

UNIVERSITAS INDONESIA

DEAKTIVASI DAN REGENERASI KATALIS HZSM-5 PADA BERBAGAI RASIO Si/Al DALAM REAKSI ASETON MENJADI HIDROKARBON

SKRIPSI

ALTHA MARISSA 0806368263

FAKULTAS TEKNIK
PROGRAM STUDI TEKNIK KIMIA
DEPOK
JUNI 2011



UNIVERSITAS INDONESIA

DEAKTIVASI DAN REGENERASI KATALIS HZSM-5 PADA BERBAGAI RASIO Si/Al DALAM REAKSI ASETON MENJADI HIDROKARBON

SKRIPSI

Diajukan sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar sarjana

ALTHA MARISSA 0806368263

FAKULTAS TEKNIK
PROGRAM STUDI TEKNIK KIMIA
DEPOK
JUNI 2011

HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS

Skripsi ini adalah hasil karya saya sendiri,

dan semua sumber baik yang dikutip maupun dirujuk

telah saya nyatakan dengan benar.

Nama : Altha. Marissa

NPM : 0806368263

Tanda Tangan

Tanggal: Juni 2011

HALAMAN PENGESAHAN

Skripsi ini diajukan oleh

Nama : Altha. Marissa NPM : 0806368263 Program Studi : Teknik Kimia

Judul Skripsi : Deaktivasi dan Regenerasi Katalis HZSM-5 pada

Berbagai Rasio Si/Al dalam Reaksi Aseton Menjadi

Hidrokarbon

Telah berhasil dipertahankan di hadapan Dewan Penguji dan diterima sebagai bagian persyaratan yang diperlukan untuk memperoleh gelar Sarjana Teknik pada Program Studi Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Indonesia

DEWAN PENGUJI

Pembimbing : Ir. Setiadi, M.Eng

Penguji : Prof. Dr. Ir. M. Nasikin, M.Eng

Penguji : Dr. Ir. Sukirno, M.Eng

Penguji :Dr. Heri Hermansyah, ST., M.Eng (

Ditetapkan di : Depok

Tanggal : Juni 2011

UCAPAN TERIMA KASIH

Puji syukur saya panjatkan kepada Tuhan Yang Maha Esa, karena atas berkat dan rahmat-Nya, saya dapat menyelesaikan skripsi ini. Penulisan skripsi ini dilakukan dalam rangka memenuhi salah satu syarat untuk mencapai gelar Sarjana Teknik Jurusan Teknik Kimia pada Fakultas Teknik Universitas Indonesia. Saya menyadari bahwa, tanpa bantuan dan bimbingan dari berbagai pihak, dari masa perkuliahan sampai pada penyusunan skripsi ini, sangatlah sulit bagi saya untuk menyelesaikan skripsi ini. Oleh karena itu, saya mengucapkan terima kasih kepada:

- 1. Ir. Setiadi, M.Eng. selaku dosen pembimbing yang telah menyediakan waktu, tenaga dan pikiran, serta kesabaran untuk mengarahkan saya dalam penyusunan seminar ini;
- 2. Dr. Ir. Widodo W. Purwanto, DEA. selaku Ketua Departemen Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Indonesia;
- 3. Ir. Sukirno, M.Eng. selaku Pembimbing Akademik penulis;
- 4. Seluruh Dosen Teknik Kimia FTUI yang telah memberikan ilmu dan membagi wawasan kepada penulis;
- 5. Papah, mamah, kakak, adik, ponakan, mas yuyut dan keluarga tercinta yang senantiasa memberikan dukungan moril dan materil;
- 6. Mas Eko, Kang Djajat, Mang Ijal, Tiwi sebagai penangung jawab laboratorium yang selalu mendampingi selama penelitian ini.
- 7. Lia, Anggi, Novi, Eci, Dora, Tatink, Gondang, Haris, Antony, Friadi atas dukungan dan persahabatannya dalam bertukar informasi dan wawasan yang ada;
- 8. Damar dan Yasir atas kerjasamanya dalam pengerjaan skripsi ini;
- 9. Rekan-rekan mahasiswa Teknik Kimia Ekstensi '08 atas semua kerjasamanya;
- 10. Serta berbagai pihak yang tidak dapat disebutkan satu persatu untuk segala kontribusinya.

Akhir kata, saya berharap Tuhan Yang Maha Esa berkenan membalas segala kebaikan semua pihak yang telah membantu. Semoga skripsi ini membawa manfaat bagi pengembangan ilmu.

Depok, 20 Desember 2006



HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI TUGAS AKHIR UNTUK KEPENTINGAN AKADEMIS

Sebagai sivitas akademik Universitas Indonesia, saya yang bertanda tangan di bawah ini:

Nama : Altha. Marissa
NPM : 0806368263
Program Studi : Teknik Kimia
Departemen : Teknik Kimia

Fakultas : Teknik Jenis karya : Skripsi

demi pengembangan ilmu pengetahuan, menyetujui untuk memberikan kepada Universitas Indonesia **Hak Bebas Royalti Noneksklusif** (*Non-exclusive Royalty-Free Right*) atas karya ilmiah saya yang berjudul:

DEAKTIVASI DAN REGENERASI KATALIS HZSM-5 PADA BERBAGAI RASIO Si/Al DALAM REAKSI ASETON MENJADI HIDROKARBON

beserta perangkat yang ada (jika diperlukan). Dengan Hak Bebas Royalti Noneksklusif ini Universitas Indonesia berhak menyimpan, mengalihmedia/formatkan, mengelola dalam bentuk pangkalan data (*database*), merawat, dan memublikasikan tugas akhir saya selama tetap mencantumkan nama saya sebagai penulis/pencipta dan sebagai pemilik Hak Cipta.

Demikian pernyataan ini saya buat dengan sebenarnya.

Dibuat di : Depok Pada tanggal : Juni 2011 Yang menyatakan

(Altha. Marissa)

ABSTRAK

Nama : Altha Marissa

Program Studi: Teknik Kimia

Judul : Deaktivasi Dan Regenerasi Katalis HZSM-5 Pada

Berbagai Rasio Si/Al Dalam Reaksi Aseton Menjadi

Hidrokarbon.

Katalis HZSM-5 biasa digunakan untuk mengkonversi aseton menjadi hidrokarbon. Katalis ini akan mengalami deaktivasi pada waktu tertentu dan hal tersebut dipengaruhi oleh kandungan rasio Si/Al. Pada penelitian ini, katalis diuji dengan mengunakan reaktor unggun tetap (*fixed bed*), dengan variasi Si/Al 27, 75 dan 140. Karakterisasi katalis menggunakan metode BET, FT-IR dan uji keasaman. Dari penelitian diperoleh hasil bahwa katalis dengan rasio Si/Al=75 memiliki stabilitas konversi aseton selama 7 jam dan memiliki tingkat keasaman paling tinggi. Penyebab deaktivasi katalis yaitu terbentuknya kokas. Keberadaan kokas ini diamati dengan mengunakan FT-IR pada rentang 1540-1600 cm⁻¹ dan metode BET yang menunjukan penurunan luas permukaan sebesar 85-90%. Regenerasi katalis telah berhasil dilakukan dengan mengunakan udara. Luas permukaan katalis setelah regenerasi diperoleh sebesar 285,4 m²/gram dan terdapat pita kokas pada spektrum serapan FT-IR dengan rentang bilangan gelombang 1540-1600 cm⁻¹.

Kata Kunci: Deaktivasi, Regenerasi, HZSM-5, Rasio Si/Al

ABSTRACT

Name : Altha Marissa

Program : Chemical Engineering

Title : Deactivation and Regeneration of HZSM-5 Catalyst at Various

Ratios of Si / Al Reaction of Acetone Being in Hydrocarbons.

HZSM-5 catalysts used to convert acetone into hydrocarbons. The catalyst will undergo deactivation at any given time and it is influenced by the content ratio of Si / Al. In this study, the catalyst was tested by using a fixed bed reactor (fixed bed), with variations of Si / Al 27, 75 and 140. Characterization of catalysts using the BET method, FT-IR and acidity test. From the studies obtained results that the catalyst with the ratio Si / Al = 75 has the stability of the conversion of acetone for 7 hours and has the highest acidity. The cause of catalyst deactivation is coke formation. The presence of coke is observed by using FT-IR in the range 1540-1600 cm⁻¹ and BET methods that show a decrease of 85-90% of surface area. Regeneration of the catalyst has been successfully performed by using air. The surface area of the catalyst after regeneration is obtained at 285.4 m²/gram and there is a ribbon coke in the FT-IR absorption spectrum with the wavenumber range 1540-1600 cm⁻¹.

Keywords: Deactivation, Regeneration, HZSM-5, the ratio of Si/Al

DAFTAR ISI

HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS	ii
HALAMAN PENGESAHAN	iii
KATA PENGANTAR	iv
HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI	vi
ABSTRAK	vii
ABSTRACT	viii
DAFTAR ISI	ix
DAFTAR TABEL	xi
DAFTAR GAMBAR	xii
BAB I PENDAHULUAN	1
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Perumusan Masalah	3
1.3 Tujuan Penelitian	3
1.4 Batasan Masalah	3
1.5 Sistematika Penulisan	4
BAB II TINJAUAN PUSTAKA	5
2.1 Aseton	5
2.2 Katalis	
2.3 Zeolit	7
2.3.1 Sejarah Zeolit	7
2.3.2 Stuktur Zeolit	7
2.3.3 Penggunaan Zeolit	10
2.4 ZSM-5	
2.5 Deaktivasi	15
2.5.1 <i>Coking</i>	17
2.6 Deaktivasi Katalis	
2.6.1 Pembentukan Coke	21
2.6.2 Pembatasan Pembentukan Coke	22
2.6.3 Meminimalisir Efek Deaktivasi Coke	24
2.7 Regenerasi	
2.8 State of the art	28
BAB III METODE PENELITIAN	33
3.1 Tahapan Penelitian	33
3.2 Diagram Alir	
3.3 Uraian Terperinci Penelitian	
3.3.1 Uji Reaksi Katalis	
3.3.2 Uji Karakteristik Katalis	
3.3.3 Uji Regenerasi Katalis	
3.4 Hasil Yang Diharankan Dalam Metode Penelitian	42.

BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN	45
4.1 Hasil Uji Konversi Katalitik	45
4.1.1 Tahap <i>Blank Tes</i>	
4.1.2 Deaktivasi Katalis HZSM-5 Pada Berbagai Rasio Si/A1	46
4.2 Karakteristik Katalis	47
4.2.1 Uji Keasaman	
4.2.2 Tingkat Keasaman Dan Deaktivasi Katalis Untuk Rasio	
Si/Al=27	50
4.2.3 Karakterisasi Dengan Metode BET	51
4.2.4 Karakterisasi Dengan FT-IR	
BAB V PENUTUP	61
5.1 Kesimpulan	
5.2 Saran	
DAFTAR PUSTAKA	63
LAMPIRAN	65

DAFTAR TABEL

Tabel 2.1 Rangkuman State	of the art Deaktivasi Katalis HZSM-5	32
Tabel 4.1 Luas Permukaan.	Volume Pori dan Luas Pori Katalis	53



DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1 Skema Reaksi untuk Konversi dari Aseton Menjadi	
Hidrokarbon dengan Menggunakan HZSM-5	5
Gambar 2.2 Kerangka dasar tetrahedral	9
Gambar 2.3 Unit Pembentuk Sekunder	9
Gambar 2.4 Polyhedron simetris	10
Gambar 2.5 Rongga selektif reaktan zeolit	
Gambar 2.6 Rongga selektif produk	12
Gambar 2.7 Perubahan keasaman zeolit	13
Gambar 2.8 Grafik konversi menunjukan penurunan aktivasi katalis	16
Gambar 2.9 Pertambahan coke sejalan dengan waktu	18
Gambar 2.10 Mekanisme pembentukan coke	19
Gambar 2.11 Hubungan karbon dengan tingkat konversi	19
Gambar 2.12 Laju deaktivasi dengan katalis silica-alumina dan faujasite	
Gambar 2.13 Laju coking dan rasio C/P selama cracking n-heptan sebagai	
fungsi % exchange dari kation Na ⁺	23
Gambar 2.14 Model deaktivasi zeolit dengan saluran saling berhubungan	
dan tanpa rongga (co HZSM-5). (a dan b) cakupan situs; (d)	
penyumbatan pori	24
Gambar 2.15 Hubungan antara teknologi reaktor dan kecepatan deaktivasi	
katalis dalam berbagai variasi	26
Gambar 2.16 State of the art Deaktivasi Katalis	28
Gambar 3.1 Diagram alir penelitian secara umum	34
Gambar 3.2 Reaktor Uji	35
Gambar 3.3 Susunan Reaktor Uji Katalis Fixed Bed Reaktor	37
Gambar 3.4 Skema Peralatan BET	41
Gambar 3.5 Susunan reaktor uji regenerasi katalis fixed bed reactor	42
Gambar 3.6 Hasil yang diharapkan rasio 1 Si/Al (25)	43
Gambar 3.7 Hasil yang diharapkan rasio 2 Si/Al (75)	44
Gambar 3.8 Hasil yang diharapkan rasio 3 Si/Al (140)	44

Gambar 4.1 Deaktivasi Katalis HZSM-5 dalam Berbagai Rasio Si/Al dalam	
Katalis HZSM-5	. 46
Gambar 4.2 Katalis HZSM-5 Terdeaktivasi dan Regenerasi	. 47
Gambar 4.3 Keasaman total zeolit HZSM-5 rasio Si/Al= 27, 75 dan 140	. 48
Gambar 4.4 Deaktivasi katalis HZSM-5 dengan Berbagai Rasio Si/Al	. 49
Gambar 4.5 Penurunan Tingkat Keasaman Katalis HZSM-5 dengan Rasio	
Si/Al=27	. 50
Gambar 4.6 Penurunan Kinerja Katalis HZSM-5 dengan Rasio Si/Al=27	. 50
Gambar 4.7 Luas Permukaan Katalis HZSM-5 Rasio Si/Al=27	. 51
Gambar 4.8 Hasil Uji BET Berdasarkan Realtiv Pressure (P/Po) dan	
Volume Nitrogen Teradsopsi	
Gambar 4.9 Volume Pori Katalis HZSM-5	. 53
Gambar 4.10 Luas Pori Katalis HZSM-5	. 54
Gambar 4.11 FTIR Katalis Baru Rasio Si/Al=27	. 54
Gambar 4.12 FTIR Katalis Baru Rasio Si/Al=140	. 55
Gambar 4.13 FTIR Katalis Zeolit HZSM-5 Rasio Si/Al=27	. 55
Gambar 4.14 Spektrum FTIR pada Kokas Katalis 0,4Pt/La-X	. 56
Gambar 4.15 Spektrum pita FTIR untuk Deposit Kokas pada Zeolit HZSM-	
5 Si/Al=27	. 57
Gambar 4.16 FTIR Katalis Zeolit HZSM-5 Rasio Si/Al=140	. 58
Gambar 4.17 Spektrum Pita FTIR untuk Deposit Kokas pada Zeolit HZSM-	
5 Si/Al=140	. 59
Gambar 4.18 Spektrum FTIR untuk Ikatan Asam Brounsted Zeolit HZSM-5	
Si/Al=27	. 60

BABI

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Proses kimia yang menggunakan katalis adalah proses perekatan hidrokarbon. Katalis yang digunakan adalah katalis yang bersifat asam, yaitu sebuah katalis yang dapat menghasilkan karbokation pada permukaannya. Zeolit dapat digunakan sebagai katalis dalam proses katalitik. Ciri paling khusus pada zeolit adalah adanya ruang kosong yang membentuk saluran didalamnya. Bila zeolit digunakan dalam proses katalisis maka akan terjadi difusimolekul kedalam ruang bebas antar kristal dan reaksi kimia juga terjadi di permukaan saluran tersebut (Bahtia, 2000).

Pada penelitian ini zeolit yang digunakan adalah zeolit HZSM-5. Zeolit HZSM-5 dikenal sebagai zeolit sintetik yang mempunyai permukaan inti asam dan stuktur jaringan pori yang luas serta homogen. Stuktur kerangka jenis bahan alumina silika tersebut terbentuk dari bahan dasar pembangun berupa tetrahedron atom silikon atau alumunium. Kemampuan HZSM-5 untuk mempercepat berbagai jenis reaktan sangat berkaitan dengan rasio keasamannya dan parameter penting HZSM-5 yang bisa dikontrol dengan rasio Si/Al. Beragam variasi Si/Al sama sekali tidak akan mempengaruhi struktur kerangka HZSM-5, tetapi diharapkan menyebabkan pertukaran dalam asam dan distribusi kekuatan asam (Bahtia, 2000).

Berbagai hasil penelitian (Setiadi *et al.*, 2003) telah dapat menyimpulkan bahwa HZSM-5 mempunyai kemampuan selektivitas yang tinggi berdasarkan bentuk dan ukuran pori (*shape selective catalyst*) kearah terbentuknya berbagai jenis molekul yang berdiameter kinetik maksimal sekitar 0.6 nm, dimana sangat sesuai dengan hidrokarbon aromatik (benzen, toluen, xilena, grup senyawa C9 aromatis, dll). Reaksi konversi aseton menjadi hidrokarbon telah terbukti dapat dilakukan dengan baik pada suhu 673 K dan space velocity sebesar 4h⁻¹ pada tekanan atmosferik. Konversi aseton yang didapat mendekati 100%. Namun terjadi penurunan aktivitas (deaktivasi) setelah 17 jam karena penutupan pori

katalis oleh kokas yang pembentukannya berasal dari reaksi konversi aseton tersebut (Setiadi, 2005).

Idealnya, katalis seharusnya mempunyai kestabilan reaksi atau umur yang lama. Tetapi pada kenyataannya katalis dapat mati setelah digunakan akibat berbagai macam hal yang dapat menghilangkan kemampuan mereka. Beberapa katalis hanya dapat bertahan beberapa menit saja, sedangkan yang lain bisa mencapai 10 tahun (Richardson, 1982). Ketika aktivitas katalis menjadi lebih pendek, misalnya sekitar setengah tahun, fasilitas khusus untuk regenerasi katalis menjadi penting, terutama jika menyangkut mahalnya katalis. Pada metode operasi semi-regeneratif, katalis tetap berada dalam reaktor selama regenerasi berlangsung (S.T.Sie, 2001). Regenerasi katalis dapat dilakukan baik secara *exsitu* atau *in-situ*. Dalam berbagai kasus, regenerasi dapat dilakukan dengan fasilitas terpisah di lokasi yang berbeda dari proses utama dan bahkan regenerasi dapat dilakukan oleh perusahaan lain (*ex-situ*). Regenerasi *in-situ* adalah fasilitas regenerasi yang merupakan bagian integral dari proses instalasi (S.T.Sie, 2001).

Menurut Jong *et al.*, 1997, dalam regenerasi zeolit HZSM-5 yang diakibatkan oleh adanya *coke* (kokas), dilakukan selektifitas penghapusan dan transformasi senyawa karbon selama reaktivasi dengan menggunakan udara, 0,5% O₂ dalam N₂, dan H₂ pada suhu 500°C. Dalam penelitiannya ditemukan bahwa pengotor katalis yang diregenerasi dengan udara berada pada dua tempat, yang pertama berada didalam kristal kokas hadir didekat situs asam Bronsted, sedangkan yang kedua berada diluar permukaan kristal.

Dari hasil penelitian sebelumnya telah disinyalir adanya kokas sebagai penyebab deaktivasi, tetapi hal ini belum cukup menjelaskan bagaimana deaktivasi itu berpengaruh terhadap karakter katalis HZSM-5, sehingga hal penting yang dilakukan pada penelitian ini adalah karakterisasi dari HZSM-5 pada keadaan awal (baru) dan sesudah deaktivasi dengan uji keasaman, FT-IR dan BET. Selain itu, pentingnya proses regenerasi katalis yang telah terdeaktivasi merupakan salah satu hal yang dipertimbangkan pada penelitian ini. Untuk itu pula pada penelitian ini digunakan udara untuk meregenerasi katalis yang telah terdeaktivasi sehingga dapat diketahui bagaimana karakteristik dari katalis yang diregenerasi dan kemungkinan penggunaan kembali katalis.

1.2 Perumusan Masalah

Untuk mengetahui perilaku deaktivasi dan regenerasi katalis dalam reaksi aseton menjadi hidrokarbon, maka berbagai hal yang harus diketahui dalam penelitian ini adalah:

- Bagaimanakah perbedaan perilaku deaktivasi katalis HZSM-5 berbagai rasio Si/Al dalam mengkonversi aseton.
- 2. Bagaimanakah karakteristik HZSM-5 pada kondisi belum terdeaktivasi dan sesudah digunakan sebagai katalis dalam reaksi mengalami perubahan.
- 3. Bagaimanakah regenerasi katalis HZSM-5 setelah mengalami deaktivasi dapat dikembangkan sehingga katalis HZSM-5 menjadi katalis baru.

1.3 Tujuan Penelitian

- 1. Mengkaji pengaruh rasio Si/Al terhadap prilaku deaktivasi katalis HZSM-5 dalam reaksi aseton.
- 2. Karakterisasi katalis HZSM-5 dalam keadaan awal (baru), sesudah deaktivasi maupun setelah regenarasi terjadi, dengan mengunakan BET, FT-IR, GC-FID dan Uji Keasaman untuk menjelaskan prilaku karakteristik deaktivasi katalis.
- 3. Mengetahui karakterisasi katalis HZSM-5 setelah diregenerasi dengan menggunakan udara.

1.4 Batasan Masalah

Pada penelitian ini penulis membatasi permasalahan yang akan di angkat agar lebih fokus serta sesuai dengan perumusan dan tujuan penelitian, maka dilakukan pembatasan masalah sebagai berikut:

- 1. Bahan baku yang digunakan dalam penelitian adalah aseton murni.
- Penyebab deaktivasi katalis diketahui dengan mengunakan metode karakterisasi katalis.
- 3. Regenerasi dilakukan secara kualitatif dengan mengunakan udara.
- 4. Katalis yang digunakan dalam reaksi aseton menjadi hidrokarbon adalah HZMS-5 dengan rasio Si/Al 27, 75, 140.
- 5. Reaksi konversi katalitik aseton dilakukan di dalam reaktor tabung yaitu jenis unggun tetap (*Fixed bed reactor*).

1.5 Sistematika Penulisan

Sistematika penulisan terdiri dari lima bab, yaitu:

- Bab I PENDAHULUAN, bab ini berisi tentang gambaran secara umun permasalahan yang akan diungkap mencangkup latar belakan masalah, rumusan masalah, tujuan penelitian, batasan masalah dan sistematika penulisan.
- Bab II TINJAUAN PUSTAKA, bab ini mengemukakan tentang informasi dan teori-teori yang mendukung penelitian studi deaktivasi dan regenerasi katalis zeolit H-ZMS-5 dalam reaksi aseton menjadi senyawa hidrokarbon berdasarkan perbedaan temperatur dan komposisi katalisnya.
- Bab III METODE PENELITIAN, bab ini berisi tentang metode yang akan dipakai dalam penelitian yang pencangkup tahapan-tahapan penelitian yang dilakukan yaitu mulai dari metode pengumpulan data sampai pengolahan data. Menjelaskan diagram penelitian, prosedur percobaan, jenis bahan dan alat yang dipakai serta susunan dan fungsinya dalam percobaan.
- Bab IV HASIL DAN PEMBAHASAN, bab ini berisi rumusan hasil penelitian dan analisis yang berkaitan dengan fenomena deaktivasi dan regenerasi katalis yang terjadi berdasarkan variasi Si/Al.
- Bab V PENUTUP, bab ini berisi kesimpulan dan saran hasil penelitian.

