

REAKSI PERENKAHAN PARAFIN DENGAN KATALIS NiMo/ZEOLIT ALAM AKTIF (ZAA): EFEK TEMPERATUR PADA AKTIVITAS KATALITIK
(THE PARAFFIN CRACKING REACTION WITH NiMo/ACTIVE NATURAL ZEOLITE CATALYST: THE EFFECT TEMPERATURE ON CATALYTIC ACTIVITY)

Khoirina Dwi Nugrahaningtyas*, Eko Cahyono, Dian Maruto Widjonarko

Jurusan Kimia FMIPA, Universitas Sebelas Maret Jl. Ir. Sutami No 36 A Ketingan
Surakarta

*email: khoirina@mipa.uns.ac.id

Received 23 January 2014, Accepted 18 May 2015, Published 01 September 2015

ABSTRAK

Penelitian ini berkaitan dengan studi tentang reaksi perengkahan parafin termal, dengan katalis Zeolit alam aktif (ZAA) dan NiMo / zeolit alam aktif (ZAA). Variasi temperatur dilakukan untuk mempelajari temperatur optimum reaksi perengkahan parafin. Reaksi perengkahan parafin dilakukan pada temperatur 200 - 400 °C dan laju alir hidrogen dari 30 mL/menit. Produk reaksi yang diperoleh, kemudian dianalisis dengan kromatografi gas (GC) dan kromatografi gas-spektrometri massa (GCMS). Aktivitas katalis (%) didefinisikan sebagai jumlah fraksi ringan / jumlah parafin umpan (%). Hasil penelitian menunjukkan bahwa katalis NiMo/ZAA mempunyai aktivitas tertinggi (31,33 %) pada temperatur reaksi perengkahan 300 °C.

Kata kunci: Aktivitas, katalis NiMo/ZAA, perengkahan parafin, rendemen

ABSTRACT

This research deals with the study of the paraffin cracking reaction with thermal reaction, active natural zeolite (ZAA) and NiMo / active natural zeolite (ZAA) catalyst. Temperature variation was done in order to study the optimum temperature of paraffin cracking reactions. Paraffin cracking reaction carried out at temperatures of 200 - 400 °C and a hydrogen flow rate of 30 mL / min. Cracking products obtained, and then analyzed by gas chromatography (GC) and gas chromatography-mass spectrometry (GCMS). Catalyst activity (%) was defined as the amount of lighter fractions/the amount of feed (paraffin) (%). The results showed that the catalyst NiMo/ZAA has the highest activity (31.33 %) at the cracking reaction temperature of 300 °C.

Keywords: activity, conversion, NiMo catalyst, paraffin cracking

PENDAHULUAN

Kebutuhan energi bahan bakar dari fraksi ringan minyak bumi yang begitu tinggi, mendorong upaya untuk melakukan proses konversi beberapa senyawa fraksi berat

menjadi fraksi ringan. Cadangan minyak nasional yang ada saat ini diperkirakan mencapai 9 miliar barrel dengan tingkat produksi 1,1 juta barrel per hari. Data *British Petroleum* (BP) tahun 2005 menunjukkan bahwa hampir 47,5 % pemakaian energi di Indonesia menggunakan Bahan Bakar Minyak (BBM). Salah satu fraksi berat dari penyulingan minyak bumi adalah paraffin yang merupakan senyawa alkana rantai panjang yang memiliki hingga lebih dari 20 atom karbon. Konversi senyawa fraksi berat paraffin menjadi senyawa fraksi ringan seperti fraksi bensin dengan C₅-C₁₀ dapat dilakukan melalui proses perengkahan katalitik.

Perengkahan katalitik dengan menggunakan logam sebagai katalis memiliki beberapa kelemahan. Katalis logam murni seperti Pt, Pd, Ni, Zn, Cd, Mo dan lain-lain mempunyai kelemahan yang berhubungan dengan efisiensi katalis, stabilitas termal yang rendah serta mengalami sintering yang mengakibatkan penurunan luas permukaan katalis dan umur katalis menjadi lebih pendek (Triyono, 1994). Kelemahan penggunaan katalis logam murni dapat diatasi dengan mengembankan komponen logam aktif pada suatu pengemban. Zeolit digunakan sebagai pengemban karena strukturnya berpori dan memiliki luas permukaan yang besar, memiliki stabilitas termal yang tinggi, harga yang murah, dan keberadaannya yang cukup melimpah.

