



PREPARASI KATALIS Ni/ZA DENGAN METODE SONOKIMIA UNTUK PERENKAHAN KATALITIK POLIPROPILEN DAN POLIETILEN

Brian Irvantino*), Sri Wahyuni dan Subiyanto Hadi Saputro

Jurusan Kimia FMIPA Universitas Negeri Semarang

Gedung D6 Kampus Sekaran Gunungpati Telp. (024)8508112 Semarang 50229

Info Artikel

Sejarah Artikel:
Diterima Juli 2013
Disetujui Juli 2013
Dipublikasikan Agustus 2013

Kata kunci:
Ni/ZA
perengkahan
polietilen
polipropilen
sonokimia

Abstrak

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

Abstract

A study concerning the preparation of the catalyst Ni/natural zeolite sonochemical method for the catalytic cracking of polypropylene and polyethylene. This study aimed to investigate the characteristics of catalysts that have been made and to study the activity of the catalyst in the cracking of polypropylene and polyethylene. Catalysts prepared by sonochemical method with levels 3, 4 and 5% Ni. Characterization of the catalysts include: determination of Ni metal content, the number of acid sites, the crystallinity of the catalyst, and the catalyst surface area. Polypropylene and polyethylene were pyrolyzed first. The result is fed into the reactor pyrolysis cracking. Subsequent cracking process is run at a temperature of 360°C. The results showed that the catalytic cracking of Ni-4%/ZA has the best performance. Catalysts Ni-4%/ZA has an average pore size (33.13 Å), pore volume (0.185 cc/g), and surface acidity (0.7619 mmol/g). In cracking using polypropylene the largest condensate fraction is 3.46. In cracking using polyethylene the largest condensate fraction is 5.07. The compounds contained in the product cracking to produce compounds of the derivative heptane, hexene, heptane, heptene, nonane, decane and undecane.

Pendahuluan

Konversi fraksi hidrokarbon rantai panjang, poliaromatik maupun polimer menjadi fraksi hidrokarbon rantai pendek membutuhkan katalis perengkah yang merupakan katalis heterogen (padatan), karena dalam prosesnya katalis ini lebih menguntungkan yaitu pada akhir proses dapat diperoleh kembali tanpa tercampur oleh produk. Selain itu lebih stabil dalam temperatur tinggi. Katalis merupakan zat yang dapat meningkatkan laju reaksi dengan kondisi kimiawi tetap pada akhir proses (Triyono; 2002). Katalis tidak akan mengganggu kesetimbangan tetapi mempercepat tercapainya kesetimbangan itu dan katalis tidak memulai terjadinya reaksi. Salah satu jenis katalis untuk proses perengkahan yaitu *metal supported catalyst* yang terdiri dari logam yang diimbangkan pada pengemban padat seperti silika-alumina, alumina dan zeolit.

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

Pengembanan logam ke dalam zeolit biasanya menggunakan metode impregnasi akan tetapi pada penelitian ini menggunakan metode sonokimia sehingga hanya menggunakan getaran logam Ni dapat masuk dan menempel pada zeolit tanpa pengaturan panas dan hanya membutuhkan waktu kurang lebih 60 menit.

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

tetapi komposisi struktur masih tetap.

Berdasarkan latar belakang, maka dilakukan penelitian preparasi katalis Ni/zeolit alam menggunakan metode sonokimia dengan jumlah logam Ni teremban yang bervariasi yaitu masing-masing 3, 4 dan 5% yang kemudian dikarakterisasi dan diuji aktivitasnya untuk perengkahan polipropilena dan polietilena yang merupakan senyawa penyusun plastik.

Metode Penelitian

Alat-alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah: alat-alat gelas, termometer, pengayak 100 mesh, lumpang porselin, *oven* GCA Corp, *furnace*, reaktor kalsinasi dan oksidasi, neraca analitik Metter Toledo, desikator, sonoreaktor, spektrofotometer serapan atom (SSA) Perkin Elmer Analyst-100, *gas sorption analyzer* NOVA 1200e, *gas chromatography* (GC) Agilent 6820, *gas chromatography-mass spectroscopy* (GC-MS) Shimadzu QP-2010s, dan *x-ray diffraction* (XRD) Shimadzu XRD-6000. Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah: NH_4Cl , HF, HCl, nikel nitrat heksahidrat, NH_3 , AgNO_3 buatan Merck dengan *grade pro analysis*, gas hidrogen, oksigen dan nitrogen (PT. Samator Gas), air bebas ion, polipropilena dan polietilena.