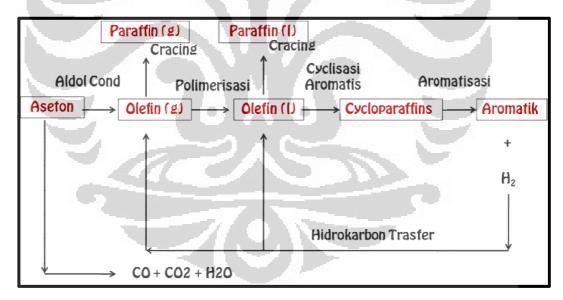
BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Aseton

Aseton merupakan senyawa organik yang dapat diproduksi dari proses fermentasi maupun dari hasil reaksi katalitik produk turunan biomassa. Akan menjadi suatu skema rute baru, apabila senyawa aseton tersebut dapat ditrasformasi menjadi senyawa hidrokarbon aromatis. Senyawa tersebut merupakan bahan baku utama yang penting dalam proses industri kimia (Setiadi, 2005).

Secara umum, berlangsungnya reaksi aseton adalah melalui mekanisme reaksi kondensasi aldol. Reaksi konversi katalitik aseton menjadi hidrokarbon pada penelitian ini melibatkan banyak reaksi, seperti reaksi polimerisasi (aldol condensation), cracking, aromatisasi dan pembentukan coke.



Gambar 2.1 Skema Reaksi untuk Konversi dari Aseton Menjadi Hidrokarbon dengan Menggunakan HZSM-5 (Enrique Costa, 1992)

Olefin C2-C4 fasa gas yang merupakan produk intermediate akan dihasilkan dari perengkahan aseton. Olefin dengan berat molekul lebih besar akan terbentuk dari reaksi polimerisasi. Setelah itu akan mengalami siklisasi membentuk sikloparafin / sikloolefin kemudian mengalami reaksi aromatisasi

sehingga menghasilkan hidrokarbon aromatik dan melepaskan hidrogen. Hidrogen yang dilepaskan ini akan bereaksi dengan olefin membentuk parafin melalui reaksi hidrogenasi. Hidrogenasi merupakan suatu penambahan senyawa hidrogen, salah satunya terjadi pada olefin sesuai dengan skema reaksi konversi katalitik pada gambar 2.1, dimana olefin akan berubah menjadi paraffin.

Pembentukan aromatik hidrokarbon, campuran polisiklik dan polialkilnaphtha dapat menyebabkan *coke*. *Coke* yang terbentuk dapat menyebabkan katalis terdeaktivasi.

2.2 Katalis

Katalis adalah zat yang meningkatkan laju reaksi kimia, tetapi zat itu tidak mengalami perubahan kimia yang permanen. Katalis yang fasenya (wujudnya) sama dengan reaksi dinamakan katalis homogen (misalnya enzim dalam reaksi biokimia atau kompleks logam transisi yang digunakan dalam fase cair untuk mengkatalisis reaksi organik). Katalis yang fasenya berbeda disebut katalis heterogen (misalnya logam atau oksida yang digunakan dalam banyak reaksi gas di industri). Katalis menimbulkan lintas alternatif bagi jalannya reaksi, dengan energi aktivasi yang lebih rendah. Dengan demikian, laju pencapaian kesetimbangan dipercepat, walaupun katalis tidak merubah posisi kesetimbangan. Katalis sendiri berperan dalam reaksi, dan karena itu dapat menjalani perubahan fisik (misalnya berubah menjadi serbuk). Dalam beberapa hal, sejumlah kecil katalis dapat mempercepat reaksi dalam jumlah besar. Beberapa katalis juga sangat spesifik untuk jenis reaksi yang dikatalisisnya, terutama dalam reaksi biokimia. Biasanya, katalis yang mempercepat reaksi dinamakan katalis negatif (Oxford, 1994).

Katalis memiliki beberapa parameter yang harus diperhatikan untuk menilai kualitas suatu katalis sebagai berikut:

- 1. Aktivitas, yaitu kemampuan katalis untuk mengkonversi reaktan menjadi produk yang diinginkan.
- Selektivitas, yaitu kemampuan katalis untuk mempercepat suatu reaksi diantara beberapa reaksi yang terjadi, sehingga produk yang diinginkan dapat diperoleh dengan produk samping seminimal mungkin.

- 3. Stabilitas, yaitu lamanya katalis memiliki aktivitas dan selektivitas seperti pada keadaan semula.
- 4. Yield, yaitu jumlah produk tertentu untuk setiap satuan reaktan yang terkonsumsi.
- 5. Kemudahan diregenerasi, yaitu proses pengembalian aktivitas dan selektivitas katalis pada keadaan semula.

2.3 Zeolit

2.3.1 Sejarah Zeolit

Zeolit secara umum didefinisikan sebagai suatu mineral Aluminosilikat dengan struktur kristal berongga, yang berisi ion-ion logam dan molekul air. Ion logam dan molekul air ini dapat bergerak bebas sehingga dapat terjadi pertukaran ion dan dehidrasi yang *reversible* tanpa ada perubahan bentuk (Srihapsari.D, 2006).

Pada tahun 1858, Einchorn menunjukkan bahwa zeolit dapat bertindak sebagai penukar kation yang sifatnya *reversible*. Zeolit berfungsi sebagai penukar kation mulai dikembangkan pada awal tahun 1960 oleh Ames dkk.

Terdapat dua jenis zeolit yang dapat digunakan sebagai katalis. Pertama, zeolit alam yang terbentuk melalui proses alami, sedangkan yang kedua adalah zeolit sintesis, zeolit ini diperoleh melalui proses sintesis dan direkayasa oleh manusia sehingga sifat-sifatnya dapat dimodifikasi dengan memvariasikan kadar alumunium (Al) dan silika (Si). (Darius, 2006)

2.3.2 Struktur Zeolit

Zeolit merupakan kristal aluminasilika yang terbentuk oleh struktur pori seragam yang memiliki minimum diameter saluran sekitar 0,3-1,0 nm. Pada dasarnya ukuran tergantung pada jenis zeolit. Zeolit memiliki aktivitas dan selektivitas yang tidak biasa untuk berbagai variasi reaksi asam. Sebagian besar ini disebabkan sifat keasaman zeolit (Linna, 2010).

Struktur zeolit terdiri atas tiga dimensi SiO₄ atau tetrahedral AlO₄. Masing-masing terdiri dari atom Silikon dan Alumunium di pusat. Atom oksigen terletak berdampingan membentuk tetrahedral, dimana dapat berada pada berbagai

rasio dan tersusun dengan berbagai cara (Prilly, 2006). Kerangka yang terbentuk terdiri atas rumus kimia unit sel zeolit adalah sebagai berikut:

$$Mn_{x/n}^{+}[(AlO_{2}^{-})_{x}(SiO_{2})_{y}]_{x}H_{2}O$$

Dengan,

 $M^{+}_{x/n}$: merupakan katoin bervalensi n yang dapat ditukar dan tidak termasuk struktur rangka aluminasilika.

[] : melambangkan struktur rangka aluminasilika.

x : pada H₂O, menunjukan jumlah molekul air didalam struktur zeolit.

x & y : pada [], menunjukan jumlah tetrahedron (SiAl)O₄ didalam suatu unit sel dimana y > x.

Berdasarkan rumus tersebut dapat disimpulkan bahwa zeolit tersebut dibagi menjadi tiga komponen, yaitu:

- 1. Kerangka aluminasilika.
- 2. Kation-kation.
- 3. Molekul air.

Kation-kation dan molekul-molekul air tidak termasuk pada kerangka aluminasilika, tetapi mengisi rongga diantara kerangka (Darius, 2006). Kerangka aluminasilika sebagai unit dari zeolit yang secara keseluruhan sangat kompleks tersusun menjadi unit-unit pembentuk sebagai berikut:

1. Unit pembentuk primer, yaitu tetrahedron yang mengandung (Si, Al) O₄. Dikeempat sudut tetrahedronnya terdapat atom-atom oksigen yang digunakan bersama-sama oleh dua tetrehedron yang berdekatan, dimana atom-atom oksigen tersebut mengelilingi pusat-pusat silikon atau alumunium. Hal ini dapat dilihat pada gambar 2.2, sebagai berikut:



Model Bola Tongkat Model Padatan Model Kerangka Model Kelompok
Bola

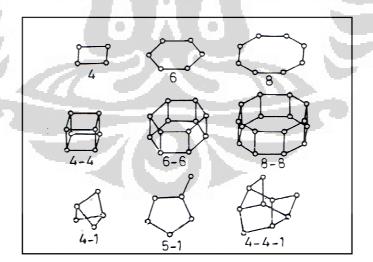
Gambar 2.2 Kerangka dasar tetrahedral

2. Unit pembentuk sekunder, yaitu pengabungan unit-unit pembentuk primer dengan cara menyusun atom-atom pusat hingga membentuk sudut-sudut tertentu yang membagi atom-atom oksigennya. Hal ini dapat dilihat pada gambar 2.3 unit pembentuk sekunder terbagi menjadi tiga jenis, yaitu:

a. *Single ring* : S4R, S6R, S8R, S10R, S12R.

b. Double ring : D4R, D6R, D8R.

c. Complex ring: 4-1, 5-1, 4-4-1.

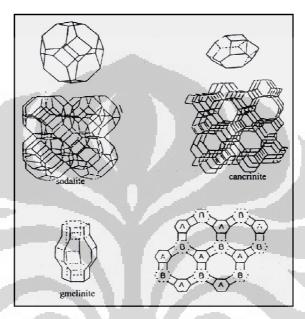


Gambar 2.3 Unit Pembentuk Sekunder (Bahtia, 2000)

3. Polyhedron simetris, yaitu unit pembentuk sekunder bergabung membentuk satu polyhedron simetris yang arah pertumbuhannya sesuai dengan tiap-tiap

bidang kristal unit pembentuk sekunder yang dapat dilihat pada gambar 2.4 polyhedron simetris terbagi menjadi tiga jenis, yaitu:

- a. Trunkated octahedron (T,O) atau unit sodalite.
- b. 11-Hedron atau unit *cancrinite*.
- c. 14-Hedron atau unit *gmelinite*.



Gambar 2.4 Polyhedron simetris (Meier, W.M and D.H. Olson, 1992).

4. Struktur zeolit secara keseluruhan, merupakan gabungan polihedronpolihedron simetris sehingga membentuk jaringan rongga teratur kesegala arah yang dapat terisi oleh kation-kation dan molekul air.

2.3.3 Penggunaan Zeolit

2.3.3.1 Zeolit sebagai Katalisator

Zeolit merupakan katalis yang cukup efektif untuk proses *hydrocarbon alkylation, isomerization,* dan perengkahan. Tiga sifat zeolit yang berperan dalam fungsinya sebagai katalis adalah:

- 1. Penyaring molekul. Sifat ini menyaring pereaksi, hasil antara produk akhir yang terlibat dalam proses katalisis oleh zeolit katalis.
- 2. Pusat asam. Adanya pusat asam ini memberikan medium yang kondusif (lebih reaktif) untuk proses katalisis.

3. Si/Al yang tinggi menyebabkan keasaman yang tinggi. Setiap zeolit memiliki batasan Si/Al yang optimum untuk bahan katalis.

Salah satu proses kimia yang mengunakan katalis adalah proses perengkahan hidrokarbon. Katalis yang digunakan adalah katalis yang bersifat asam, yaitu sebuah katalis yang dapat menghasilkan karbokation pada permukaannya. Larutan asam dapat digunakan akan tetapi dalam operasi mengalami banyak masalah seperti korosi, pemisahan produk dan katalis ada yang hilang.

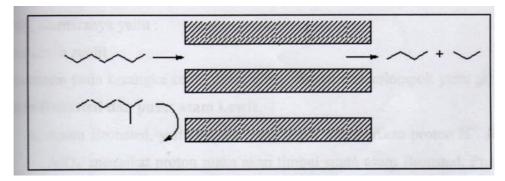
Zeolit dapat digunakan sebagai katalis dalam proses katalitik. Ciri paling khusus dari zeolit adalah adanya ruang kosong yang membentuk saluran didalamnya. Bila zeolit digunakan pada proses katalisis maka akan terjadi difusi molekul kedalam ruang bebas antara kristal dan reaksi kimia juga terjadi dipermukaan saluran tersebut.

2.3.3.2 Zeolit sebagai katalis selektif bentuk

Zeolit dimanfaatkan sebagai katalis karena tersedianya pusat aktif dalam sistem pori katalis dan pori tersusun atas satu atau lebih ukuran yang seragam. Sistem pori ini berhubungan dengan sifat kristal dan zeolit. Ukuran pori yang sesungguhnya terbentuk dari struktur cincin pada prakteknya menjadi lebih kecil (bervariasi dengan adanya kation-kation pada permukaan zeolit). Katalis selektivitas dikelompokan dalam beberapa kelompok berikut, yaitu:

1. Selektivitas reaktan

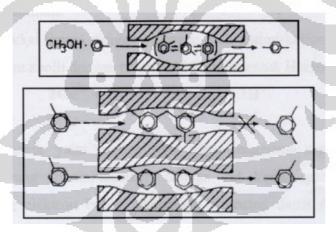
Hal ini berlaku pada umpan yang terdiri dari beberapa molekul, sementara sebagian saja yang selektif reaktan. Contoh yang paling popular adalah reaksi dari umpan yang berisi campuran karbon berantai lurus dan rantai bercabang. Dengan kemampuan selektivitas bentuk dari zeolit, maka hanya rantai lurus saja yang dapat dilewatkan sementara rantai bercabang tidak. Proses ini dapat dilihat pada gambar 2.5 berikut.



Gambar 2.5 Rongga selektif reaktan zeolit (Bhatia, 2000)

2. Selektivitas produk

Selektivitas produk berfungsi manakala produk yang dihasilkan dari suatu reaktan di dalam sitem pori terlalu beragam ukuran molekulnya, sementara hanya molekul dengan ukuran tertentu yang bisa melewati mulut pori, molekul yang tidak dikehendaki akan tersaring. Selanjutnya molekul yang tidak bisa melewati mulut pori tadi akan bereaksi menjadi reaktan yang lebih kecil. Proses selektivitas produk dapat dilihat pada gambar 2.6 berikut ini.



Gambar 2.6 Rongga selektif produk (Bhatia, 2000)

2.5.3.4 Zeolit sebagai katalis asam

Zeolit dapat berfungsi sebagai katalis asam, karena kationnya dapat dipertukarkan. Sebagai contoh zeolit alam, umumnya memiliki kation jenis alkali (misalnya Na⁺), jika kation ini ditukarkan dengan Na₄⁺ yang diikuti pemanasan, maka pada permukaan zeolit akan terdapat ion H⁺. Secara katalitik ion berfungsi sebagai pusat aktif (inti aktif).

Kemampuan zeolit sebagai katalis dikarenakan zeolit memiliki sifat-sifat tertentu, diantaranya yaitu:

1. Keasaman zeolit

Keasaman dalam kerangka zeolit dapat dibagi dalam dua kelompok yaitu pusat asam Bronsted dan pusat asam lewis.

- a. Asam Bronsted, yaitu spesies yang dapat memberikan proton H⁺. Bila AlO₄⁻ mengikat proton maka akan timbul suatu asam Bronsted. Proton ini menempel pada atom-atom oksigen *framework* yang berikatan dengan atom-atom silikon dan alumunium. Asam Bronsted dapat timbul melalui beberapa cara diantaranya adalah:
- ♣ Ionisasi air oleh kation-kation polivalen.

$$Me^{n+} + {}_{x}H_{2}O \to Me(OH)_{x}^{(n-x)^{+}} + {}_{x}H_{2}$$
 (2.1)

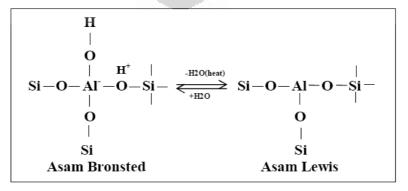
Perlakuan dengan larutan asam

$$M - Z + HA \rightarrow H - Z + MA \tag{2.2}$$

- Lekomposisi thermal dari zeolit hasil pertukaran ion dengan garam ammonium.
- Reduksi logam dengan hidrogen oleh kation-kation logam transisi dalam zeolit dengan tujuan untuk membentuk H-zeolit.

$$2Cu^{2+} + H_2 \to 2Cu^+ + 2H^+ \tag{2.3}$$

b. Asam Lewis, yaitu spesies yang dapat menerima sepasang elektron bebas yang dikombinasikan dengan zat kedua yang mempunyai sepasang elektron bebas. Keasaman Bronsted dapat diubah menjadi keasanam lewis dengan memanaskan pada suhu tinggi.



Gambar 2.7 Perubahan keasaman zeolit (Bhatia, 2000)

Pada gambar 2.7 terlihat bahwa Al mempunyai sisi yang dapat menerima sepasang elektron bebas sehingga dapat bertindak sebagai asam lewis. Asam lewis ini dapat berubah menjadi asam Bronsted dengan hadirnya H₂O pada zeolit dengan disertai pemanasan. Zeolit yang telah melalui tahap pengasaman akan memiliki luas permukaan yang lebih tinggi sehingga peranannya sebagai katalis ataupun penyangga dapat lebih baik.

2. Sifat pori mikronya dapat ditentukan

Zeolit yang berbentuk kristal memiliki banyak ruang kosong yang dapat memegang peranan penting dalam proses katalisis.

3. Ukuran kristal dan morfologinya yang dapat diubah-ubah

Secara umum aktivitas zeolit menurun dengan semakin meningkatnya ukuran kristal. Ukuran kristal yang besar menyebabkan distribusi Al pada kristal yang tidak merata terutama pada permukaan sehingga keasaman dari katalis menurun.

4. Kestabilan termal

Kestabilan termal adalah kemampuan zeolit untuk berfungsi pada temperatur tinggi.

5. Kemampuan pengabungan dengan logam dan logam komplek

Permukaan ion logam atau ion komplek yang diikuti prosedur reduksi yang sesuai dapat menghasilkan zeolit yang mengandung logam sebagai katalis bagi reaksi tertentu. Partikel logam kompleks yang berukuran kecil atau sesuai dengan ukuran pori atau saluran zeolit dapat dipertukarkan ke dalam zeolit dan memberikan sifat selektivitas tertentu pada zeolit.

2.4 ZSM-5

ZSM-5 (Zeolit Socony Mobil-5) merupakan salah satu dari beberapa jenis zeolit. Zeolit sintetis jenis ZSM-5 dikembangkan oleh peneliti-peneliti *Mobile Oil Corp* sekitar tahun 1960. Zeolit ZSM-5 dikenal sebagai jenis zeolit sintetik yang mempunyai permukaan inti asam dan struktur jaringan pori yang luas serta homogen. Struktur kerangka jenis bahan alumino silika tersebut terbentuk dari bahan dasar pembangun berupa tetrahedron atom silikon atau alumunium. Kemampuan ZSM-5 untuk mempercepat berbagai jenis reaksi sangat

berkaitan dengan rasio keasamannya dan parameter penting ZSM-5 bisa dikontrol dengan rasio Si/Al. Namun beragamnya variasi Si/Al ini sama sekali tidak akan mempengaruhi struktur kerangka ZSM-5 tetapi diharapkan menyebabkan pertukaran dalam asam dan distribusi kekuatan asam (Bahtia, 2000).

Zeolit ZSM-5 adalah suatu material dengan pori-pori yang sangat kecil yang mampu memuat molekul-molekul kecil yang disebut sebagai molekular sieve, zeolit ini didapatkan dari substansi alam seperti *clay* dan zeolit atau dapat diperoleh secara sintetis alumina silika. ZSM-5 memiliki fungsi sebagai katalis untuk mempengaruhi kecepatan reaksi tanpa mempengaruhi kesetimbangan karena mampu menaikan perbedaan *path* molekuler dari reaksi katalis yang mempunyai luas pori-pori yang besar disebut katalis porous, pori-pori tersebut sangat kecil dimana mereka akan memuat molekul-molekul kecil tetapi mencegah molekul-molekul besar masuk.

Umumnya katalis jenis zeolit mudah mengalami deaktivasi, tidak terkecuali untuk ZSM-5. Menurut Richardson kemampuan katalis dalam menahan aktivitas dan selektivitas dalam rentang waktu tertentu tergantung dari jenis reaksi, jenis zeolit dan kondisi reaksi. Oleh karenanya Loffer menyarankan agar durability test atau time on stream reaction test tetap diperhatikan dalam memilih dan menentukan jenis katalis sesuai dengan reaksi dan kondisi reaksi (Setiadi, 2005).

Zeolit ZSM-5 mempunyai sifat unik yaitu mempunyai ukuran pori 0,54 x 0,57 nm (\leq ukuran molekul hidrokarbon C_{11}), berstruktur dimensi tiga, bersifat organofil. Kombinasi ketiga sifat diatas menyebabkan ZSM-5 bersifat selektif terhadap pembentukan hidrokarbon \leq C_{11} , mempunyai umur katalis yang panjang, serta tahan terhadap perlakuan asam dan panas (A.T Townsend, 1994).

2.5 Deaktivasi

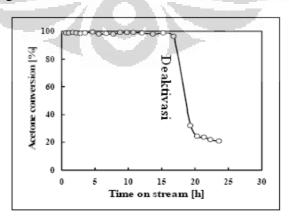
Selama proses reaksi, deaktivasi katalis tidak dapat dihindari dan harus selalu diperhitungkan dari segi proses disain. Penonaktifan katalis erat kaitannya dengan faktor ekonomi di dalam proses dan pengaruhnya terhadap kinerja reaktor. Namun, yang lebih penting penonaktifan katalis dapat mempengaruhi proses

disain, seperti proses konfigurasi, jenis reaktor dan cara pengoperasian proses industri dapat dipengaruhi oleh deaktivasi katalis (Sie S.T, 2001).

Sifat alami deaktivasi katalis dapat dihilangkan, baik selama proses operasi atau dengan cara regenerasi terpisah. Kecepatan deaktivasi adalah faktor penting yang menentukan proses ini. Berbagai alasan yang dapat menyebabkan katalis dapat kehilangan aktivitasnya adalah keracunan atau penghambatan katalis oleh kotoran di *feed* atau dari reaksi produk samping, pengendapan material polimer, hasil samping katalis (*coke*) dan hilangnya katalis dispersi oleh *sintering* partikel kecil bahan aktif. Selain itu katalis dapat dinonaktifkan oleh hilangnya komponen aktif oleh *leaching* (penguapan) atau dengan perubahan tekstur pori mereka. Perubahan tekstur pori dapat mempengaruhi kinerja suatu katalis dengan hilangnya luas permukaan spesifik melalui sintering carrier atau hilangnya permeabilitas melalui *pluging* dari pori-pori (Sie S.T, 2001).