Pengembanan logam ke bahan pendukung untuk menghasilkan katalis bimetal dapat dilakukan dengan berbagai metode, salah satunya adalah impregnasi. Menurut Augustine (1996), pengembanan logam secara impregnasi dapat dilakukan dengan dua cara, yaitu memasukkan garam logam secara bersama-sama dan secara terpisah (logam yang satu kemudian diikuti logam yang lain). Katalis logam-pengemban umumnya disiapkan dengan memaksa logam bergabung dengan pengemban. Bahan pengemban dan logam yang diembankan kemudian dikeringkan, dikalsinasi, dioksidasi dan reduksi sehingga diperoleh katalis logam-pengemban.

Nikel dan Molibdenum merupakan salah satu logam transisi yang memiliki aktivitas tinggi dan selektif tertentu. Katalis nikel yang diembankan pada suatu pengemban digunakan sebagai katalis hidrogenasi yang dapat mengubah etena menjadi etilen (Heracleous and Lemonidou, 2003). Molibdenum yang diembankan pada alumina berfungsi sebagai katalis hidrogenasi dan desulfurisasi pada berbagai model reaksi (Egrova, 2005). Proses aktivasi dan modifikasi pada zeolit secara fisika dan kimia dapat meningkatkan kemampuan zeolit sebagai katalis. Zeolit alam yang diberi perlakuan asam, uap air dan pengembanan logam akan menghasilkan destilat relatif lebih banyak dan kokas

relatif rendah (Syarifah, 2001). Salah satu penggunaan zeolit dengan logam teremban ini adalah sebagai katalis dalam proses perengkahan.

Reaksi perengkahan adalah proses pemecahan ikatan karbon-karbon pada hidrokarbon yang mempunyai berat molekul besar menjadi berat molekul kecil sehingga lebih berguna. Nasution *and* Jasifi (1999), telah melakukan reaksi perengkahan minyak berat diesel (diesel oil) dengan katalis Ni-Mo/Al₂O₃-SiO₂ dan hasilnya menunjukkan bahwa salah satu fraksi hasil perengkahannya adalah rangkaian senyawa hidrokarbon dengan 1 cincin aromatis. Adjaye (1996) telah melakukan perengkahan biofuel dengan katalis HZSM-5 pada temperatur 330 °C, 370 °C, dan 410 °C diperoleh produk optimum berupa senyawa aromatis pada temperatur 370 °C. Santos *and* Urquieta-Gonzalez (1998) telah melakukan perengkahan n-heptana menggunakan katalis zeolit USY pada temperatur 350 °C, 400 °C, dan 450 °C didapatkan bahwa aktivitas katalis meningkat dengan bertambahnya temperatur reaksi. Adapun selektivitas untuk fraksi C₁-C₆ tetap praktis tidak berubah oleh temperatur.

Berdasarkan penelitian tersebut menunjukkan bahwa temperatur menentukan nilai aktivitas. Temperatur berfungsi sebagai energi untuk terjadinya ikatan antara reaktan dengan katalis. Kenaikan temperatur secara umum akan meningkatkan aktivitas katalis ditinjau dari rendemen fraksi ringan yang terjadi, akan tetapi dapat pula menyebabkan deaktivasi katalis yang disebabkan adanya pembentukan kokas (Santos *and* Urquieta-Gonzalez 1998). Faktor variasi temperatur diperlukan untuk menentukan kondisi yang tepat bagi fungsi katalis untuk mendapatkan aktivitas katalitik yang optimum.

