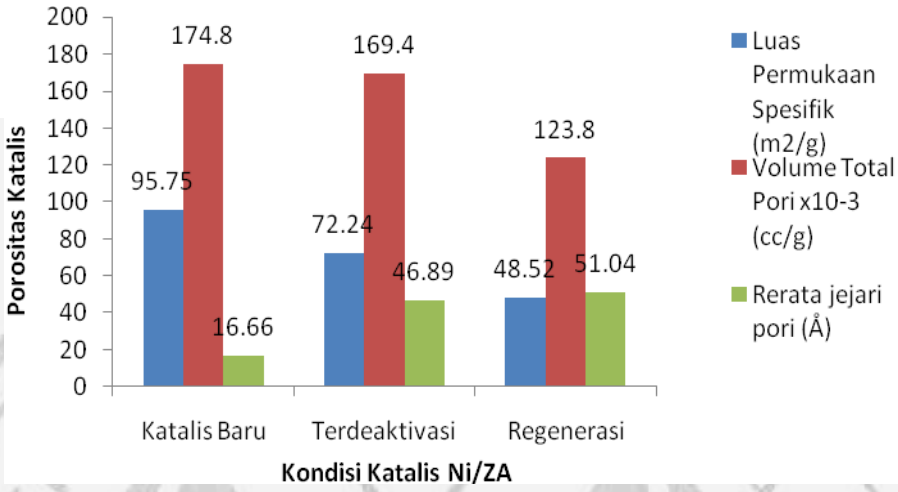
Berdasarkan penelitian Trisunaryanti *et al*. (2002) dan Rodiansono dan Trisunaryanti (2005) yang menyebutkan bahwa keasaman katalis *fresh* mengalami penurunan setelah katalis terdeaktivasi dan mengalami kenaikan keasaman setelah

proses regenerasi. Hal ini sama dengan hasil penelitian ini bahwa katalis Ni/ZA mengalami penurunan keasaman setelah katalis terdeaktivasi (Ni/ZA ter), dan meningkat lagi setelah proses regenerasi (Ni/ZA reg) yaitu masing-masing sebesar 2,087; 1,858 dan 2,574 mmol/g.

4.2.4.2 Luas Permukaan Spesifik, Rerata Jejari Pori, dan Volume Total Pori.

Tabel 4.8 menunjukkan bahwa setelah digunakan lima kali *running,* luas permukaan dan volume total pori katalis Ni/ZA mengalami penurunan. Penurunan luas permukaan dan volume total pori dapat disebabkan karena tertutupnya luas permukaan katalis oleh deposit karbon (kokas). Selain itu dimungkinkan terjadi penggumpalan (*sintering*) pada katalis karena penggunaan temperatur yang tinggi (500^0C) pada saat proses perengkahan, sehingga luas permukaan dan volume total porinya menurun. Penurunan luas permukan dan volume total pori juga dialami katalis hasil regenerasi (Ni/ZA reg). Padahal seharusnya setelah proses regenerasi, katalis Ni/ZA reg diharapkan memiliki luas permukaan dan volume total porinya yang lebih besar dibandingkan dengan katalis Ni/ZA terdeaktivasi. Terjadinya penurunan luas permukaan dan volume total pori pada katalis Ni/ZA regenerasi dimungkinkan akibat proses regenerasi itu sendiri yaitu terjadi reaksi lanjutan antara senyawa yang teradsorpsi dengan oksigen dan atau hidrogen sehingga membentuk senyawa baru. Hal ini dibuktikan pada hasil karakterisasi kristalinitas katalis regenerasi yang menunjukkan adanya *peak* baru pada 2 Theta 83,6290 dimungkinkan itu adalah senyawa baru. Senyawa baru tersebut dimungkinkan menutupi permukaan katalis sehingga luas permukaan dan volume pori katalis

menjadi lebih kecil. Berikut hubungan antara kondisi katalis dan porositas katalis ditunjukkan pada Gambar 4.11.



Gambar 4.11 Hubungan kondisi katalis Ni/ZA dengan porositas katalis.

Trisunaryanti *et al*. (2002) menyebutkan bahwa jejari pori erat hubungannya dengan luas permukaan dan volume pori katalis. Semakin kecil rerata jejari pori maka volume pori akan semakin besar sehingga akan meningkatkan luas permukaan spesifik katalis. Selain itu, proses regenerasi pada katalis yang terdeaktivasi seharusnya dapat meningkatkan luas permukaan spesifik. Hal ini berbeda dengan hasil penelitian ini. Proses regenerasi pada katalis Ni/ZA terdeaktivasi justru mengalami penurunan luas permukaan spesifik.

4.2.4.3 Kristalinitas Katalis Ni/ZA

Gambar 4.5 menunjukkan setelah penggunaan lima kali *running*, katalis mengalami penurunan intensitas dan pergeseran nilai *d*. Hal ini dimungkinkan karena perlakuan termal dalam waktu yang lama serta adanya kokas yang menempel dipermukaan katalis. Setelah katalis diregenerasi, terjadi kenaikan intensitas yang cukup signifikan seperti yang ditunjukkan pada Tabel 4.9. Namun,

pada pola difraksi katalis Ni/ZA regenerasi terbentuk *peak* baru pada 2 Theta 83,6290^{o} yang dimungkinkan itu adalah senyawa baru yang terbentuk akibat proses regenerasi itu sendiri.

4.2.4.4 Karakterisasi dengan SEM-EDX

Pada Tabel 4.10 terlihat bahwa dalam katalis Ni/ZA setelah digunakan lima kali *run* terbentuk kokas sebanyak 23,56% dengan asumsi bahwa katalis *fresh* tidak mengandung karbon. Dengan terdeteksinya kokas tersebut dapat membuktikan bahwa kokas merupakan salah satu penyebab katalis Ni/ZA terdeaktivasi, sehingga katalis mengalami penurunan keasaman, volume total pori, dan luas permukaan spesifik. Terbentuknya kokas dimungkinkan akibat hasil samping selama proses hidrorengkah polipropilena yang memiliki rantai C yang panjang. Hasil morfologi katalis terdeaktivasi dapat dilihat pada Gambar 4.6.

PERPUSTAKAAN
UNNES

BAB 5

SIMPULAN DAN SARAN

5.1 Simpulan

Berdasarkan hasil penelitian dan pembahasan, maka dapat disimpulkan sebagai berikut:

1. Beberapa karakteristik katalis Ni/ZA mengalami penurunan setelah digunakan untuk lima kali *run* pada reaksi perengkahan polipropilena, yaitu karakteristik keasamaan sebelum digunakan 2,087 menjadi 1,858 mmol/gram, luas permukaan spesifik sebelum digunakan 95,75 menjadi 72,24 (m^2/g), volume total pori sebelum digunakan 174,8 menjadi 169,4 (cc/g x10^{-3}) akibatnya persen fraksi ikut menurun dari 87,29 menjadi 65,54%.
2. Penyebab penurunan aktivitas katalis Ni/ZA diperkirakan karena terbentuknya kokas 23,56% (*fouling*).
3. Beberapa karakteristik katalis Ni/ZA mengalami kenaikan setelah dilakukan proses regenerasi, yaitu karakteristik keasaman menjadi 2,574 mmol/gram akibatnya persen fraksi ikut naik menjadi 70,44% sedangkan luas permukaan dan volume total pori mengalami penurunan yaitu masing-masing menjadi sebesar 48,52 (m^2/g) dan 123,8 (cc/g x10^{-3}).

5.2 Saran

Untuk penelitian selanjutnya perlu dilakukan variasi metode dalam proses regenerasi katalis Ni/ZA sehingga dapat diperoleh hasil regenerasi yang optimal. Selain itu, perlu dipelajari penyebab lain selain terbentuknya kokas yang mengakibatkan penurunan unjuk kerja katalis.

UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG
PERPUSTAKAAN
UNNES

DAFTAR PUSTAKA

Abdulah, Mikrajuddin, dan Khairurijal. 2010. *Karakterisasi Nanomaterial Teori, Penerapan, dan Pengolahan Data*. Bandung: CV. Rezeki Putera Bandung.

Bartholomew, C.H. 2001. Mechanisms of Catalyst Deactivation. *Applied Catalyst A: Genera*l, 212: 17-60.

Eliyana., C.B. Lesmono., A. Riyadi, dan R. Rahmawati. 2000. Pembuatan Fraksi Bensin dari Sampah Plastik dengan Katalis Zeolit alam. *Buletin Penalaran Mahasiswa UGM*, 7(1): 21-24.

Gates, B.C. 1991. *Catalytic Chemistry*. New York: Jhon Wiley and Sons Inc.

Guichard, B., M. Roy-Auberger., E. Devers., C. Pichon, dan C. Legens. 2009. Characterization of aged hydrotreating catalysts. Part II: The evolution of the mixed phase. Effects of deactivation, activation and/or regeneration. *Applied Catalysis*, 367(1-2): 9-22.

Hamdan, H. 1992. *Introduction to Zeolites Synthesis, Characterization, and Modification*. Kuala Lumpur: Universitas Teknologi Malaysia.

Handoko, D.S.P. 2002. Pengaruh Perlakuan Asam, Hidrotermal dan Impregnasi Logam Kromium Pada Zeolit Alam Dalam Preparasi Katalis. *Jurnal ILMU DASAR*, 3(2): 103-109.

Handoko, D.S.P. 2006. Mekanisme Reaksi Konversi Katalitik Jelantah Menjadi Senyawa Fraksi Bahan Bakar Cair dengan Katalis Ni/H_5-NZA dan Reaktor *Flow Fixed-Bed. Jurnal ILMU DASAR*, 7(1): 42-51.

Handoko, D.S.P, Triyono., Narsito, dan T.D. Wahyuningsih. 2009. Pengaruh Temperatur Terhadap Kinerja Katalis Ni/Zeolit Pada Reaksi Hidrogenasi Katalitik 1-Oktadiena. *Reaktor*, 12(4): 218-225.

Irvantino, B. 2013. *Preparasi Katalis Ni/Zeolit Alam dengan Metode Sonokimia untuk Perengkahan Katalitik Polipropilena dan Polietilena*. Skripsi. Semarang: Kimia FMIPA UNNES.

Jocheim, J. 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.

Joo, H.S.dan Guin, J.A. 1997. Hydrocracking of a Plastic Pyrolysis Gas Oil to Naphtha. *Energy & Fuel*s, 11: 586-592.

Kurniawan, C. 2008. *Studi tentang sifat luminisensi nanopartikel* $(Ca_xSr_{1-x})TiO_3$*:RE (RE=* Pr^{3+}*,* Eu^{3+} *dan* Tb^{3+}*) yang dipreparasi dengan metode sonokimia*. Tesis. Bandung: Jurusan Kimia ITB.

Lestari, D.Y. 2010. Kajian Modifikasi dan Karakterisasi Zeolit Alam dari Berbagai Negara. *Prosiding Seminar Nasional Kimia dan Pendidikan Kimia*. Yogyakarta: Universitas Negeri Yogyakarta.

Liu, J., Z. Cao, dan X. Xu. 2006. Hydro–upgrading of FCC Gasoline on Ni-Mo-P/USY Catalyst. *Buletin of the Catalysis Society of India,* 5: 87-93.

Nugrahaningtyas, K.D., W. Trisunaryanti., Triyono., Nuryono., D.M. Wijonarko., A. Yusnani, dan Mulyani. 2009. Preparasi dan Karakterisasi Katalis Logam Tak Tersulfidasi : Ni/USY dan NiMo/USY. *Indo. J. Chem*, 9(2): 177-183.

Prasetyaningsih, F.E. 2011. *Pembuatan Katalis Ni/Zeolit Untuk Reaksi Perengkahan Katalitik Limbah Plastik Menggunakan Fixed Bed Reactor*. Skripsi. Semarang: Universitas Diponegoro.

Purwanto, W.W., M. Nasikin, dan I. Hapsari. 2005. Pengaruh Jenis Presipitan Dan Iradiasi Ultrasonik Pada Katalis Ni/CeO_2-MgO-La_2O_3/Al_2O_3 Untuk Reaksi Oksidasi Parsial Metana. *Jurnal Teknologi*, (4): 338-344.

Purwono, S., W. Trisunaryanti., S. Salamah., W. Hasim, dan Arenal. 2006. Hydrocracking Aspal Buton Dengan Katalisator Nikel-Paladium, Ni-Pd Dalam Penggemban Zeolit. *FORUM TEKNIK*, 30(2): 106-119.

Rahayu, P.E. 2012. *Konversi Minyak Sawit Menjadi Biogasoline Menggunakan Katalis Ni/Zeolit Alam*. Skripsi. Semarang: Kimia FMIPA UNNES.

Rahman, A., E.B. Siswanto., Supardi., I.F. Nurcahyono, dan T. Yulianai. 2002. Preparasi Zeolit Alam Aktif Untuk Proses Perengkahan Katalitik Pengolahan Sampah Plastik Menjadi Fraksi Bensin dengan Variasi Suhu dan Waktu Perengkahan. *Buletin Penalaran Mahasiswa UGM*, 9(2): 2-6.

Rahmawati, F.,S. Wahyuni, dan S. Kadarwati. 2012. Studi Deaktivasi Katalis Ni-Mo/Zeolit Alam pada Reaksi Hidrodenitrogenasi (HDN) Piridin. *Indo. J. Chem. Sci*, 1(1): 20-26.

Riyadi, A., Yusraini., Eliyana., Nurhafni., E. Junaidi. 2002. Pembuatan Bahan Bakar Setingkat Bensin dari Sampah Plastik Jenis Polipropilen dengan Katalis Cr 1%/Zeolit Alam Aktif. *Buletin Penalaran Mahasiswa UGM*, 9(1): 11-14.

Rodiansono dan W. Trisunaryanti. 2005. Uji Aktivasi dan Regenerasi Katalis NiMo/Z pada Reaksi Hidrorengkah Fraksinasi Fraksi Sampah Plastik Menjadi Fraksi Bensin. *Indo. J. Chem*, 5(3): 261-268.

Rodiansono., W. Trisunaryanti, dan Triyono. 2007a. Pembuatan, Karakterisasi dan Uji Aktivitas Katalis NiMo/Z dan NiMo/Z-Nb_2O_5 pada Reaksi Hidrorengkah Fraksi Sampah Plastik Menjadi Fraksi Bensin. *Berkala MIPA*,17(2): 43-54.

Rodiansono., W. Trisunaryanti, dan Triyono. 2007b. Pengaruh Pengembanan Logam Ni dan Nb_2O_5 pada Karakter Katalis Ni/Zeolit dan Ni/Zeolit-Nb_2O_5. *Sains dan Terapan Kimia*, 1(1): 20-28.

Stevens, M.P. 2001. *Polymer Chemistry*: Diterjemahkan oleh Iis Sopyan. 2001. Jakarta: PT Pradnya Paramita.

Suslick, K.S., Y. Dudenko., M.M. Fang., T. Hyeon., K.J. Kolbeck., W.B. McNamara., M.M. Mdeleleni dan M. Wong. 1999. Acoustic Cavitation And Its Chemical Consequences. *Phil. Trans. R. Soc. Land. A*, 357: 335-353.

Svehla, G. 1979. *Analisis Anorganik Kualitatif Makro dan Semimikro*. Diterjemahkan oleh Setiono, L dan Pudjaatmaka, A.H. 1990. Jakarta: PT Kalman Media Pusaka.

Tsitsishivili, G.V., T.G. Andronikashvili., G.N. Kirov, dan L.D. Filizova. 1992. *Natural Zeolites*. England: Ellis Horwood Limited.

Trisunaryanti, W., E. Triwahyuni, dan S. Sudiono. 2005. Preparasi, Modifikasi dan Karakterisasi Katalis NiMo/zeolit alam dan Mo-Ni/Zeolit alam, *TEKNOIN*, 10(4): 269-282.

Trisunaryanti, W., Triyono, dan F. Taufiyanti. 2002. Deaktivasi dan Regenerasi Katalis Cr/Zeolit Alam Aktif untuk Proses Konversi Metil Isobutil Keton. *Gama Sains*, 4(2): 142-14.