Idealnya, katalis seharusnya berfungsi selamanya. Tetapi pada kenyataannya katalis dapat mati setelah digunakan akibat berbagai macam hal yang dapat menghilangkan kemampuan mereka. Beberapa katalis hanya bertahan beberapa menit sedangkan yang lain bisa mencapai 10 tahun. Perancang katalis dapat membuat katalis berumur lebih panjang, tetapi saat masalah ditemukan untuk memperpanjang umur, masalah lain muncul (Richardson, 1982).

Dalam pengukuran laboratorium, deaktivasi merupakan suatu masalah dan dapat menghasilkan data yang salah jika tidak diidentifikasi. Suatu permukaan katalis yang masih bersih akan mulai terdeaktivasi segera setelah katalis bertemu dengan molekul reaktan.



Gambar 2.8 Grafik konversi menunjukan penurunan aktivasi katalis (Richardson, 1982)

Pengurangan (dalam beberapa kasus peningkatan) temperatur, meningkatnya tekanan hidrogen, seringkali cukup untuk menurunkan laju deaktivasi. Pendekatan lain adalah dengan mempertahankan konversi yang konstan dengan cara meningkatakan temperatur secara berkala sejalan dengan turunnya katalis. Tetapi ini dibatasi oleh sensitivitas peralatan proses terhadap temperatur tinggi, kapasitas *furnace* dan *heat exchanger*, dan kemungkinan adanya reaksi samping (Richardson, 1982).

Beberapa metode modifikasi katalis yang paling umum digunakan untuk mengatasi deakitvasi yang terjadi adalah sebagai berikut:

- 1. Mengurangi keaktifan atau menganti komponen aktif yang berbeda atau support lain yang bertujuan untuk memperpanjang umur katalis walaupun hal ini dapat menurunkan aktivitas.
- 2. Optimasi kombinasi komponen aktif dengan support. Suatu support yang berbeda dapat digunakan untuk meningkatkan interaksi, yang juga menurunkan *Sintering*. Support dengan keasaman yang lebih kecil dapat digunakan untuk mengurangi pembentukan *coke*.
- 3. Penambahan promotor untuk menghambat deaktivasi. Contohnya, stabilitas support yang lebih besar pada alumina dicapai dengan penambahan sedikit silika atau zirkonia, *Sintering* dan *coking* pada platina dikurangi dengan penambahan rhenium, dan sisi asam dinetralkan dengan kalium.
- 4. Penambahan promotor untuk menghilangkan *deactiviting agent*. Contohnya pada *steam reforming* dimana karbon dihilangkan dengan cara reaksi dengan steam, yang dikatalisasi oleh aditif alkali.
- 5. Penambahan promotor untuk menetralkan racun katalis. *Poisoning* sulfur terhadap nikel dikurangi dengan menambahkan copper chormite, karena ion copper dan chromium lebih mudah membentuk sulfida (Richardson, 1982).

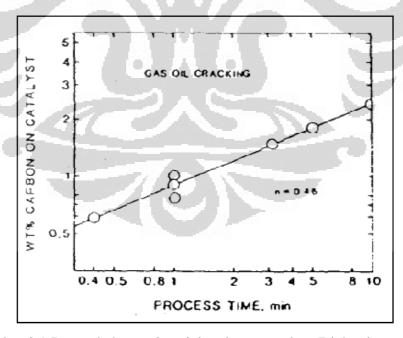
2.5.1 *Coking*

Istilah *coke* diberikan kepada residu terkarbonasi yang ada pada permukaan katalis. Deposit *coke* ditemukan dalan jumlah sampai 20% berat ekstrim, permukaan katalis tertutupi oleh lapisan deposit *coke* sehingga menurunkan luas permukaan yang dapat diakses, komponen aktif akan terbungkus

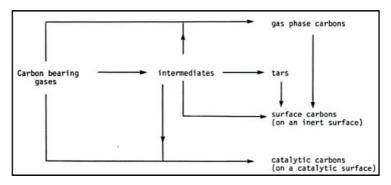
dalam karbon, dan pori katalis akan tertutup (*blocked*). Ketika efek ini sangat signifikan, maka katalis harus segera diganti atau diregenerasi (Richardson, 1982). A. *Acid Coking*

Acid coke terbentuk pada katalis perengkahan silics-alumina, zeolit, dan pada support yang bersifat asam. Kecenderungan pembentukan *coke* ini berhubungan langsung dengan keasaman. Ada dua jenis utama struktur karbon sebagai fasa yang terdispersi sangat tinggi pada pori. Sebagian besar *coke* ada dalam bentuk *pseudografitic* atau *turbostatic* dan *random-layer lattice*, mirip dengan grafit dengan komposisi CH_{0.4} sampai CH_{0.5} (Richardson, 1982).

Olefin terbentuk melalui reaksi dehidrogenasi dan bertindak sebagai akseptor hydrogen untuk membentuk ion karbonium. Molekul yang belum jenuh diadopsi sangat kuat dan menaikan pengurangan hidrogen, yang pada akhirnya membentuk *coke* melalui pembentukan cincin (siklisasi). Kenaikan kekuatan asam dan densitas membantu pembentukan *coke*, yang merupakan fakta dalam katalis. Namun katalis dapat dimodifikasi untuk menunda pembentukan *coke* (Richardson, 1982).



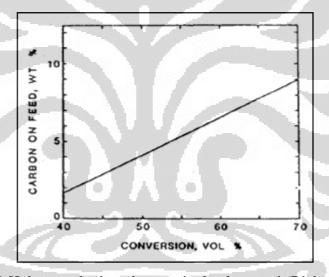
Gambar 2.9 Pertambahan *coke* sejalan dengan waktu (Richardson, 1989)



Gambar 2.10 Mekanisme pembentukan coke

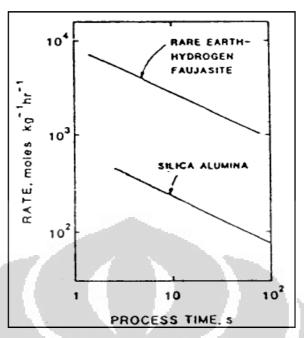
B. Hal yang berpengaruh pada pembuatan coke

Kandungan karbon yang berhubungan dengan tingkat konversi atau kekuatan operasi ditunjukan pada gambar berikut:



Gambar 2.11 Hubungan karbon dengan tingkat konversi (Richardson, 1989)

Penambahan sejumlah kecil zeolit (5-10%) kedalam katalis dapat memperlambat deaktivasi. Hal ini merupakan konsekuensi dari *shape selectivity*, dimana pembentukan *coke* dibatasi oleh ukuran rongga zeolit (Richardson, 1982).



Gambar 2.12 Laju deaktivasi dengan katalis silica-alumina dan faujasite (Richardson,1989)

Dengan mengetahui pengaruh dari susunan dalam reaksi asam, memungkinkan untuk mengontrol geometri dan mencegah pembentukan spesies dengan molekul besar tanpa menyebabkan pemutusan menjadi molekul yang lebih kecil. Apabila katalis asam tidak diinginkan sementara *coke* terbentuk pada support, maka memungkinkan mengontrolnya dengan cara menganti support asam dengan support yang bersifat non-asam seperti magnesia menggantikan silica atau alumina. Jika ini tidak dilakukan, mungkin saja asam tersebut meracuni dirinya sendiri. Hal ini biasanya diselesaikan dengan sejumlah kecil kalium. Unsur-unsur alkali dan alkali tanah lainnya dapat berfungsi sama, akan tetapi kaliumlah yang paling umum digunakan (Richardson, 1982).

2.6 Deaktivasi Katalis Zeolit

Deaktivasi katalis zeolit terutama berasal dari pembentukan residu karbon, dikenal sebagai *coke*. Pembentukan deposit karbon dan tindakan deaktivasi atas zeolit tergantung tidak hanya pada karakteristik katalis zeolit, juga pada sifat reaktan yang terlibat dan kondisi operasi terkait. Investigasi yang luas telah dibuat pada *coking* dan zeolit deaktivasi. Katalis zeolit yang terdeaktivasi dapat diregenerasi oleh pembakaran kokas pada suhu tinggi. Oksidatif tersebut

merupakan pengobatan yang biasanya dilakukan dibawah aliran udara atau diencerkan tergantung pada karakteristik kokas dan stabilitas termal katalis zeolit (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).

Karena sifat asam yang luar biasa dan selektivitas bentuknya, zeolit adalah katalis yang banyak digunakan dalam proses pemurnian (*cracking*, perengkahan, hydroisomerization, dll) dan proses petrokimia (alkilasi, isomerisasi dan ketidakseimbangan aromatik, dll) (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).

Deaktivasi zeolit dapat disebabkan oleh beberapa kemungkinan:

- 1. Peracunan situs aktif baik oleh komponen umpan dan pengotor, atau oleh non-desorbed produk berat (*coke*).
- 2. Penyumbatan akses reaktan ke situs aktif (atau dari adsorbat ke pori) oleh *coke*, atau oleh spesies kerangka tambahan yang dihasilkan dari dealuminasi, dll
- 3. Perubahan struktur.
- 4. Sintering dari logam pendukung (misalnya, dalam katalis *bifunctional*).

Coking biasanya penyebab utama penonaktifan katalis zeolit. Pertama, kokas dapat meracuni situs aktif atau memblokir akses mereka. Kedua, regenerasi katalis zeolit mengharuskan penghapusan kokain, biasanya melalui perlakuan oksidatif pada suhu tinggi. Perawatan ini memiliki efek yang merugikan seperti dealuminasi, degradasi zeolit, dan sintering logam pendukung (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).

2.6.1 Pembentukan Coke

Coke sacara umum menggambarkan bahan karbon yang terbentuk dan menumpuk dipermukaan katalis. Komposisi yang ada tergantung reaktan, katalis, kondisi reaksi dan waktu reaksi serta bebagai rasio karbon.

Pembentukan *coke* dapat menyebabkan deaktivasi katalis dengan cepat, tetapi disisi lain pembakaran *coke* memberikan sumber panas untuk reaksi cracking endotermis. *Coke* mengandung struktur poliaromatik kental yang mendekati karakter graphite. Untuk parafins, laju *cracking* dan laju pembentukan *coke* meningkat dengan meningkatnya berat molekul reaktan terutama dari jumlah karbon. Laju pembentukan *coke* juga meningkat dengan meningkatnya kekuatan asam dari katalis.

Pembentukan *coke* berhubungan dengan sifat asam-basa dari system katalis reaktan. Beberapa peneliti menyatakan bahwa asam kuat lebih cenderung mengakibatkan pembentukan *coke* dari pada asam lemah dan begitupula asam Lewis dari pada asam Bronsted, serta adanya transisi kemurnian ion logam. Penumpukan *coke* menjadi lebih banyak pada sisi asam kuat silica-alumina.

2.6.2 Pembatasan Pembentukan Coke

Coke hasil katalitik dari transformasi reaktan, hasil reaksi, kotoran dari umpan melalui berbagai langkah yang berurutan, sebagian besar merupakan reaksi bimolekular seperti kondensasi dan transfer hidrogen (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).

Oleh karena itu, laju *coking* tergantung pada parameter yang biasanya mempengaruhi laju reaksi katalitik, yaitu:

- a. Karakteristik dari reaktan hidrokarbon-pasangan situs aktif;
- b. Karakteristik dari struktur pori zeolit: khususnya ukuran dan bentuk rongga (atau saluran persimpangan) yang terletak di situs asam dan dapat dianggap sebagai mikroreaktor; dan
- c. Kondisi operasi: suhu, tekanan dan konsentrasi dari berbagai varians.

Namun, *coke* memiliki kekhasan sebagai produk non-desorbed. Oleh karena itu, dalam pembentukannya, selain memerlukan langkah-langkah reaksi, molekul *coke* dapat tertahan didalam pori-pori zeolit atau pada permukaan luar kristalit. Retensi ini terjadi karena molekul-molekul *coke* tidak cukup mudah menguap untuk dihilangkan dari zeolit di bawah kondisi operasi atau karena ukurannya lebih besar dari lubang pori (terjebak dalam rongga atau di persimpangan saluran) (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).

2.6.2.1 Sifat Reaktan dan Laju Coking

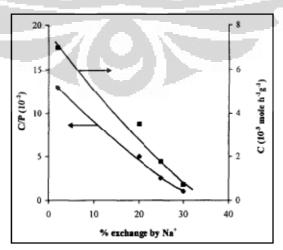
Pada katalis asam, reaktan mengalami transformasi cepat ke dalam pembuat molekul *coke*. Sebuah korelasi memuaskan ditemukan *Appleby et al*, yang menyatakan bahwa antara jumlah deposit kokain dalam silika alumina dan kebasaan dari reaktan aromatik: semakin besar kebasaan semakin cepat pembentukan kokain (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).

2.6.2.2 Struktur Pori dan Laju Coking

Selektivitas tinggi untuk *coke* dengan zeolit pori kecil, disebabkan oleh penyumbatan cepat molekul kokas atau para pendahulu mereka yang terperangkap dalam rongga dari pori kecil zeolit. Tingkatan yang sangat lambat dari *coking* ditemukan dalam H-ZSM5 disebabkan densitas yang rendah dari situs asam dan bukan ukuran rata-rata dari pori. Pengaruh struktur pori pada selektivitas *coking* tampaknya lebih terbatas dari pada pengaruh keasaman dan khususnya densitas situs asam (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).

2.6.3.3 Keasaman dan Laju Coking

Seperti ditunjukkan dalam literatur, tingkat *coking* dan selektivitas untuk kokas (misalnya rasio *coking* / laju reaksi yang diinginkan : C/P) banyak tergantung pada kekuatan dan densitas dari situs asam. Jadi, tingkat pembentukan kokas selama cracking n-heptana pada 450°C dalam USHY yang dipertukarkan dengan kation natrium dan rasio *coking*/laju cracking (C / P) menurun dengan meningkatnya konten natrium (Gambar 2.9), yang disebabkan penurunan dari kekuatan dan densitas situs asam. Dampak positif dari densitas situs asam di rasio C / P jelas ditunjukkan dalam kasus dealuminasi zeolit HY yang memiliki kekuatan asam yang serupa. Selain itu, rasio ini lebih besar ketika dealuminasi sampel Y hadir dispesies kerangka tambahan, yang berhubungkan dengan peningkatan kekuatan dari situs protonic zeolit, hal ini disebabkan oleh interaksi mereka dengan kerangka ekstra aluminium spesies Lewis (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).



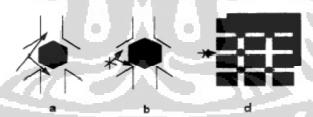
Gambar 2.13 Laju *coking* dan rasio C/P selama cracking n-heptan sebagai fungsi % exchange dari kation Na⁺ (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).

2.6.2.4 Kondisi Operasi dan Laju Coking

Laju *coking* tergantung pada kondisi operasi dan khususnya pada suhu reaksi (T). Perilaku kompleks ini dapat dihubungkan dengan fakta bahwa *coking* membutuhkan langkah-langkah reaksi, retensi prekursor *coke* dan molekul *coke* di dalam pori, kedua sifat ini merupakan tahapan kimia dan penyebab *coke* terjebak di dalam pori-pori tergantung pada suhu reaksi. Laju *coking* umumnya meningkat dengan tekanan reaktan. Penggunaan hidrogen dalam reaktan ditemukan untuk mengurangi pembentukan kokas dan meningkatkan stabilitas zeolit untuk reaksi khas katalis asam. Umumnya dampak akan lebih jelas bila hidrogen digunakan pada tekanan tinggi atau diaktifkan oleh senyawa redoks. Jelas, pembentukan *coke* lebih signifikan berkurang ketika ada perubahan dari asam untuk mekanisme *bifunctional* (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).

2.6.3 Meminimalisir Efek Deaktivasi *Coke*

Deaktivasi bisa disebabkan oleh: (a) pembatasan akses reaktan ke situs aktif di rongga atau di persimpangan pori yang terdapat molekul *coke*, atau (b) penyumbatan akses; (c) dan (d) pembatasan atau penyumbatan akses reaktan ke situs aktif di rongga, di persimpangan pori atau bagian dari saluran di mana molekul kokain tidak berada (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).



Gambar 2.14 Model deaktivasi zeolit dengan saluran saling berhubungan dan tanpa rongga (co HZSM-5). (a dan b) cakupan situs; (d) penyumbatan pori (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).

Dalam model (a) dan (b) pembatasan atau penyumbatan karena alasan sterik, yaitu difusi reaktan dalam rongga atau di persimpangan pori menjadi terbatas atau diblokir, atau alasan kimia - molekul kokas teradsorpsi secara reversibel atau kuasi-ireversibel di situs asam (cakupan situs). Dalam model ini deaktivasi zeolit umumnya menjadi terbatas karena situs yang terletak di rongga

atau di persimpangan saluran (seringkali hanya satu situs) yang dinonaktifkan sebagian atau seluruhnya (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).

Model (c) dan (d) umumnya disebut penyumbatan pori. Dalam model ini efek deaktivasi molekul *coke* sangat dibicarakan, karena sebagian besar situs aktif umumnya terletak di dalam pori-pori. Akses dari reaktan ke pori-pori tersebut menjadi terbatas atau diblokir (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).

Selain struktur pori-pori, secara tidak langsung kondisi operasi juga dapat mempengaruhi efek deaktivasi molekul kokain. Dengan kondisi yang mendukung pembentukan *coke* dengan cepat, molekul *coke* akan terbentuk dan disimpan dalam pori-pori bagian luar kristalit zeolit jika zeolit bukan monodimensional dan tidak memiliki rongga perangkap. Molekul-molekul *coke* ini memblokir proses difusi dari molekul reaktan ke inti situs asam dari kristalit, dengan efek deaktivasi yang besar dari molekul kokain. Mulut pori (atau *shell*) mengalami penyumbatan (Guinet.M dan Magnoux.P, 1997).

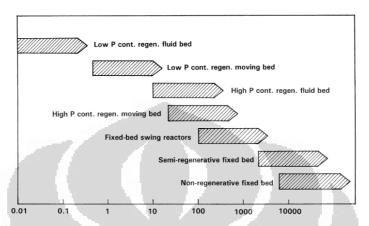
2.7 Regenerasi

Regenerasi atau peremajaan adalah istilah umum yang digunakan untuk mengembalikan kondisi ke keadaan semula, jika regenerasi tidak dilakukan penggunaan katalis harus dihentikan. Dalam pemakaian katalis terdapat dua pilihan yang di lakukan, membuang dan memaksimalkan kerja katalis sebagai bahan bernilai ekonomi tinggi (S.T.Sie, 2001).

Regenerasi katalis dapat dilakukan baik secara *ex-situ* atau *in-situ*. Dalam berbagai kasus, regenerasi dapat dilakukan dengan fasilitas terpisah di lokasi yang berbeda dari proses utama dan bahkan regenerasi dapat dilakukan oleh perusahaan lain (*ex-situ*). Regenerasi *in-situ* adalah fasilitas regenerasi yang merupakan bagian integral dari proses instalasi. Proses regenerasi bahkan dapat dilakukan dalam reaktor yang sama seperti yang digunakan dalam proses utama. Kemungkinan lain adalah untuk menginstalasi lebih dari satu reaktor, dengan masing-masing reaktor dioperasikan secara bergantian dalam modus proses atau dalam metode regenerasi (*operasi swing*) (S.T.Sie, 2001).

Laju deaktivasi katalis berkaitan erat dengan teknologi reaktor yang akan digunakan dalam regenerasi. Jika tingkat penonaktifan dalam *fix bed reactor*

cukup rendah, tidak diperlukan tempat khusus untuk regenerasi, dan ketika proses regenerasi telah dilakukan, katalis dapat dibuang atau digunakan di tempat lain. Ini dilakukan untuk katalis yang memiliki kinerja katalis selama 1 tahun atau lebih (S.T.Sie, 2001).



Gambar 2.15 Hubungan antara teknologi reaktor dan kecepatan deaktivasi katalis dalam berbagai variasi (S.T.Sie, 2001).

Ketika aktivitas katalis menjadi lebih pendek, misalnya sekitar setengah tahun, fasilitas khusus untuk regenerasi ditempat menjadi penting, terutama jika menyangkut mahalnya katalis. Pada metode operasi semi-regeneratif, katalis tetap berada dalam reaktor selama regenerasi berlangsung. Fasilitas yang dibutuhkan untuk melakukan regenerasi adalah kompresor untuk sirkulasi gas inert dan dosis udara menjadi bagian unit permanen (S.T.Sie, 2001).

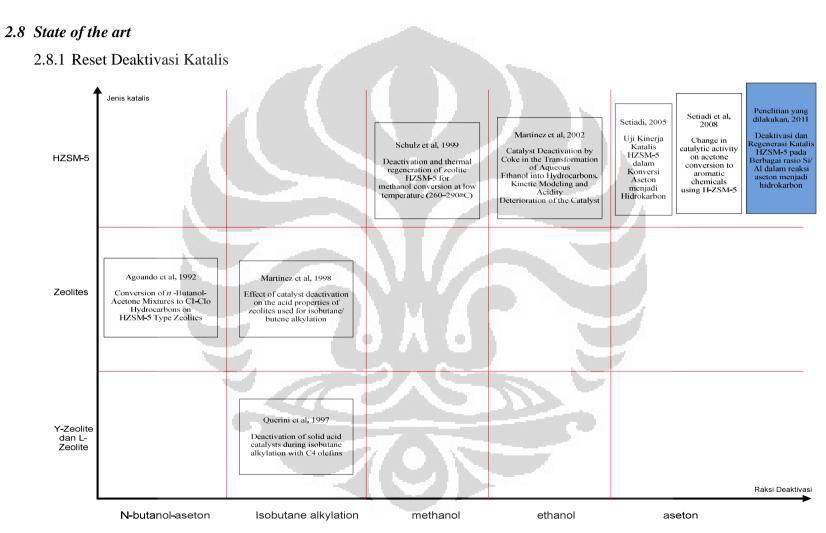
Tujuan dari regenerasi katalis ialah mengembalikan katalis ke keadaan semula untuk kembali memperoleh kinerja yang tinggi dengan menghilangkan deaktivatornya. Katalis hasil regenerasi harus memiliki sifat-sifat berikut ini:

- 1. Luas permukaan harus besar
- 2. Logam harus berada dalam fasa tereduksi
- 3. Logam harus terdispersi pada permukaan penyangga
- 4. Halogen atau fungsi asam katalis harus berada pada tingkat yang sesuai

Deaktivasi katalis disebabkan oleh kokas yang terbentuk sebagai hasil samping reaksi yang menutupi fasa aktif katalis. Selain itu, aglomerasi logam pengotor, keberadaan racun katalis, dan kerusakan penyangga karena temperatur yang terlalu tinggi juga merupakan faktor penyebab deaktivasi katalis. Regenerasi

katalis hanya mampu mengembalikan aktivitas katalis yang menurun karena pembentukan kokas. Karena itu, keberadaan racun katalis di aliran umpan sangat dihindari di dalam proses pengolahan minyak bumi.