METODE PENELITIAN

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah ZAA dan NiMo/ZAA yang dipreparasi sesuai metode Nugrahaningtyas *et al.* (2009), Gas N₂, O₂, H₂ (PT. Samator) dan Liquid Paraffin E.Merck . Adapun peralatan yang digunakan adalah neraca analitik merk Sartorius A6 Gottigen, *furnace Muffle type* KB 62 C FRAME 60 A, *Thermolyne Digital Pyrometer*, reaktor perengkahan (*home made*), dan kromatografi Gas (KG) merk Hewlett Pacard 5890 Series II.

Proses perengkahan paraffin dilakukan dengan menggunakan katalis NiMo/ZAA. Proses reaksi dilakukan menggunakan reactor system alir, dimana tempat katalis dan umpan (*feed*) diletakkan pada reaktor yang berbeda. Reaktor katalis dipanaskan pada variasi temperatur 250 °C, 300 °C, 350 °C, dan 400 °C, reaktor umpan dipanaskan sampai temperatur 300 °C dengan dialiri gas H₂ laju alir 30 mL/menit. Proses perengkahan dilakukan sampai Cairan Hasil Perengkahan (CHP) tidak terbentuk lagi. Proses

perengkahan diulangi dengan menggunakan katalis Zeolit Alam aktif dan reaksi termal (tanpa katalis). Hasil perengkahan kemudian dilewatkan pada sistem pendingin, dan ditampung dalam wadah sampel. Paraffin murni dan Cairan Hasil Perengkahan (CHP) dianalisis dengan Kromatografi Gas.

Rumus yang digunakan sebagai berikut:

$$\text{Luas area umpan awal} = \text{Luas area total} - \text{Luas area pelarut}$$

$$\text{Berat cairan} = \text{Berat cairan yang tertampung dalam wadah sampel}$$

$$\text{Berat sisa umpan} = \frac{\text{Luas Area umpan tidak terkonversi}}{\text{Luas area umpan awal}} \times \text{Berat cairan}$$

$$\text{Berat CHP} = \frac{\text{Luas area produk}}{\text{Luas area awal}} \times \text{Berat cairan}$$

$$\text{Rendemen CHP} = \frac{\text{Berat CHP}}{\text{Berat umpan}} \times 100 \%$$

$$\text{Rendemen kokas} = \frac{\text{Berat kokas}}{\text{Berat umpan}} \times 100 \%$$

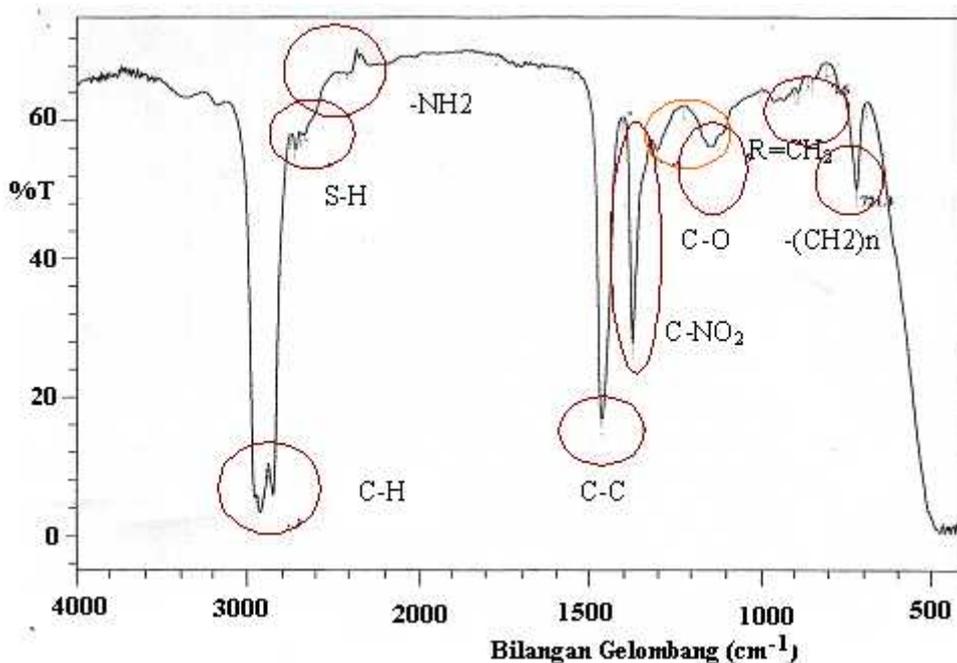
$$\text{Rendemen Gas} = \frac{\text{Berat (Umpan - CHP - residu - sisa umpan - kokas)}}{\text{Berat umpan}} \times 100 \%$$