Trisunaryanti, W., I. Emmanuel. 2009. Preparasi, Karakterisasi, Uji Aktivitas, Deaktivasi, dan Regenerasi Katalis CoO-MoO/ZnO dan CoO-MoO/ZnO-ZAA untuk Produksi Hidrogen dari Minyak Fusel. *Indo J. Chem*, 9(3): 361-368.

Triyono. 2002. *Kimia Katalis*. Yogyakarta: Jurusan Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Gadjah Mada.

Viljava, T.R., R.S. Kulainen, dan A.O.I. Krouse. 2000. Effect of H_2S on Stability of Co-Mo/Al_2O_3 Catalysts during Hydrodeoxygenation. *Catal.Today*, (60): 83-92.

Wahid, A., M. Nasikin, dan M. Suhaeri R. 2001. Pengaruh Iradiasi Pada Preparasi Katalis CuO/ZnO/Al_2O_3 Untuk Reaksi Hidrogenasi CO_2 Menjadi Metanol. *JURNAL TEKNOLOGI*, 15(4): 419-425.

Yadav, R.S., P. Mishra, dan A. C. Pandey. 2008. Growth mechanisme and optical property of ZnO nanoparticles synthesized by sonochemical method. *Ultrasonics Sonochemistry*, 15(5): 863-868.

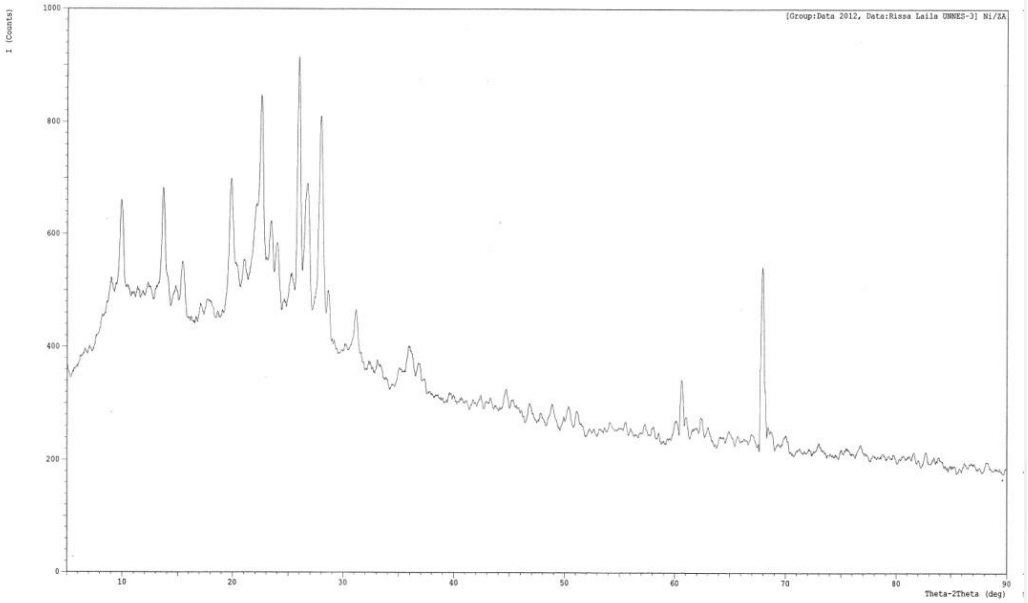
Yao, S., C. Yang., Y. Tan, dan Y. Han. 2008. Deactivation and Regeneration of An Activated Carbon-Supported Nickel Catalyst for Methanol Carbonylation in The Vapor Phase. *Catalysis Communications*: 2107-2115.

UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG
PERPUSTAKAAN
UNNES

Lampiran 1. Hasil Penelitian Pendahuluan

a. Hasil XRD Ni/Zeolit Alam

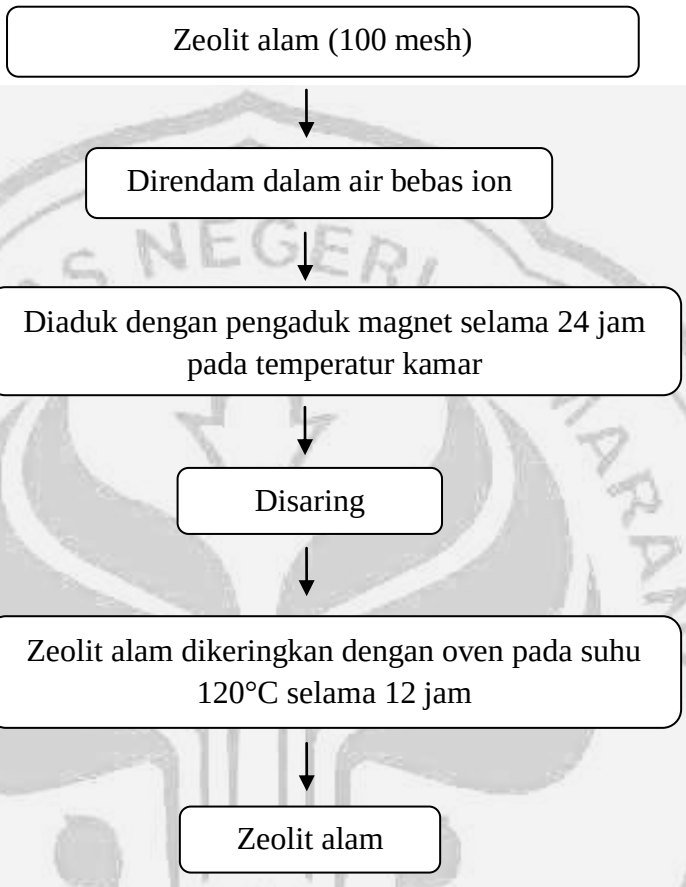
Sample Name : Ni/ZA Comment : Ni/ZA
Date & Time : 01-01-02 05:19:48
Condition
X-ray Tube : Cu(1.54060 A) Voltage : 40.0 kV Current : 30.0 mA
Scan Range : 5.0000 <-> 90.0000 deg Step Size : 0.0200 deg
Count Time : 0.24 sec Slit DS : 1.00 deg SS : 1.00 deg RS : 0.30 mm



PERPUSTAKAAN
UNNES

Lampiran 2. Diagram Alir Prosedur Penelitian

A. Perlakuan awal zeolit alam



PERPUSTAKAAN UNNES

B. Aktivasi zeolit dengan perlakuan HF, HCl dan NH_4Cl

500 gram sampel zeolit alam

↓

Direndam dalam HF 1% selama 30 menit kemudian dicuci dengan aquabides

↓

Disaring, kemudian endapan dikeringkan dalam oven pada suhu 120^0C selama 24 jam

↓

Sampel kering kemudian direndam dalam HCl 6N selama 30 menit 50^0C diaduk dengan pengaduk magnet

↓

Disaring dan dicuci berulang kali dengan aquabides sampai tidak ada endapan Cl^- (dapat dideteksi oleh larutan $AgNO_3$)

↓

Disaring, kemudian endapan dikeringkan dalam oven pada suhu 120^0C selama 3 jam

↓

Sampel direndam kembali dalam NH_4Cl 1N pada temperatur 90ºC selama 3 jam per hari, selama 7 hari sambil diaduk

↓

Zeolit alam dicuci, disaring, dan dikeringkan dalam oven pada suhu 120ºC selama 12 jam kemudian dihaluskan dengan ukuran lolos pengayak 100 mesh

↓

Zeolit alam aktif (sampel ZA)

UNIVERSITAS ... PERPUSTAKAAN

C. Preparasi sampel katalis Ni/Zeolit Alam Aktif dengan metode Sonokimia

Timbang sebanyak 40 g zeolit alam aktif

↓

Sebanyak 7,9226 gram $Ni(NO_3)_3.6H_2O$ dilarutkan dalam aquabides sebanyak 30 mL

↓

Zeolit alam aktif direndam pada larutan garam Nikel

↓

Disonikasi selama 1 jam dengan frekuensi 40KHz

↓

Pelarut kemudian diuapkan dalam oven pada temperatur 120ºC selama 12 jam

↓

Ni/ZA

D. Kalsinasi, Oksidasi dan Reduksi

Sampel Ni/ZA dikalsinasi dengan cara mengaliri gas Nitrogen (10 mL/menit) selama 5 jam dengan suhu 500^0 C dalam reaktor

↓

Lalu dioksidasi dengan cara mengaliri gas Oksigen (10 mL/menit) selama 2 jam dengan suhu 400^0 C

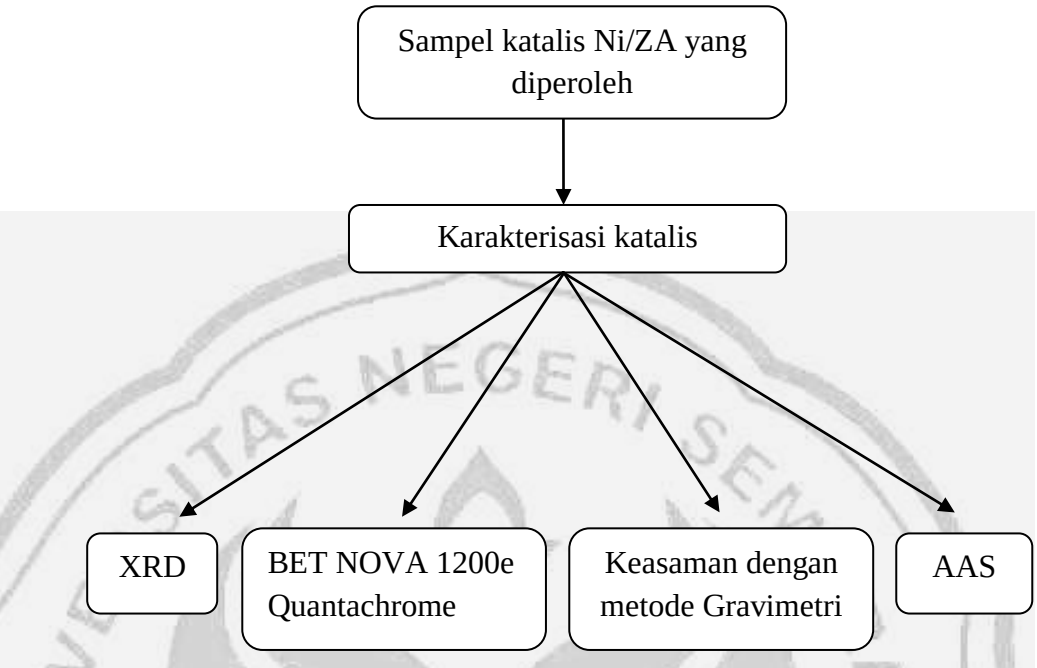
↓

Lalu direduksi dengan cara mengaliri gas Hidrogen (10 mL/menit) selama 2 jam dengan suhu 400^0 C