Sebelum digunakan sebagai pengemban, zeolit alam perlu dilakukan aktivasi yaitu dengan cara, merendam zeolit alam dalam aquademin sambil mengaduknya dengan pengaduk magnet selama sehari semalam pada temperatur kamar. Kemudian menyaring campuran dan mengeringkannya dalam *oven* pada temperatur 120°C selama 12 jam.

Merendam sebanyak 100 g zeolit alam dengan 250 mL larutan HF 1 % dalam wadah plastik selama 30 menit, kemudian mencucinya dengan aquademin, kemudian mengeringkannya dalam *oven* pada temperatur 130°C selama 24 jam. Setelah kering lalu merefluks sampel ke dalam 250 mL larutan HCl 6 M selama 30 menit pada temperatur 50°C sambil mengaduknya, kemudian menyaring sampel dan mencucinya berulang kali sampai tidak ada ion Cl^- (dapat dideteksi oleh larutan AgNO_3). Selanjutnya mengeringkan sampel pada temperatur 130°C selama 3 jam dalam *oven* lalu merefluks sampel dalam larutan NH_4Cl 1 N pada temperatur 90°C selama 3 jam per hari dalam 1 minggu sambil mengaduknya, kemudian menyaring dan mengeringkannya seperti prosedur di atas. Menghaluskan sampel hingga ukuran 100 mesh. Sampel ini diberi nama zeolit alam aktif.

Sampel ZA direndam dalam larutan nikel nitrat dengan massa masing-masing 4,452; 5,941 dan 7,427 gram dengan aquademin 20 mL per katalis, kemudian direfluks pada temperatur 60°C selama 6 jam, kemudian diuapkan dan dicuci berulang kali, dikeringkan dalam oven 120°C (diperoleh sampel Ni/ZA). Sampel katalis yang diperoleh dikalsinasi pada temperatur 500°C selama 5 jam, dioksidasi dan reduksi pada temperatur 400°C selama 2 jam.

Sampel katalis yang diperoleh kemudian dilakukan karakterisasi yang meliputi kristalinitas dan ukuran kristal katalis dengan menggunakan XRD, keasaman dengan metode gravimetri, kadar logam Ni dengan SSA, dan luas permukaan katalis dengan *gas sorption analyzer* NOVA 1200.

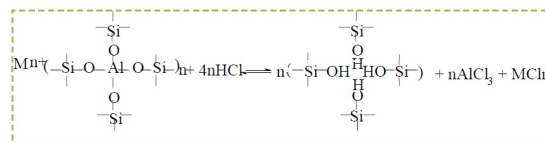
Hasil dan Pembahasan

Tahap awal aktivasi zeolit alam yaitu dengan cara mencuci zeolit alam dengan aquademin. Zeolit alam terdapat tidak dalam bentuk murninya, oleh karena itu zeolit alam sebelum dicuci berwarna coklat. Keberadaan senyawa pengotor menyebabkan zeolit tidak berwarna putih bersih. Warna zeolit alam kotor tergantung pada derajat kemurnian dan tingkat oksidasi Fe³⁺ pada zeolit tersebut.

Selanjutnya diaktivasi menggunakan perlakuan asam yaitu aktivasi menggunakan HF 1 % bertujuan untuk menghilangkan pengotor-pengotor dalam zeolit yang belum hilang saat pencucian dengan aquademin serta menghilangkan Si di luar *framework*. Setelah pengeringan warna zeolit menjadi putih agak keruh, hal ini disebabkan pengotor-pengotor zeolit alam ada yang larut ketika perlakuan HF 1 %, dan hilangnya Si yang berada di luar *framework* pada zeolit alam yang digunakan.

Aktivasi menggunakan HCl 6 N untuk membersihkan pori dari pengotor dan untuk menyerang kation-kation dan pengotor anorganik yang tidak larut dalam aquademin. Penambahan HCl dengan konsentrasi yang tinggi akan membuat kerangka zeolit alam akan mengalami perubahan atau kerusakan, yaitu kerangka Si dan Al berubah, tetapi apabila konsentrasi HCl yang digunakan rendah maka kerangka Si dan Al pada zeolit alam tidak mengalami perubahan. Larutan HCl dengan konsentrasi rendah hanya mengusir kation-kation yang ada di zeolit alam seperti Na⁺, Ca²⁺, Mg²⁺, Fe³⁺ dan Fe²⁺ sehingga muatan Al dan AlO₄ ternetralkan oleh H⁺ dari asam membentuk unikation. Dealuminasi yaitu

proses penghilangan ion Al³⁺ diluar *framework* zeolit. Reaksi dealuminasi dalam zeolit alam disajikan menurut reaksi pada Gambar 1.