Berbagai hasil penelitian (Jong *et al.*, 1997), regenerasi zeolit HZSM-5 yang diakibatkan oleh adanya *coke* (kokas), dalam regenerasi katalis dilakukan selektivitas penghapusan dan transformasi senyawa karbon selama pengaktifan kembali dengan menggunakan udara, 0,5% O₂ dalam N₂ dan H₂ pada suhu 500°C. Dalam penelitiannya ditemukan bahwa pengotor katalis yang diregenerasi dengan udara berada pada dua tempat, yang pertama berada didalam kristal kokas hadir didekat situs asam Bronsted, sedangkan yang kedua berada diluar permukaan kristal. Tampilan ini akan lebih jelas ketika H₂ digunakan sebagai gas regenerasi. Selama penghapusan oksidatif kokas dengan udara atau 0,5% O₂ dalam N₂, sebagian dari senyawa karbon berubah ke struktur yang lebih kental sebelum sepenuhnya teroksidasi.



Gambar 2.16 State of the art deaktivasi katalis

Penelitian Aguado *et al.*, 1992. Konversi campuran n-butanol/acetone untuk C1-Cl0 hidrokarbon telah dipelajari. ZSM-5 Jenis zeolit dengan berbagai Si/Al rasio, disintesis di laboratorium kami, digunakan sebagai katalis. Para resulb terbaik diperoleh dengan HZSM-5 (Si/Al=36) zeolit, montmorilonit menggunakan 30 natrium% berat sebagai pengikat. Efek dari kondisi operasi (ruang waktu, suhu, dan tekanan) dan pengaruh kadar air pakan pada konversi reaksi telah dipelajari.

Berdasarkan penelitian Querinl et al.,1997. Formulasi coke pada katalis asam padat dipelajari selama alkilasi isobutana dengan C4 olefin. Y-zeolit, mordenite dan L-zeolit diselidiki, serta katalis zirkonia sulfat. Zeolit digunakan dalam bentuk protonic atau setelah pertukaran ion dengan nitrat lantanum. Studi dilakukan dalam fase cair dalam reaktor fixed-bed. Ditemukan bahwa Y-zeolit ditukar dengan lantanum, menjadi katalis dengan stabilitas terbaik, adalah katalis yang membentuk jumlah yang lebih tinggi dari deposito karbon. Jumlah kokas pada katalis ini dapat setinggi 13-14%. Ini kokas membutuhkan suhu yang lebih tinggi dari 500 °C untuk benar-benar dihilangkan. Suhu diprogram analisis menunjukkan bahwa jumlah kokas dihilangkan dari katalis selama regenerasi parsial, sangat tergantung pada tingkat pemanas. Hal ini karena persaingan antara gasifikasi kokas dan nya modifikasi dalam struktur mengarah ke jenis aromatik coke, yang kemudian membutuhkan suhu yang lebih tinggi untuk dibakar. poripori dan pengukuran luas permukaan katalis dilakukan pada dinonaktifkan menunjukkan bahwa pori-pori memasukkan mekanisme berlangsung selama reaksi. Katalis dengan keasaman terlalu kuat (bentuk protonic misalnya Y-zeolit atau sulfat zirkonia) memiliki aktivitas tidak untuk trimethylpentane produksi di 80 °C, kemungkinan besar karena penonaktifan sangat cepat, meskipun jumlah kokas terutama lebih rendah daripada di lantanum-dipertukarkan zeolit.

Penelitian Martoanez *et al.*, 1998. Pembentukan Coke selama reaksi alkilasi isobutana / butena selama zeolit mengurangi keasaman dan kekuatan asam dari katalis. Microcalorimetric pengukuran panas diferensial piridin adsorpsi dan spektroskopi FTIR dari teradsorpsi piridin digunakan untuk menyelidiki perubahan sifat asam disebabkan oleh proses penonaktifan. Spesifik, baru dan katalis asam dinonaktifkan komersial seperti REY, USY, dan Beta zeolit

dipelajari. Adsorpsi microcalorimetry dan Spektroskopi FTIR hasil menunjukkan bahwa USY memiliki situs asam kuat (baik Brùnsted dan Lewis) dan tertinggi Konsentrasi situs kuat diikuti dengan REY dan kemudian oleh zeolit Beta. Pesanan ini adalah kebalikan dari yang diamati untuk alkilasi katalitik kinerja dari zeolit. Secara khusus, tampaknya bahwa memiliki konsentrasi tinggi dari situs Lewis yang kuat deaktivasi katalis mempromosikan. Deposito terbentuk selama penonaktifan memiliki paraf yang kuat karakter, namun bukti spesies nic juga diamati. Tingkat ketidakjenuhan spesies permukaan terbentuk meningkat dari Beta ke USY zeolit, menyiratkan bahwa kehadiran konsentrasi tinggi asam Lewis kuat situs mempromosikan pembentukan tak jenuh senyawa. Situs Brùnsted dengan kekuatan asam menengah tampaknya menjadi lokasi yang sesuai untuk menjaga alkilasi yang baik kinerja katalitik. Kinerja katalitik terbaik dan deaktivasi paling lambat dicapai dengan Beta zeolit, diikuti oleh REY dan USY dengan kandungan sodium rendah. Isomerisasi butena hanya diamati untuk USY dengan konten natrium tinggi. Untuk katalis aktif, rute reaksi alkilasi global yang mendominasi pada awalnya, tetapi jumlah produk alkilasi menurun sebagai katalis mulai menonaktifkan ketika oligomerisasi mendominasi, dan, Nally, katalis kehilangan sebagian besar kegiatan dan isomerisasi adalah reaksi hanya diamati. Distribusi produk yang diperoleh menunjukkan bahwa, bukannya alkilasi otentik, mekanisme umum awal polimerisasi diikuti oleh b-pemotongan. Dua model penonaktifan diusulkan untuk menjelaskan penonaktifan. Obstruksi langsung dari situs alkilasi aktif dengan adsorpsi ireversibel prekursor kokas atau coke dan obstruksi langsung dari situs aktif dengan menghalangi pori-pori atau pori katalis.

Penelitian Aguayo *et al.*, 2002. Aspek dasar (kokas deposisi, penurunan keasaman) penonaktifan dengan kokas dari katalis (dibuat dari zeolit HZSM-5) yang digunakan dalam transformasi etanol berair ke hidrokarbon dalam kisaran 350-450°C telah dipelajari. Percobaan dilakukan pada reaktor fixed-bed isotermal dengan feed dari etena, campuran etanol dan air pada berbagai rasio massa, dan dietil eter. Pentingnya konten suhu dan air dalam reaksi menengah pada mekanisme coke evolusi ditunjukkan. Pengaruh variabel-variabel pada penonaktifan dijelaskan oleh model kinetik di mana peran prekursor kokas (etena,

cahaya olefin, dan bensin) dianggap. Peran ini tergantung pada kondisi operasi, khususnya suhu.

Penelitian Setiadi., 2005. Katalitik produk turunan biomassa. Akan menjadi suatu skema rute baru, apabila dari senyawa aseton tersebut dapat ditransformasi menjadi senyawa hidrokarbon aromatis. Senyawatersebut merupakan bahan baku utama yang penting dalam proses industri petrokimia. Apabila proses katalitik untuk produksihidrokarbon tersbut dapat diupayakan, maka dimasa depan bisa melepas ketergantungan pada minyak bumi.Penelitian ini bermaksud untuk mengembangkan proses reaksi katalitik untuk memproduksi senyawa monoaromatik dari aseton menggunakan katalis ZSM-5. Reaksi dilakukan didalam reaktor pipa pada suhu 673 K, space velocity 4 h-1, bertekanan atmosferik. Tiga macam sampel katalis ZSM-5 dengan rasio Si/Al=25, 75 dan 100 diuji kinerjanya untuk dievaluasi konversi, yield aromatik serta kestabilan durability test) selama 10 jam.Hasil pengujian kinerjanya (catalytic memperlihatkan ketiga katalis tersebut memiliki kinerja yang hampir sama selama 2 jam uji reaksi. Konversi aseton hampir mendekati 100 %, dengan yield diatas 70 %. Namun, katalis ZSM-5 rasio Si/Al=25 masih mampu mempertahankan kemampuan kinerjanya, sedangkan katalis ZSM-5 dengan rasio Si/Al=75 dan 100, lebih mudah mengalami deaktivasi. Hasil karakterisasi permukaan katalis baik sebelum maupun sesudah reaksi, memperlihatkan ketiga rasio katalis ZSM-5 tersebut semuanya mengalami penurunan luas permukaan katalis (luasan total maupun luasan pori katalis). Oleh karenanya, deaktivasi katalis tersebut sangat dimungkinkan karena terbentuknya kokas dan menutupi pori-pori katalis (pore blocking).

Penelitian Setiadi *et al.*, 2008. Penelitian ini dikhususkan untuk proses katalitik menggunakan H-ZSM-5 katalis untuk reaksi aseton konversi ke bahan kimia aromatik. Reaksi dilakukan dalam terus menerus reaktor aliran bawah tekanan atmosfer pada suhu 573-723 K. Pekerjaan ini dimaksudkan untuk memeriksa perubahan H-ZSM-5 katalis dalam reaksi konversi aseton pada berbagai suhu dan efek dari Si/Al rasio atom. H-ZSM-5 dengan Si/Al = 25 adalah lebih aktif dan stabil daripada Si/Al rasio 75 atau 100, ini menunjukkan bahwa reaksi konversi aseton memerlukan densitas tinggi asam H-ZSM-5 katalis. Hasil

aromatik diperoleh lebih tinggi dari 60% berat selama 6 jam reaksi. Reaksi pada 673 K adalah paling menguntungkan suhu untuk konversi aseton terhadap produk aromatik. Tinggi selektivitas dari mono-produk aromatik menunjukkan katalis H-ZSM-5 adalah bentuk selektif untuk pembentukan produk aromatik dan mampu menekan pembentukan poli-aromatik senyawa karena ukuran geometris dari poripori. Tidak ada efek negatif karena air Selain itu pada konversi aseton dan selektivitas produk aromatik mengacu tanpa keberadaan air dalam umpan, itu akan menyederhanakan proses industri. Hal ini sangat meramalkan bahwa penyebab utama dari proses penonaktifan ini terutama karena pembentukan kokain, yang ditutupi atau diblokir pada permukaan H-ZSM-5 katalis.

Tabel 2.1 Rangkuman state of the art deaktivasi katalis HZSM-5

No	Penulis/Tahun	Umpan/Gas Pembawa/Katalis	Reaktor	% pembentukan kokas
1	Aguardo et al, 1992	n-Buthanol Aseton/H2/ZSM-5	Fixed-bed	46,1
2	Querinl et al, 1997	Isobutane/H2/Y- Zeolit,Mordenite,L-Zeolite	Fixed-bed	13-14
3	Setiadi, 2005	Aceton/N2/HZSM-5	Fixed-bed	70
4	Setiadi, 2008	Aceton/N ₂ /HZSM-5	Fixed-bed	60
5	Penelitian ini	Aceton/N2(Deaktivasi) dan Uadara(Regenerasi)/HZSM-5	Fixed-bed	4

BAB III

METODE PENELITIAN

3.1 Tahap Penelitian

Secara garis besar penelitian ini dilakukan dalam beberapa tahapan untuk melihat deaktivasi dan regenerasi katalis HZSM-5 dalam reaksi aseton menjadi hidrokarbon dengan berbagai rasio Si/Al juga untuk mengetahui penyebab terjadinya deaktivasi pada katalis.

3.1.1 Katalis *Fresh*

Pada penelitian ini katalis HZSM-5 yang digunakan adalah katalis komersial (*Zeolyst*) sehingga tidak dilakukan preparasi terhadap katalis tersebut. Karakterisasi katalis HZSM-5 dilakukan dengan metode BET dan FT-IR untuk mengetahui ikatan-ikatan kimia yang berada di dalam katalis tersebut.

3.1.2 Tahap Konversi Katalitik (Reaksi dan Kinerja Katalis)

Pada tahap ini, senyawa aseton yang dibawa oleh gas N₂ dikontakkan dengan katalis HZSM-5. Reaksi berlangsung dalam *fixed Bed* dimana laju alir umpan dan temperaturnya diatur pada kondisi tertentu. Tujuan dari tahapan ini yaitu untuk mengetahui kinerja dari katalis HZSM-5.

Pada tahap ini juga dilakukan identifikasi dan analisa terhadap hasil reaksi yang telah dilakukan. analisa GC-FID (*Gas Chromatography - Flame Ionization Detector*) untuk mengetahui seberapa banyak kadar aseton yang berada di dalam gas N₂. Selain itu juga dilakukan analisa kadar keasaman dari zeolit itu sendiri selama mengalami deaktivasi.

3.1.3 Deaktivasi Katalis

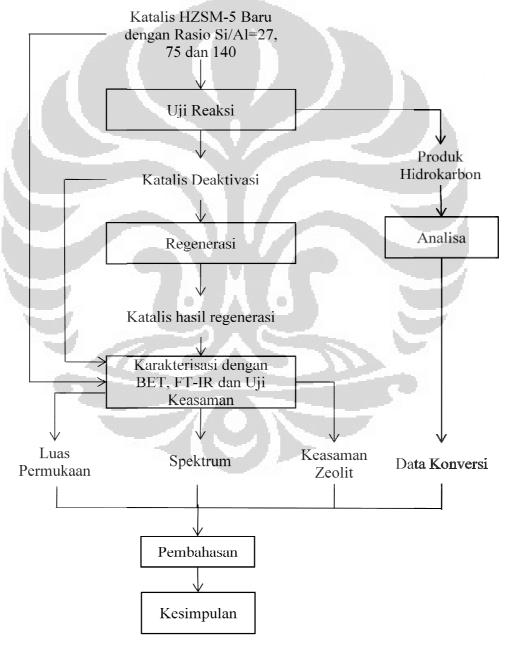
Pada penelitian ini katalis HZSM-5 yang telah terdeaktivasi, mengalami pengujian karakteristik katalis kembali. Karakterisasi katalis HZSM-5 dilakukan dengan metode BET untuk mengetahui luas permukaan katalis dan metode FT-IR untuk mengetahui jenis ikatan-ikatan kimia yang ada dalam produk cair.

3.1.4 Regenerasi Katalis

Regenerasi katalis dilakukan untuk mengembalikan kinerja katalis seperti sebelum mengalami reaksi. Regenerasi katalis ini akan dilakukan dengan menggunakan udara. Pada penelitian ini, katalis HZSM-5 yang telah diregenerasi diuji karakteristik katalis kembali menggunakan BET dan FT-IR.

3.2 Diagram Alir

Diagram alir tahap penelitian tentang deaktivasi dan regenerasi:



Gambar 3.1 Diagram alir penelitian secara umum

3.3 Uraian Terperinci Penelitian

Pada bagian ini dijelaskan prosedur penelitian secara lengkap dan detail (lihat Gambar 3.1). Mulai dari tahap awal, ketika katalis belum direaksikan, katalis terdeaktivasi hingga katalis mengalami regenerasi kembali. Penelitian ini terdiri dari dua pengujian, yang pertama pengujian hasil reaksi terdiri dari analisa produk hasil reaksi dengan mengunakan GC-FID dan uji keasaman (TDP-NH₃). Pengujian yang kedua untuk mengetahui karakterisasi katalis dengan mengunakan uji BET dan FT-IR.

3.3.1 Uji Reaksi Katalis

Analisa Produk Hasil Reaksi

Pada tahap ini senyawa aseton direaksikan dengan katalis HZSM-5 menggunakan reactor uji seperti pada gambar 3.1. Reaksi berlangsung dalam *fixed bed reactor* dimana laju alir umpan dan temperaturnya diatur pada kondisi tertentu.



Gambar 3.2 Reaktor Uji

A. Alat dan Bahan

- Spatula
- Kertas timbang
- Syringe gas tight
- Alat suntik 100 ml

- Reaktor fixed bed
- Timbangan
- Aseton
- Gas N₂
- Katalis HZSM-5 Rasio Si/Al=27, Si/Al=75 dan Si/Al=140

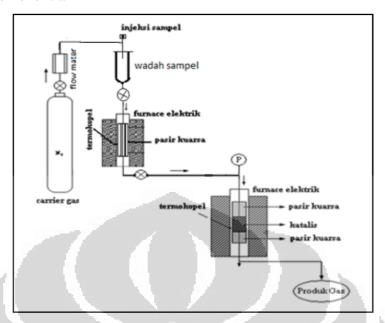
B. Persiapan Sampel

- Timbang katalis HZSM-5 sebanyak 0,5000 gram
- Siapkan reaktor yang telah di isi dengan pasir kuarsa (quartz wool) agar pada saat katalis dimasukan berada pada posisi yang tepat dan pada saat direaksikan tidak tejadi pressure drop pada katalis
- Masukan katalis kedalam reaktor

C. Persiapan Alat

- Alat disiapkan terlebih dahulu sebelum sampel dialiri gas N₂ dan juga uap aseton
- Untuk start up, N₂ dialirkan terlebih dahulu untuk membersihkan reaktor dalam keadaan kosong
- Siapkan aseton
- Ambil aseton dengan mengunakan tabung suntik 100 ml
- Masukan aseton kedalam tempat sampel kemudian tutup rapat sehinga kedap udara
- Hubungkan pipa aliran gas N₂ dan pipa gas menuju reaktor tempat sampel
- Furnace electric dinyalakan dan diset pada preheater = 110°C dan pada reaktor = 400°C

D. Metode Penelitian



Gambar 3.3 Susunan Reaktor Uji Katalis Fixed Bed Reaktor

Susunan reaktor untuk tahap konversi katalitik adalah:

- Gas N₂ dialirkan dengan laju alir 100 ml/menit
- \bullet Gas N_2 yang mengalir akan kontak dengan uap aseton, kemudian uap aseton akan dibawa oleh N_2 dan dikontakan dengan sampel katalis HZSM-
- Produk yang diperoleh berupa gas ditamping dengan mengunakan syringe gas tight
- Produk dianalisa dengan mengunakan GC-FID untuk mengetahui % konversi aseton yang didapat setelah dikontakan dengan katalis
- Unggun katalis yang berupa katalis HZSM-5 ditahan dengan lapisan *quartz wool* (pasir kuarsa) agar unggun katalis berada pada posisi yang tetap.
- Diatas unggun katalis ditempatkan pasir kuarsa yang dimaksudkan sebagai pemanas aseton yang masuk pada fasa cair.
- Tepat disisi luar unggun katalis, disematkan pipa kecil untuk peletakan ujung termokopel sebagai monitoring suhu katalis selama reaksi

 Reaktor yang telah disiapkan dengan susunan tersebut diatas kemudian ditempatkan pada sistem aliran uji reaksi seperti terlihat pada gambar diatas.

E. Analisa Produk Hasil Reaksi

Analisa produk hasil reaksi dilakukan untuk mengetahui konversi aseton yang telah dikontakan dengan katalis HZSM-5. Untuk mengetahui seberapa banyak kadar aseton yang berada di dalam gas N₂ maka dilakukan analisa dengan mengunakan GC-FID (*Gas Chromatography - Flame Ionization Detector*). Pada GC-FID akan terbaca luas peak area dari aseton. Dengan membandingkan luas peak area aseton pada blanko dan luas peak area yang terbentuk setelah reaksi konversi dilakukan maka dapat diketahui besar konversi aseton yang terjadi. Adapun rumus yang digunakan yaitu :

$$X_{aseton}(\%) = \frac{\text{Luas Peak Area Blanko-Luas Peak Area Aseton Sisa}}{\text{Luas Peak Area Blanko}} x 100\%$$
 (3.1)

Analisa produk hasil reaksi akan diulang untuk katalis HZSM-5 dengan rasio yang berbeda-beda.

Uji Keasaman Zeolit (TPD-NH₃)

Uji keasaman pada penelitian ini dilakukan dengan metode adsorpsidesorpsi ammonia yaitu TPD (*Temperature Programmed Desorption*).

Prosedur yang dilakukan dalam tahap uji keasaman, yaitu:

- A. Persiapan larutan amonia dan larutan asam klorida.
 - Disiapkan larutan HCl 0,005 M sebanyak 200 ml dalam tabung reaksi dan ditambahkan 2 tetes indikator PP. Larutan HCl ini berfungsi sebagai penangkap gas amonia yang keluar dari reaktor.
 - Disiapkan larutan amonia 25 % yang akan diambil uapnya. Uap amonia ini diinjeksikan ke dalam reaktor.

B. Persiapan reaktor dan katalis HZSM-5.

 Quartz wool disusun pada bagian bawah unggun katalis untuk menjaga katalis dari kemungkinan entrainment akibat umpan gas yang masuk selama operasi pengujian.

- Disiapkan 0,5000 gram katalis HZSM-5. Masukan kedalam reaktor yang telah dilapisi *quartz wool* untuk menghindarai terjadinya *pressure drop*.
- Reaktor dipasang dalam *furnace* elektrik dan pastikan semua sambungannya telah terpasang dengan baik.

C. Tahapan adsorpsi-desorpsi amonia.

- Katup gas N₂ dibuka dan atur laju alir gas yang keluar dari reaktor. Laju alir keluaran gas dari reaksi ini sebesar 100 ml/menit.
- Furnace dinyalakan, setting pada T = 450°C, alirkan gas N₂ dan laju alirnya diatur. Setelah tercapai T = 450°C dan stabil, didiamkan selama 1 jam. Hal ini dilakukan untuk menghilangkan kemungkinan adanya kandungan komponen air selama penyimpanan maupun penyusunan unggun katalis. Tahapan ini disebut juga Purging.
- Setelah 1 jam, *setting* temperatur diturunkan pada T = 100°C dan ditunggu hingga stabil.
- Pada saat mencapai T = 100°C dan stabil, uap NH₃ diiinjeksikan sebanyak
 0,5 ml ke dalam reaktor setiap 20 menit sebanyak 4 kali. Jadi, total uap amonia yang diinjeksikan adalah 2 cc. Dibiarkan selama 1 jam untuk proses absorbsi.
- Setelah 1 jam temperatur dinaikkan menjadi 250°C dan ditunggu hingga stabil, tahap ini merupakan proses desopsi secara fisik.
- Setelah suhu stabil naikan temperatur menjadi 450°C. Gas yang keluar ditampung dengan mengunakan *urine bag*.

D. Tahap Titrasi

- Dilakukan proses *bubbling*, dimana gas amoniak dalam *urine bag* direaksikan dengan HCl dalam erlenmeyer.
- Diamati apakah ada perubahan warna.
- Jika tidak ada perubahan warna, dilakukan tahap titrasi dengan larutan KOH 0,005M.
- Catat volume KOH setelah terjadi perubahan warna dari tidak berwarna menjadi merah muda.

Uji keasaman ini dilakukan pada katalis HZSM-5 Rasio Si/Al=27, 75 dan 140. Pada rasio Si/Al=27 dilakukan setiap jam untuk mengetahui keasaman katalis pada saat bereaksi dengan aseton hingga terjadi deaktivasi pada katalis tersebut. Rumus yang digunakan dalam uji keasaman yaitu :

$$\textit{Keasaman Zeolit} = \frac{\textit{mmol HCl} - \textit{mmol HCl hasil titrasi dengan KOH}}{\textit{gram Katalis}}$$

3.3.2 Uji Karakterisasi Katalis

Katalis HZSM-5 yang akan digunakan, dikarakterisasi terlebih dahulu dengan mengunakan metode BET dan FT-IR. Metode BET dilakukan untuk mengetahui luas permukaan katalis HZSM-5, sedangkan metode FT-IR digunakan untuk mengetahui ikatan-ikatan yang terdapat pada katalis.