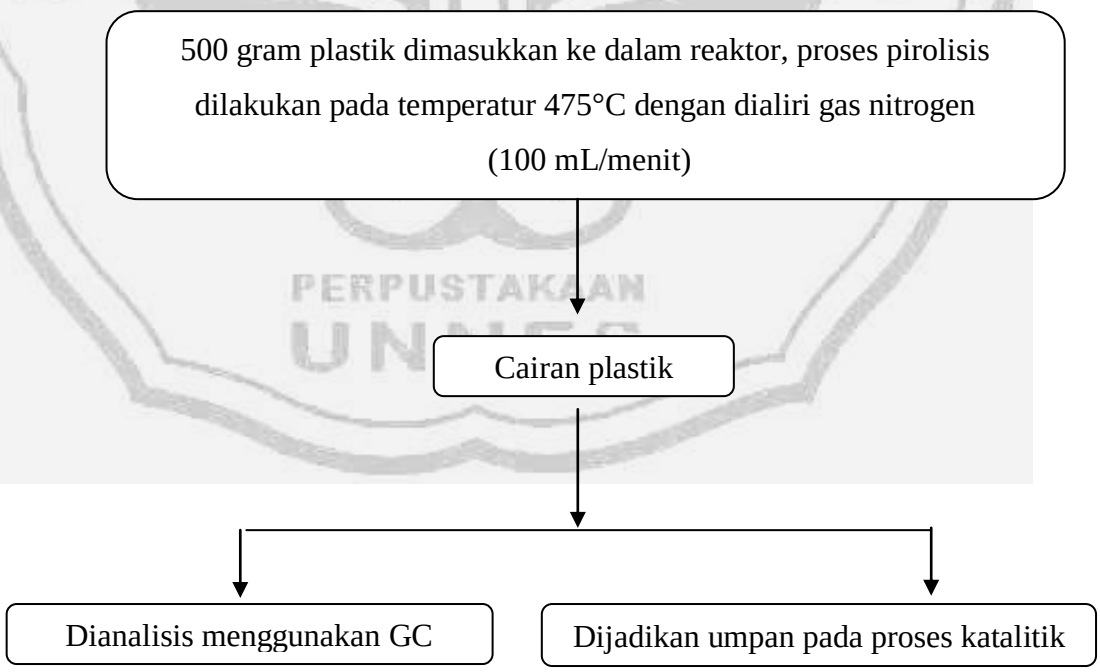
↓

Katalis Ni/ZA

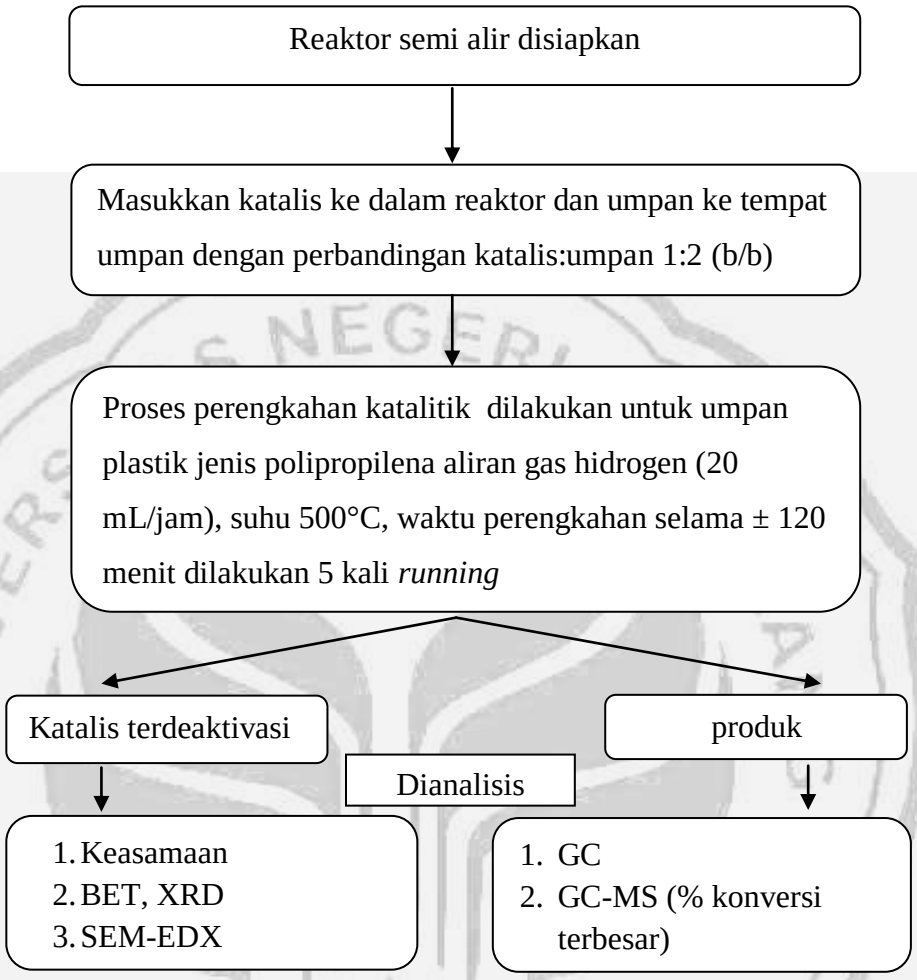
E. Karakterisasi katalis



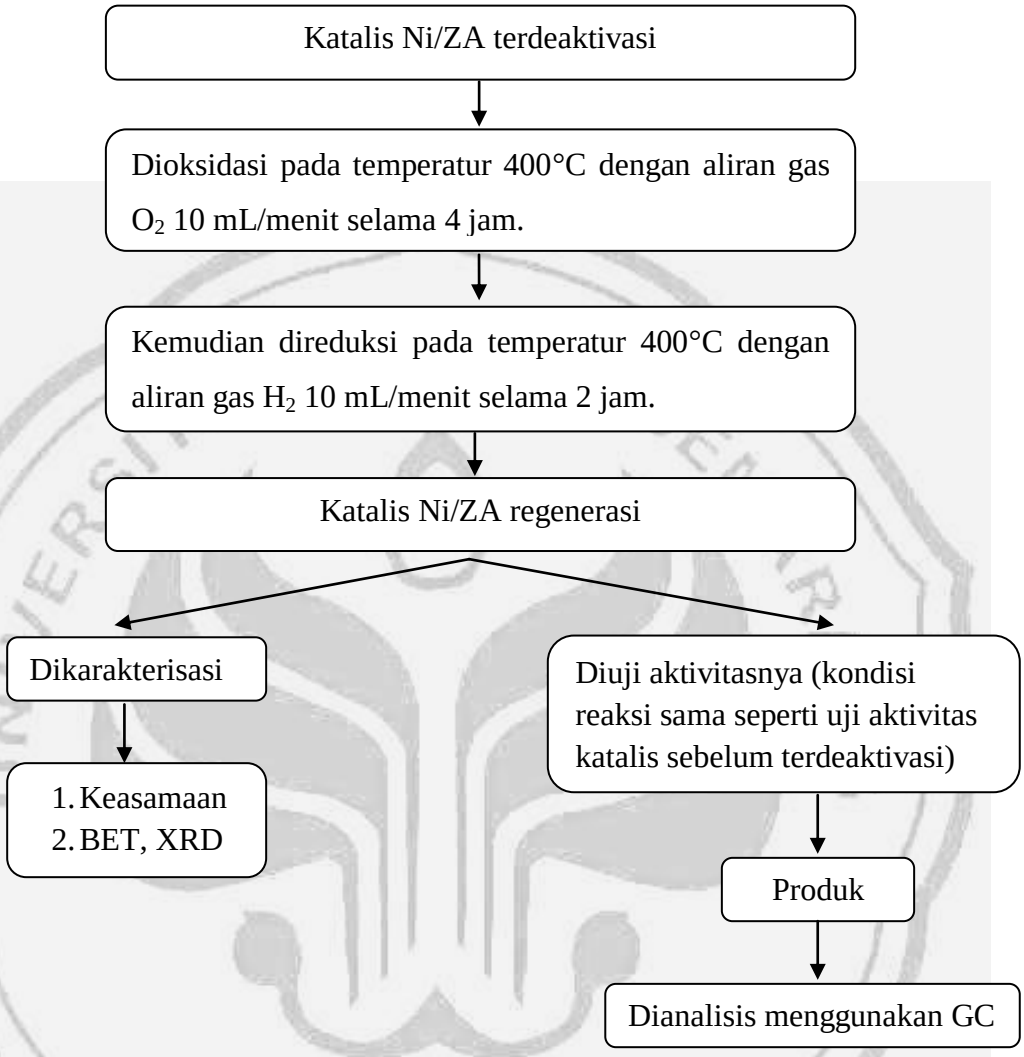
F. Pirolisis sampah plastik jenis polipropilene



G. Proses uji aktivitas katalis Ni/ZA pada perengkahan katalitik plastik



H. Regenerasi Katalis Ni/ZA



PERPUSTAKAAN UNNES

Lampiran 3. Perhitungan-Perhitungan

A. Perhitungan pembuatan larutan HF 1%

HF 50%

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

$50 \times V_1 = 1 \times 1000$

$V_1 = 20$

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

B. Perhitungan pembuatan larutan HCl 6N

$M = \frac{\rho .10.\%}{Mr\ HCl}$

$M = \frac{1{,}19\ .\ 10\ .\ 37}{36{,}5}$

$M = 12{,}06$

$M_1 \times V_1 = M_2 \times V_2$

$12{,}06 \times V_1 = 6 \times 250$

$V_1 = 124{,}3$ mL

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_4Cl 1N

N = M . val

1 = M . 1

M = 1

$M = \frac{gram}{Mr} \frac{1000}{V\ pelarut}$

$1 = \frac{gram}{53{,}5} \frac{1000}{1000}$

gram = 53,5 gr

Ditimbang sebanyak 53,5 gram padatan NH_4Cl, kemudian dilarutankan dalam aquadest sebanyak 1000 mL pada labu ukur.

D. Perhitungan pembuatan larutan standar Nikel pada uji AAS

- 100 ppm

ppm Ni = $\frac{Ar\ Ni}{Mr\ Ni(NO3)2.6H2O}$. m gram

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

m gram = 493,22

gram = 0, 493 gr

Timbang garam $Ni(NO_3)_2.6H_2O$ sebanyak 0, 493 gr lalu dilarutkan kedalam 1000 mL aquades pada labu ukur hingga tanda batas.

- 20 ppm

M_1 x V_1 = M_2 x V_2

100 x V_1 = 20 x 50

V_1 = 10 mL

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

- 10 ppm

M_1 x V_1 = M_2 x V_2

20 x V_1 = 10 x 10

V_1 = 5 mL

Larutan standar Nikel 20 ppm diambil sebanyak 5 mL kemudian diencerkan menggunakan aquades dalam labu ukur 10 mL sampai tanda batas.

- 8 ppm

M_1 x V_1 = M_2 x V_2

20 x V_1 = 8 x 10

V_1 = 4 mL

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

- 6 ppm

$M_1 \times V_1 = M_2 \times V_2$

$20 \times V_1 = 6 \times 10$

$V_1 = 3$ mL

Larutan standar Nikel 20 ppm diambil sebanyak 3 mL kemudian diencerkan menggunakan aquades dalam labu ukur 10 mL sampai tanda batas.

- 4 ppm

$M_1 \times V_1 = M_2 \times V_2$

$20 \times V_1 = 4 \times 10$

$V_1 = 2$ mL

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

- 2 ppm

$M_1 \times V_1 = M_2 \times V_2$

$20 \times V_1 = 2 \times 10$

$V_1 = 1$ mL

Larutan standar Nikel 20 ppm diambil sebanyak 1 mL kemudian diencerkan menggunakan aquades dalam labu ukur 10 mL sampai tanda batas.

UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG
PERPUSTAKAAN
UNNES

E. Perhitungan persentase keberhasilan dalam pengembanan

y = 0,029x - 0

R^2 = 0,998

Absorbansi Ni 4%/ZA = 0,108

0,108 = 0,029x - 0

x = 3,724 ppm pengenceran 200x

3,724 x 200 = 744,8 ppm

$\frac{744,8}{1000}$ x 50 = 37,24 m gram

0,03724 x 40 = 1,489 gram

persentase pengembanan

$\frac{1,489}{1,6}$ x 100% = 93,06%

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

Ni 4%

ZA = 40 gram

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

Ni = $\frac{160}{100}$

Ni = 1,6 gram

Ni = $\frac{Ar\ Ni}{Mr\ Ni(NO3)2.6H2O}$. m garam

m garam = Ni . $\frac{Mr\ Ni(NO3)2.6H2O}{Ar\ Ni}$

m garam = 1,6. $\frac{290,71}{58,71}$

m garam = 7,9226 gram

Timbang garam Nikel nitrat heksahidrat sebanyak 7,9226 gram kemudian dilarutkan dalam 30 mL aquadest.

G. Perhitungan persen fraksi dan persen kondensat

- Umpan

$$persen\ fraksi = \frac{39324{,}3126876}{87466{,}295}\ x\ 100\%$$

= 44,95939%

- *Running* 1

$$persen\ fraksi = \frac{109683{,}9726}{125649{,}572}\ x\ 100\%$$

= 87,29354%

$$persen\ kondensat = \frac{3}{20}\ x\ 100\%$$

= 15%

- *Running* 2

$$persen\ fraksi = \frac{87248{,}96977}{90772.166}\ x\ 100\%$$

= 96,11861%

$$persen\ kondensat = \frac{1}{20}\ x\ 100\%$$

= 5%

- *Running* 3

$$persen\ fraksi = \frac{77378{,}23022}{96771{,}585}\ x\ 100\%$$

= 80,00926%

$$persen\ kondensat = \frac{5}{20}\ x\ 100\%$$

= 25%

- *Running* 4

$$persen\ fraksi = \frac{50210{,}67243}{71186{,}74}\ x\ 100\%$$

= 70,53374%

$$persen\ kondensat = \frac{1}{20}\ x\ 100\%$$

= 5%

UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG
PERPUSTAKAAN UNNES

- *Running* 5

$$persen\ fraksi = \frac{67497{,}31801}{102987{,}983}\ x\ 100\%$$

= 65,53904%

$$persen\ kondensat = \frac{3}{20}\ x\ 100\%$$

= 15%

- *Running* Regenerasi

$$persen\ fraksi = \frac{49382{,}15179}{87466{,}295}\ x\ 100\%$$

= 70,43841%

$$persen\ kondensat = \frac{5}{20}\ x\ 100\%$$

= 25%

UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG
PERPUSTAKAAN
UNNES

Lampiran 4. Data dan Perhitungan Keasaman Katalis dengan Basa Amonia

No	Sampel	Berat Krus Kosong (W_0)	Berat Krus + sampel (W_1)	Berat Krus + sampel + NH_3 (W_2)	Keasaman NH3 (mmol/gram)
1.	ZA	19,6713	19,9656	19,9740	1,676
2.	H-ZA	19,6044	19,9053	19,9150	1,893
3.	Ni/ZA	21,5265	21,8191	21,8295	2.087
4.	Ni/ZA ter	20,7249	21,0251	21,0346	1,858
5.	Ni/ZA reg	21,8459	22,1470	22,1602	2,574

A. Keasaman ZA

Berat krus porselin kosong setelah dipanaskan = 19,6713 gram

Berat krus porselin berisi sampel setelah dipanaskan = 19,9656 gram

Berat krus porselen setelah adsorpsi = 19,9740 gram

$$\text{Keasaman ZA} = \frac{(19{,}9740-19{,}9656)\text{gram}}{(19{,}9656-19{,}6713)\text{ gram x } 17{,}0304} x\ 1000 \frac{mmol}{gram}$$

= 1,676 mmol/gram

B. Keasaman H-ZA

Berat krus porselin kosong setelah dipanaskan = 19,6044 gram

Berat krus porselin berisi sampel setelah dipanaskan = 19,9053 gram

Berat krus porselen setelah adsorpsi = 19,9150 gram

$$\text{Keasaman H-ZA} = \frac{(19{,}9150-19{,}9053)\text{ gram}}{(19{,}9053-19{,}6044)\text{ gram x } 17{,}0304} x\ 1000 \frac{mmol}{gram}$$

= 1,893 mmol/gram

C. Keasaman Ni/ZA

Berat krus porselin kosong setelah dipanaskan = 20,7249 gram

Berat krus porselin berisi sampel setelah dipanaskan = 21,8191 gram

Berat krus porselen setelah adsorpsi = 21,8295 gram

$$\text{Keasaman Ni/ZA} = \frac{(21{,}8295-21{,}8191)\text{ gram}}{(21{,}8191-21{,}5265)\text{ gram x } 17{,}0304} x\ 1000 \frac{mmol}{gram}$$

= 2.087 mmol/gram

D. Keasaman Ni/ZA Terdeaktivasi

Berat krus porselin kosong setelah dipanaskan = 21,5265 gram

Berat krus porselin berisi sampel setelah dipanaskan = 21,0346 gram

Berat krus porselen setelah adsorpsi = 21,0346 gram

$$\text{Keasaman Ni/ZA} = \frac{(21{,}0346 - 21{,}0346)\ \text{gram}}{(21{,}0346 - 21{,}5265)\ \text{gram x } 17{,}0304} x\ 1000 \frac{mmol}{gram}$$

= 1,858 mmol/gram

E. Keasaman Ni/ZA Regenerasi

Berat krus porselin kosong setelah dipanaskan = 21,8459 gram

Berat krus porselin berisi sampel setelah dipanaskan = 22,1470 gram

Berat krus porselen setelah adsorpsi = 22,1602 gram

$$\text{Keasaman Ni/ZA} = \frac{(22{,}1602 - 22{,}1470)\ \text{gram}}{(22{,}1470 - 21{,}8459)\ \text{gram x } 17{,}0304} x\ 1000 \frac{mmol}{gram}$$

= 2,574 mmol/gram

UNIVERSITAS NEGERI SEMARANG
PERPUSTAKAAN
UNNES

Lampiran 5. Data dan Perhitungan Keasaman Katalis dengan Basa Piridin

No	Sampel	Berat Krus Kosong (W_0)	Berat Krus + sampel (W_1)	Berat Krus + sampel + Piridin (W_2)	Keasaman Piridin (mmol/gram)
1.	ZA	20,5271	20,8275	20,8353	0,309112
2.	H-ZA	19,6718	19,9723	19,9866	0,566516
3.	Ni/ZA	21,7325	22,0321	22,0505	0,731134
4.	Ni/ZA ter	21,5421	21,8427	21,8544	0,463359
5.	Ni/ZA reg	20,4311	20,731	20,7461	0,599406

A. Keasaman ZA

Berat krus porselin kosong setelah dipanaskan = 20,5271 gram

Berat krus porselin berisi sampel setelah dipanaskan = 20,8275 gram

Berat krus porselen setelah adsorpsi = 20,8353 gram

$$\text{Keasaman ZA} = \frac{(20{,}8353 - 20{,}8275)\text{gram}}{(20{,}8275 - 20{,}5271)\text{ gram x } 84} x\ 1000 \frac{mmol}{gram}$$

= 0,309112 mmol/gram

B. Keasaman H-ZA

Berat krus porselin kosong setelah dipanaskan = 19,6718 gram

Berat krus porselin berisi sampel setelah dipanaskan = 19,9723 gram

Berat krus porselen setelah adsorpsi = 19,9866 gram

$$\text{Keasaman H-ZA} = \frac{(19{,}9866 - 19{,}9723)\text{ gram}}{(19{,}9723 - 19{,}6718)\text{ gram x } 84} x\ 1000 \frac{mmol}{gram}$$

= 0,566516 mmol/gram

C. Keasaman Ni/ZA

Berat krus porselin kosong setelah dipanaskan = 21,7325 gram

Berat krus porselin berisi sampel setelah dipanaskan = 22,0321 gram

Berat krus porselen setelah adsorpsi = 22,0505 gram

$$\text{Keasaman Ni/ZA} = \frac{(22{,}0505 - 22{,}0321)\text{ gram}}{(22{,}0321 - 21{,}7325)\text{ gram x } 84} x\ 1000 \frac{mmol}{gram}$$

= 0,731134 mmol/gram

D. Keasaman Ni/ZA Terdeaktivasi

Berat krus porselin kosong setelah dipanaskan = 21,5421 gram

Berat krus porselin berisi sampel setelah dipanaskan = 21,8427 gram

Berat krus porselen setelah adsorpsi = 21,8544 gram

$$\text{Keasaman Ni/ZA} = \frac{(21{,}8544 - 21{,}8427)\ \text{gram}}{(21{,}8427 - 21{,}5421\ )\ \text{gram x } 84}\ x\ 1000\ \frac{mmol}{gram}$$