$$\text{Konversi total} = \text{Rendemen CHP} + \text{Rendemen gas} + \text{Rendemen kokas}$$

$$\text{Aktivitas katalis} = \text{Rendemen CHP}$$

PEMBAHASAN

Sebelum proses perengkahan dilakukan karakterisasi karakter kimia parafin yang diamati meliputi komposisi senyawa, gugus fungsi dan jenis senyawa. Data spektra IR dari gugus-gugus fungsi yang ada pada parafin umpan disajikan pada Gambar 1. Berdasarkan Gambar 1, terdapat beberapa serapan seperti C-H (alkana), S-H (Sulfur), -NH₂, C-C (aril), -C-NO₂ (Nitro aromatik), -C-O, RC=CH₂, -(CH₂)_n (senyawa lain). Serapan yang tajam pada kisaran bilangan gelombang 2923,9 cm⁻¹ dan 2854,5 cm⁻¹, ialah gugus C-H pada alkana rantai lurus. Serapan pada kisaran 2727,2 cm⁻¹ dan 2673,2 cm⁻¹ menunjukkan adanya gugus S-H. Serapan pada ~ 2410,9 cm⁻¹ menunjukkan adanya serapan nitrogen (NH₂). Serapan pada kisaran 1461,9 cm⁻¹ menunjukkan adanya gugus C-C. Serapan pada 891,1 cm⁻¹ dan 848,6 cm⁻¹ menunjukkan adanya serapan C=C (alkena). Serapan pada ~ 722 cm⁻¹ menunjukkan adanya gugus -(CH₂)_n.



Gambar 1. Spektra FTIR Parafin Umpan.

Data serapan dan gugus fungsi senyawa penyusun parafin disajikan selengkapnya pada Tabel 1. Berdasarkan analisis Gambar 1 dan Tabel 1, hal ini mengindikasikan bahwa parafin umpan memiliki beberapa komponen senyawa penyusun alkana dengan beberapa senyawa pengotor yang memiliki gugus sulfur, amin, nitro aromatik, ether, dan alkena. Berdasarkan data spektroskopi FTIR menunjukkan bahwa parafin umpan memiliki rantai lurus dan masih terdapat senyawa pengotor.

Tabel 1. Jenis gugus fungsional yang terdapat pada parafin

Jenis Senyawa	Gugus Fungsi	Standar (cm ⁻¹)	Bilangan Gelombang (cm ⁻¹)
Alkana	C-H (alkana)	2962- 2853	2923,9
	C-H (alkana)		2854,5
Gugus senyawa pengotor	S-H (Sulfur)	2750 – 2500	2727,2
	S-H (Sulfur)		2673,2
	-NH ₂	2525 - 2400	2410,9
	C-C (aril)	1600- 1450	1461,9
	-C-NO ₂ (Nitro aromatik)	1390 - 1300	1377,1
	-C-O	1300-900	1149,5
	RC=CH ₂	1000-800	891,1
	RC=CH ₂		848,6
Alkana	-(CH ₂) _n (senyawa lain)	810-720	721,3

Parafin umpan yang telah dianalisis dengan spektroskopi Inframerah kemudian dianalisis dengan Kromatografi Gas untuk mengetahui komponen penyusunnya. Hasil analisis menunjukkan bahwa parafin yang digunakan memiliki rantai karbon yang berkisar antara C₂₅ – C₂₈.