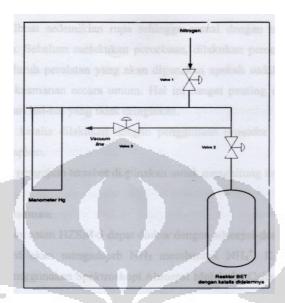
Karakteristik dengan BET

Uji karakteristik BET pada prinsipnya yaitu mengukur luas permukaan padatan dilakukan dengan cara adsorpsi fisik (*physisorption*) gas yaitu menentukan jumlah molekul gas yang dibutuhkan untuk menutupi permukaan padatan dengan satu lapisan zat (monolayer) yang diserap (adsorbat). Jika luas permukaan yang ditempati oleh satu molekul adsorbat diketahui, maka luas permukaan padatan dapat dihitung dari jumlah molekul adsorbat. Penyerapan gas ini biasanya dilakukan pada kondisi isotermis.

Prosedur percobaan pada karakterisasi BET ini adalah sebagai berikut :

- Sebelum dilakukan pengujian, peralatan BET harus di vakum terlebih dahulu. Setelah di vakum, 0,2 gram katalis dimasukkan ke dalam reaktor BET dan dipanaskan pada temperatur 200°C selama 1 jam.
- Reaktor didinginkan dengan menggunakan nitrogen cair (titik didih = -196°C) untuk mengkondensasi gas nitrogen dipermukaan katalis.
- Tekanan gas nitrogen sebelum dan sesudah masuk reaktor diukur oleh manometer air raksa. Volume gas nitrogen yang teradsorp di permukaan katalis dapat dihitung berdasarkan perbedaan tekanan yang diperoleh.

Skema peralatan pada uji karakteristik katalis dengan metode BET dapat dilihat pada gambar 3.4 sebagai berikut :



Gambar 3.4 Skema Peralatan BET (Linna, 2009)

Uji BET ini dilakukan pada sampel katalis HZSM-5 Rasio Si/Al=27 yang baru, telah terdeaktivasi dan katalis hasil regenerasi.

Karakterisasi FT-IR

Tujuan dari analisa FT-IR adalah untuk melihat dengan jelas ikatanikatan apa saja yang dimiliki oleh sampel yang dihasilkan dari proses konversi katalitik. Prosedur analisa FT-IR adalah sebagai berikut :

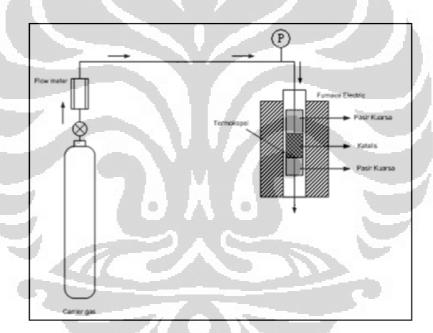
- Lakukan scanning pada keadaan FT-IR belum terisi sampel.
- Campur sampel serbuk dengan KBr
- Tumbuk sampel dan KBr hingga rata dan halus dengan lumpang
- Simpan sampel pada tempat FT-IR secara padat dan halus
- Lakukan *scanning* sampel menggunakan *software*.
- Hasil scanning dapat dilihat pada tampilan layar monitor.
- Print hasil scanning.

Uji FT-IR ini dilakukan pada sampel katalis HZSM-5 Rasio Si/Al=27 dan Rasio Si/Al=140 baik katalis yang baru, terdeaktivasi dan katalis yang telah diregenerasi.

3.3.3 Regenerasi Katalis

Regenerasi katalis dilakukan untuk mengembalikan kinerja katalis seperti sebelum mengalami reaksi. Regenerasi katalis ini akan dilakukan dengan menggunakan udara. Prosedur penelitian regenarasi katalis adalah sebagai berikut:

- Katalis yang telah terdeaktivasi dimasukan ke dalam *Fixed Bed Reaktor* sebesar 0,0500 gram katalis.
- Dihembuskan udara kedalam reaktor, dengan temperatur 450 °C dan laju alir 1000 ml/menit.
- Katalis yang telah mengalami regenerasi akan ditandai dengan berubahnya warna katalis, yang awalnya hitam pekat karena terdeaktivasi, setelah mengalami regenerasi menjadi serbuk putih kembali.



Gambar 3.5 Susunan Reaktor Uji Regenerasi Katalis Fixed Bed Reaktor

3.4 Hasil yang Diharapkan dalam Metode Penelitian

3.4.1 Data-Data Hasil Pengujian Reaksi Katalis

Data Hasil GC-FID

Analisa dengan mengunakan GC-FID ini bertujuan untuk mengetahui kadar aseton yang berada didalam gas N_2 .

Data Hasil Uji Keasaman

Uji keasaman ini bertujuan untuk mengetahui seberapa besar senyawa asam yang berada didalam katalis tersebut.

3.4.2 Data-Data Hasil Karakterisasi Katalis

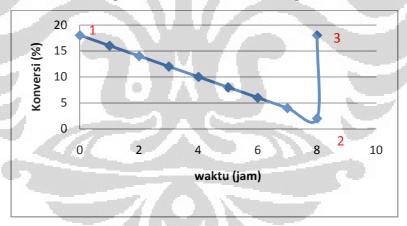
Data Hasil BET

Digunakan untuk mengetahui luas permukaan katalis sebelum dan sesudah dipakai (terdeaktivasi). Diperkirakan katalis bekas akan mengalami penyempitan atau penurunan luas permukaan, dikarenakan adanya penumpukan *coke* didalam pori zeolit.

Data Hasil FT-IR

Data hasil FT-IR ini digunakan untuk menganalisis ikatan-ikatan yang terdapat pada katalis khususnya untuk mengamati keberadaan kokas yang terbentuk. Bilangan gelombang pada pita transmisi katalis terdeaktivasi akan dibandingkan dengan katalis baru.

Hasil yang diharapkan dari penelitian adalah adanya keterkaitan datadata hasil karakterisasi dengan deaktivasi katalis dan regenerasi.

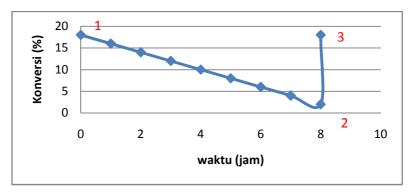


Gambar 3.6 Hasil yang Diharapkan Rasio 1 Si/Al (25)

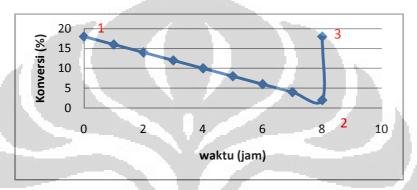
1. Sampel Katalis (1) = Katalis segar

2. Sampel Katalis (2) = Katalis yang telah mengalami reaksi dan mengalami deaktivasi katalis.

3. Sampel Katalis (3) = Katalis yang telah diregenerasi.



Gambar 3.7 Hasil yang Diharapkan Rasio 2 Si/Al (75)



Gambar 3.8 Hasil yang Diharapkan Rasio 3 Si/Al (140)

Setelah katalis mengalami regenerasi, diharapkan karakteristik dan kinerja katalis akan sama seperti pada saat katalis segar (belum terjadi reaksi). Hal ini dapat dilihat pada berbagai percobaan yang telah dilakukan, baik uji karakteristik katalis maupun identifikasi dan analisi katalis dalam berbagai rasio Si/Al.

Rasio Si/Al yang beragam akan memiliki karakteristik dan kinerja katalis yang beragam. Sampel katalis dengan berbagai rasio Si/Al akan dibandingkan antara katalis yang telah diregenerasi dengan katalis segar. Hasil akhir yang diharapkan, dapat mengetahui rasio Si/Al terbaik yang memiliki karakteristik dan kinerja katalis yang mendekati kondisi awal, sehingga dapat digunakan kembali sebagai katalis.

BAB IV

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada bab ini akan dibahas hasil penelitian yang telah dilakukan, meliputi pengujian berbagai katalis HZSM-5 pada konversi katalitik senyawa aseton untuk menghasilkan senyawa hidrokarbon, yang dilanjutkan dengan karakterisasi katalis menggunakan metode adsorpsi-desorpsi amoniak (TPD-NH₃), BET dan FT-IR. Hasil reaksi konversi aseton berupa produk hidrokarbon telah dikerjakan secara detail oleh Linna dan Mondy (Skripsi, 2010) dengan mengunakan *gas chromatografi mass spectrometer* (GC-MS) serta *flame ionization detector* (FID). Dalam bab ini dipertimbangkan tidak membahas kembali tentang produk senyawa tersebut.

4.1 Hasil Uji Konversi Katalitik

Uji konversi katalitik dilakukan pada aseton dengan menggunakan katalis HZSM-5 dengan variasi rasio Si/Al sebagai variabel bebas. Variasi rasio Si/Al yang digunakan adalah 27, 75 dan 140, dengan laju alir *carrier gas* N₂ 100 ml/menit. Variasi rasio Si/Al akan mempengaruhi waktu terjadinya deaktivasi katalis. Reaksi konversi katalitik dilakukan dengan mengalirkan *carrier gas* N₂ yang membawa gas aseton dan dikontakan dengan katalis, sehingga terjadi konversi aseton menjadi hidrokarbon. Berat katalis yang digunakan bernilai tetap yaitu 0,5 gram. Produk reaksi dalam fasa gas dianalisis dengan *Gas Chromatograpy* (GC) untuk mengetahui komposisi aseton yang bereaksi dengan katalis HZSM-5.

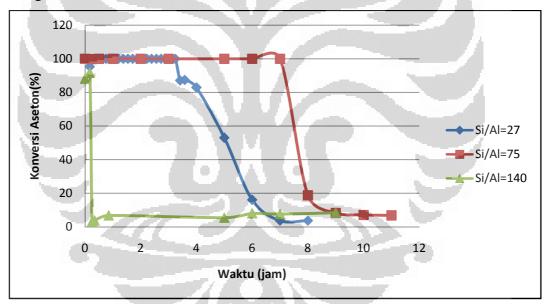
4.1.1 Tahap *Blank Test*

Pada tahap ini dilakukan pengaliran aseton di dalam reaktor *fixed bed* tanpa keberadaan katalis. Di dalam reaktor hanya diisi dengan *guartz sand* sebesar 5,0000 gram. Tujuannya adalah untuk mengetahui apakah tanpa keberadaan katalis, aseton dapat terkonversi menjadi hidrokarbon atau tidak. Data yang digunakan sebagai pembanding adalah komposisi produk yang dihasilkan. Dari penelitian, diperoleh produk berupa aseton 100% yang menunjukkan bahwa tanpa adanya katalis HZSM-5 tidak terjadi reaksi konversi.

4.1.2 Deaktivasi Katalis HZSM-5 pada Berbagai Rasio Si/Al

Untuk mengetahui kinerja katalis HZSM-5 pada berbagai rasio Si/Al, dilakukan pengaliran aseton ke dalam reaktor dan diamati bagaimana konversi dari aseton pada katalis tersebut. Pengujian ini dilakukan dengan kurun waktu dan kondisi operasi yang tetap pada semua katalis. Pada percobaan ini dilakukan pengujian kinerja katalis HZSM-5 selama 8 jam dengan besarnya rasio Si/Al pada katalis = 27, 75 dan 140, dengan laju alir N_2 100 ml/menit, temperatur *preheater* = 110° C dan temperatur reaksi = 400° C.

Produk yang dihasilkan dari konversi aseton, dianalisis dengan menggunakan *Gas Chromatography Flame Ionization Detector* (GC-FID). Setelah dilakukan perhitungan, maka diperoleh kurva konversi aseton sepanjang waktu seperti terlihat pada Gambar 4.1. Kurva ini kemudian digunakan untuk mengetahui waktu deaktivasi katalis HZSM-5.



Gambar 4.1 Deaktivasi Katalis HZSM-5 dalam Berbagai Rasio Si/Al dalam Katalis HZSM-5

Gambar 4.1 menunjukan secara jelas adanya pengaruh rasio Si/Al terhadap deaktivasi katalis HZSM-5. Pada gambar terlihat bahwa kinerja katalis untuk mengkonversi aseton menjadi hidrokarbon berbeda-beda. HZSM-5 dengan rasio Si/Al=27 menghasilkan konversi aseton 100% selama 4 jam, selanjutnya terjadi deaktivasi katalis secara bertahap hingga konversi 5%.

Untuk HZSM-5 dengan rasio Si/Al=75 menunjukan kinerja yang lebih baik dibandingkan dengan dua rasio lainnya. HZSM-5 dengan rasio Si/Al=75 Universitas Indonesia

menghasilkan konversi aseton 100% selama 7 jam kemudian pada jam ke-8 mengalami penurunan kinerja katalis yang signifikan. Untuk HZSM-5 dengan rasio Si/Al=140 langsung mengalami deaktivasi setelah reaksi satu jam.

Deaktivasi katalis diikuti dengan perubahan warna yang terjadi pada katalis. Katalis baru HZSM-5 memiliki warna putih bersih, sedangkan katalis yang mengalami deaktivasi akan menjadi hitam pekat seperti terlihat pada Gambar 4.2. Warna hitam pada katalis yang terdeaktivasi diakibatkan terbentuknya kokas yang menempel pada sisi aktif katalis. Sisi aktif katalis yang tertutupi mengakibatkan menurunnya luas permukaan pada katalis. Terbentuknya kokas tidak langsung menutupi pintu pori tetapi melapisi dinding pori terlebih dahulu sehingga deaktivasi terjadi secara bertahap.



Gambar 4.2 Katalis HZSM-5 Terdeaktivasi (Kiri) dan Regenerasi (Kanan)

Pada penelitian ini juga dilakukan regenerasi katalis dengan mengalirkan udara pada ungun katalis. Kokas merupakan persenyawaan karbon yang bisa bereaksi dengan udara dan menghasilkan gas CO₂ dan H₂O. Keberhasilan regenerasi ditandai dengan perubahan fisik warna katalis, katalis yang terdeaktivasi berwarna hitam pekat menjadi putih bersih kembali setelah diregenerasi. Berat katalis juga mengalami penurunan dibandingkan berat sebelum diregenerasi.

4.2 Karakterisasi Katalis

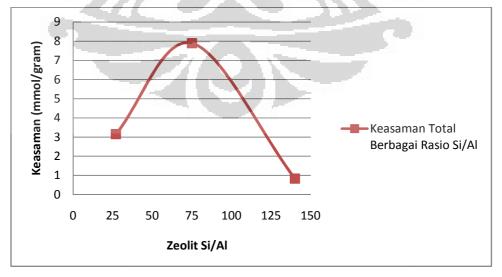
Karakterisasi katalis yang dilakukan baik untuk katalis baru maupun katalis yang terdeaktivasi dimaksudkan untuk mengetahui karakteristik katalis dan menjelaskan perilaku deaktivasi dari katalis sesuai dengan rasio Si/Al yang telah didapat hasilnya pada sub bab 4.1.2. Uji FT-IR, uji keasaman dan uji BET digunakan dalam karakterisasi ini untuk mengetahui perubahan katalis setelah

digunakan dalam reaksi konversi aseton, khususnya untuk mengetahui keberadaan kokas pada katalis. Uji FT-IR dilakukan untuk mengetahui secara kualitatif ikatan-ikatan yang terdapat pada katalis yang bertujuan untuk mengidentifikasi kandungan sampel katalis HZSM-5. Uji keasaman dengan metode adsorpsidesorpsi amoniak (TPD-NH₃) dilakukan untuk mengetahui keasaman dari katalis baik yang baru maupun yang telah terdeaktivasi. Uji BET digunakan untuk mengetahui luas permukaan pada zeolit baru, terdeaktivasi dan yang telah diregenerasi.

4.2.1 Uji Keasaman

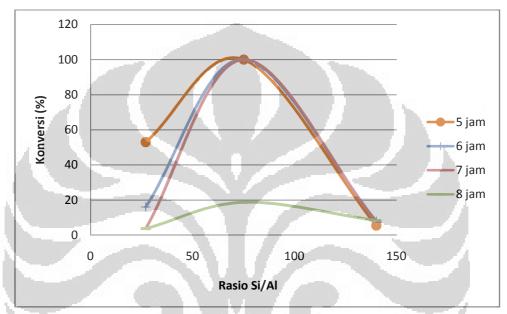
Kemampuan zeolit HZSM-5 untuk mengkonversi berbagai jenis reaktan sangat berkaitan dengan sifat keasamannya terutama pada sisi inti aktif asam *Bronsted*. Zeolit HZSM-5 dapat berfungsi sebagai katalis asam karena pada permukaan zeolit terdapat proton (H⁺) yang berfungsi sebagai pusat inti aktif. Karakterisasi keasaman zeolit dapat diketahui dengan metode adsorpsi-desorpsi NH₃ dimana kuantitas NH₃ yang terserap mengindikasi jumlah keasaman katalis. NH₃ bersifat basa sehingga dijadikan barometer atau ukuran tingkat keasaman suatu katalis untuk asam *Bronsted*.

Asam *Bronsted* akan mengadsorb NH₃ membentuk NH₄⁺. Semakin banyak NH₄⁺ yang terserap oleh katalis menunjukan semakin tinggi keasaman dari katalis HZSM-5. Bila terdesorpsi pada suhu yang lebih tinggi menunjukan semakin tinggi kekuatan asamnya.



Gambar 4.3 Keasaman total zeolit HZSM-5 rasio Si/Al= 27, 75 dan 140

Hasil TPD NH₃ terlihat pada Gambar 4.3. Gambar ini menunjukan keasaman total yang diukur dengan mendesorpsi amoniak pada rentang 250-450°C diplot dengan rasio Si/Al. Katalis HZSM-5 dengan rasio Si/Al=27 memiliki keasaman sebesar 3,1547 mmol NH₃/gram katalis, katalis HZSM-5 dengan rasio Si/Al=75 memiliki keasaman yang paling tinggi sebesar 7,98 mmol NH₃/gram katalis dan katalis HZSM-5 dengan rasio Si/Al=140 memiliki keasaman yang rendah hanya sebesar 0,8411 mmol NH₃/gram katalis.

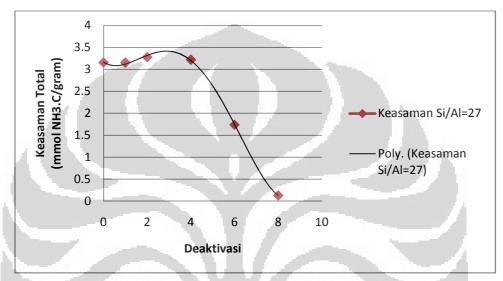


Gambar 4.4 Deaktivasi katalis HZSM-5 dengan Berbagai Rasio Si/Al

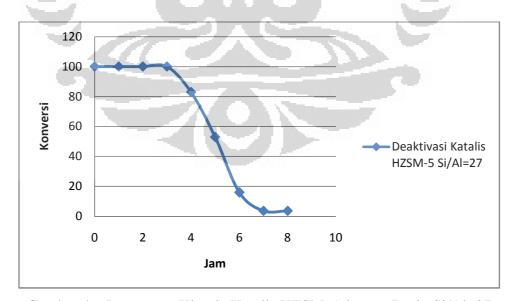
Hasil uji keasaman zeolit HZSM-5 berbagai rasio, sangat berkaitan dengan hasil uji katalitik katalis yang telah dilakukan pada sub bab 4.2.1. Dimana zeolit dengan rasio Si/Al=75 yang memiliki keasaman katalis tertinggi mengalami aktivitas katalis terlama, sedangkan zeolit dengan rasio Si/Al=140 yang memiliki keasaman katalis terendah mengalami deaktivasi katalis tercepat. Bila diperhatikan Gambar 4.3 dan Gambar 4.4 terlihat bahwa adanya korelasi yang kuat antara keasaman dengan keaktifan katalis, dimana pola kurva yang terbentuk mirip khususnya pada puncak Si/Al=75 memiliki keasaman tertinggi begitu juga pada Gambar 4.4, Si/Al=75 terlihat pada puncak tertinggi, hal ini kuat mengindikasikan bahwa keaktifan katalis sangat ditentukan oleh pusat inti aktif asam.

4.2.2 Tingkat Keasaman dan Deaktivasi Katalis untuk Rasio Si/Al=27

Pengujian keasaman dilakukan pada setiap waktu tertentu saat reaksi aseton berlangsung yakni 0, 1, 2, 4, 6, dan 8 jam. Pada jam tersebut reaksi aseton dihentikan dan sampel katalis dilakukan uji keasaman. Pengujian keasaman dilakukan pada katalis dengan rasio Si/Al=27. Hasil dari penurunan keasaman dapat dilihat pada Gambar 4.5 dan penurunan kinerja katalis dapat dilihat pada Gambar 4.6.



Gambar 4.5 Penurunan Tingkat Keasaman Katalis HZSM-5 dengan Rasio Si/Al=27

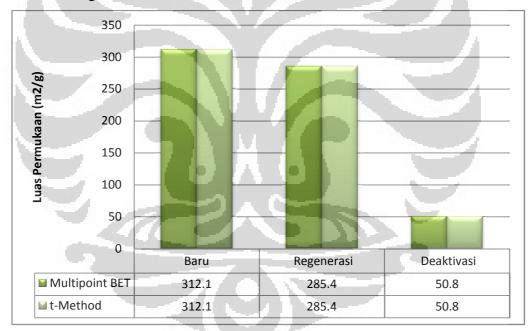


Gambar 4.6 Penurunan Kinerja Katalis HZSM-5 dengan Rasio Si/Al=27

Pada Gambar 4.6, dapat dilihat bahwa saat zeolit HZSM-5 memiliki tingkat keasaman yang tinggi yaitu sebesar 3,1546 mmol NH₃/gram katalis maka konversi aseton yang dihasilkan sebesar 100%. Penurunan aktivitas katalis terjadi ketika katalis telah bereaksi selama 4 jam. Dari kedua Gambar 4.5 dan 4.6 dapat dilihat bahwa keasaman total dan konversi aseton menurun secara bersama-sama atau sebanding. Hal ini menandakan bahwa inti aktif asam katalis HZSM-5 merupakan penentu berlansungnya reaksi konversi aseton. Penurunan keasaman akibat dari deaktivasi katalis sangat dimungkinkan karena inti aktif katalis tertutup (bloking) oleh terbentuknya kokas berwarna hitam seperti pada sub bab 4.1.2.

4.2.3 Karakterisasi Dengan Metode BET

Brunaver, Emmett, Teller (BET) digunakan untuk menganalisis luas permukaan pada zeolit. Katalis yang digunakan untuk analisis BET adalah zeolit HZSM-5 dengan rasio Si/Al=27.