= 0,463359 mmol/gram

E. Keasaman Ni/ZA Regenerasi

Berat krus porselin kosong setelah dipanaskan = 20,4311 gram

Berat krus porselin berisi sampel setelah dipanaskan = 20,731 gram

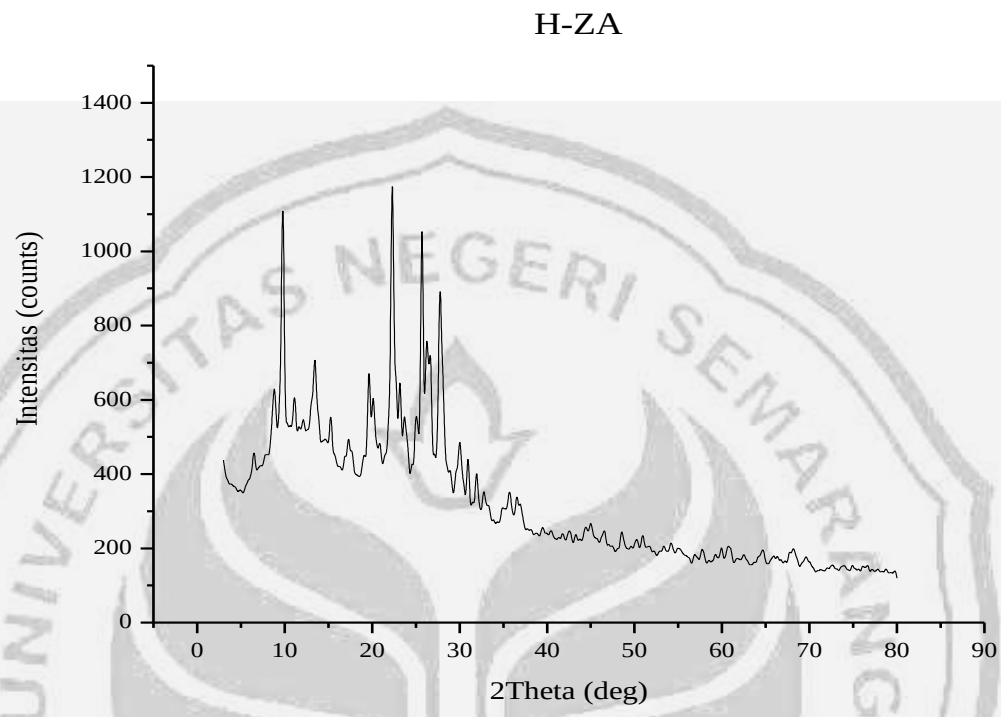
Berat krus porselen setelah adsorpsi = 20,7461 gram

$$\text{Keasaman Ni/ZA} = \frac{(20{,}7461 - 20{,}731\ )\ \text{gram}}{(20{,}731 - 20{,}4311\ )\ \text{gram x } 84}\ x\ 1000\ \frac{mmol}{gram}$$

= 0,599406 mmol/gram

PERPUSTAKAAN UNNES

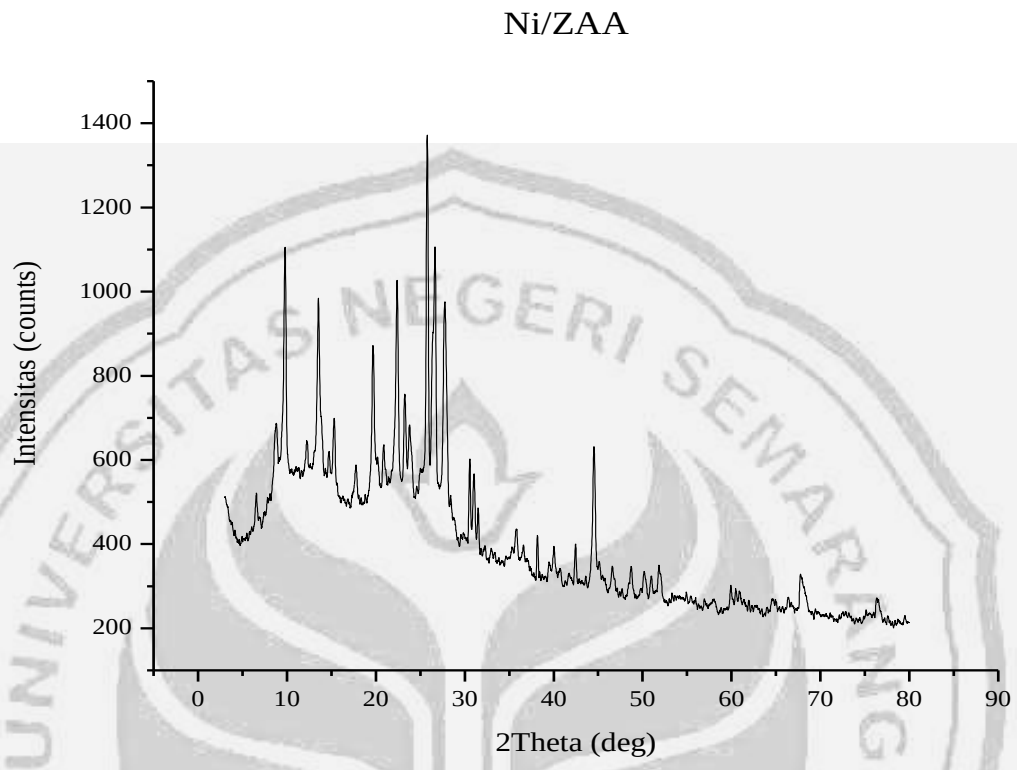
Lampiran 6. Hasil Analisis XRD H-ZA



Data 2 Theta dan Intensitas Tiga Puncak Tertinggi dalam H-ZA

Katalis	2 Theta	Intensitas
H-ZA	22,2885	559
	25,6798	507
	9,7753	490

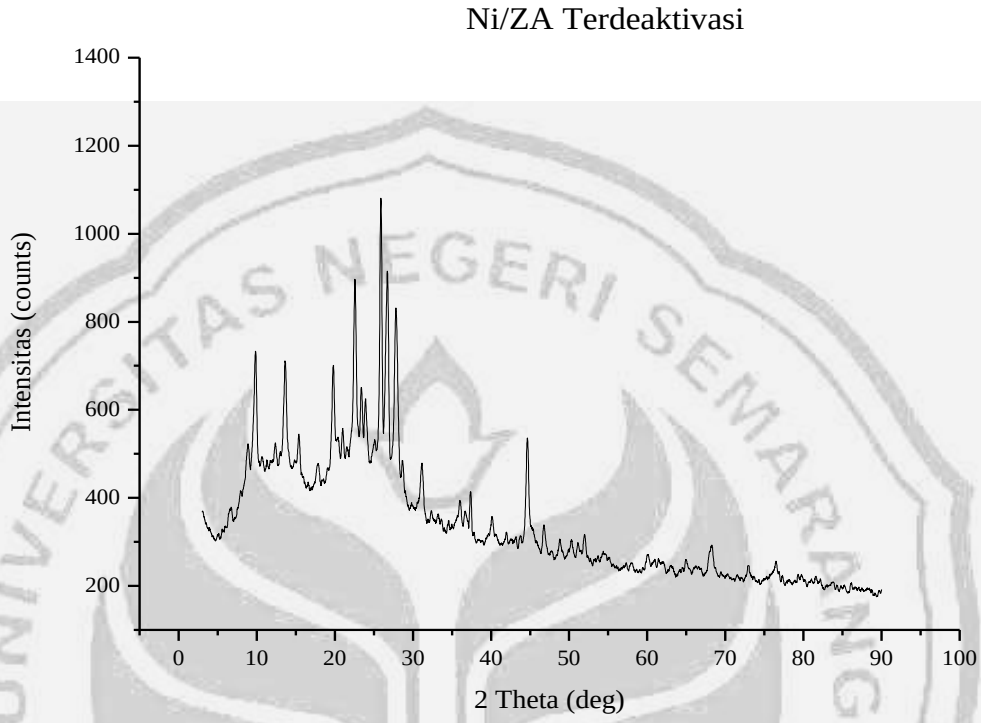
Lampiran 7. Hasil Analisis XRD Ni-ZA



Data 2 Theta dan Intensitas Tiga Puncak Tertinggi dalam Ni-ZA

Katalis	2 Theta	Intensitas
Ni-ZA	25,7575	604
	26,6400	423
	9,7608	391

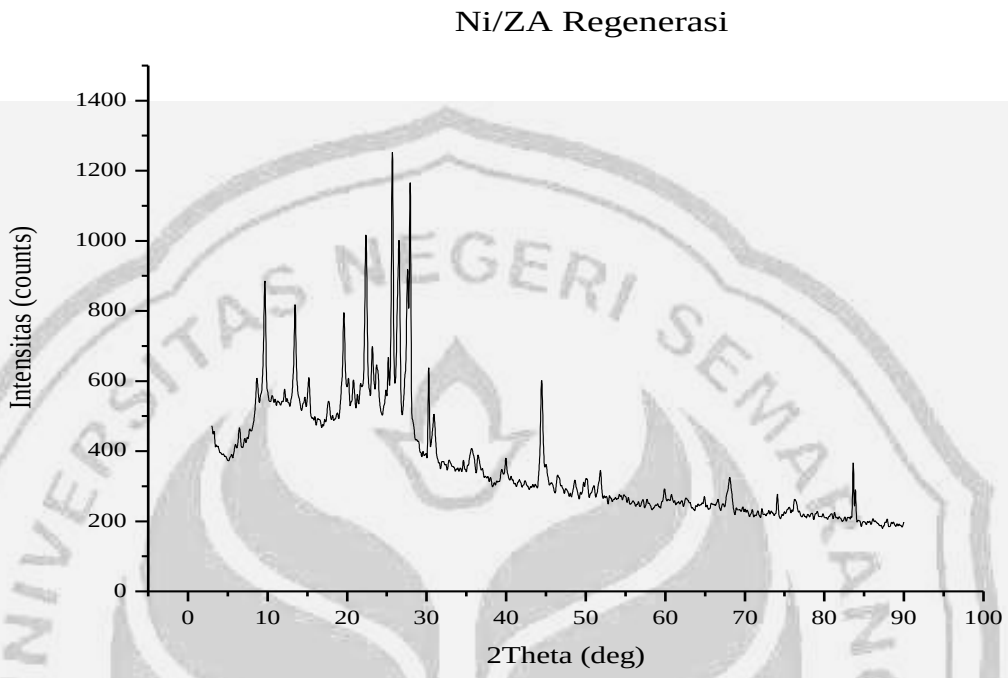
Lampiran 8. Hasil Analisis XRD Ni-ZA Terdeaktivasi



Data 2 Theta dan Intensitas Tiga Puncak Tertinggi dalam Ni-ZA Terdeaktivasi

Katalis	2 Theta	Intensitas
Ni-ZA Terdeaktivasi	25,8745	432
	26,6562	327
	22,5545	293

Lampiran 9. Hasil Analisis XRD Ni-ZA Regenerasi



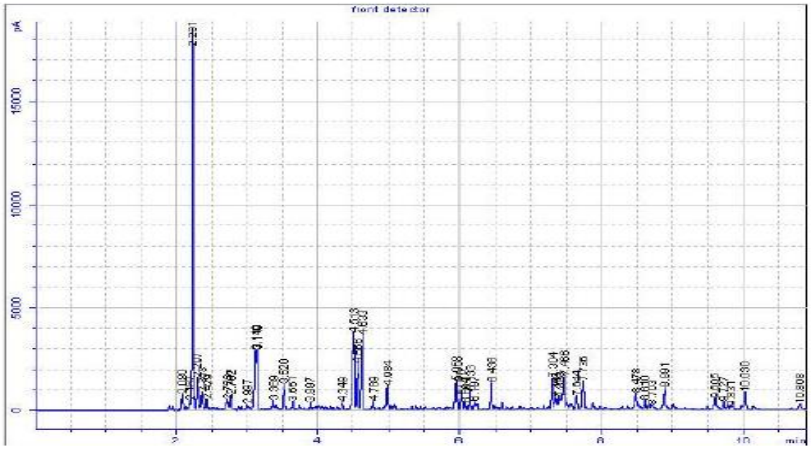
Data 2 Theta dan Intensitas Tiga Puncak Tertinggi dalam Ni/ZA Regenerasi

Katalis	2 Theta	Intensitas
Ni/ZA Regenerasi	27,9107	653
	25,6697	593
	26,5400	400

Lampiran 10. Hasil Analisis GC Umpan

Agilent Cerity QA/QC Report

Sample name:	*Reprocessed: @_imam_7
Sample note:	umpan
Submission time:	Monday, January 21, 2013 1:11:52 PM
Operator:	
Injection date:	Monday, January 21, 2013 1:35:44 PM
GC Description:	GC1 - SN: CN10713006
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Hydrocarbon-2
Method last saved:	Monday, January 21, 2013 1:47:00 PM



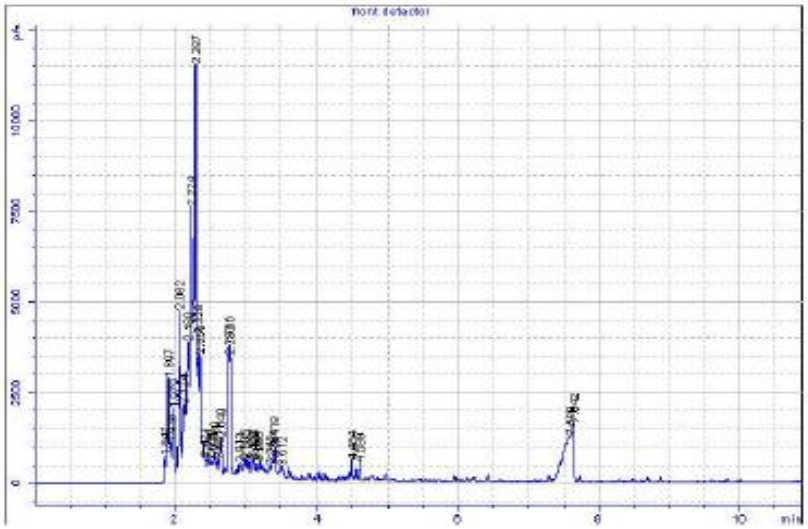
Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA*s]	Area %
1	2.080	BV	0.021	1125.11833	1.28635
1	2.187	VV	0.019	568.56723	0.65004
1	2.231	VB S	0.017	20213.23762	23.10974
1	2.297	BV X	0.016	1517.80081	1.73530
1	2.363	VV X	0.019	1132.42968	1.29470
1	2.429	VB T	0.018	585.13234	0.66898
1	2.723	VV	0.021	697.97411	0.79799
1	2.767	VV	0.017	787.69140	0.90057
1	2.782	VB	0.016	709.75212	0.81146
1	2.997	VV	0.032	621.91049	0.71103
1	3.119	VV	0.023	4468.10371	5.10837
1	3.140	VP	0.016	3016.14087	3.44835
1	3.369	BV	0.022	660.32039	0.75494
1	3.520	VP	0.024	2084.80001	2.38355
1	3.651	BP	0.022	609.98502	0.69739
1	3.897	BV	0.023	525.35017	0.60063
1	4.349	VB	0.026	567.78425	0.64915
1	4.513	BV	0.030	7415.57417	8.47821
1	4.566	VV	0.024	3496.07845	3.99706
1	4.633	VP	0.026	6011.58151	6.87303
1	4.789	PB	0.023	559.81822	0.64004
1	4.984	VV	0.022	1617.01904	1.84873
1	5.958	BV	0.024	2226.35456	2.54539
1	6.016	VV	0.023	1033.57132	1.18168
1	6.064	VV	0.029	560.35663	0.64065
1	6.133	VP	0.023	1425.42580	1.62969
1	6.197	VV	0.022	582.00622	0.66541
1	6.436	BV	0.024	2059.43022	2.35454
1	7.304	VV	0.024	2412.86422	2.75862
1	7.349	VV	0.025	897.19793	1.02576
1	7.393	VV	0.031	1249.02817	1.42801
1	7.466	VV	0.036	3892.02247	4.44974
1	7.644	VV	0.024	1032.74876	1.18074
1	7.736	VV	0.024	2040.82368	2.33327
1	8.478	BV	0.025	1220.10173	1.39494
1	8.610	VV	0.024	645.92355	0.73848
1	8.703	VB	0.038	540.50222	0.61795
1	8.891	BB	0.031	2274.08771	2.59996
1	9.605	BB	0.031	1009.52170	1.15418
1	9.727	PV	0.025	613.55853	0.70148
1	9.831	VB	0.042	525.66224	0.60099
1	10.030	VP	0.030	1640.59946	1.87569
1	10.808	PB	0.035	592.33770	0.67722