Gambar 1. Reaksi dealuminasi dalam zeolit dengan bantuan HCl (Handoko; 2002)

Pada proses aktivasi menggunakan HCl 6 N, HCl sebelum dilarutkan dalam zeolit alam berwarna jernih, sedangkan warna zeolit alam berwarna putih keruh. Ketika HCl dilarutkan pada zeolit alam, HCl akan mengalami perubahan warna menjadi kuning kehijauan. Warna kuning yang terjadi pada HCl merupakan tanda bahwa pengotor telah terikat dengan HCl, warna kemerahan kemungkinan adalah ion Fe³⁺ dan Fe²⁺ yang telah ikut larut dalam HCl.

Penggunaan AgNO₃ untuk menguji apakah ion Cl⁻ sudah hilang atau belum, dengan cara air bekas cucian zeolit alam diambil kira-kira 10 mL kemudian ditetesi menggunakan AgNO₃. Apabila terbentuk endapan putih (AgCl) maka ion Cl⁻ belum hilang dari zeolit alam tersebut, sedangkan jika tidak terbentuk endapan putih maka ion Cl⁻ sudah hilang dari zeolit alam.

Selain perlakuan asam, zeolit juga diaktivasi menggunakan garam NH₄Cl 1 N. Perendaman dengan larutan NH₄Cl ini dimaksudkan untuk menggantikan kation-kation penyeimbang dalam zeolit seperti Na⁺ dan Ca²⁺ dengan NH₄⁺. Zeolit kemudian dikeringkan di dalam oven sehingga terbentuk H-Zeolit atau yang disebut dengan zeolit alam aktif dengan melepaskan NH₃.

Zeolit alam yang sudah diaktivasi menggunakan perlakuan asam selanjutnya diimbangkan dengan logam nikel yang berfungsi untuk meningkatkan jumlah situs asam/situs aktif. Hal ini dikarenakan adanya orbital *d* yang belum terisi penuh oleh elektron. Pada umumnya pengembanan logam menggunakan metode impregnasi, akan tetapi pada penelitian ini menggunakan metode sonokimia yang memanfaatkan getaran ultrasonik untuk dapat mengembankan logam Ni pada zeolit alam tanpa pengatur suhu dan mempersingkat waktu.

Jumlah logam yang diimbangkan berbeda-beda, yaitu 3, 4 dan 5 % karena ion-ion logam dengan konsentrasi rendah lebih leluasa untuk

bergerak masuk ke dalam pori dibandingkan dengan konsentrasi ion logam yang besar, sehingga penataan logam Ni pada permukaan zeolit lebih teratur (terdistribusi merata), sedangkan jika logam Ni yang diimbangkan besar, maka dapat terbentuk agregat (ada penumpukan dibagian zeolit yang satu dan terjadi kekosongan logam Ni pada bagian zeolit yang lainnya). Proses sonokimia dilakukan dengan cara melarutkan garam nikel nitrat selanjutnya mencampurkan kedalam zeolit alam, kemudian dilakukan sonikasi selama 60 menit dengan getaran 40 KHz.