Data Spektroskopi Inframerah, Kromatografi Gas dan Spektroskopi Massa menunjukkan bahwa parafin umpan memenuhi komposisi senyawa alkana, alkohol, acetamida, dan senyawa asam yang menunjukkan bahwa parafin yang digunakan adalah parafin campuran yang masih mengandung pengotor dan parafin umpan ini tidak hanya memiliki rantai hidrokarbon lurus tetapi juga rantai karbon cabang.

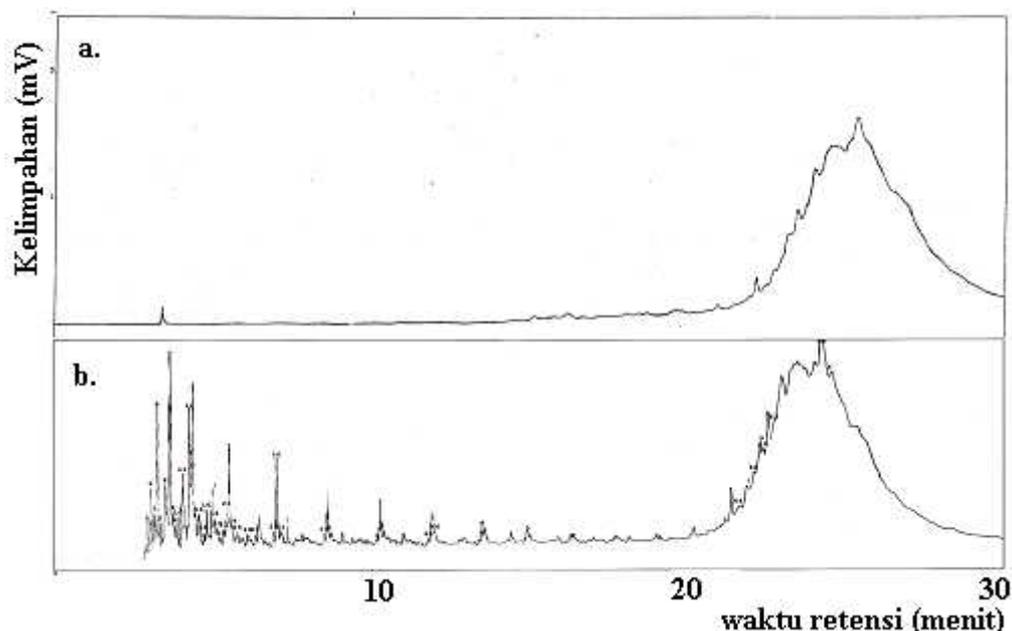
Adapun Cairan hasil perengkahan (CHP) termal dan katalitik pada berbagai temperatur dikarakterisasi menggunakan GC. Analisis lebih lanjut untuk mengetahui fraksi ringan hasil perengkahan dilakukan dengan membandingkan kromatogram parafin awal dengan kromatogram cairan hasil perengkahan tersebut dalam waktu retensi tertentu. Luas kromatogram fraksi ringan yang diperoleh merupakan variabel yang akan digunakan dalam perhitungan aktivitas katalis.

Karakterisasi kimia terhadap cairan hasil perengkahan parafin meliputi fraksi ringan senyawa hidrokarbon C₅ – C₁₂ yang terkandung didalamnya. Penentuan puncak fraksi ringan senyawa hidrokarbon C₅ - C₁₂ yang terdapat pada CHP dari seluruh jenis perengkahan adalah dengan mengamati waktu retensi kromatogram CHP yang identik dengan waktu retensi fraksi ringan C₅ - C₁₂ yang sudah diketahui dengan menggunakan alat Kromatografi Gas dengan kondisi operasi sebagai berikut: temperatur kolom 40 - 280 °C, kenaikan temperatur 10 °C/menit, kecepatan gas alir 40 mL/menit dan diperoleh bahwa waktu retensinya berkisar antara 2,319 - 14,821 menit (Nurchahyo, 2005).

Perengkahan termal paraffin.