Total Area = 87466.295

Lampiran 11. Hasil Analisis GC *Running* 1

Agilent Cerity QA/QC Report

Sample name:	*Reprocessed: @_imam_2
Sample note:	running 1
Submission time:	Monday, January 21, 2013 12:13:22 PM
Operator:	
Injection date:	Monday, January 21, 2013 12:22:39 PM
GC Description:	GC1 - SN: CN10713006
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Hydrocarbon-2
Method last saved:	Monday, January 21, 2013 12:35:11 PM



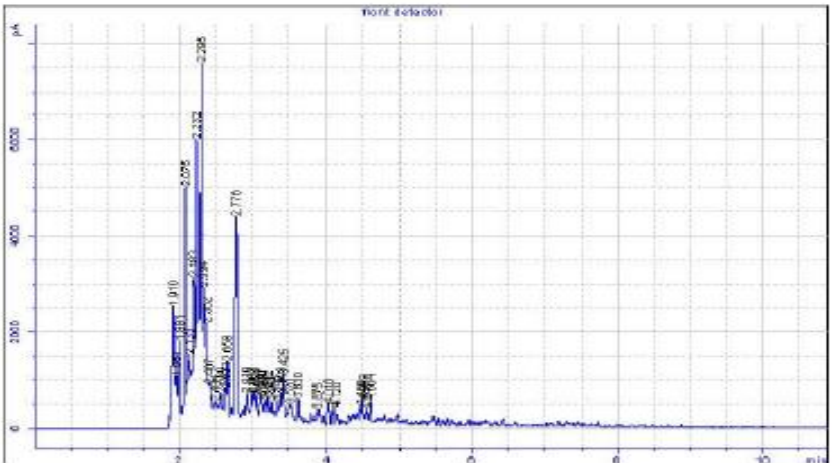
Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA*s]	Area %
1	1.847	BV	0.018	843.69700	0.67147
1	1.897	VV	0.029	5824.32750	4.63537
1	1.938	VV	0.022	1766.50376	1.40590
1	1.979	VV	0.031	4097.24930	3.26085
1	2.062	VV S	0.022	7379.09900	5.87276
1	2.124	VV S	0.036	4548.19246	3.61974
1	2.189	VV S	0.051	11631.70674	9.25726
1	2.224	VV S	0.039	17769.85659	14.14239
1	2.287	VV S	0.030	20487.94021	16.30562
1	2.328	VV S	0.023	5532.16834	4.40285
1	2.355	VV S	0.037	7629.06803	6.07170
1	2.421	VV S	0.024	818.55004	0.65145
1	2.486	VV S	0.051	1604.52902	1.27699
1	2.521	VV S	0.025	633.33099	0.50405
1	2.560	VV S	0.033	1424.86918	1.13400
1	2.621	VV S	0.020	544.99507	0.43374
1	2.649	VV S	0.023	1419.30037	1.12957
1	2.766	VV S	0.021	4513.66730	3.59227
1	2.780	VB S	0.016	3066.58846	2.44059
1	2.912	VV	0.029	646.40081	0.51445
1	2.985	VV	0.025	744.96186	0.59289
1	3.014	VV	0.022	604.42351	0.48104
1	3.103	VV	0.023	643.89568	0.51245
1	3.123	VV	0.018	547.75249	0.43594
1	3.157	VV	0.029	596.32978	0.47460
1	3.205	VV	0.028	718.72850	0.57201
1	3.343	VV	0.033	769.10312	0.61210
1	3.391	VV	0.020	660.78175	0.52589
1	3.418	VB	0.023	1295.54426	1.03108
1	3.512	BB	0.040	920.41163	0.73252
1	4.484	VV	0.021	754.57690	0.60054
1	4.599	VP	0.020	579.50439	0.46121
1	7.589	VV	0.090	9590.23641	7.63253
1	7.642	VV	0.041	5041.28175	4.01218

Total Area = 125649.572

Lampiran 12. Hasil Analisis GC *Running* 2

Agilent Cerity QA/QC Report

Sample name:	*Reprocessed: @_imam_1
Sample note:	running 2
Submission time:	Monday, January 21, 2013 11:49:09 AM
Operator:	
Injection date:	Monday, January 21, 2013 12:06:55 PM
GC Description:	GC1 - SN: CN10713006
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Hydrocarbon-2
Method last saved:	Monday, January 21, 2013 12:33:06 PM



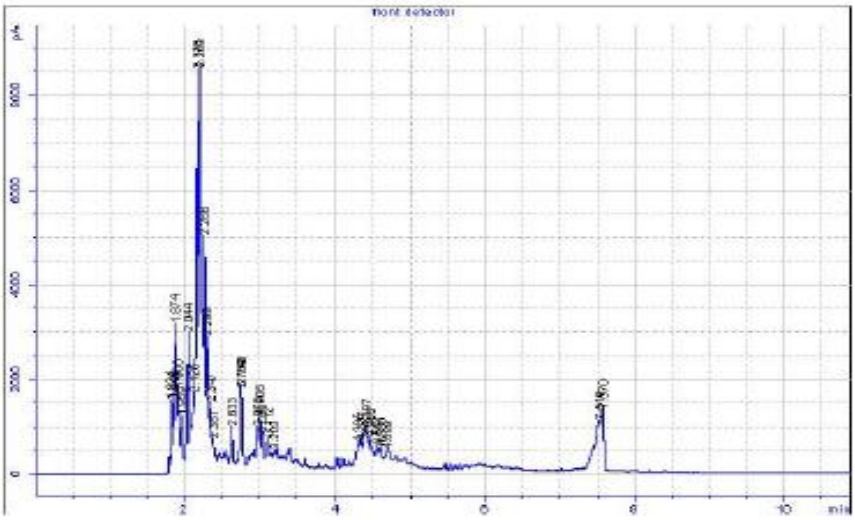
Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA*s]	Area %
1	1.910	VV	0.028	4898.88745	5.39690
1	1.951	VV	0.024	1900.44985	2.09365
1	1.991	VV	0.031	3612.92963	3.98022
1	2.075	VV S	0.021	7174.81125	7.90420
1	2.133	VV S	0.046	3980.32850	4.38497
1	2.183	VV S	0.034	7441.00964	8.19746
1	2.232	VV S	0.032	11446.44956	12.61009
1	2.295	VV S	0.026	11643.44273	12.82711
1	2.334	VV S	0.027	4538.83554	5.00025
1	2.362	VV S	0.033	4095.96172	4.51235
1	2.407	VV S	0.033	1530.15428	1.68571
1	2.494	VV S	0.050	1153.41071	1.27067
1	2.569	VV S	0.032	1066.26640	1.17466
1	2.631	VV S	0.021	830.75093	0.91520
1	2.658	VV S	0.028	1975.88790	2.17676
1	2.776	VB S	0.028	8224.57968	9.06068
1	2.919	VB	0.027	946.13216	1.04232
1	2.993	BV	0.023	754.77429	0.83150
1	3.021	VV	0.021	727.29748	0.80123
1	3.054	VV	0.020	640.96692	0.70613
1	3.110	VV	0.022	562.68677	0.61989
1	3.130	VV	0.019	586.45756	0.64608
1	3.165	VV	0.027	709.01463	0.78109
1	3.212	VV	0.024	768.94016	0.84711
1	3.258	VV	0.023	548.24579	0.60398
1	3.349	VV	0.030	822.95129	0.90661
1	3.398	VV	0.020	743.98624	0.81962
1	3.425	VB	0.022	1421.19484	1.56567
1	3.520	BP	0.044	1075.61780	1.18496
1	3.630	BB	0.021	637.58233	0.70240
1	3.875	VV	0.037	788.93574	0.86914
1	4.016	VV	0.021	556.96399	0.61358
1	4.120	VP	0.024	504.14754	0.55540
1	4.456	VV	0.022	505.22921	0.55659
1	4.489	VV	0.022	683.10884	0.75255
1	4.545	VV	0.028	526.49728	0.58002
1	4.604	VB	0.024	747.27930	0.82325

Total Area = 90772.166

Lampiran 13. Hasil Analisis GC *Running* 3

Agilent Cerity QA/QC Report

Sample name:	*Reprocessed: @_imam_3
Sample note:	runing 3
Submission time:	Monday, January 21, 2013 12:13:23 PM
Operator:	
Injection date:	Monday, January 21, 2013 12:38:00 PM
GC Description:	GC1 - SN: CN10713006
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Hydrocarbon-2
Method last saved:	Monday, January 21, 2013 12:49:29 PM



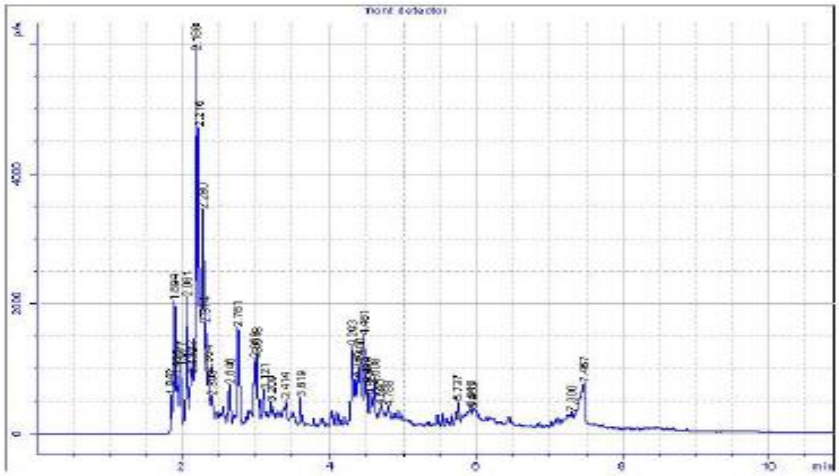
Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA*s]	Area %
1	1.824	VV	0.018	1809.84582	1.87138
1	1.852	VV	0.013	1293.01201	1.33698
1	1.874	VV S	0.023	4903.29543	5.07002
1	1.906	VV S	0.025	2567.45234	2.65475
1	1.959	VV S	0.035	2383.78805	2.46484
1	2.044	VV S	0.024	4164.08113	4.30567
1	2.125	VV S	0.048	4498.86777	4.65184
1	2.170	VV S	0.027	13718.87539	14.18535
1	2.203	VV S	0.035	17534.89401	18.13112
1	2.266	VV S	0.021	6176.58611	6.38660
1	2.299	VV S	0.030	4739.61607	4.90077
1	2.347	VV S	0.029	2244.87901	2.32121
1	2.381	VP S	0.031	876.70927	0.90652
1	2.633	VB	0.020	987.14646	1.02071
1	2.748	VV	0.018	1990.92105	2.05862
1	2.760	VB	0.015	1611.98067	1.66679
1	2.972	VV	0.028	1402.38184	1.45007
1	3.006	VV	0.023	1629.16219	1.68456
1	3.038	VB	0.021	926.17934	0.95767
1	3.112	BV	0.029	1180.89081	1.22104
1	3.203	VV	0.040	737.66545	0.76275
1	4.305	VV	0.044	1664.46096	1.72106
1	4.337	VV	0.027	970.80342	1.00381
1	4.397	VV	0.051	3050.41515	3.15414
1	4.455	VV	0.039	1724.61976	1.78326
1	4.547	VV	0.031	817.85341	0.84566
1	4.596	VV	0.037	957.44313	0.99000
1	4.689	VV	0.057	1246.82985	1.28922
1	7.519	BV	0.064	5521.53634	5.70928
1	7.570	VP	0.037	3379.39243	3.49430

Total Area = 96711.585

Lampiran 14. Hasil Analisis GC *Running* 4

Agilent Cerity QA/QC Report

Sample name:	*Reprocessed: @_imam_4
Sample note:	running 4
Submission time:	Monday, January 21, 2013 12:13:24 PM
Operator:	
Injection date:	Monday, January 21, 2013 12:52:26 PM
GC Description:	GC1 - SN: CN10713006
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Hydrocarbon-2
Method last saved:	Monday, January 21, 2013 1:04:51 PM



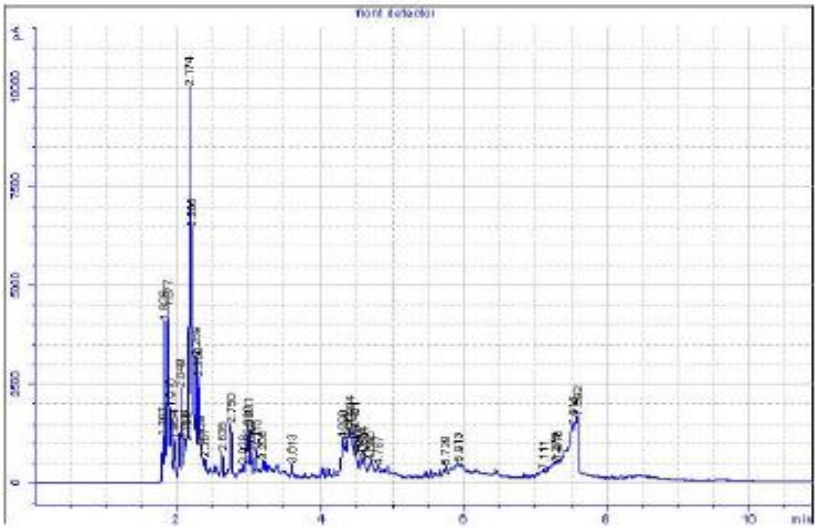
Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA*s]	Area %
1	1.842	BV	0.018	647.38289	0.90941
1	1.894	VV	0.028	3728.02060	5.23696
1	1.925	VV	0.021	1293.84436	1.81754
1	1.977	VV	0.032	1993.61097	2.80054
1	2.061	VV	0.021	2947.78238	4.14091
1	2.122	VV	0.029	1918.23641	2.69465
1	2.139	VV	0.013	708.30483	0.99500
1	2.186	VV S	0.021	8462.29642	11.88746
1	2.216	VV S	0.035	9652.91816	13.55999
1	2.280	VV S	0.022	4271.12501	5.99989
1	2.314	VV S	0.030	2694.61905	3.78528
1	2.354	VV S	0.032	1416.53216	1.98988
1	2.398	VB S	0.033	656.44377	0.92214
1	2.646	VP	0.023	887.13311	1.24621
1	2.761	VP	0.027	2921.19501	4.10357
1	2.989	VV	0.024	1635.76303	2.29785
1	3.018	VV	0.020	1362.18430	1.91354
1	3.121	VV	0.030	1091.20194	1.53287
1	3.209	VV	0.027	553.10462	0.77698
1	3.414	VP	0.030	696.81343	0.97885
1	3.619	PP	0.023	672.15998	0.94422
1	4.293	VV	0.033	2680.72799	3.76577
1	4.345	VV	0.026	1287.37803	1.80845
1	4.400	VV	0.042	2853.57225	4.00857
1	4.461	VV	0.023	2098.04545	2.94724
1	4.494	VV	0.024	1018.23458	1.43037
1	4.551	VV	0.026	765.22061	1.07495
1	4.608	VV	0.033	1419.32134	1.99380
1	4.690	VV	0.054	1064.84363	1.49585
1	4.788	VV	0.043	754.09913	1.05933
1	5.737	VV	0.029	753.52278	1.05852
1	5.913	BV	0.049	902.73354	1.26812
1	5.953	VB	0.060	967.73832	1.35944
1	7.300	BV	0.060	893.45831	1.25509
1	7.467	VB	0.069	3517.17197	4.94077

Total Area = 71186.740

Lampiran 15. Hasil Analisis GC *Running* 5

Agilent Cerity QA/QC Report

Sample name:	*Reprocessed: @_imam_5
Sample note:	running 5
Submission time:	Monday, January 21, 2013 12:13:25 PM
Operator:	
Injection date:	Monday, January 21, 2013 1:06:50 PM
GC Description:	GC1 - SN: CN10713006
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Hydrocarbon-2
Method last saved:	Monday, January 21, 2013 1:18:47 PM