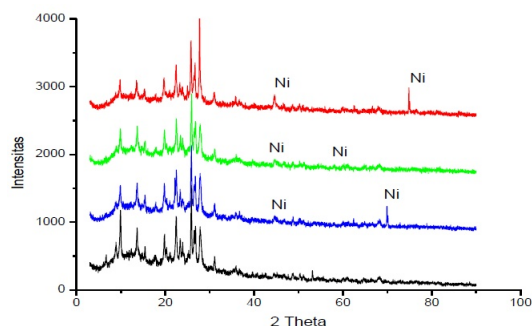
Setelah pengembanan logam Ni ke dalam zeolit alam telah selesai, dilakukan proses kalsinasi, oksidasi dan reduksi. Kalsinasi katalis bertujuan untuk merenggangkan ruang antarpori sehingga gas N_2 dapat menembus pori-pori kecil yang ditempati oleh kotoran-kotoran organik dan dapat mendesaknya keluar dari zeolit. Selain itu, proses kalsinasi juga berfungsi untuk memperbaiki dispersi logam pada permukaan zeolit. Oksidasi katalis dilakukan pada temperatur $400^\circ C$ selama 2 jam dengan aliran gas O_2 untuk mengubah kompleks logam menjadi oksida logam. Proses reduksi dilakukan pada $400^\circ C$ dengan aliran gas H_2 selama 2 jam dengan tujuan untuk mengubah ion logam menjadi atom logam (Trisunaryanti, *et al.*; 2005). Setelah proses kalsinasi, oksidasi dan reduksi ketiga katalis ini mempunyai warna yang berbeda-beda. Untuk katalis Ni-3%/ZA berwarna abu-abu. Untuk katalis Ni-4%/ZA warna katalis abu-abu kehitaman, sedangkan untuk katalis Ni-5%/ZA warna katalis hitam, perbedaan warna katalis ini dikarenakan berubahnya ion logam Ni menjadi atom logam (bermuatan netral/nol), adanya perbedaan jumlah logam Ni yang teremban pada masing-masing katalis yang menyebabkan perbedaan warna katalis semakin banyak logam yang terembankan katalis akan berwarna hitam.

Setelah katalis selesai disintesis selanjutnya katalis di karakterisasi. Meliputi distribusi logam Ni dalam katalis. Telah dikemukakan bahwa kualitas katalis antara lain ditentukan oleh kualitas dispersi logam dalam zeolit, sedangkan kualitas dispersi dipengaruhi oleh jumlah logam tersebut (Trisunaryanti, *et al.*; 2005). Distribusi logam Ni dalam katalis disajikan pada Tabel 1.

Tabel 1. Distribusi logam Ni dalam katalis Ni/ZA

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

Berdasarkan data tersebut efisiensi yang paling besar adalah Ni-5%/ZA. Semakin banyak logam Ni yang diimbangkan maka % efisiensi semakin besar pula. Karakterisasi selanjutnya yaitu pengaruh pengembanan logam Ni terhadap kristalinitas katalis Ni/ZA dapat diketahui dari hasil analisis dengan XRD. Adapun perbandingan difraktogram antara katalis H-ZA, Ni-3%/ZA, Ni-4%/ZA, dan Ni-5%/ZA ditunjukkan pada Gambar 2.



Gambar 2. Perbandingan difraktogram katalis H-ZA, Ni-3%/ZA, Ni-4%/ZA dan Ni-5%/ZA

Gambar 2 menunjukkan adanya kecenderungan bahwa logam yang diimbangkan berlebih menyebabkan pergeseran pola difraksi. Hal ini karena logam yang diimbangkan akan mengalami proses termal lebih banyak yang dapat mempengaruhi dispersi logam serta distribusinya di dalam katalis. Munculnya puncak baru, pergeseran puncak, serta kenaikan intensitas puncak pada Gambar 2 mengindikasikan adanya distribusi logam Ni pada permukaan katalis setelah proses pengembanan dengan metode sonokimia. Hasil ini diperoleh dengan membandingkan puncak baru pada difraktogram katalis dengan JCPDS logam Ni. Dengan demikian, logam Ni dapat meningkatkan kristalinitas dari zeolit alam (Sutarno, *et al.*; 2003).

Selain berdasarkan difraktogram tersebut kristalinitas dan ukuran kristal dari katalis tersebut juga dapat diamati melalui tiga puncak tertinggi dari masing-masing padatan pada Tabel 2.

Tabel 2. Data 2θ , intensitas tiga puncak tertinggi dan ukuran kristal dalam H-ZA, Ni-3%, Ni-4%/ZA dan Ni-5%/ZA

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

Berdasarkan data pada Tabel 2 dapat dilihat bahwa dengan adanya pengembangan logam Ni tidak menurunkan kristalinitas zeolit. Meskipun terjadi penurunan intensitas pada katalis yang telah diimbangkan, namun puncak-puncak tersebut masih runcing dan tinggi sehingga kristalinitas zeolit tidak rusak akibat pengembangan logam Ni tersebut. Kristalinitas pengembangan zeolit sangat penting dalam mempengaruhi sifat katalis. Apabila kristalinitas tinggi maka dapat diketahui bahwa pengembangan tersebut bebas dari pengotor serta sifat-sifat fisiknya tidak terganggu (sifat katalitik tinggi, stabil pada suhu tinggi, dan porositas yang luas) dan akan mempengaruhi hasil pada proses perengkahan katalitik plastik polipropilen maupun polietilen.