Berat CHP memiliki nilai optimum pada temperatur 300 °C yaitu sebesar 45 % b. Analisis data lebih lanjut dalam hal ini menggunakan kromatogram dari kromatografi gas. Contoh perbandingan kromatogram parafin awal dan cairan setelah perengkahan dari perengkahan termal parafin disajikan pada Gambar 2. Berdasarkan data dari Gambar 2, kromatogram parafin awal (a) sebagai fraksi berat memiliki waktu retensi 22,070 hingga 25,683 menit. Kromatogram fraksi ringan cairan hasil perengkahan termal parafin dilihat dengan perbandingan kromatogram cairan hasil perengkahan pada berbagai temperatur dengan kromatogram paraffin awal. Dalam waktu retensi kurang dari 22 menit,

kromatogram cairan hasil perengkahan pada variasi temperatur (250 °C hingga 400 °C) telah nampak beberapa puncak fraksi ringan.



Gambar 2. Kromatogram parafin awal (a) dan cairan setelah perengkahan termal parafin.

Analisa lebih lanjut adalah menentukan besarnya presentase rendemen fraksi ringan melalui perhitungan. Hasil perhitungan nilai aktivitas, rendemen CHP, rendemen gas, dan rendemen total dari perengkahan tanpa katalis pada berbagai temperatur disajikan dalam Tabel 2.

Tabel 2. Nilai aktivitas, rendemen CHP, rendemen gas dan rendemen total perengkahan termal paraffin

Temperatur (°C)	Rendemen CHP (%)	Rendemen Gas (%)	Aktivitas (%)	Rendemen Total (%)
250	20,14	71,2	20,14	91,34
300	28,28	55,2	28,28	83,48
350	2,73	60,00	2,73	62,73
400	5,52	54,26	5,52	59,78

Dari data Tabel 3 tersebut, diketahui bahwa nilai rendemen fraksi ringan yang dominan adalah dalam bentuk fasa gas. Perengkahan termal ini didominasi oleh mekanisme reaksi radikal yang dipengaruhi temperatur sehingga lebih mudah terbentuk fraksi ringan berupa gas. Radikal terbentuk dari proses pemisahan pasangan elektron secara homolitik pada ikatan C-C senyawa umpan. Radikal yang terbentuk memacu terbentuknya etilen dan produk yang lebih kecil yang berada dalam bentuk gas pada temperatur kamar ($C < 5$). Rendemen gas terbesar pada temperatur 250 °C sebesar 71,20 %

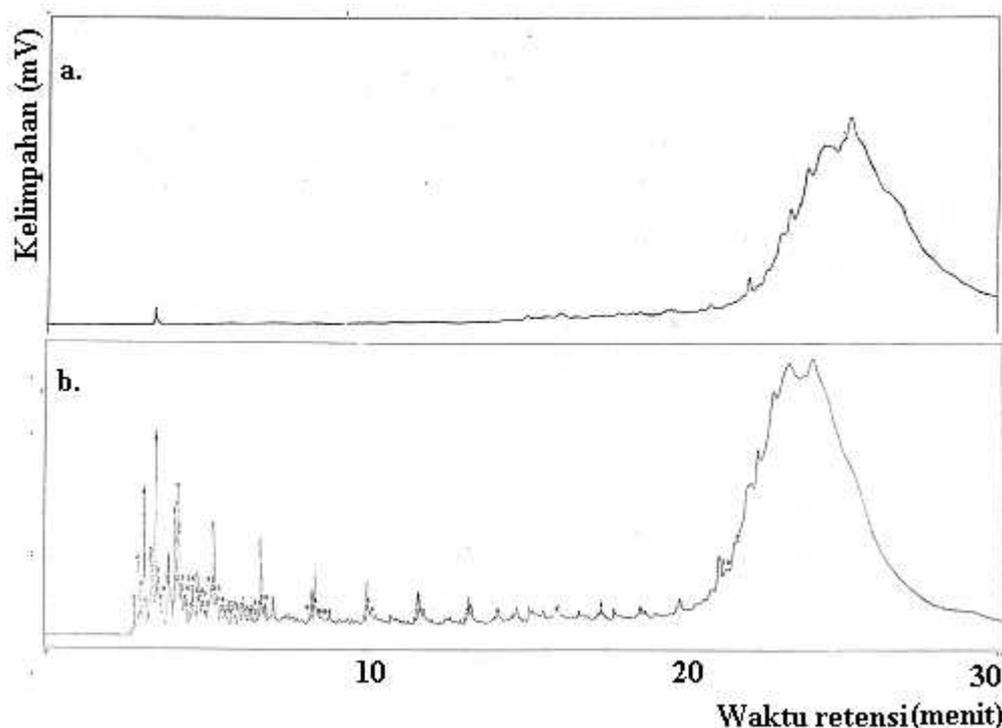
sedangkan rendemen gas terkecil pada temperatur 400 °C sebesar 54,26 %. Kenaikan temperatur secara umum menyebabkan terjadinya penurunan rendemen gas.