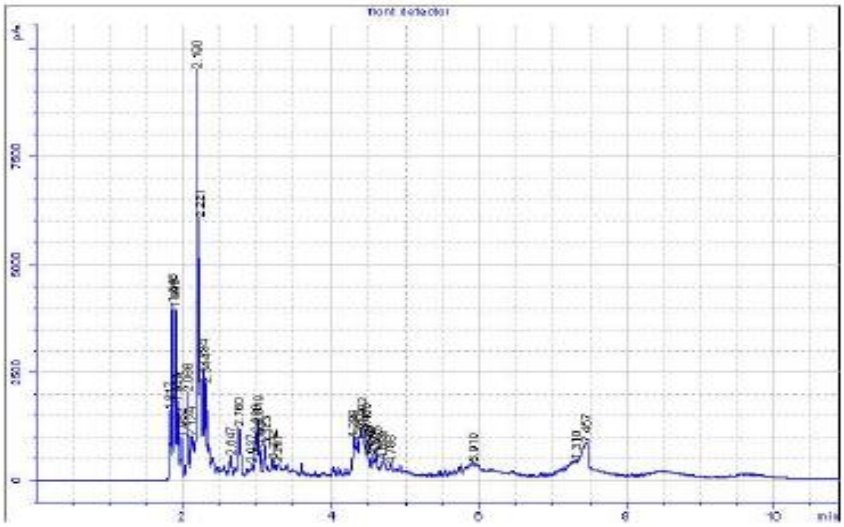
Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA*s]	Area %
1	1.797	BV	0.017	1261.29862	1.22470
1	1.826	VV S	0.017	4429.31438	4.30081
1	1.877	VV S	0.028	7397.08825	7.18248
1	1.910	VV S	0.021	2254.39333	2.18899
1	1.964	VV S	0.030	1859.42447	1.80548
1	2.048	VV S	0.020	3169.49571	3.07754
1	2.108	VV S	0.034	1979.95952	1.92252
1	2.128	VV S	0.018	1002.53253	0.97345
1	2.174	VV S	0.022	12904.98729	12.53058
1	2.206	VV S	0.028	10472.26555	10.16843
1	2.269	VV S	0.021	3764.96851	3.65574
1	2.300	VV S	0.025	3782.20660	3.67247
1	2.339	VV S	0.030	1362.59954	1.32307
1	2.387	VB S	0.039	919.35775	0.89268
1	2.636	VP	0.021	887.76797	0.86201
1	2.750	VB	0.027	2649.84459	2.57296
1	2.928	VV	0.031	656.80919	0.63775
1	2.980	VV	0.028	1855.91098	1.80207
1	3.011	VV	0.021	1687.09372	1.63815
1	3.042	VV	0.018	654.88685	0.63589
1	3.115	VV	0.029	1439.24498	1.39749
1	3.206	VV	0.026	575.73384	0.55903
1	3.613	PP	0.023	530.13384	0.51475
1	4.290	VV	0.043	2874.68485	2.79128
1	4.344	VV	0.028	1638.46961	1.59093
1	4.404	VV	0.047	4570.11644	4.43752
1	4.461	VV	0.024	1797.62435	1.74547
1	4.487	VV	0.026	1071.38114	1.04030
1	4.551	VV	0.029	921.78897	0.89505
1	4.604	VV	0.037	1313.65040	1.27554
1	4.690	VV	0.038	1036.84811	1.00677
1	4.787	VV	0.041	708.81325	0.68825
1	5.738	VP	0.033	564.49355	0.54812
1	5.913	VV	0.074	1265.44147	1.22873
1	7.111	VV	0.048	639.70104	0.62114
1	7.275	VV	0.069	1911.04918	1.85560
1	7.315	VV	0.029	804.19297	0.78086
1	7.515	VV	0.084	8536.19700	8.28854
1	7.592	VB	0.049	5836.21293	5.66689

Total Area = 102987.983

Lampiran 16. Hasil Analisis GC *Running* Regenerasi

Agilent Cerity QA/QC Report

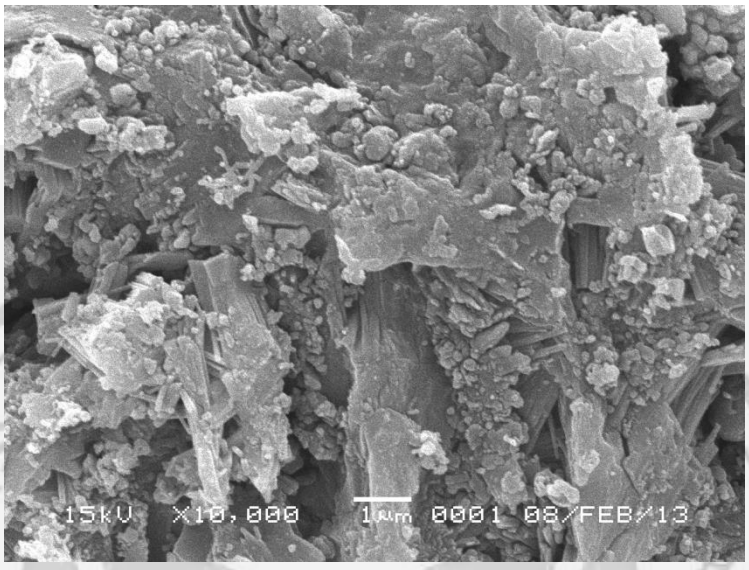
Sample name:	*Reprocessed: @_imam_6
Sample note:	running regenerasi
Submission time:	Monday, January 21, 2013 12:13:25 PM
Operator:	
Injection date:	Monday, January 21, 2013 1:21:21 PM
GC Description:	GC1 - SN: CN10713006
Signal description:	FID1 A, front detector
Method:	Hydrocarbon-2
Method last saved:	Monday, January 21, 2013 1:33:02 PM

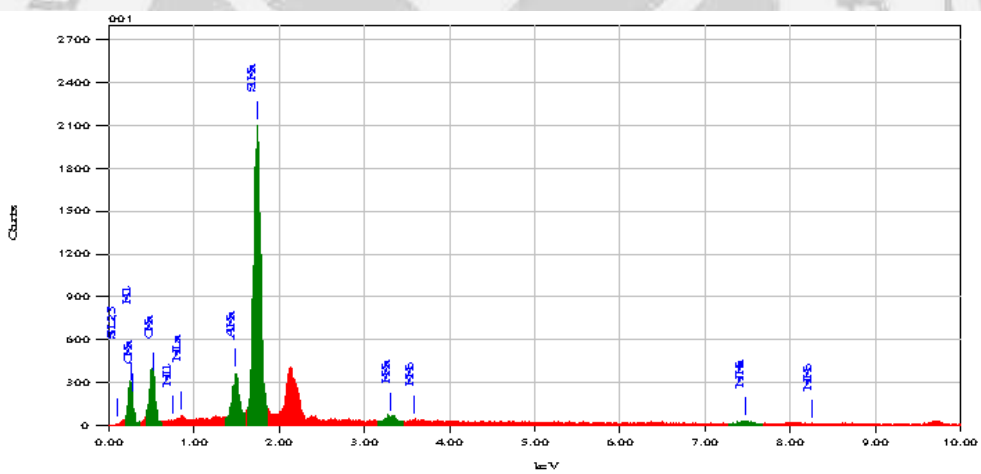


Signal	Retention Time [min]	Type	Width [min]	Area [pA*s]	Area %
1	1.817	BV	0.017	1812.72129	2.58565
1	1.846	VV S	0.017	4441.90039	6.33590
1	1.896	VV S	0.028	6588.32239	9.39754
1	1.929	VV S	0.020	2080.89581	2.96818
1	1.982	VV S	0.044	2376.14681	3.38932
1	2.066	PP T	0.017	2016.13770	2.87581
1	2.124	VV T	0.021	699.14550	0.99726
1	2.190	VV S	0.017	9932.70710	14.16795
1	2.221	VB S	0.020	6281.99825	8.96060
1	2.284	BP S	0.014	1466.70249	2.09210
1	2.314	VB S	0.019	1951.34548	2.78339
1	2.647	VP	0.021	645.83830	0.92122
1	2.760	VB	0.026	2163.36317	3.08581
1	2.937	VV	0.029	547.55559	0.78103
1	2.989	VV	0.029	1696.50966	2.41989
1	3.019	VV	0.020	1511.29264	2.15570
1	3.050	VV	0.018	611.56011	0.87233
1	3.123	VV	0.029	1376.79183	1.96385
1	3.212	VV	0.025	546.91177	0.78011
1	3.287	VB	0.040	634.30551	0.90477
1	4.289	VV	0.040	2463.29209	3.51362
1	4.345	VV	0.028	1399.54080	1.99630
1	4.403	VV	0.047	3933.42652	5.61061
1	4.460	VV	0.023	1512.19902	2.15699
1	4.487	VV	0.026	970.92966	1.38493
1	4.550	VV	0.027	807.89209	1.15237
1	4.605	VV	0.035	1120.48467	1.59825
1	4.688	VV	0.037	872.26721	1.24420
1	4.786	VV	0.040	580.97792	0.82870
1	5.910	VV	0.076	950.03725	1.35513
1	7.310	VV	0.079	1636.46359	2.33424
1	7.457	VB	0.089	4477.21082	6.38627

Total Area = 70106.873

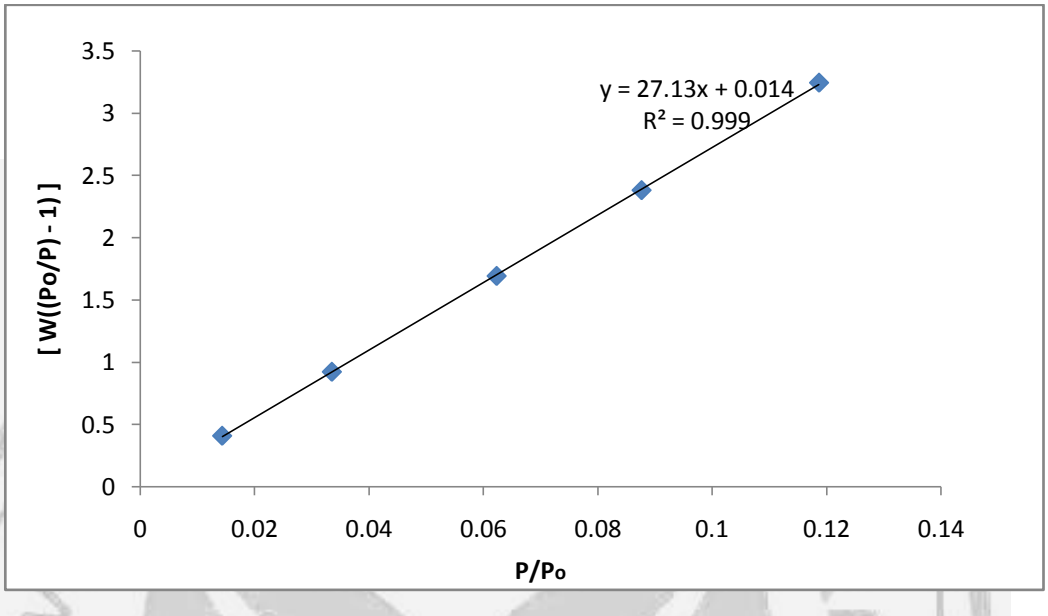
Lampiran 17. Hasil Analisis SEM-EDX





Element	(keV)	mass%	Error%	At%	Compound		mass%	Cation	K
C K	0.277	23.56	0.14	62.21	C	23.56	0.00	10.7077	
O		37.81							
Al K	1.486	4.04	0.23	2.37	Al2O3	7.63	1.52	8.6330	
Si K	1.739	28.70	0.28	32.40	SiO2	61.39	10.38	66.8198	
K K	3.312	1.28	0.29	0.52	K2O	1.55	0.33	3.2989	
Ni K	7.471	4.61	1.83	2.49	NiO	5.87	0.80	10.5405	
Total		100.00		100.00		100.00	13.03		

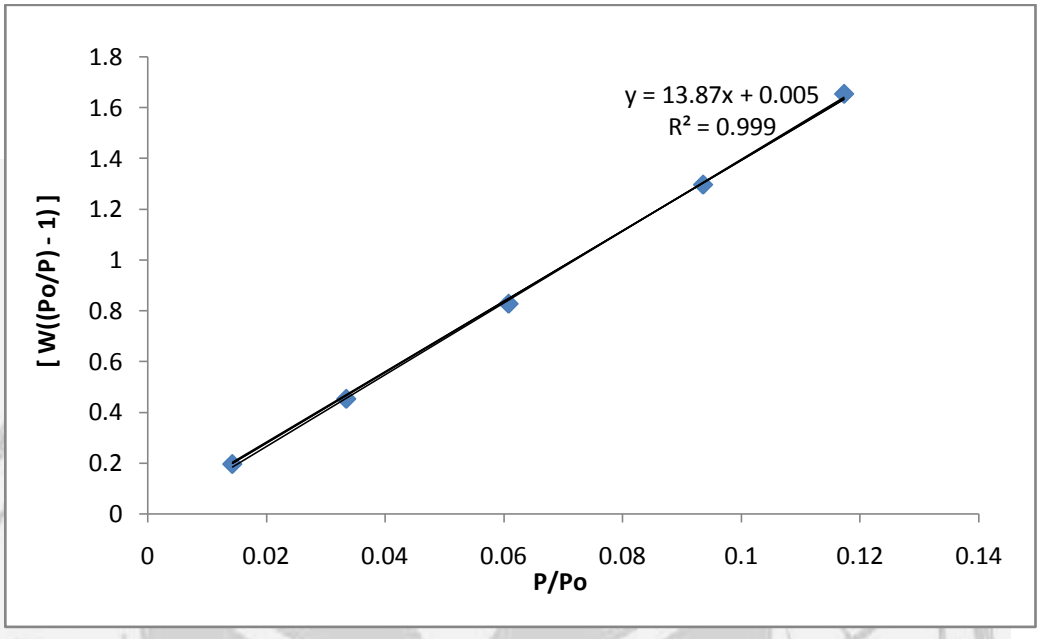
Lampiran 18. Hasil Analisis Porositas H-ZA



Slope	27,135
Intercept	0,014
Correlation Coeffisient (r)	0,9999
Constanta (c)	1,37989
Survace Area	51,19738 m^2/g

PERPUSTAKAAN UNNES

Lampiran 19. Hasil Analisis Porositas Ni/ZA



Slope	13,879
Intercept	0,0054
Correlation Coeffisient (r)	0,9991
Constanta (c)	1,074947
Survace Area	95,7459 m^2/g

PERPUSTAKAAN UNNES

Lampiran 20. Hasil Analisis Porositas Ni/ZA Terdeaktivasi

Quantachrome NovaWin - Data Acquisition and Reduction
for NOVA instruments
©1994-2010, Quantachrome Instruments
version 11.0