Hasil tersebut sejalan dengan penelitian yang dilakukan oleh Trisunaryanti (2005), yang menjelaskan bahwa pengembangan logam Ni tidak menurunkan kristalinitas. Adanya peningkatan kristalinitas maka mengindikasikan bahwa telah hilangnya pengotor-pengotor dari zeolit alam yang telah diaktivasi.

Karakterisasi katalis yang berikutnya adalah luas permukaan spesifik, rerata jejari pori, dan volume total pori katalis selengkapnya disajikan pada Tabel 3.

Tabel 3. Luas permukaan spesifik, rerata jejari pori dan volume total pori katalis

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

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

Prasetyaningsih (2011) melakukan peneliti-

an tentang pembuatan katalis Ni/Zeolit untuk reaksi perengkahan katalitik limbah plastik menggunakan *Fixed Bed Reactor*, jenis plastik yang digunakan yaitu polipropilen dengan waktu perengkahan yaitu 2 jam. Namun pada pengembangan logam menggunakan metode impregnasi. Hasil analisis menunjukkan luas permukaan zeolit alam sebesar 40,09 m²/g sedangkan luas permukaan katalis Ni/Zeolit 4, 6 dan 8 % berturut-turut sebesar 90,06; 80,82 dan 24,62 m²/g.

Hasil karakterisasi pada penelitian ini menunjukkan perbedaan luas permukaan yang besar terhadap hasil penelitian Prasetyaningsih (2011). Hal ini dimungkinkan karena adanya perbedaan asal zeolit alam dan metode yang digunakan untuk pengembangan logam Ni kedalam zeolit alam aktif.

Setyawan (2009) juga melakukan penelitian tentang aktivasi katalis Ni/Zeolit alam untuk perengkahan MEWCO yang menunjukkan bahwa luas permukaan katalis yang besar belum tentu menjamin hasil perengkahan yang baik. Walaupun kemungkinan terjadinya reaksi antara umpan dan permukaan katalis sangat besar akan tetapi volume pori juga berpengaruh dalam pemutusan ikatan C-C pada umpan. Karakterisasi katalis yang selanjutnya adalah pengukuran keasaman katalis disajikan pada Tabel 4.

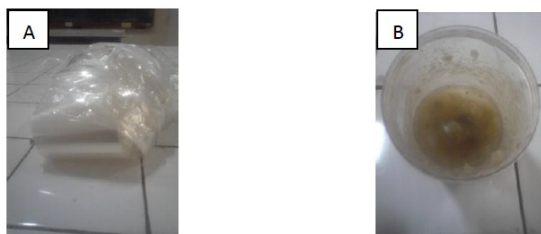
Tabel 4. Penentuan jumlah situs asam dalam katalis

| Sampel | Keasaman total (mol/gram) | Keasaman permukaan (mol/gram) | Keasaman dalam rongga (mol/gram) |
|----------|---------------------------|-------------------------------|----------------------------------|
| H-ZA | 2,7314 | 0,2547 | H-ZA |
| Ni-3%/ZA | 3,1125 | 0,5096 | Ni-3%/ZA |
| Ni-4%/ZA | 3,9855 | 0,7618 | Ni-4%/ZA |
| Ni-5%/ZA | 5,6255 | 0,3911 | Ni-5%/ZA |

Tabel 4. menunjukkan bahwa baik katalis Ni-3%/ZA, Ni-4%/ZA maupun Ni-5%/ZA mengalami kenaikan jumlah situs asam bila dibandingkan dengan H-ZA. Berdasarkan data pada Tabel 4, kenaikan situs asam dengan menggunakan basa piridin maupun amonia memiliki pola yang sama untuk masing-masing katalis. Hal ini disebabkan karena adanya pengembangan logam Ni dalam katalis. Distribusi logam yang tersebar merata pada permukaan zeolit akan meningkatkan keasaman katalis karena adanya orbital *d* yang belum penuh pada logam Ni yang efektif untuk menerima pasangan elektron dari basa adsorbat. Berdasarkan Tabel 4, jumlah situs asam total yang paling besar adalah pada katalis Ni-5%/ZA yaitu sebesar 5,6255 mmol/gram akan tetapi keasaman permukaannya kecil.