Rendemen CHP sebagai produk fraksi ringan perengkahan juga mengalami penurunan dengan adanya kenaikan temperatur. Pada temperatur 250 °C rendemen CHP sebesar 20,14 %. Pada temperatur 300 °C rendemen CHP mengalami kenaikan dan bernilai optimum sebesar 28,28 %. Rendemen CHP pada temperatur 350 °C mengalami penurunan secara drastis menjadi 2,73 % dan rendemen CHP pada temperatur 400 °C juga mengalami hal yang serupa menjadi 5,52 %. Hal ini menunjukkan bahwa temperatur memberikan pengaruh terhadap aktivitas optimum reaksi perengkahan dalam rendemen CHP yang terjadi pada temperatur 300 °C. Aktivitas reaksi perengkahan dalam hal ini berkaitan dengan kemampuan untuk mengkonversi paraffin menjadi CHP. Aktivitas pada perengkahan paraffin tanpa katalis ini identik pula dengan rendemen CHP

Nilai aktivitas dan rendemen total mengalami penurunan dengan adanya kenaikan temperatur. Nilai rendemen total pada temperatur 250 °C sebesar 91,34 % mengalami penurunan pada temperatur 300 °C menjadi 83,48 %. Pada temperatur 350 °C nilai rendemen total mengalami penurunan menjadi 62,73 % dan pada temperatur 400 °C rendemen total mengalami penurunan menjadi 59,78 %. Kenaikan temperatur menyebabkan terjadinya penurunan aktivitas dan rendemen total perengkahan paraffin tanpa katalis.

Perengkahan paraffin menggunakan katalis ZAA

Cairan hasil perengkahan menggunakan katalis ZAA memiliki nilai optimum pada temperatur 300 °C sebesar 52,4 %. Nilai optimum berat cairan hasil perengkahan katalitik ZAA adalah lebih besar jika dibandingkan dengan perengkahan termal. Pada temperatur 250 °C dan 300 °C berat cairan hasil perengkahan katalitik mengalami kenaikan jika dibandingkan dengan berat cairan hasil perengkahan tanpa katalis pada temperatur yang sama. Pada temperatur 350 °C dan 400 °C berat CHP dengan katalis ZAA mengalami penurunan jika dibandingkan dengan perengkahan tanpa katalis pada temperatur yang sama. Analisis data lebih lanjut dalam hal ini menggunakan kromatogram dari kromatografi gas cairan hasil perengkahan. Contoh perbandingan kromatogram paraffin awal dan cairan setelah perengkahan menggunakan katalis ZAA pada berbagai temperatur disajikan pada Gambar 3.



Gambar 3. Kromatogram (a). Parafin awal dan (b) Cairan setelah perengkahan katalis ZAA pada temperatur 250 °C.

Hasil perhitungan nilai aktivitas katalis ZAA, rendemen CHP, rendemen gas, rendemen kokas dan rendemen total dari perengkahan menggunakan katalis ZAA pada temperatur 250 °C, 300 °C, 350 °C, dan 400 °C disajikan dalam Tabel 3.