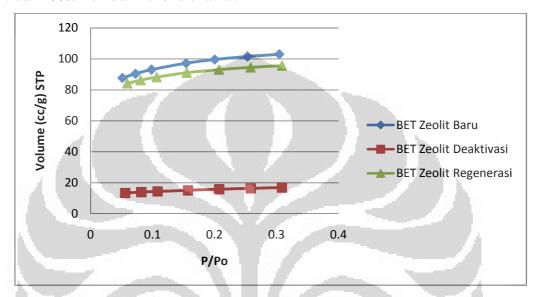


Gambar 4.7 Luas Permukaan Katalis HZSM-5 Rasio Si/Al=27

Dari Gambar 4.7 terlihat perubahan luas permukaan zeolit untuk katalis baru, katalis terdeaktivasi dan katalis yang telah di regenerasi. Analisis BET dapat digunakan untuk mengetahui kemungkinan terjadinya deaktivasi yang disebabkan oleh penurunan pori katalis (*pore blocking*).

Dari penelitian, diperoleh hasil bahwa katalis baru memiliki luas permukaan sebesar 312,1 m²/gram, katalis terdeaktivasi memiliki luas permukaan yang kecil yaitu sebesar 50,8 m²/gram dan katalis yang telah diregenerasi Universitas Indonesia

memiliki luas permukaan 285,4 m²/gram. Berdasarkan analisis secara fisik terjadi perubahan warna pada katalis, katalis baru berwarna putih bersih menjadi berwarna hitam pekat ketika terjadi deaktivasi seiring dengan menurunnya luas permukaan katalis. Katalis akan berubah warna menjadi putih kembali ketika katalis telah diregenerasi dan luas permukaan katalis kembali menjadi besar tetapi tidak 100% kembali kekondisi awal.



Gambar 4.8 Hasil Uji BET Berdasarkan Realtive Pressure (P/Po) dan Volume Nitrogen Teradsopsi.

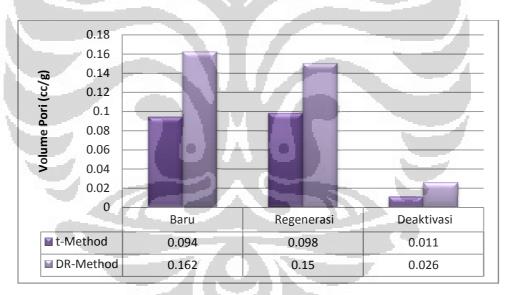
Hasil pengukuran BET dengan mengunakan adsopsi nitrogen pada suhu160°C dapat dilihat pada Gambar 4.8. Data hasil pengukuran diplot antara relatif pressure (P/Po) dengan volume nitrogen terlihat bahwa kemampuan zeolit baru paling tinggi dalam rentang harga P/Po. Hasil pengukuran dari sampel katalis hasil regenerasi terlihat kemampuan adsopsinya sedikit dibawah kemampuan katalis baru, katalis yang diregenerasi tidak sepenuhnya kembali ke kondisi awal sebelum terjadi reaksi. Udara yang digunakan regenerasi mampu membuka kembali saluran pori zeolit yang telah tertutup kokas (bloking kokas) yang terbentuk selama berlangsungnya reaksi, akan tetapi kokas tidak sepenuhnya hilang dari stuktur pori katalis, bloking oleh kokas masih terjadi pada stuktur pori yang sulit terjangkau biasanya berada pada pori bagian dalam. Disisi lain, kurva hasil pengukuran BET untuk katalis yang terdeaktivasi menunjukan kemampuan adsopsi yang relatif rendah seperti terlihat pada Gambar 4.8 hal ini terjadi akibat

adanya *bloking* total (*full bloking*) pada saluran pori sehingga molekul nitrogen hanya mengukur permukaan katalis eksternal saja.

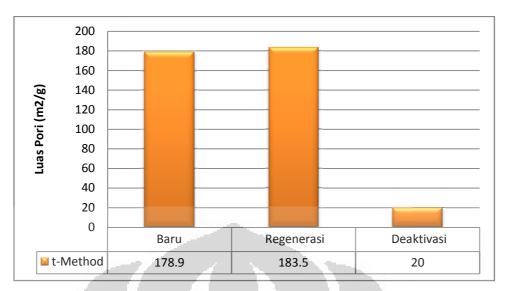
Perbandingan luas permukaan, volume pori dan luas pori hasil pengukuran katalis baru, regenerasi dan deaktivasi dapat terlihat pada tabel 4.1.

Tabel 4.1 Luas Permukaan, Volume Pori dan Luas Pori Katalis

Katalis	Luas Permukaan (m2/g)		Volume Pori (cc/g)		Luas Pori (m2/g)
Rataiis	Multipoint BET	t-Method	t-Method	DR- Method	t-Method
Baru	312,1	312,1	0,094	0,162	178,9
Regenerasi	285,4	285,4	0,098	0,15	183,5
Deaktivasi	50,8	50,8	0,011	0,026	20



Gambar 4.9 Volume Pori Katalis HZSM-5

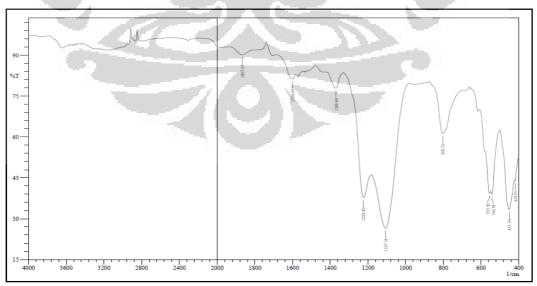


Gambar 4.10 Luas Pori Katalis HZSM-5

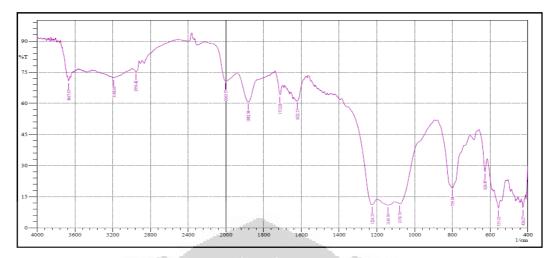
Pada Gambar 4.9 volume pori katalis akan mengalami penurunan, kemudian akan terjadi kenaikkan kembali setelah mengalami regenerasi katalis. Pada Gambar 4.10 luas pori katalis akan mengalami penurunan saat terjadi deaktivasi katalis dan mengalami kenaikan kembali setelah katalis diregenerasi.

4.2.4 Karakterisasi dengan FT-IR

Fourier Trasform Infra Red (FT-IR) digunakan untuk menganalisis ikatan-ikatan yang terdapat pada katalis khususnya untuk mengamati keberadaan kokas yang terbentuk pada saat bereaksi. Sampel katalis yang diidentifikasi dengan mengunakan FT-IR adalah zeolit HZSM-5 rasio Si/Al= 27 dan Si/Al=140.

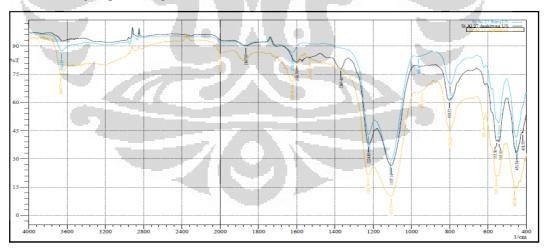


Gambar 4.11 FT-IR Katalis Baru Rasio Si/Al=27



Gambar 4.12 FT-IR Katalis Baru Rasio Si/Al=140

Gambar 4.11 dan Gambar 4.12 menunjukkan hasil pengujian FT-IR pada katalis baru sebelum terjadinya reaksi. Pada Gambar terlihat berbagai macam bilangan gelombang. Bilangan gelombang 1000-1300 cm⁻¹ menunjukan keberadaan ikatan Si-H, ikatan Si-O maupun ikatan kimia dengan Si lainnya yang merupakan senyawa penyusun HZSM-5. Selain itu terdapat *peak* pada 1400 cm⁻¹ yang merupakan *peak* dari ikatan H-Si sedangkan untuk *peak* 1630 cm⁻¹ merupakan *peak* dari ikatan Al. Untuk bilangan gelombang 3600 cm⁻¹ merupakan ikatan O-H yang menunjukkan suatu ikatan *Bronsted*.

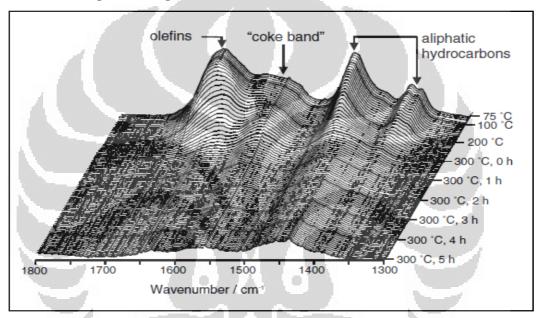


Gambar 4.13 FT-IR Katalis Zeolit HZSM-5 Rasio Si/Al=27

- a. Warna biru adalah katalis baru
- b. Warna hitam adalah katalis terdeaktivasi
- c. Warna kuning adalah katalis regenerasi

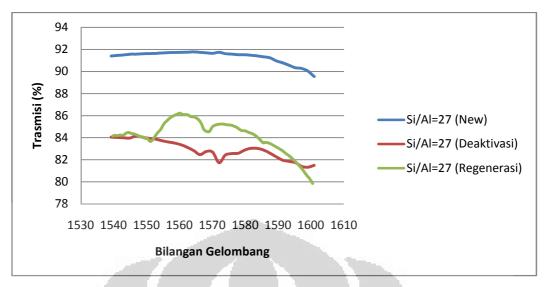
Gambar 4.13 menujukan hasil pengujian FT-IR pada katalis zeolit HZSM-5 rasio Si/Al=27. Pada Gambar 4.13 terlihat bilangan gelombang yang berbeda pada saat katalis baru, terdeaktivasi dan setelah di regenerasi. Bilangan gelombang yang berbeda terlihat pada *transmisi* pita kokas (1540-1600 cm⁻¹) dan bilangan gelombang disekitar 3600 cm⁻¹ merupakan ikatan O-H yang menunjukan suatu ikatan asam *Brounstd*.

Identifikasi ikatan kokas mengacu pada penelitian yang telah dilakukan oleh Weitkamp *et al.*, 2004. Ikatan kokas berada pada bilangan gelombang 1540-1600 cm⁻¹. Dapat dilihat pada Gambar 4.14.



Gambar 4.14 Spektrum FT-IR pada Kokas Katalis 0,4Pt/La-X (Weitkamp, 2004).

Mengacu pada Gambar 4.14 bahwa hasil FT-IR pada penelitian ini terbentuk ikatan kokas dibilangan gelombang 1540-1600 cm $^{-1}$ untuk setiap laju carrier gas N_2 . Hal ini sesuai terhadap apa yang telah dilakukan oleh peneliti sebelumnya Weitkamp *et al.*, 2004. Bahwa terbentuk ikatan kokas pada bilangan gelombang 1540-1600 cm $^{-1}$.



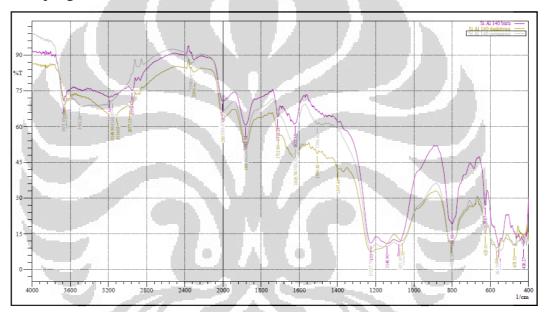
Gambar 4.15 Spektrum pita FT-IR untuk Deposit Kokas pada Zeolit HZSM-5 Si/Al=27

Pada Gambar 4.15 rentang daerah transmisi pita kokas, yakini antara 1540-1600 cm⁻¹ yang ditunjukan dalam % transmisi dan 1/cm. Untuk zeolit baru yang belum digunakan dalam reaksi terlihat bahwa tidak adanya *peak* yang muncul pada rentang spektrum FT-IR tersebut dan dengan % transmisi sekitar 90-92% tidak ada ikatan sejenis apapun yang terbentuk pada sampel katalis.

Untuk katalis yang mengalami deaktivasi, hasil spektrum yang didapat terlihat bahwa posisi kurva jauh berada dibawah kurva spektrum katalis baru, yakni berada pada rentang transmisi 82-84% hal ini menunjukan terjadi penyerapan energi infra red oleh ikatan pita FT-IR kokas. Penyerapan yang terjadi dilihat dari Gambar 4.15 sekitar 8% (dari 92% ke 84%) dan khusunya pada rentang bilangan gelombang sekitar 1573 cm⁻¹ terdapat *peak* yang cukup kuat, *peak* 1573 cm⁻¹ ini menandakan penyerapan energi infra red oleh ikatan yang terbentuk dalam senyawa kokas. Hal ini memperkuat dugaan bahwa terjadinya deaktivasi disebabkan terbentuknya kokas pada permukaan katalis.

Upaya penghilangan kokas pada katalis dengan cara regenerasi katalis mengunakan oksidasi udara. Pita spektrum pada FT-IR yang mengalami regenerasi katalis berada diantara spektrum katalis baru dan spektrum katalis yang terdeaktivasi. Dari data percobaan, hasil regenerasi belum bisa mengembalikan katalis seperti katalis baru. Pada katalis regenerasi masih terdapat ikatan kokas khususnya yang terlihat pada puncak gelombang 1568 cm⁻¹ (daerah resapan

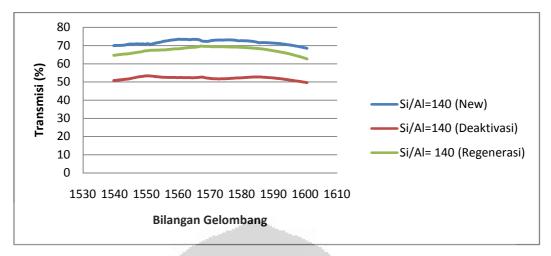
kokas). Posisi pada *peak* sedikit berbeda dengan *peak* yang muncul pada katalis yang terdeaktivasi, hal ini diperkirakan ikatan senyawa kokas mengalami perubahan akibat oksidasi oleh udara pada suhu 450°C sehingga ikatan senyawa kokas pada *peak* 1573 cm⁻¹ hilang. Ketidakmampuan regenerasi katalis selama 3 jam dengan laju udara 1000 cc/menit, kemungkinan besar dikarenakan kokas yang terbentuk lokasinya jauh berada didalam stuktur pori sehingga udara tidak menjangkau dan tidak dapat berdifusi didalam saluran stuktur pori secara sempurna, sehingga kokas masih berada dalam saluran pori dan menutupi sebagian pori (*partial bloking*). Hal ini diperkuat dengan analisa luas permukaan hasil pengukuran BET.



Gambar 4.16 FT-IR Katalis Zeolit HZSM-5 Rasio Si/Al=140

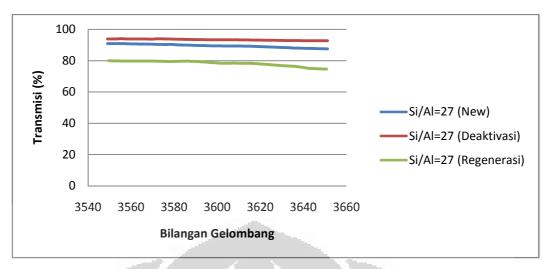
- a. Warna ungu adalah katalis baru
- b. Warna kuning adalah katalis terdeaktivasi
- c. Warna abu-abu adalah katalis regenerasi

Hasil pengujian FT-IR untuk katalis HZSM-5 rasio Si/Al=140 dapat dilihat pada Gambar 4.16 bilangan gelombang ketiga katalis ini berbeda-beda, sama seperti katalis dengan rasio Si/Al=27 katalis ini memiliki perbedaan panjang gelombang pada transmisi pita kokas dan ikatan asam *Brounsted*nya.



Gambar 4.17 Spektrum Pita FT-IR untuk Deposit Kokas pada Zeolit HZSM-5 Si/Al=140

Pada Gambar 4.17 rentang daerah transmisi pita kokas, yakni antara 1540-1600 cm⁻¹ yang ditunjukan dalam % transmisi dan 1/cm. Untuk zeolit baru yang belum digunakan dalam reaksi terlihat bahwa tidak adanya *peak* yang muncul pada rentang spektrum FT-IR tersebut dan dengan % transmisi sekitar 70-80% tidak ada ikatan sejenis apapun yang terbentuk pada sampel katalis. Pada katalis yang terdeaktivasi hasil spektrum berada dibawah katalis baru dengan % transmisi berada pada kisaran 40-50% yang menunjukan adanya penyerapan energi infra red oleh ikatan pita FT-IR kokas. Katalis yang terdeaktivasi untuk rasio Si/Al=140 berbeda dengan katalis dengan rasio Si/Al=27. Pada katalis dengan rasio Si/Al=140 tidak terdapat penyerapan *peak* yang cukup kuat sepanjang daerah transmisi pita kokas, begitu juga dengan katalis hasil regenerasi yang berada diantara katalis baru dan katalis yang terdeaktivasi dengan % transmisi berkisar diantara 60-70%. Katalis yang diregenerasi dengan menggunakan oksidasi udara ini tidak 100% kembali seperti katalis baru, sama seperti katalis zeolit rasio Si/Al=27.



Gambar 4.18 Spektrum FT-IR untuk Ikatan Asam *Brounsted* Zeolit HZSM-5 Si/Al=27

Hasil pengujian untuk ketiga katalis dengan mengunakan FT-IR ditemukan panjang gelombang untuk ikatan asam *Bronsted* pada rentang bilangan gelombang 3600 cm⁻¹ yang mengindikasikan adanya penambahan luas area ikatan O-H yang merupakan ikatan asam *Bronsted*.

Identifikasi ikatan asam *Bronsted* pada kisaran bilangan 3600 cm⁻¹ mengacu pada penelitian yang telah dilakukan oleh Martin *et al.*,(2008). Pada Gambar 4.18 katalis zeolit HZSM-5 rasio Si/Al=27 terlihat bahwa keasaman zeolit ketika terdeaktivasi mengalami penurunan dan ketika regenerasi mengalami kenaikan keasaman kembali. Hal ini terjadi karena kokas yang memiliki sifat asam sehingga peran kokas yang seakan-akan mengantikan keasaman *Bronsted* yang dimiliki katalis.

BAB V

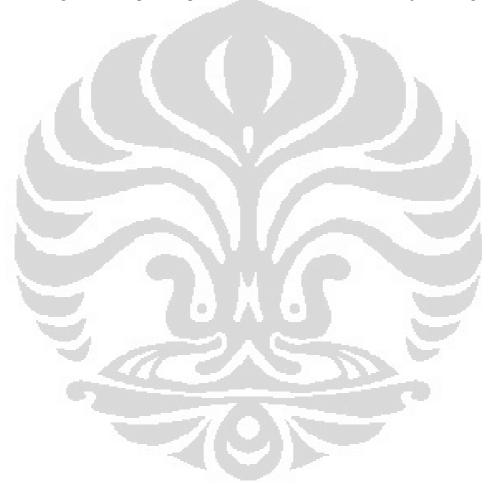
PENUTUP

5.1 Kesimpulan

- 1. Reaksi aseton dengan mengunakan katalis HZSM-5 dengan rasio Si/Al 27, 75 dan 140 telah berhasil dilakukan untuk menguji kemampuan masing-masing rasio zeolit tersebut dalam rentang waktu sampai dengan 11 jam.
- 2. Katalis dengan rasio Si/Al=75 menunjukan stabilitas yang lebih tinggi dibandingkan dengan rasio lainnya. Katalis ini mulai mengalami deaktivasi setelah 7 jam reaksi, sedangkan rasio Si/Al=27 mengalami deaktivasi setelah 3 jam reaksi dan rasio Si/Al=140 dalam ½ jam sudah mengalami deaktivasi.
- 3. Hasil uji keasaman menunjukan bahwa adanya korelasi yang sangat kuat antara keasaman yang dimiliki masing-masing Si/Al dengan prilaku deaktivasi khusus pada rentang waktu kestabilannya. Katalis dengan rasio Si/Al=75 memiliki keasaman tertinggi sebesar 7,98 mmolNH₃/gram katalis sehingga menyebabkan katalis memiliki konvesi aseton terlama yaitu selama 7 jam reaksi begitu juga sebaliknya, pada katalis dengan rasio Si/Al=140 memiliki keasaman terrendah 0,8411 mmolNH₃/gram katalis yang menyebabkan konversi aseton menjadi cepat hanya bertahan ½ jam reaksi. Keasaman katalis dapat dilihat dengan mengunakan FT-IR pada bilangan gelombang 3600 cm⁻¹.
- 4. Deaktivasi katalis disebabkan oleh terbentuknya kokas. Keberadaan kokas ini diamati dengan mengunakan FT-IR dan metode BET yang menunjukan penurunan sebesar 85-90% baik pada luas permukaan dan volume pori, sedangan metode FT-IR keberadaan kokas terlihat munculnya pita spektrum FT-IR pada rentang 1540-1600 cm⁻¹.
- 5. Regenerasi katalis telah berhasil dilakukan dengan mengunakan oksidasi udara. Regenerasi dapat menghilangkan kokas pada katalis sehingga luas permukaan katalis yang awalnya tertutupi oleh kokas 50,8 m²/gram menjadi luas kembali yaitu sebesar 285,5 m²/gram. Dari hasil FT-IR, katalis setelah regenerasi didapat pita spektrum serapan pada rentang 1540-1600 cm⁻¹ dan mendekati pita spektrum katalis baru.

5.2 Saran

- 1. Regenerasi perlu dioptimasi lebih lanjut untuk mendapatkan waktu regenerasi yang lebih cepat.
- 2. Katalis hasil regenerasi perlu dilakukan pengujian baik dari uji reaksi maupun uji keasaman.
- 3. Uji deaktivasi dan regenerasi harus dilakukan pengujian secara siklus untuk mengetahui sampai berapa kali siklus reaksi masih bisa berjalan dengan baik.



DAFTAR PUSTAKA

- Aguado, J., Costa, E., Ovejero, G., and Cafizares, P. (1992). *Conversion of n-Butanol-Acetone Mixture to C*₁-C₁₀ *Hydrocarbons on HZSM-5 Type Zeolit*. Journal of Chemical Society, 31, 1021-1025.
- Aguay, A.T., Gayubo, A.G., Atutxa, A., Olazar, M., and Bilbao. (2002). Catalyst Deactivation by Coke in the Transformation of Aqueous Ethanol into Hydrocarbons. Kinetic Modeling and Acidity Deterioration of the Catalyst. Journal Ind. Eng. Chem. Res, 41, 4216-4224.
- Bahtia, S. (2000). Zeolit Katalis: Principles And Applications CRC Perss, inc, Boca Raton: Florida.
- Chumaidi, A., dan Roesyadi, A. (1999). *Pembuatan Katalis ZSM-5 Dari Zeolit Alam Untuk Sintesa Reaksi Metanol Menjadi Hidrokarbon*. Jurusan Teknik Kimia. Fakultas Teknologi Industri. Institut Teknologi Sepuluh November: Surabaya.
- Darius. (2005). Skripsi: Konversi Katalitik n-Butanol menjadi Hidrokarbon C₂-C₄

 Menggunakan Katalis B₂O₃/Zeolit Alam. Jurusan Teknik Gas dan

 Petrokimia UI: Depok.
- Dharmawan, Y. (1998). Skripsi: *Preparasi, Karakteristik dan Kinerja Katalis CuO/ZnO/ZSM-5 Untuk Reaksi Hidrogenasi CO*₂. Jurusan Teknik Gas dan Petrokimia UI: Depok.
- Guisnet, M., and Magnoux, P. (1997). Deaktivation by Coking of Zeolit Catalysts.