Sedangkan katalis Ni-4%/ZA mempunyai keasaman total yang tidak begitu besar akan tetapi keasaman permukaannya besar yaitu 0,7618 mmol/gram. Menurut Satarno, *et al.* (2003), semakin tinggi keasaman suatu padatan (katalis), semakin tinggi pula rasio Si/Al nya dan semakin besar pula luas permukaan katalis tersebut karena dengan semakin tinggi rasio Si/Al, maka keteraturan kristal mesopori akan semakin meningkat. Pada reaksi perengkahan katalitik ini, aktivitas terbaik diperoleh oleh katalis Ni-4%/ZA. Hal ini menunjukkan bahwa dalam reaksi perengkahan ini tidak hanya situs aktif total saja yang berperan, melainkan juga situs aktif di permukaan juga. Pada umumnya reaksi perengkahan dapat berlangsung dengan keasaman total antara 0,9 mmol/gram sampai 3 mmol/gram (Rodiansono, *et al.*; 2007; Trisunaryanti, *et al.*; 2005).

Selanjutnya diuji aktivitas katalis, langkah pertama yaitu membuat umpan. Umpan dalam reaksi perengkahan ini adalah hasil pirolisis plastik, proses pirolisis dilakukan di dalam reaktor pirolisis dengan suhu 475°C dan di aliri gas nitrogen dengan laju alir 100 mL/menit. Plastik yang dipirolisis yaitu jenis polipropilen dan polietilen, semula plastik berbentuk padat setelah dilakukan proses pirolisis menjadi semacam cairan lilin dan berbentuk lembek. Perbedaan plastik sebelum dan sesudah proses pirolisis ditunjukkan pada Gambar 3.



Gambar 3. Perbedaan plastik sebelum (A) dan sesudah (B) proses pirolisis

Menurut Agra (1995) metode pirolisis dapat merubah limbah plastik menjadi minyak pirolitik dan padatan kokas. Beberapa keuntungan dari pirolisis meliputi: konsumsi energi yang rendah (sebagai contoh, maksimal hanya sekitar 10% dari jumlah energi limbah plastik yang digunakan untuk merubah potongan sampah plastik menjadi produk petrokimia). Proses beroperasi tanpa membutuhkan udara atau campuran hidrogen dan tidak melibatkan tekanan. Polutan-polutan dan pengotor dari proses pirolisis terkonsentrasi di dalam sebuah *coke-like matrix* yaitu sebuah residu padat dari proses. Pirolisis ini dilakukan dalam

sebuah sistem tertutup, sehingga tidak ada polutan yang dapat keluar.

Plastik yang sudah dipirolisis kemudian dimasukkan ke dalam reaktor umpan dan katalis dimasukkan dalam reaktor katalis dan dipanaskan sampai suhu 360°C dengan dialiri gas hidrogen (30 mL/menit). Konversi total produk hasil perengkahan ditentukan dari besarnya produk yang terkonversi dari plastik. Penentuan konversi total ini dapat diketahui berdasarkan kromatogram produk perengkahan. Produk hasil perengkahan katalitik plastik dalam penelitian ini adalah produk yang terbentuk setelah proses perengkahan menggunakan katalis (% fraksi kondensat). Proses perengkahan dilakukan dengan variasi jumlah logam Nikel pada masing-masing katalis, serta jenis umpan yang digunakan pada proses perengkahan katalitik plastik. Pada penelitian ini produk gas serta kokas hasil reaksi tidak ditentukan. Pengamatan menunjukkan bahwa warna katalis berubah warna dari abu-abu menjadi hitam yang diperkirakan terdapat kokas. Prosentase fraksi kondensat yang dihasilkan dari reaksi perengkahan katalitik plastik disajikan dalam Tabel 5.

Tabel 5. Prosentase fraksi kondensat perengkahan polipropilen dan polietilen (berat/berat)

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

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

yang besar tidak dapat masuk ke dalam pori-pori katalis sehingga reaksi hanya terjadi pada permukaan saja dan dimungkinkan pada katalis ketika pemutusan rantai C-C kurang selektif.