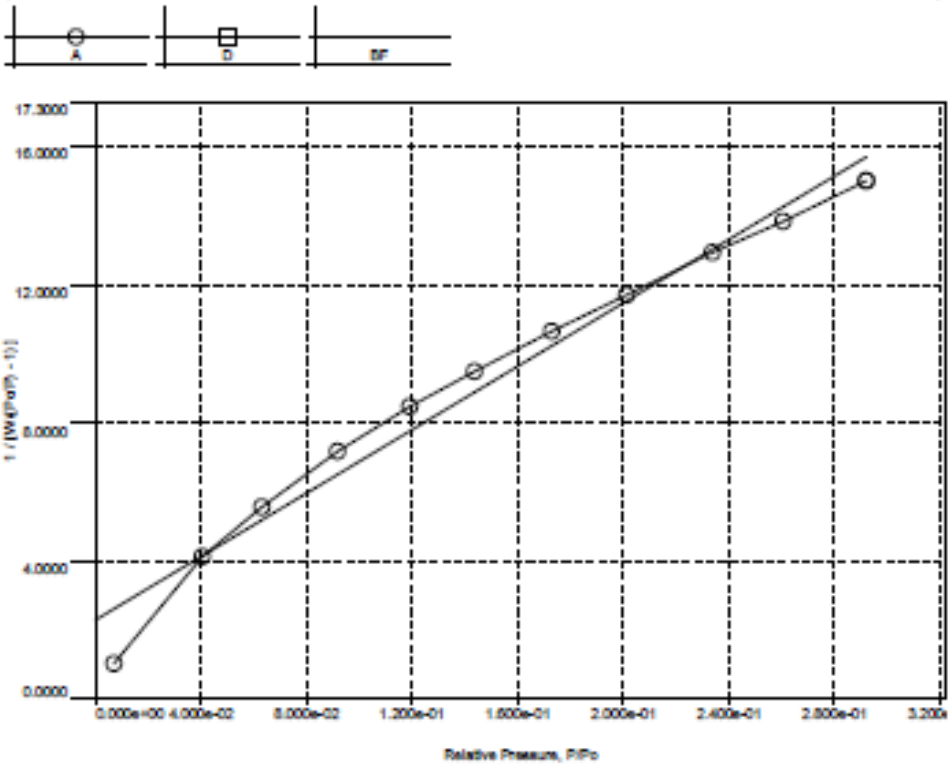
Quantachrome

Analysis			Report		
Operator:	nova	Date: 2013/02/25	Operator:	nova	Date: 3/6/2013
Sample ID:	IMAM	Filename:	C:\QCdata\Physisorb\20130225_3 _IMAM KHABIB.qps		
Sample Desc:	Katalis Ter-Deaktivasi	Comment:			
Sample weight:	0.3064 g	Sample Volume:	0.07856 cc	Sample Density:	3.9 g/cc
Outgas Time:	3.0 hrs	OutgasTemp:	300.0 C		
Analysis gas:	Nitrogen	Bath Temp:	77.3 K		
Press. Tolerance:	0.100/0.100 (ads/des)	Equil time:	60/60 sec (ads/des)	Equil timeout:	240/240 sec (ads/des)
Analysis Time:	202.3 min	End of run:	2013/02/25 19:27:10	Instrument:	Nova Station A
Cell ID:	91			F/W version:	0.00

Multi-Point BET Plot

Data Reduction Parameters

Adsorbate				
	Po override: 760.00 mmHg			
	Nitrogen	Temperature	77.350K	
	Molec. Wt.: 28.013 g	Cross Section:	16.200 Å²	Liquid Density: 0.808 g/cc



BET summary

Slope =	45.910
Intercept =	2.295e+00
Correlation coefficient, r =	0.987246
C constant=	21.003
Surface Area =	72.243 m²/g

Lampiran 21. Hasil Analisis Porositas Ni/ZA Regenerasi

Quantachrome NovaWin - Data Acquisition and Reduction for NOVA Instruments
©1994-2010, Quantachrome Instruments
version 11.0

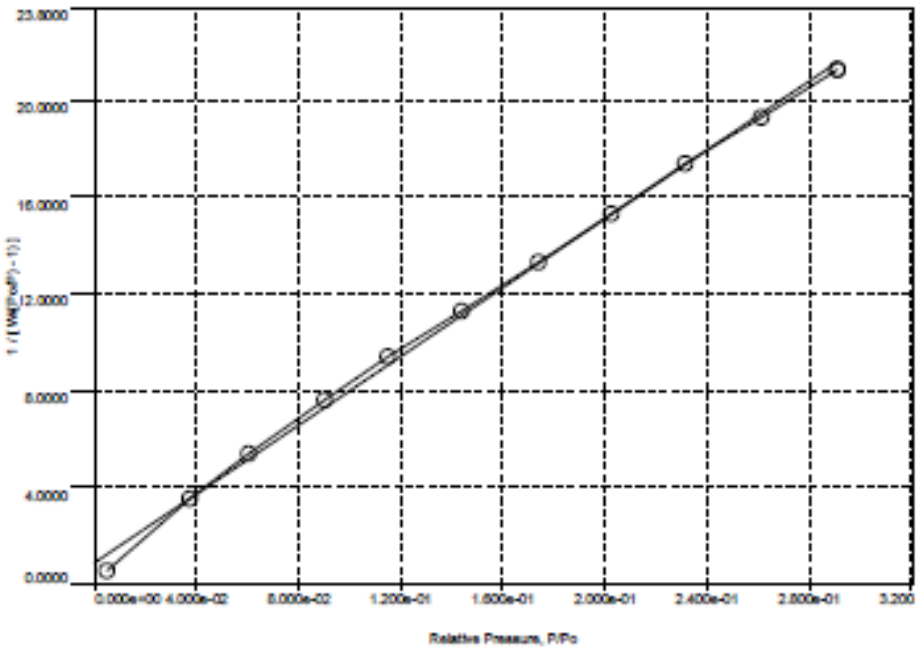
Quantachrome INSTRUMENTS

Analysis			Report		
Operator:	nova	Date: 2013/03/03	Operator:	nova	Date: 3/6/2013
Sample ID:	IMAM	Filename:	C:\QCdata\Physisorb\20130304_1 _IMAM KHABIB.qps		
Sample Desc:	Katalis Regenerasi	Comment:			
Sample weight:	0.4166 g	Sample Volume:	0.10882 cc	Sample Density:	3.9 g/cc
Outgas Time:	3.0 hrs	OutgasTemp:	300.0 C		
Analysis gas:	Nitrogen	Bath Temp:	77.3 K		
Press. Tolerance:	0.100/0.100 (ads/des)	Equil time:	60/60 sec (ads/des)	Equil timeout:	240/240 sec (ads/des)
Analysis Time:	239.7 min	End of run:	2013/03/03 15:44:53	Instrument:	Nova Station A
Cell ID:	99			F/W version:	0.00

Multi-Point BET Plot

Data Reduction Parameters

Adsorbate				
	Po override: 760.00 mmHg			
	Nitrogen	Temperature	77.350K	
	Molec. Wt.: 28.013 g	Cross Section:	16.200 Å²	Liquid Density: 0.808 g/cc



BET summary

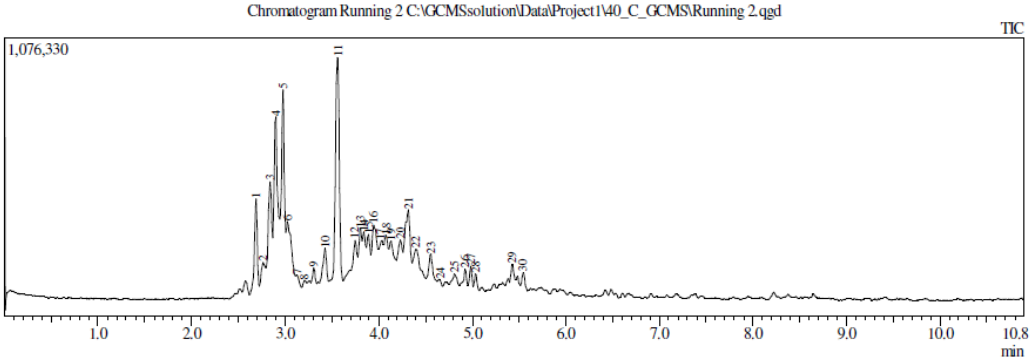
Slope =	70.845
Intercept =	9.242e-01
Correlation coefficient, r =	0.999038
C constant=	77.658
Surface Area =	48.524 m²/g

Lampiran 22. Hasil Analisis GC-MS

Sample Information

Analyzed by	: Admin
Analyzed	: 2/7/2013 9:27:45 AM
Sample Name	: Running 2
Sample ID	:
Injection Volume	: 0.10
Data File	: C:\GCMSsolution\Data\Project1\40_C_GCMS\Running 2.qgd
Tuning File	: C:\GCMSsolution\System\Tune1\Tuning 10072012.qgt

Chromatogram Running 2 C:\GCMSsolution\Data\Project1\40_C_GCMS\Running 2.qgd



Peak Report TIC

Peak#	R.Time	I.Time	F.Time	Area	Area%	Height
1	2.689	2.625	2.725	795832	3.54	367976
2	2.767	2.725	2.800	439236	1.96	121372
3	2.840	2.800	2.867	1197174	5.33	433233
4	2.897	2.867	2.942	2011714	8.96	684870
5	2.977	2.942	3.008	1916254	8.53	787027
6	3.026	3.008	3.108	1103563	4.91	279006
7	3.133	3.108	3.175	200699	0.89	67125
8	3.200	3.175	3.275	259358	1.15	46963
9	3.308	3.275	3.342	259862	1.16	98861
10	3.427	3.342	3.467	647896	2.88	174743
11	3.562	3.467	3.617	2871247	12.78	908487
12	3.750	3.617	3.775	1009953	4.50	201737
13	3.805	3.775	3.825	631100	2.81	249137
14	3.841	3.825	3.867	512960	2.28	233875
15	3.890	3.867	3.917	568521	2.53	224106
16	3.949	3.917	4.000	1058110	4.71	259472
17	4.025	4.000	4.058	658442	2.93	196306
18	4.078	4.058	4.108	587207	2.61	220299
19	4.133	4.108	4.192	781500	3.48	196941
20	4.232	4.192	4.258	684948	3.05	201717
21	4.316	4.258	4.358	1342106	5.97	316501
22	4.400	4.358	4.500	922371	4.11	165698
23	4.556	4.500	4.625	581287	2.59	144712
24	4.658	4.625	4.683	126997	0.57	42895
25	4.811	4.683	4.867	419051	1.87	66528
26	4.926	4.867	4.950	232662	1.04	84584
27	4.984	4.950	5.008	181425	0.81	95308
28	5.036	5.008	5.075	122079	0.54	65902
29	5.429	5.400	5.458	199211	0.89	86508
30	5.546	5.517	5.592	141376	0.63	65014
				22464141	100.00	7086903

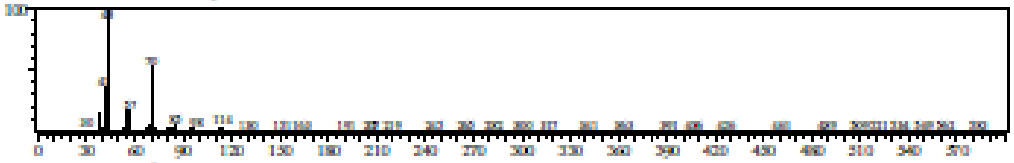
Library

<< Target >>

List#:1 R.Time:2.600(Scan#:324) MassPeaks:159

RawMass:Averaged 2.600-2.700(323-325) BasePeak:43.10(34843)

BG Mode:Calc. from Peak Group 1 - Event 1



Hit#:1 Entry:12644 Library:WILIY7.LIB

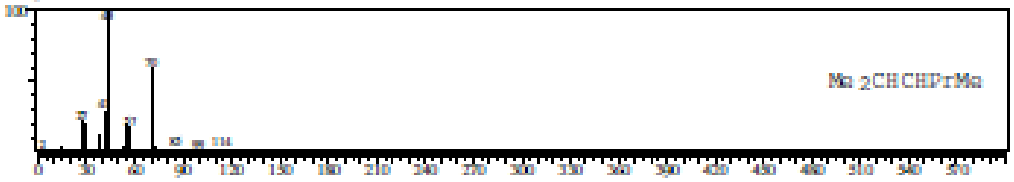
SI:96 Formula:C8 H18 CAS:589-53-7 MolWeight:114 RetIndx:0

CompName:Heptane, 4-methyl- (CAS) 4-Methylheptane $$ (n-C3H7)(CH3)CH(CH2)2 $$

Hit#:2 Entry:12831 Library:WILIY7.LIB

SI:95 Formula:C8 H18 CAS:584-94-1 MolWeight:114 RetIndx:0

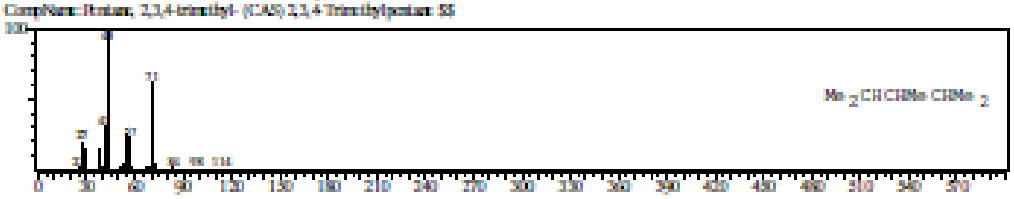
CompName:Hexane, 2,3-dimethyl- (CAS) 2,3-Dimethylhexane $$



Hit#:3 Entry:12875 Library:WILIY7.LIB

SI:94 Formula:C8 H18 CAS:562-75-3 MolWeight:114 RetIndx:0

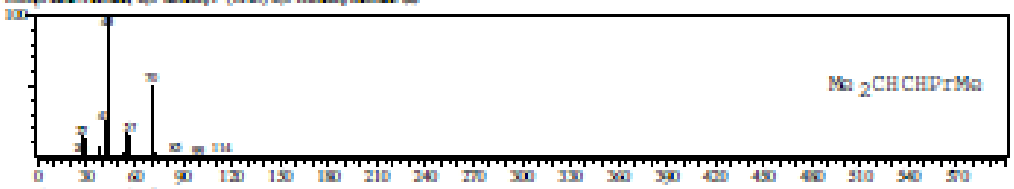
CompName:Pentane, 2,3,4-trimethyl- (CAS) 2,3,4-Trimethylpentane $$



Hit#:4 Entry:12832 Library:WILIY7.LIB

SI:93 Formula:C8 H18 CAS:584-94-1 MolWeight:114 RetIndx:0

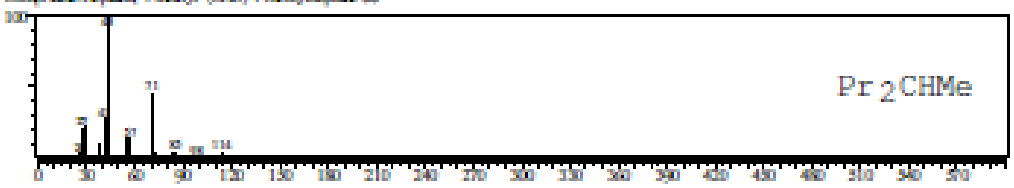
CompName:Hexane, 2,3-dimethyl- (CAS) 2,3-Dimethylhexane $$