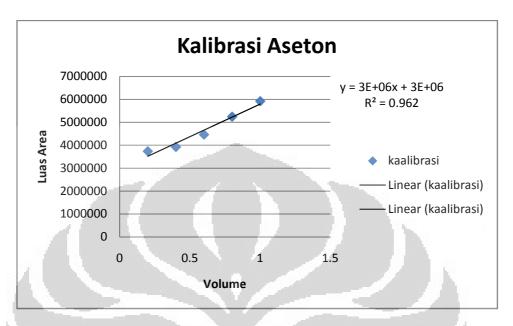
 Prevention of Deaktivation. Optimal Conditions for Regeneration. Journal of Catalysis Today, 36, 477-483.
- Jong, S.J., Pradhan, A.R., Wu, J.F., Tsai, T.C., and Liu, S.B. (1997). On The Regeneration of Coked HZSM-5 Catalysts. Journal of Catalysis, 174, 210-218.
- Jentys, A., and Lercher, J.A. (2001). Introduction to Zeolite Science and Practice (2nd ed.). Elsevier: Amsterdam.
- Linna. (2010). Skripsi: Pengaruh Kondisi Operasi Terhadap Konversi Aseton Menjadi Hidrokarbon Aromatik Menggunakan Katalis HZSM-5. Jurusan Teknik Kimia UI: Depok.

- Martinez, C. N., Mendoza, F. A. D., and Bolano, L. P. (1998). *Effect of catalyst deactivation on the acid properties of zeolites used for isobutane/butene alkylation*. Journal Thermochimical Acta, 312, 47-61.
- Prilly. (2006). Skripsi: Konfersi Katalitik Senyawa Aseton-Butanol-Etanol (ABE)

 Menjadi Hidrokarbon Menggunakan Katalis HZSM-5 Dengan Variasi

 Rasio Si/Al. Jurusan Teknik Kimia UI: Depok.
- Querinni, C. A., and Roa, E. (1997). Deactivation of solid acid catalysts during isobutene alkylation with C4 olefins. Journal Applied Catalysis, 163, 199-215.
- Richardson, J. (1982). *Principles of Catalyst Development*. Plenum Press. New York and London.
- Setiadi. (2005). *Uji Kinerja Katalis ZSM-5 Dalam Konversi Aseton Menjadi Hidrokarbon Aromatik*. Simposium dan Kongres Teknologi Katalis Indonesia. Serpong.
- Setiadi., Selamet., Nasikin, M., Tsutsui, T., and Kojima, T. (2008). *Change in catalytic activity on acetone conversion to aromatic chemicals using H-ZSM-5*. Proceeding of the International Seminaron Chemisty. 464-468.
- Schulz, H., and Wei, M. (1999). *Deactivation and thermal regeneration of zeolite*HZSM-5 for methanol conversion at low temperature (260–29 °C). Journal Microporous and Mesoporous Materials, 29, 205-218.
- Sie, S.T. (2001). Consequences of Catalyst Deaktivation for Proces Design and Opration. Journal of Applied Catalysis A: General, 212, 129-151.
- Weitkamp, J., Josl, R., Klngmann, R., Traa, Y., and Roger. (2004). Regeneration of Zeolite Catalysts Deactivated in Isobutane/Butene Alkylation: an in Situ FTIR Investigation at Elevated H₂ Pressure. Journal of Catalysis Communication, 5, 239-241.

LAMPIRAN A DATA KALIBRASI



Gambar 1 Kurva Kalibrasi Aseton

LAMPIRAN B HASIL PERCOBAAN

Tabel 1. Data Deaktivasi Katalis HZSM-5 Rasio Si/Al=27

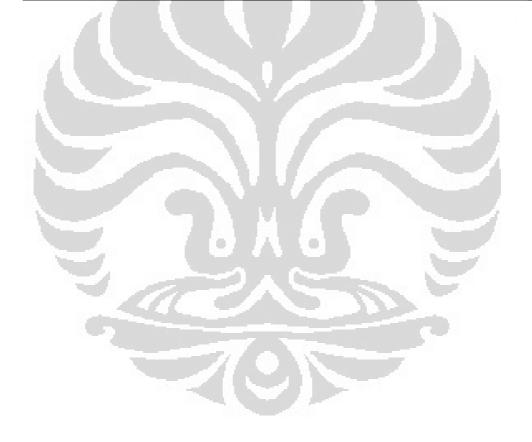
Sampel (Jam)	Laju Alir (ml/mnt)	Luas Area Blangko Aseton	Luas Arean Aseton yang Telah Bereaksi	Konversi
0	100	2634489	0	100
1	100	2634489	0	100
2	100	2634489	0	100
3	100	2634489	0	100
4	100	2634489	449066	82,95434
5	100	2634489	1238787	52,97809
6	100	2634489	2212153	16,03104
7	100	2634489	2537067	3,697947
8	100	2634489	2537067	3,697947

Tabel 2. Data Deaktivasi Katalis HZSM-5 Rasio Si/Al=75

Sampel (Jam)	Laju Alir (ml/mnt)	Luas Area Blangko Aseton	Luas Arean Aseton yang Telah Bereaksi	Konversi
0	100	2634489	0	100
1	100	2634489	0	100
2	100	2634489	0	100
3	100	2634489	0	100
4	100	2634489	0	100
5	100	2634489	0	100
6	100	2634489	0	100
7	100	2634489	0	100
8	100	2634489	2141292	18,72078

Tabel 3. Data Deaktivasi Katalis HZSM-5 Rasio Si/Al=140

Sampel (Jam)	Laju Alir (ml/mnt)	Luas Area Blangko Aseton	Luas Arean Aseton yang Telah Bereaksi	Konversi
0	100	2634489	315465	88,02557
1	100	2634489	219737	91,65922
2	100	2634489	2554301	3,043778
3	100	2634489	2538028	3,661469
4	100	2634489	2458016	6,698567
5	100	2634489	2491410	5,430996
6	100	2634489	2425435	7,935277
7	100	2634489	2435138	7,56697
8	100	2634489	2415436	8,314819



Tabel 4. Data Percobaan Deaktivasi Katalis Berbagai Rasio

Grafik	Katalis	Sampel (Jam)	Laju Alir (ml/mnt)	Luas Area Blangko Aseton	Luas Arean Aseton yang Telah Bereaksi	Konversi
	27		100	2634489	0	100
1	75	0	100	2634489	0	100
	140		100	2634489	315465	88,02557156
	27		100	2634489	0	100
2	75	1	100	2634489	0	100
	140		100	2634489	219737	91,6592174
	27		100	2634489	0	100
3	75	2	100	2634489	0	100
	140		100	2634489	2554301	3,043778129
	27		100	2634489	0	100
4	75	3	100	2634489	0	100
	140		100	2634489	2538028	3,661469074
	_ 27		100	2634489	449066	82,95434143
5	75	4	100	2634489	0	100
	140		100	2634489	2458016	6,698566591
	27		100	2634489	1238787	52,97809177
6	75	5	100	2634489	0	100
	140	All has	100	2634489	2491410	5,430996296
	27		100	2634489	2212153	16,03104055
7	75	6	100	2634489	0	100
-	140		100	2634489	2425435	7,935277012
	27		100	2634489	2537067	3,697946737
8	75	7	100	2634489	0	100
	140		100	2634489	2435138	7,566970293
	27		100	2634489	2537067	3,697946737
9	75	8	100	2634489	2141292	18,72078418
	140	Bearing St.	100	2634489	2415436	8,314819307

Tabel 2. Data Keasaman Total Katalis HZSM-5 Berbagai Rasio

Katalis	Vol HCl 0,005M	Kadar HCl	Vol KOH 0,005M	Kadar KOH	HCl berlebih hasil titrasi	HCl yang menyerap	NH3	Suhu Tabung	K <mark>easaman</mark> Tabung	Keasaman Total
Si/Al	(ml)	(mmol)	(ml)	(mmol)	(mmol)	(mmol)	(mmol)	('C)	(mmol NH3. C/gram)	(mmol NH3. C/gram)
140	100	0,5000	51,40	0,2570	0,2570	0,2430	0,2430	250 - 350	0,8078	0,8411
140	100	0,5000	98,00	0,4900	0,4900	0,0100	0,0100	350 - 450	0,0332	0,0411
27	125	0,6250	13,60	0,0680	0,0680	0,5570	0,5570	250 - 350	1,1124	3,1546
27	210	1,0500	5,50	0,0275	0,0275	1,0225	1,0225	350 - 450	2,0421	3,1340

Untuk Keasaman Katalis HZSM-5 Rasio Si/Al=75 data diambil dari percobaan terdahulu (Prilly,2008).

Tabel 3. Data Keasaman Zeolit HZSM-5 Rasio Si/Al=27

	Vol HCl	Kadar	Vol KOH	Kadar	HCl berlebih	HCl yang		Suhu	Keasaman	Keasaman
Deaktivasi	0,005M	HCl	0,005M	KOH	hasil titrasi	menyerap	NH3	Tabung	Tabung	Total
			7 6			B 1	2		(mmol NH3.	(mmol NH3.
(Jam)	(ml)	(mmol)	(ml)	(mmol)	(mmol)	(mmol)	(mmol)	('C)	C/gram)	C/gram)
0	125	0,625	13,6	0,068	0,068	0,557	0,557	250 - 350	1,11244258	3,154583583
	210	1,05	5,5	0,0275	0,0275	1,0225	1,0225	350 - 450	2,042141003	3,13 1303303
1,0000	125,0000	0,625	13,6000	0,068	0,068	0,557	0,557	250 - 350	1,11244258	3,154583583
1,0000	210,0000	1,05	5,5000	0,0275	0,0275	1,0225	1,0225	350 - 450	2,042141003	3,13 13 03 3 03
2,0000	170,0000	0,85	8,6000	0,043	0,043	0,807	0,807	250 - 350	1,611743559	3,278410226
2,0000	185,0000	0,925	18,1000	0,0905	0,0905	0,8345	0,8345	350 - 450	1,666666667	3,270110220
4,0000	225,0000	1,125	17,6000	0,088	0,088	1,037	1,037	250 - 350	2,071100459	3,21949271
4,0000	135,0000	0,675	20,0000	0,1	0,1	0,575	0,575	350 - 450	1,148392251	3,217+7211
6,0000	125,0000	0,625	17,4000	0,087	0,087	0,538	0,538	250 - 350	1,074495706	1,738566008
0,0000	75,0000	0,375	8,5000	0,0425	0,0425	0,3325	0,3325	350 - 450	0,664070302	1,730300000
8,0000	100,0000	0,5	92,0000	0,46	0,46	0,04	0,04	250 - 350	0,079888157	0,129818254
0,000	100,0000	0,5	95,0000	0,475	0,475	0,025	0,025	350 - 450	0,049930098	0,127010234

Tabel 4. Data Luas Permukaan Katalis Berdasarkan Realtif Pressure dan Volume Nitrogen.

HZSM-5	Zeolit	P/Po	Volume (cc/g) STP
		5,12E-02	87,6802
		7,25E-02	90,3795
		9,83E-02	93,0264
	New	1,54E-01	97,2165
		2,00E-01	99,6107
		2,53E-01	101,4976
		3,04E-01	103,0137
100	Deaktivasi	5,57E-02	13,3173
		8,19E-02	13,89
7.00		1,08E-01	14,3476
Si/Al=27		1,57E-01	15 ,02 24
		2,07E-01	15,7416
		2,58E-01	16,315
		3,09E-01	16,825
		5,93E-02	84,1287
		8,08E-02	86,2235
		1,07E-01	88,2438
	Regenerasi	1,55E-01	91,0531
		2,07E-01	93,0689
Toward Park		2,58E-01	94,5032
	A B A B A	3,09E-01	95,6081

Tabel 5. Data Pita Spektrum FTIR untuk Deposit Kokas Zeolit HZSM-5 Si/Al=27

Ġ	Si Al=27							
Nev	N .	Deaktiv	asi	Regener	asi			
1539	91	1539	84	1540	84			
1541	91	1541	84	1540	84			
1543	92	1543	84	1541	84			
1545	92	1545	84	1541	84			
1547	92	1547	84	1542	84			
1549	92	1549	84	1542	84			
1551	92	1551	84	1543	84			
1553	92	1553	84	1543	84			
1555	92	1555	84	1544	84			
1557	92	1557	84	1544	84			
1558	92	1558	84	1545	84			

1560	92	1560	83	1545	84
1562	92	1562	83	1545	84
1564	92	1564	83	1546	84
1566	92	1566	82	1546	84
1568	92	1568	83	1547	84
1570	92	1570	83	1547	84
1572	92	1572	82	1548	84
1574	92	1574	82	1548	84
1576	92	1576	83	1549	84
1578	92	1578	83	1549	84
1580	92	1580	-83	1550	84
1582	91	1582	83	1550	84
1584	91	1584	83	1551	84
1585	91	1585	83	1551	84
1587	91	1587	83	1552	84
1589	91	1589	82	1552	84
1591	91	1591	82	1553	84
1593	91	1593	82	1553	84
1595	90	1595	82	1554	85
1597	90	1597	81	1554	85
1599	90	1599	81	1555	85
1601	90	1601	81	1555	85
				1556	85
				1556	86
	8			1557	86
The same			(1557	86
				1558	86
- 4				1558	86
				1558	86
		/// (8)	11	1559	86
				1559	86
				1560	86
				1560	86
				1561	86
				1561	86
				1562	86
				1562	86
				1563	86
				1563	86
				1564	86
				1564	86

l I	1	1 1		
			1565	86
			1565	86
			1566	86
			1566	85
			1567	85
			1567	85
			1568	85
			1568	85
			1569	85
			1569	85
			1570	85
7	A 100 3		1570	85
			1571	85
			1571	85
			1572	85
			1572	85
			1572	85
			1573	85
			1573	85
	- A 40 A	/	1574	85
		A second	1574	85
			1575	85
	- 1		1575	85
	7 A A		1576	85
	(W ()	100	1576	85
			1577	85
			1577	85
			1578	85
	and the same of th		1578	85
			1579	85
		100	1579	85
			1580	85
	_		1580	85
			1581	85
			1581	84
			1582	84
			1582	84
			1583	84
	i.	1		
			1583	84
			1583 1584	84

				1585	84
				1585	84
				1585	84
				1586	84
				1586	84
				1587	84
				1587	83
				1588	83
				1588	83
				1589	83
				1589	83
	7000000-			1590	83
			1	1590	83
	/ (-
- 4	- 4			1591	83
				1591	83
-4-				1592	83
				1592	83
				1593	82
				1593	82
				1594	82
				1594	82
				1595	82
				1595	82
				1596	82
	i i			1596	82
) _A	<u></u>	1597	81
	144			1597	81
				1598	81
				1598	81
	7	/// 0		1599	81
				1599	80
				1599	80
				1600	80
				1600	80

Tabel 6. Data Pita Spektrum FTIR untuk deposit kokas Zeolit HZSM-5 Si/Al=140

	Si/Al=140							
New	V	Deakti	vasi	Rege	nerasi			
1540	70	1540	51	1540	65			
1540	70	1540	51	1540	65			
1541	70	1541	51	1541	65			
1541	70	1541	51	1541	65			
1542	70	1542	51	1542	65			
1542	70	1542	51	1542	65			
1543	70	1543	51	1543	65			
1543	70	1543	51	1543	65			
1544	70	1544	51	1544	65			
1544	71	1544	52	1544	65			
1545	71	1545	52	1545	66			
1545	71	1545	52	1545	66			
1545	71	1545	52	1545	66			
1546	71	1546	52	1546	66			
1546	71	1546	52	1546	66			
1547	71	1547	53	1547	66			
1547	71	1547	53	1547	66			
1548	71	1548	53	1548	66			
1548	71	1548	53	1548	67			
1549	71	1549	53	1549	67			
1549	71	1549	53	1549	67			
1550	71	1550	53	1550	67			
1550	71	1550	53	1550	67			
1551	71	1551	53	1551	67			
1551	71	1551	53	1551	67			
1552	71	1552	53	1552	67			
1552	71	1552	53	1552	67			
1553	71	1553	53	1553	67			
1553	71	1553	53	1553	67			
1554	72	1554	53	1554	67			
1554	72	1554	53	1554	67			
1555	72	1555	53	1555	68			
1555	72	1555	53	1555	68			
1556	72	1556	52	1556	68			
1556	72	1556	52	1556	68			
1557	73	1557	52	1557	68			
1557	73	1557	52	1557	68			

1558	73	1558	52	1558	68
1558	73	1558	52	1558	68
1558	73	1558	52	1558	68
1559	73	1559	52	1559	68
1559	73	1559	52	1559	68
1560	73	1560	52	1560	68
1560	73	1560	52	1560	68
1561	73	1561	52	1561	68
1561	73	1561	52	1561	68
1562	73	1562	52	1562	69
1562	73	1562	52	1562	69
1563	73	1563	52	1563	69
1563	73	1563	52	1563	69
1564	73	1564	52	1564	69
1564	73	1564	52	1564	69
1565	73	1565	52	1565	69
1565	73	1565	52	1565	69
1566	73	1566	52	1566	69
1566	73	1566	52	1566	69
1567	73	1567	52	1567	69
1567	73	1567	53	1567	70
1568	72	1568	53	1568	70
1568	72	1568	52	1568	69
1569	72	1569	52	1569	69
1569	72	1569	52	1569	69
1570	72	1570	52	1570	69
1570	73	1570	52	1570	69
1571	73	1571	52	1571	69
1571	73	1571	52	1571	69
1572	73	1572	52	1572	69
1572	73	1572	52_	1572	69
1572	73	1572	52	1572	69
1573	73	1573	52	1573	69
1573	73	1573	52	1573	69
1574	73	1574	52	1574	69
1574	73	1574	52	1574	69
1575	73	1575	52	1575	69
1575	73	1575	52	1575	69
1576	73	1576	52	1576	69
1576	73	1576	52	1576	69
1577	73	1577	52	1577	69

1577	73	1577	52	1577	69
1578	73	1578	52	1578	69
1578	73	1578	52	1578	69
1579	73	1579	52	1579	69
1579	73	1579	52	1579	69
1580	73	1580	52	1580	69
1580	73	1580	52	1580	69
1581	73	1581	52	1581	69
1581	73	1581	52	1581	69
1582	73	1582	52	1582	69
1582	72	1582	53	1582	69
1583	72	1583	53	1583	69
1583	72	1583	53	1583	69
1584	72	1584	53	1584	69
1584	72	1584	53	1584	68
1585	72	1585	53	1585	68
1585	72	1585	53	1585	68
1585	71	1585	53	1585	.68
1586	72	1586	53	1586	68
1586	72	1586	53	1586	68
1587	72	1587	53	1587	68
1587	72	1587	52	1587	68
1588	72	1588	52	1588	68
1588	71	1588	52	1588	68
1589	71	1589	52	1589	67
1589	71	1589	52	1589	67
1590	71	1590	52	1590	67
1590	71	1590	52	1590	67
1591	71	1591	52	1591	67
1591	71	1591	52	1591	67
1592	71	1592	52	1592	67
1592	71	1592	52	1592	66
1593	71	1593	52	1593	66
1593	71	1593	51	1593	66
1594	71	1594	51	1594	66
1594	70	1594	51	1594	66
1595	70	1595	51	1595	66
1595	70	1595	51	1595	65
1596	70	1596	51	1596	65
1596	70	1596	51	1596	65
1597	70	1597	51	1597	65

1597	70	1597	50	1597	64
1598	70	1598	50	1598	64
1598	69	1598	50	1598	64
1599	69	1599	50	1599	64
1599	69	1599	50	1599	63
1599	69	1599	50	1599	63
1600	69	1600	50	1600	63
1600	68	1600	50	1600	63

Tabel 7. Data Pita Spektrum FTIR untuk Ikatan Asam Brounsted Zeolit HZSM-5 Si/Al=27

			<u> </u>		
4.1		Si/Al=	=27		
Ne	W	Deakti	vasi	Rege	enerasi
3549	91	3549	94	3550	80
3551	91	3551	94	3550	80
3553	91	3553	94	3550	80
3555	91	3555	94	3551	80
3557	91	3557	94	3551	80
3559	91	3559	94	3552	80
3561	91	3561	94	3552	80
3563	91	3563	94	3553	80
3564	91	3564	94	3553	80
3566	91	3566	94	3554	80
3568	91	3568	94	3554	80
3570	90	3570	94	3555	80
3572	90	3572	94	3555	80
3574	90	3574	94	3556	80
3576	90	3576	94	3556	80
3578	90	3578	94	3557	80
3580	90	3580	94	3557	80
3582	90	3582	94	3558	80
3584	90	3584	94	3558	80
3586	90	3586	94	3559	80
3588	90	3588	93	3559	80
3590	90	3590	93	3560	80
3591	90	3591	93	3560	80
3593	90	3593	93	3561	80
3595	90	3595	93	3561	80
3597	89	3597	93	3562	80

3599	89	3599	93	3562	80
3601	89	3601	93	3563	80
3603	89	3603	93	3563	80
3605	89	3605	93	3564	80
3607	89	3607	93	3564	80
3609	89	3609	93	3564	80
3611	89	3611	93	3565	80
3613	89	3613	93	3565	80
3615	89	3615	93	3566	80
3617	89	3617	93	3566	80
3618	89	3618	93	3567	80
3620	89	3620	93	3567	80
3622	89	3622	93	3568	80
3624	89	3624	93	3568	80
3626	89	3626	93	3569	80
3628	89	3628	93	3569	80
3630	88	3630	93	3570	80
3632	88	3632	93	3570	80
3634	88	3634	93	3571	80
3636	88	3636	93	3571	80
3638	88	3638	93	3572	80
3640	88	3640	93	3572	80
3642	88	3642	93	3573	80
3644	88	3644	93	3573	80
3645	88	3645	93	3574	80
3647	88	3647	93	3574	80
3649	88	3649	93	3575	80
3651	88	3651	93	3575	80
			The same of the sa	3576	80
				3576	80
				3577	80
	24			3577	79
				3578	79
				3578	79
				3578	79
				3579	79
				3579	79
				3580	80
				3580	80
				3581	80
				3581	80

			3582	80
			3582	80
			3583	80
			3583	80
			3584	80
			3584	80
			3585	80
			3585	80
			3586	80
			3586	80
			3587	80
The second secon	2	1	3587	80
			3588	80
			3588	80
			3589	80
			3589	80
II I I			3590	80
			3590	80
			3591	80
			3591	79
		65	3591	79
			3592	79
			3592	79
			3593	79
The same of the sa	U /\		3593	79
The same of the same of			3594	79
			3594	79
			3595	79
			3595	79
	/// (8)		3596	79
		10000	3596	79
			3597	79
			3597	79
			3598	79
			3598	79
			3599	79
			3599	79
			3600	79
			3600	79
			3601	78
			3601	78