Rodiansono dkk (2007) melakukan proses hidrorengkah fraksi sampah plastik dengan jenis polipropilen menjadi fraksi bensin menggunakan katalis NiMo/Z dan NiMo/Z-Nb₂O₅. Pada penelitian ini didapatkan aktivitas katalis yang paling tinggi adalah katalis Ni-Mo/Z yaitu menghasilkan fraksi total C₅-C₁₂ sebesar 64,60 %.

Penelitian ini tidak menggunakan % fraksi total C₅-C₁₂, akan tetapi menggunakan % fraksi kondensat yang menghasilkan % fraksi lebih kecil dibanding jika dihitung menggunakan % fraksi total C₅-C₁₂.

Simpulan

Berdasarkan hasil penelitian dan pembahasan, maka dapat diambil kesimpulan bahwa karakteristik katalis Ni/ZA yang telah dipreparasi menggunakan metode sonokimia yang mempunyai jumlah logam Ni teremban paling banyak ialah katalis Ni-5%/ZA yaitu sebesar 1,44 gram dengan besar persentase efisiensi 98 % dan jumlah situs asam paling besar diantar katalis Ni-3%/ZA dan Ni-4%/ZA yaitu 5,6255 mmol/gram dan memiliki luas permukaan spesifik besar yaitu 160,6 m²/gram. Untuk rerata jejari pori dan volume pori paling besar dari ketiga katalis yang telah dipreparasi yaitu katalis Ni-4%/ZA, dengan rerata jejari pori sebesar 33,14 Å dan volume pori sebesar 0,185 cc/g. Aktivitas katalis Ni/ZA pada proses perengkahan polipropilen menunjukkan adanya produk yang dihasilkan dari proses perengkahan tersebut dengan % fraksi kondensat terbesar yaitu 3,46 % menggunakan katalis Ni-4%/ZA dan menghasilkan senyawa antara lain dari turunan heptana, heksena, heptana, heptena, nonana, deksena dan undeksena. Aktivitas katalis Ni/ZA pada proses perengkahan polietilen menunjukkan adanya produk yang dihasilkan dari proses perengkahan terbesar dengan % fraksi kondensat terbesar yaitu 5,07 % menggunakan katalis Ni-4%/ZA.

Daftar Pustaka

- Agra, I.B. 1995. Penyulingan Kering Sampah Plastik. Karya Penelitian
- Handoko, D.S.P. 2002. Pengaruh Perlakuan Asam, Hidotermal, dan Impregnasi Logam Kromium pada Zeolit Alam dalam Preparasi Katalis. *Jurnal ILMU DASAR*. 3(2)
- Liu, J., Cao, Z., Xu, X. 2006. Hydro-upgrading of FCC Gasoline on Ni-Mo-P/USY Catalyst. *Buletin of the Catalysis Society of India*
- Prasetyaningsih, F.E. 2011. Pembuatan Katalis Ni/Zeolit Untuk Reaksi Perengkahan Katalitik Limbah Plastik Menggunakan *Fixed Bed Reactor*. Skripsi S-1. Universitas Diponegoro. Semarang
- Rodiansono, Trisunaryanti, W. dan Triyono. 2007. Pembuatan, Karakterisasi dan Uji aktivitas Katalis NiMo/Z dan NiMo/Z-Nb₂O₅ Pada Reaksi Hidrorengkah Fraksi Sampah Plastik Menjadi Fraksi Bensin. *Berkala MIPA*. 17 (2): 43-54
- Setyawan, P.H.D. 2009. Aktivitas Katalis Ni/Zeolit Pada Konversi Katalitik Metil Ester Minyak Goreng Jelantah (MEWCO) Pada Temperatur 450°C menjadi Senyawa Fraksi Bahan Bakar. *Jurnal ILMU DASAR*. 8 (1)
- Sutarno, Yateman, A. and Stefani W. 2003. Pengaruh Rasio Mol Si/Al Larutan Prekursor pada Karakter Struktur MCM-41 dari Abu Layang. *Indonesian Journal of Chemistry*. 3 (2): 126-13
- Trisunaryanti, W., Triwahyuni, E. dan Sudiono, S. 2005. Preparasi, Modifikasi dan Karakterisasi Katalis Ni-Mo/Zeolit Alam dan Mo-Ni/Zeolit Alam. *TEKNOIN*. 10 (4): 269-282
- Triyono. 2002. Kimia Katalis. FMIPA UGM. Yogyakarta