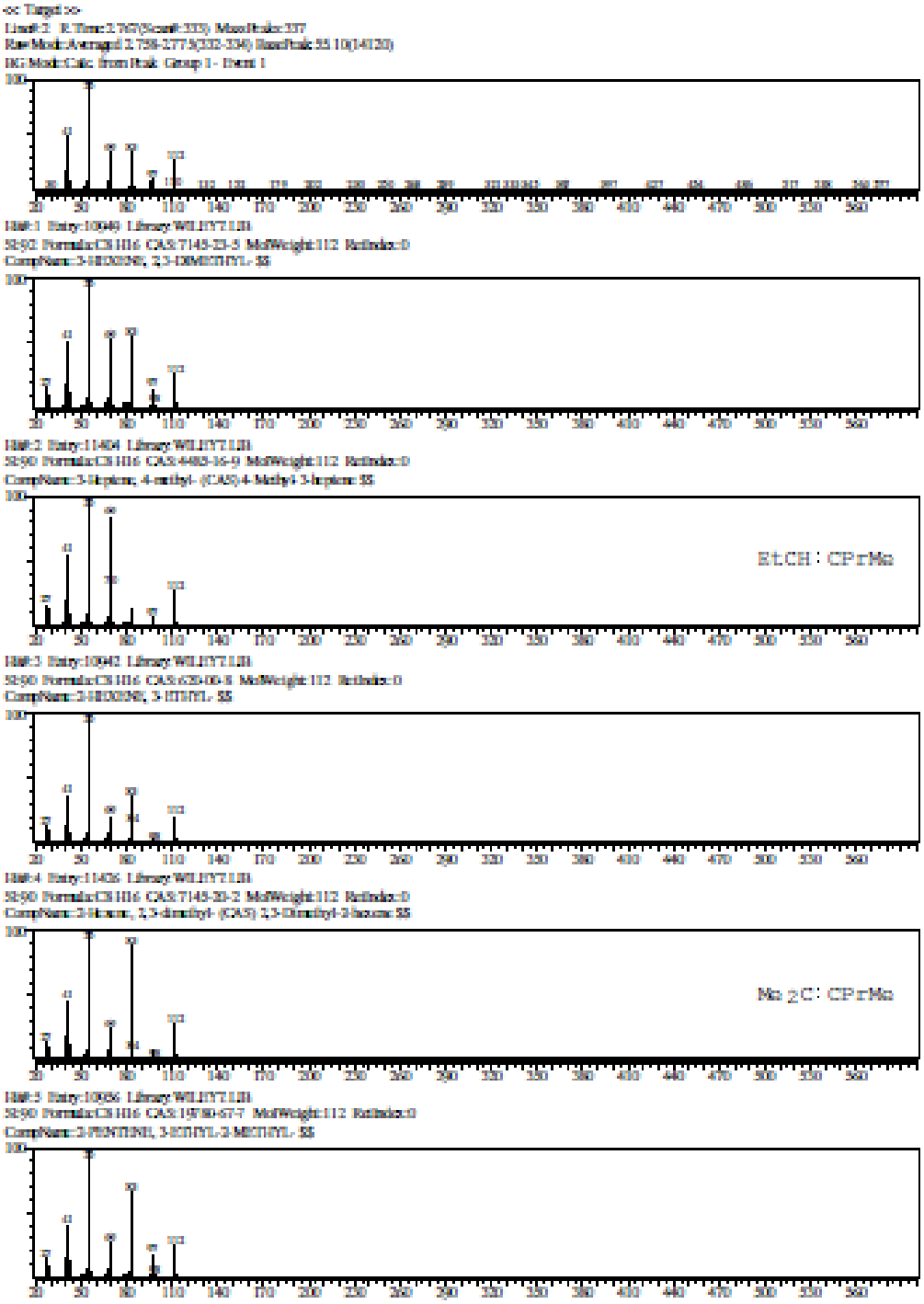


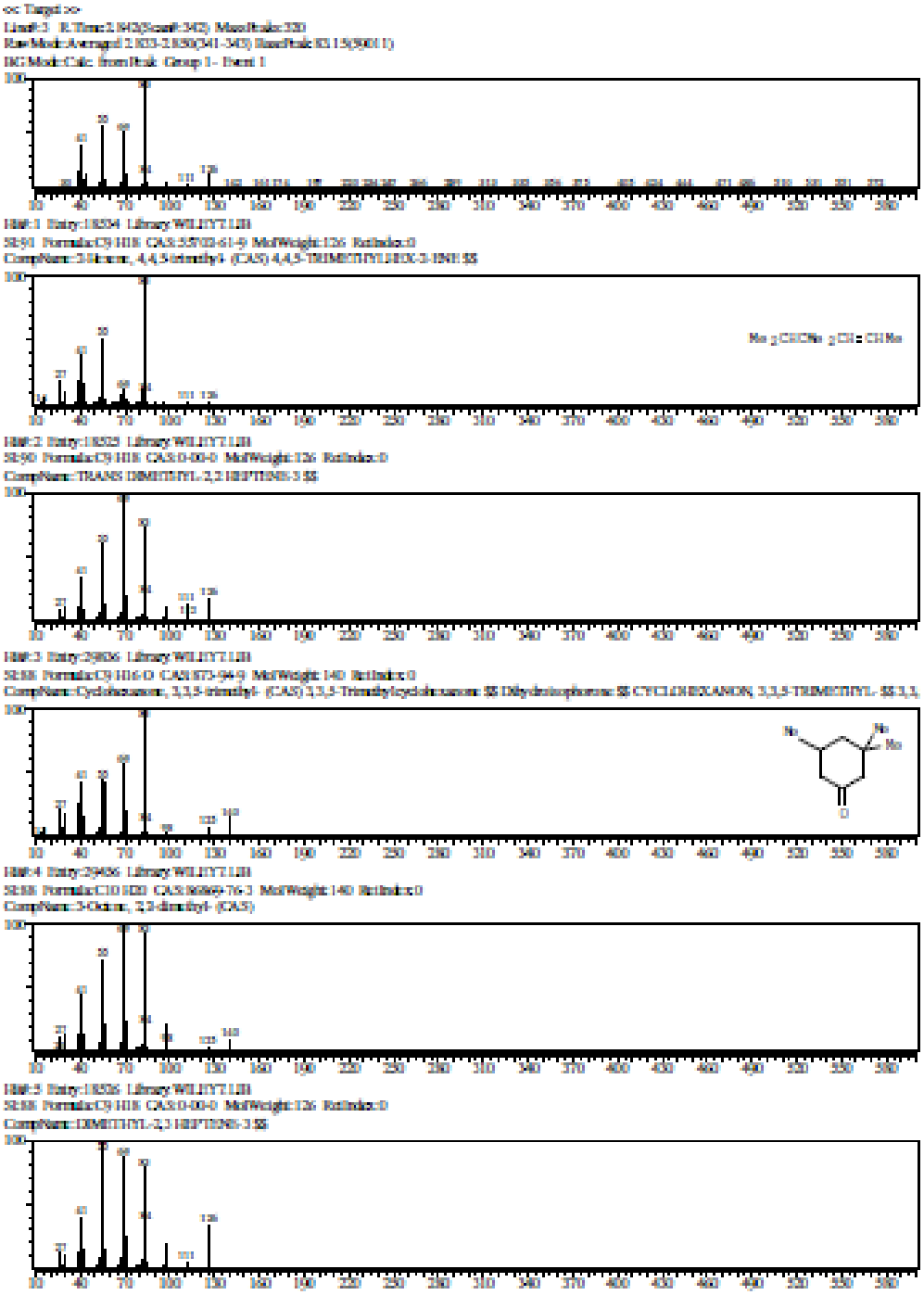
Hit#:5 Entry:12645 Library:WILIY7.LIB

SI:93 Formula:C8 H18 CAS:589-53-7 MolWeight:114 RetIndx:0

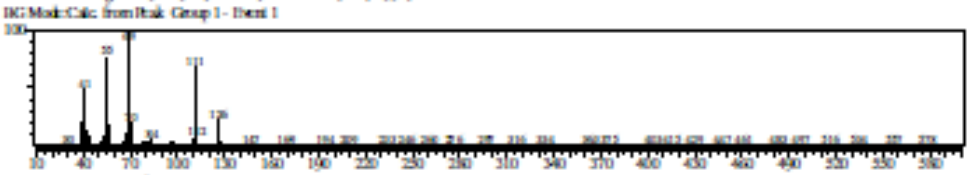
CompName:Heptane, 4-methyl- (CAS) 4-Methylheptane $$



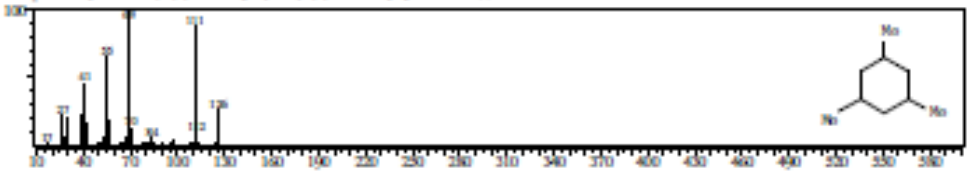

EtCH : CPrMe
Me 2C : CPrMe


Hit:1 Entry:18504 Library:WILIY7.LIB
Hit:2 Entry:18525 Library:WILIY7.LIB
Hit:3 Entry:29806 Library:WILIY7.LIB
Hit:4 Entry:29806 Library:WILIY7.LIB
Hit:5 Entry:18506 Library:WILIY7.LIB

<< Target >>
List#:4 R.Time:2.900(Scan#:349) MassPeaks:316
RawMode:Averaged 2.867-2.908(348-350) BasePeak:69(10000000)
BG Mode:Calc. from Peak Group 1 - Event 1

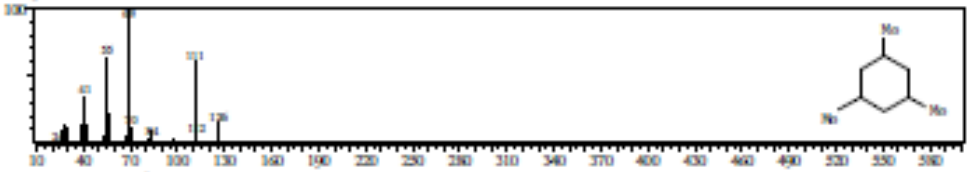


Hit#:1 Entry:19090 Library:WILIY7.LIB
SI:94 Formula:C9H18 CAS:1839-63-0 MolWeight:126 RefIndex:0
CompName:Cyclohexane, 1,3,5-trimethyl- (CAS) 1,3,5-Trimethylcyclohexane $$

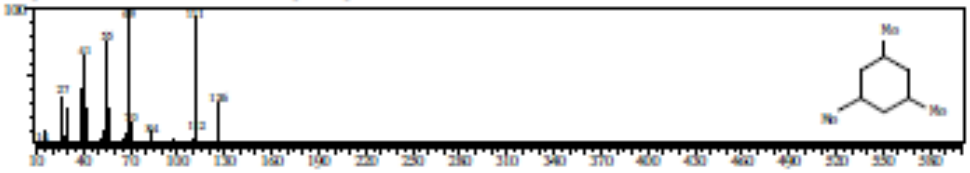


Hit#:2 Entry:19085 Library:WILIY7.LIB
SI:93 Formula:C9H18 CAS:1795-27-3 MolWeight:126 RefIndex:0
CompName:Cyclohexane, 1,3,5-trimethyl-, (1.alpha.,3.alpha.,5.alpha.)- (CAS) 1,cis-3,cis-5-Trimethylcyclohexane $$ cis-1,3,5-Trimethylcyclohexane $$ Cyclo

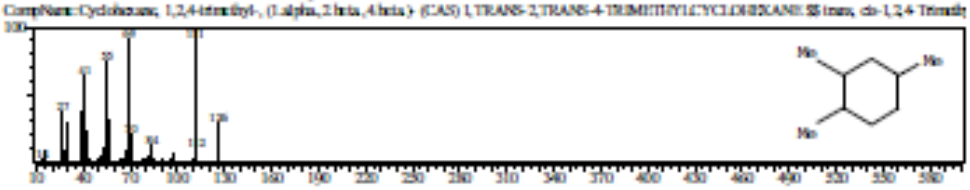
Hit#:3 Entry:19089 Library:WILIY7.LIB
SI:92 Formula:C9H18 CAS:1839-63-0 MolWeight:126 RefIndex:0
CompName:Cyclohexane, 1,3,5-trimethyl- (CAS) 1,3,5-Trimethylcyclohexane $$

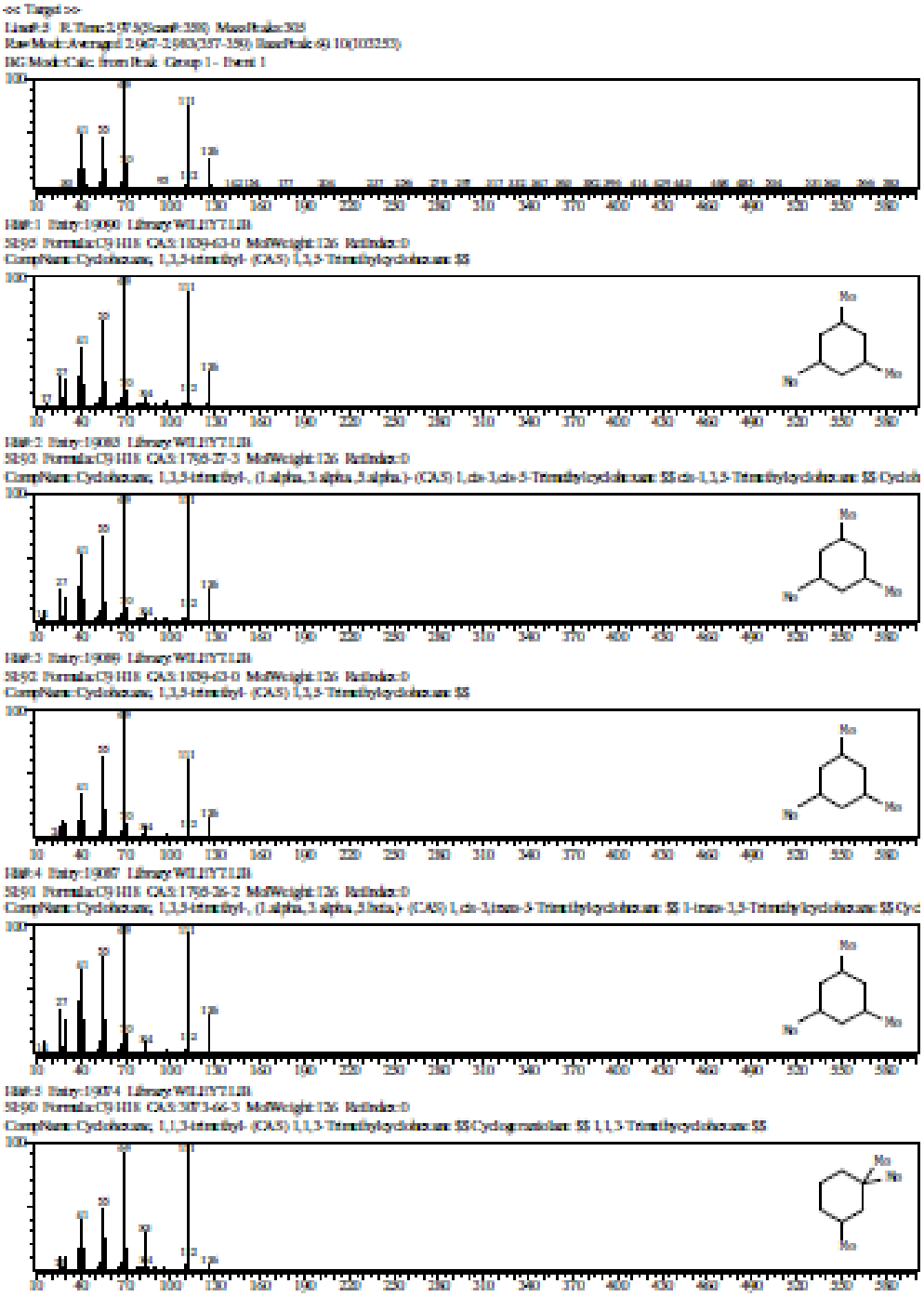


Hit#:4 Entry:19087 Library:WILIY7.LIB
SI:91 Formula:C9H18 CAS:1795-26-2 MolWeight:126 RefIndex:0
CompName:Cyclohexane, 1,3,5-trimethyl-, (1.alpha.,3.alpha.,5.beta.)- (CAS) 1,cis-3,trans-5-Trimethylcyclohexane $$ 1-trans-3,5-Trimethylcyclohexane $$ Cyc



Hit#:5 Entry:18547 Library:WILIY7.LIB
SI:90 Formula:C9H18 CAS:7667-60-9 MolWeight:126 RefIndex:0
CompName:Cyclohexane, 1,2,4-trimethyl-, (1.alpha.,2.beta.,4.beta.)- (CAS) 1,TRANS-2,TRANS-4-TRIMETHYLCYCLOHEXANE $$ trans, cis-1,2,4-Trimethy




<< Target >>
Hit#:1 Entry:19090 Library:WILIY7.LIB
Hit#:2 Entry:19088 Library:WILIY7.LIB
Hit#:3 Entry:19089 Library:WILIY7.LIB
Hit#:4 Entry:19087 Library:WILIY7.LIB
Hit#:5 Entry:19074 Library:WILIY7.LIB

Lampiran 23. Dokumentasi Penelitian

Perendaman dengan HF

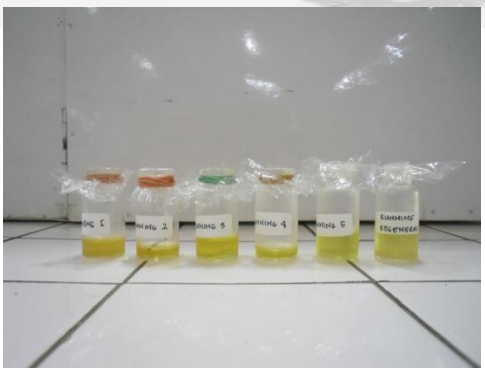
Perendaman dengan HCl

Perendaman dengan NH_4Cl

Penyaringan

Proses sonikasi

Proses pirolisis plastik PP



Hasil Perengkahan PP

Katalis