I	I	1 1		l
			3602	78
			3602	78
			3603	78
			3603	78
			3604	78
			3604	78
			3605	78
			3605	78
			3605	78
			3606	78
			3606	78
and d	/		3607	78
	6		3607	78
7 1			3608	78
			3608	78
			3609	78
1 1			3609	78
			3610	78
			3610	78
			3611	78
		A	3611	78
			3612	78
			3612	78
			3613	78
1	U /1		3613	78
			3614	78
7 ///		7	3614	78
			3615	78
			3615	78
			3616	78
		1	3616	78
			3617	78
		2.55	3617	78
			3618	78
			3618	78
			3618	78
			3619	78
			3619	78
			3620	78
			3620	78
			3621	78
			3041	70

			3621	78
			3622	78
			3622	78
			3623	78
			3623	78
			3624	78
			3624	77
			3625	77
			3625	77
			3626	77
			3626	77
200			3627	77
			3627	77
			3628	77
			3628	77
			3629	77
			3629	77
			3630	77
			3630	77
			3631	77
		All and	3631	77
			3632	77
			3632	77
	PL PL		3632	77
	W / 1	- L	3633	77
	~~) _A (3633	77
7 ////			3634	77
			3634	77
			3635	77
	/// (9)		3635	76
			3636	76
			3636	76
			3637	76
			3637	76
			3638	76
			3638	76
			3639	76
			3639	76
			3640	76
			3640	76
			3641	76

			3641	75
			3642	75
			3642	75
			3643	75
			3643	75
			3644	75
			3644	75
			3645	75
			3645	75
			3645	75
			3646	75
	100		3646	75
33			3647	75
			3647	75
4			3648	75
			3648	75
			3649	75
			3649	75
			3650	75
		A	3650	75
		W area	3651	75

Tabel 8. Data Pita Spektrum FTIR untuk Ikatan Asam Brounsted Zeolit HZSM-5 Si/Al=140

	Si/Al=140							
Nev	v	Deaktiv	vasi	Reg	enerasi			
3550	76	3550	73	3550	71			
3550	76	3550	73	3550	71			
3550	76	3550	74	3550	71			
3551	76	3551	74	3551	71			
3551	76	3551	74	3551	71			
3552	76	3552	74	3552	71			
3552	76	3552	74	3552	71			
3553	76	3553	74	3553	71			
3553	77	3553	74	3553	71			
3554	77	3554	74	3554	71			
3554	77	3554	74	3554	71			
3555	77	3555	74	3555	71			
3555	77	3555	74	3555	71			

3556	77	3556	74	3556	71
3556	77	3556	74	3556	71
3557	77	3557	74	3557	71
3557	77	3557	74	3557	71
3558	77	3558	74	3558	71
3558	77	3558	74	3558	71
3559	77	3559	74	3559	71
3559	77	3559	74	3559	71
3560	76	3560	74	3560	71
3560	76	3560	74	3560	71
3561	76	3561	74	3561	71
3561	76	3561	74	3561	71
3562	76	3562	73	3562	71
3562	76	3562	73	3562	71
3563	76	3563	73	3563	71
3563	76	3563	73	3563	71
3564	76	3564	73	3564	71
3564	76	3564	73	3564	71
3564	76	3564	73	3564	71
3565	76	3565	73	3565	71
3565	76	3565	73	3565	71
3566	76	3566	73	3566	71
3566	76	3566	73	3566	71
3567	76	3567	73	3567	71
3567	76	3567	73	3567	71
3568	76	3568	73	3568	71
3568	77	3568	73	3568	71
3569	77	3569	73	3569	71
3569	77	3569	73	3569	71
3570	77	3570	73	3570	71
3570	77	3570	73	3570	71
3571	77	3571	73	3571	71
3571	77	3571	73	3571	71
3572	77	3572	73	3572	71
3572	77	3572	73	3572	72
3573	77	3573	73	3573	72
3573	77	3573	73	3573	72
3574	77	3574	73	3574	72
3574	77	3574	73	3574	72
3575	77	3575	74	3575	72
3575	77	3575	74	3575	72

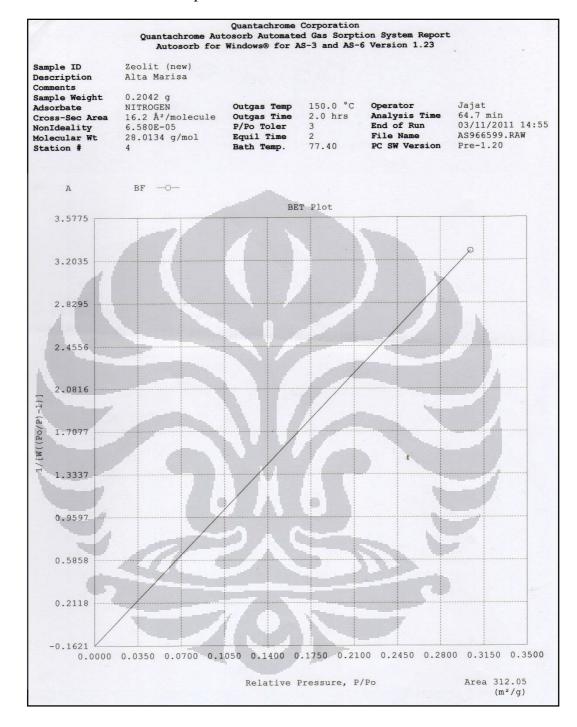
3576	76	3576	74	3576	72
3576	76	3576	74	3576	72
3577	76	3577	74	3577	72
3577	76	3577	74	3577	72
3578	76	3578	74	3578	72
3578	76	3578	74	3578	72
3578	76	3578	74	3578	72
3579	76	3579	73	3579	72
3579	76	3579	73	3579	72
3580	76	3580	73	3580	72
3580	76	3580	73	3580	72
3581	76	3581	73	3581	72
3581	76	3581	73	3581	72
3582	76	3582	73	3582	72
3582	76	3582	73	3582	72
3583	76	3583	73	3583	72
3583	76	3583	73	3583	72
3584	76	3584	73	3584	72
3584	76	3584	73	3584	72
3585	76	3585	73	3585	72
3585	76	3585	73	3585	72
3586	76	3586	73	3586	72
3586	76	3586	73	3586	72
3587	76	3587	73	3587	72
3587	76	3587	73	3587	72
3588	76	3588	73	3588	72
3588	76	3588	73	3588	72
3589	76	3589	73	3589	72
3589	76	3589	73	3589	72
3590	76	3590	73	3590	72
3590	76	3590	73	3590	72
3591	76	3591	73	3591	72
3591	76	3591	73	3591	72
3591	76	3591	73	3591	72
3592	76	3592	73	3592	72
3592	76	3592	73	3592	72
3593	76	3593	73	3593	72
3593	76	3593	73	3593	72
3594	76	3594	73	3594	72
3594	76	3594	73	3594	72
3595	76	3595	73	3595	72

3595	76	3595	73	3595	72
3596	76	3596	72	3596	72
3596	76	3596	72	3596	72
3597	76	3597	72	3597	72
3597	76	3597	72	3597	72
3598	76	3598	72	3598	72
3598	76	3598	72	3598	72
3599	76	3599	72	3599	71
3599	76	3599	72	3599	71
3600	76	3600	72	3600	71
3600	76	3600	72	3600	71
3601	75	3601	72	3601	71
3601	75	3601	72	3601	71
3602	75	3602	72	3602	71
3602	75	3602	72	3602	71
3603	75	3603	72	3603	71
3603	75	3603	72	3603	71
3604	75	3604	72	3604	71
3604	75	3604	72	3604	71
3605	75	3605	72	3605	71
3605	75	3605	72	3605	71
3605	75	3605	72	3605	71
3606	75	3606	72	3606	71
3606	75	3606	72	3606	71
3607	75	3607	72	3607	71
3607	75	3607	72	3607	71
3608	75	3608	72	3608	71
3608	75	3608	72	3608	71
3609	75	3609	72	3609	71
3609	75	3609	72	3609	71
3610	75	3610	72	3610	71
3610	75	3610	72	3610	71
3611	75	3611	72	3611	71
3611	75	3611	72	3611	71
3612	75	3612	72	3612	71
3612	75	3612	72	3612	71
3613	75	3613	72	3613	71
3613	75	3613	72	3613	71
3614	75	3614	72	3614	71
3614	75	3614	72	3614	71
3615	75	3615	72	3615	71

3615	75	3615	72	3615	71
3616	75	3616	72	3616	71
3616	75	3616	72	3616	71
3617	75	3617	72	3617	71
3617	75	3617	72	3617	71
3618	75	3618	72	3618	71
3618	75	3618	72	3618	71
3618	75	3618	72	3618	71
3619	75	3619	72	3619	71
3619	75	3619	72	3619	71
3620	75	3620	72	3620	72
3620	75	3620	72	3620	72
3621	75	3621	72	3621	72
3621	75	3621	72	3621	72
3622	75	3622	72	3622	72
3622	75	3622	72	3622	72
3623	75	3623	72	3623	72
3623	75	3623	71	3623	72
3624	75	3624	71	3624	71
	75	3624	71	3624	71
3624	75	3625	71		71
3625	75	3625	71	3625 3625	71
3626	75	3626	71	3626	71
3626	75	3626	71	3626	71
3627	75	3627	71	3627	71
3627	75	3627	71	3627	71
3628	75	3628	71	3628	71
3628	75	3628	71	3628	71
3629	75	3629	71	3629	71
3629	75	3629	71	3629	71
3630	75	3630	71	3630	71
3630	75	3630	71	3630	71
3631	75	3631	71	3631	71
3631	75	3631	71	3631	71
3632	75	3632	71	3632	71
3632	75	3632	71	3632	71
3632	75	3632	71	3632	71
3633	75	3633	71	3633	71
3633	75	3633	71	3633	71
3634	75	3634	71	3634	71
3634	75	3634	71	3634	71
JUJ 4	13	JUJ 4	/ 1	JUJ 4	/ 1

3635	75	3635	71	3635	71
3635	75	3635	71	3635	71
3636	75	3636	72	3636	71
3636	75	3636	72	3636	71
3637	75	3637	72	3637	71
3637	74	3637	72	3637	71
3638	74	3638	72	3638	71
3638	74	3638	72	3638	71
3639	74	3639	72	3639	71
3639	74	3639	72	3639	71
3640	74	3640	72	3640	71
3640	73	3640	72	3640	71
3641	73	3641	72	3641	71
3641	73	3641	72	3641	71
3642	73	3642	72	3642	71
3642	73	3642	71	3642	71
3643	73	3643	71	3643	71
3643	73	3643	71	3643	71
3644	73	3644	71	3644	70
3644	73	3644	71	3644	70
3645	73	3645	70	3645	70
3645	73	3645	70	3645	70
3645	73	3645	70	3645	70
3646	73	3646	70	3646	70
3646	73	3646	70	3646	70
3647	73	3647	70	3647	70
3647	73	3647	70	3647	70
3648	72	3648	70	3648	69
3648	72	3648	70	3648	69
3649	72	3649	70	3649	69
3649	72	3649	69	3649	69
3650	73	3650	69	3650	69
3650	73	3650	69	3650	69

Lampiran Data BET untuk Zeolit Baru



```
Quantachrome Corporation
                   Quantachrome Autosorb Automated Gas Sorption System Report
Autosorb for Windows® for AS-3 and AS-6 Version 1.23
Sample ID
                   Zeolit (new)
Description
Comments
                   Alta Marisa
Sample Weight
                   0.2042 g
                 NITROGEN
Outgas Temp
150.0 °C
Operator
16.2 Ų/molecule
Outgas Time
2.0 hrs
Analysis Time
6.580E-05
P/Po Toler
28.0134 g/mol
Equil Time
Bath Temp.
77.40
PC SW Version
                                                                                          Jajat
Adsorbate
Cross-Sec Area
                                                                                          64.7 min
03/11/2011 14:5!
NonIdeality
Molecular Wt
                                                                                          AS966599.RAW
                                                                     PC SW Version Pre-1.20
Station #
                                  AREA-VOLUME-PORE SIZE SUMMARY
                                         SURFACE AREA DATA

      Multipoint BET.
      3.121E+02
      m²/g

      Single Point BET.
      3.119E+02
      m²/g

      Langmuir Surface Area.
      4.658E+02
      m²/g

    PORE VOLUME DATA
    DR Method Micro Pore Volume.

HK Method Cumulative Pore Volume.

SF Method Cumulative Pore Volume.
                                                                             1.515E-01 cc/g
                                          PORE SIZE DATA
                                     7.149E+01 Å
    DR Method Micro Pore Width

        DR
        Method Micro Fole Width
        1.640E+01 Å

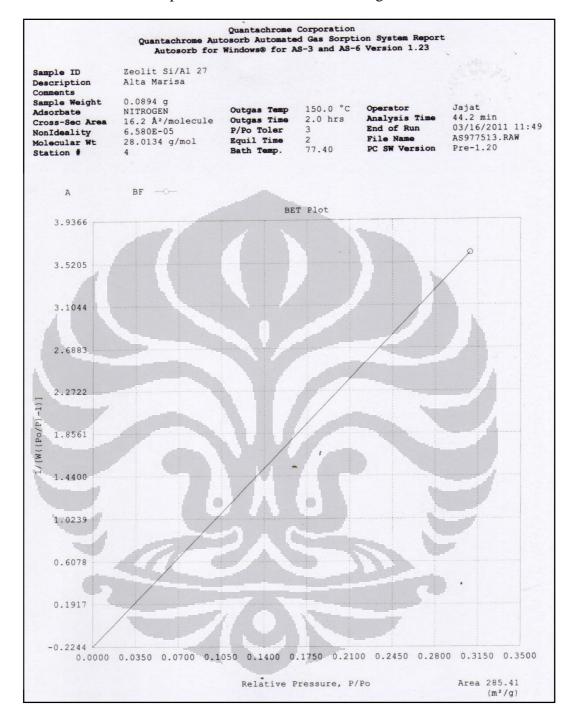
        DA
        Method Pore Diameter (Mode)
        1.388E+01 Å

        HK
        Method Pore Width (Mode)
        2.600F+01 Å

        Method Pore Diameter (Mode)...... 2.602E+01 Å
                                    DATA REDUCTION PARAMETERS
                                  Thermal Transpiration : OFF
                    Last Po Acquired 768.01 mm Hg Additional Initialization Information Not Recorded.
                                 BJH/DH Moving Average Size : 1
                        Interaction Constant (K) 2.9600 nm^3 x kJ/mol
```

6	Quantachrome Autos Autosorb for W		Gas Sorpti		
Sample ID Description Comments Sample Weight Adsorbate Cross-Sec Area NonIdeality Molecular Wt Station #	Zeolit (new) Alta Marisa 0.2042 g NITROGEN 16.2 Å2/molecule 6.580E-05 28.0134 g/mol	Outgas Temp Outgas Time P/Po Toler Equil Time Bath Temp.	150.0 °C 2.0 hrs 3 2 77.40	Operator Analysis Time End of Run File Name PC SW Version	03/11/2011 14:5 AS966599.RAW
		Isotherm			
	P/		Volume c/g] STP		
	7.246 9.830 1.540 2.002 2.529	5e-02 9 0e-02 9 4e-01 9 8e-01 9	7.6802 90.3795 93.0264 97.2165 99.6107 91.4976		

Lampiran Data BET untuk Zeolit Regenerasi



```
Quantachrome Corporation
                                     Quantachrome Autosorb Automated Gas Sorption System Report
Autosorb for-Windows® for AS-3 and AS-6 Version 1.23
ample ID
                                     Zeolit Si/Al 27
                               Alta Marisa
escription
omments
ample Weight disorbate NITROGEN Outgas Temp 150.0 °C Operator ross-Sec Area 16.2 Ų/molecule Outgas Time 2.0 hrs Analysis Time 2.0 hrs Decular Wt 28.0134 g/mol Equil Time 2 File Name tation # 4 Bath Temp. 77.40 PC SW Version
 ample Weight 0.0894 g
                                                                                                                                                                                 Jajat
                                                                                                                                                                                 44.2 min
03/16/2011 11:4
                                                                                                                  2 File Name
77.40 PC SW Version
                                                                                                                                                                                  AS977513.RAW
                                                                                                                                                                                 Pre-1.20
                                                                  AREA-VOLUME-PORE SIZE SUMMARY
                                                                               SURFACE AREA DATA

      Multipoint BET.
      2.854E+02 m²/g

      Single Point BET.
      2.876E+02 m²/g

      Langmuir Surface Area.
      4.308E+02 m²/g

      t-Method External Surface Area.
      1.019E+02 m²/g

      t-Method Micro Pore Surface Area.
      1.835E+02 m²/g

      DR Method Micro Pore Area.
      4.227E+02 m²/g

                                                                                 PORE VOLUME DATA

        t-Method Micro Pore Volume
        9.777E-02
        cc/g

        DR Method Micro Pore Volume
        1.502E-01
        cc/g

        HK Method Cumulative Pore Volume
        1.406E-01
        cc/g

        SF Method Cumulative Pore Volume
        1.417E-01
        cc/g

                                                                              PORE SIZE DATA

        DR
        Method Micro Pore Width
        6.777E+01

        DA
        Method Pore Diameter (Mode)
        1.600E+01

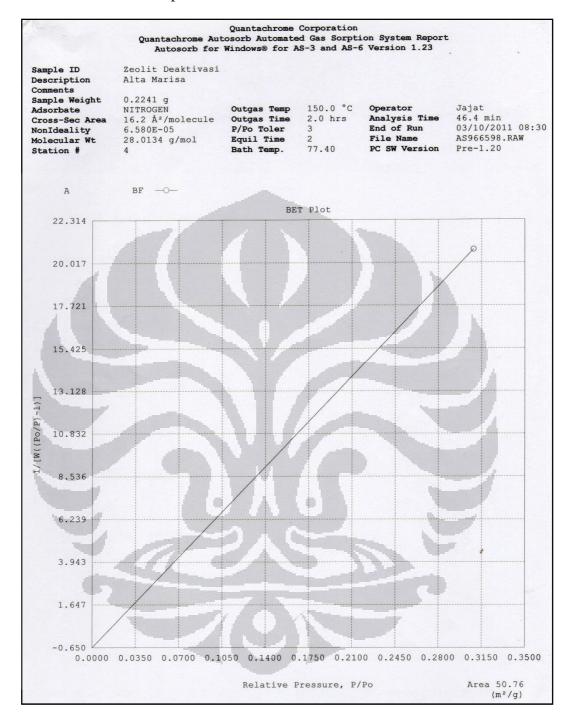
        HK
        Method Pore Width (Mode)
        1.427E+01

        SF
        Method Pore Diameter (Mode)
        2.685E+01

                                                                                                                                                       6.777E+01 Å
1.600E+01 Å
1.427E+01 Å
                                                                     DATA REDUCTION PARAMETERS
                                       Thermal Transpiration : OFF
Last Po Acquired 766.60 mm Hg
Additional Initialization Information Not Recorded.
                                                             BJH/DH Moving Average Size : 1
                                             Interaction Constant (K) 2.9600 nm^3 x kJ/mol
```

/ -	Quantac Quantachrome Autosorb Au Autosorb for Windows®	hrome Corporation tomated Gas Sorpti for AS-3 and AS-6	on System Report Version 1.23			
Sample ID Description Comments	Zeolit Si/Al 27 Alta Marisa					
Sample Weight Adsorbate Cross-Sec Area NonIdeality Molecular Wt Station #	16.2 Å ² /molecule Outga 6.580E-05 P/Po 28.0134 g/mol Equil	s Temp 150.0 °C 2.0 hrs Toler 3 Time 2 77.40	Operator Analysis Time End of Run File Name PC SW Version	Jajat 44.2 min 03/16/2011 11:4 AS977513.RAW Pre-1.20		
		Sotherm				
	P/Po	Volume [cc/g] STP				
	5.9284e-02 8.0804e-02 1.0653e-01 1.5516e-01 2.0699e-01 2.5819e-01 3.0878e-01	84.1287 86.2235 88.2438 91.0531 93.0689 94.5032 95.6081				

Lampiran Data BET untuk Zeolit Deaktivasi



```
Quantachrome Corporation
Quantachrome Autosorb Automated Gas Sorption System Report
                                      Autosorb for Windows® for AS-3 and AS-6 Version 1.23
                                Zeolit Deaktivasi
Sample ID
Description
                               Alta Marisa
Comments
Sample Weight
                                0.2241 g
                                                                                                                                                   Jajat
46.4 min
03/10/2011 08:30
AS966598.RAW
                                                                    Outgas Temp 150.0 °C Operator
Outgas Time 2.0 hrs Analysis Time
P/Po Toler 3 End of Run
                                NITROGEN
Adsorbate
                              16.2 Ų/molecule
6.580E-05
28.0134 g/mol
Cross-Sec Area
                                                                                                                     End of Run
NonIdeality
Molecular Wt
                                                                    Equil Time Bath Temp.
                                                                                                                     File Name
                                                                                               77.40 PC SW Version
                                                                                                                                                   Pre-1.20
Station #
                                                        AREA-VOLUME-PORE SIZE SUMMARY
                                                                    SURFACE AREA DATA

      Multipoint BET.
      5.076E+01
      m²/g

      Single Point BET.
      5.064E+01
      m²/g

      Langmuir Surface Area
      7.789E+01
      m²/g

      t-Method External Surface Area
      3.072E+01
      m²/g

      t-Method Micro Pore Surface Area
      2.004E+01
      m²/g

       PORE VOLUME DATA

      t-Method Micro Pore Volume.
      1.063E-02
      cc/g

      DR Method Micro Pore Volume.
      2.573E-02
      cc/g

      HK Method Cumulative Pore Volume.
      2.314E-02
      cc/g

      SF Method Cumulative Pore Volume.
      2.346E-02
      cc/g

                                                                     PORE SIZE DATA

        DR
        Method Micro Pore Width
        8.327E+01
        Å

        DA
        Method Pore Diameter (Mode)
        1.740E+01
        Å

        HK
        Method Pore Width (Mode)
        1.427E+01
        Å

        SF
        Method Pore Diameter (Mode)
        2.676E+01
        Å

                                                          DATA REDUCTION PARAMETERS
                                  Thermal Transpiration: OFF
Last Po Acquired 772.21 mm Hg
Additional Initialization Information Not Recorded.
                                                       BJH/DH Moving Average Size : 1
                                       Interaction Constant (K) 2.9600 nm^3 x kJ/mol
```

					1000
1	Quantachrome Autosor Autosorb for Wind		Gas Sorpti		
Sample ID	Zeolit Deaktivasi				
Description Comments	Alta Marisa				
Sample Weight	0.2241 g				
Adsorbate		utgas Temp	150.0 °C	Operator	Jajat
Cross-Sec Area		utgas Time	2.0 hrs	Analysis Time End of Run	46.4 min 03/10/2011 08:3
NonIdeality Molecular Wt		/Po Toler quil Time	3 2	File Name	AS966598.RAW
Station #		ath Temp.	77.40	PC SW Version	
00002011 11					
		Isothern	n		
	P/Po		Volume		
		[0	cc/g] STP		
	5.5728e-02		13.3173		
	8.1895e-02		13.8900		
	1.00010 01		14.3476		
	2.0.2.0		15.0224		
	2.0739e-01		15.7416		
	2.5829e-01		16.3150		
	3.0855e	-01	16.8250		