Tabel 3. Nilai aktivitas, rendemen CHP, rendemen gas dan rendemen total perengkahan paraffin menggunakan katalis ZAA

Temperatur (°C)	Rendemen CHP (%)	Rendemen Gas (%)	Rendemen Kokas (%)	Aktivitas (%)	Rendemen Total (%)
250	21,78	63,33	1,33	21,78	86,45
300	23,50	46,27	1,33	23,50	71,10
350	17,76	64,27	1,33	17,76	83,36
400	3,29	66,16	1,51	3,29	70,96

Berdasarkan Tabel 3, rendemen CHP sebagai produk yang diharapkan dari perengkahan katalitik pada temperatur 250 °C sebesar 21,78 %. Pada temperatur 300 °C rendemen CHP mengalami kenaikan dan bernilai optimum menjadi 23,50 %. Pada temperatur 350 °C nilai rendemen CHP mengalami penurunan menjadi 17,76 %. Rendemen CHP pada temperatur 400 °C juga mengalami penurunan menjadi 3,29 %. Hal

ini menunjukkan bahwa aktivitas optimum katalis ZAA dalam rendemen CHP terjadi pada temperatur 300 °C.

Reaksi pada temperatur 300 °C menyediakan energi yang sesuai untuk terjadinya ikatan antara reaktan dengan katalis, sehingga proses perengkahan setelah melalui adsorpsi, difusi, dan desorpsi reaktan untuk menghasilkan fraksi ringan dalam CHP bernilai optimum pula. Perengkahan pada temperatur 250 °C dengan nilai rendemen CHP yang lebih kecil daripada temperatur 300 °C dimungkinkan karena temperatur yang diberikan sebagai energi kurang optimum untuk mendorong terjadinya ikatan reaktan dengan katalis. Pada temperatur 350 °C dan 400 °C temperatur yang diberikan sebagai energi ikatan reaktan dengan katalis terlalu besar sehingga proses desorpsi untuk menghasilkan fraksi ringan sukar terjadi. Nilai rendemen CHP hasil perengkahan dengan katalis ZAA pada temperatur 250 °C (21,78 %) dan temperatur 350 °C (17,76 %) jika dibandingkan dengan perengkahan tanpa katalis pada temperatur yang sama (250 °C sebesar 20,14 % dan temperatur 350 °C sebesar 2,73 %) adalah lebih besar. Hal ini menunjukkan bahwa aktivasi zeolit alam sebagai katalis ZAA dapat meningkatkan pembentukan rendemen fraksi ringan dalam perengkahan katalitik, akan tetapi belum mencapai nilai optimum. Pada temperatur 300 °C sebagai nilai konversi optimum perengkahan katalis ZAA dan pada temperatur 400 °C rendemen CHP adalah lebih kecil dibandingkan pada perengkahan tanpa katalis dikarenakan adanya residu dan kokas yang terbentuk sehingga katalis mengalami deaktivasi.

Rendemen gas perengkahan katalitik ZAA pada temperatur 250 °C sebesar 63,33 % pada temperatur 300 °C sebesar 46,27 %, pada temperatur 350 °C sebesar 64,27 % dan pada temperatur 400 °C sebesar 66,16 %. Nilai rendemen gas yang naik turun tersebut disebabkan karena pada saat aktivitas katalis lebih dominan untuk mengrendemen parafin menjadi CHP maka rendemen gas yang terjadi akan mengalami penurunan. Nilai rendemen gas perengkahan katalis ZAA secara umum jika dibandingkan dengan perengkahan tanpa katalis pada temperatur 250 dan 300 °C adalah lebih kecil, dikarenakan mekanisme reaksi radikal dari perengkahan tanpa katalis adalah lebih dominan sehingga lebih mudah untuk membentuk produk berupa gas. Pada temperatur 350 dan 400 °C nilai rendemen gas mengalami kenaikan jika dibandingkan dengan perengkahan tanpa katalis dikarenakan deaktivasi katalis karena kokas yang terbentuk menyebabkan penurunan rendemen CHP yang akhirnya menaikkan rendemen gas.

Nilai rendemen kokas pada tiap temperatur yang diperoleh adalah hampir sama sebesar 1,33 % kecuali pada temperatur 400 °C sebesar 1,51 %. Nilai rendemen kokas

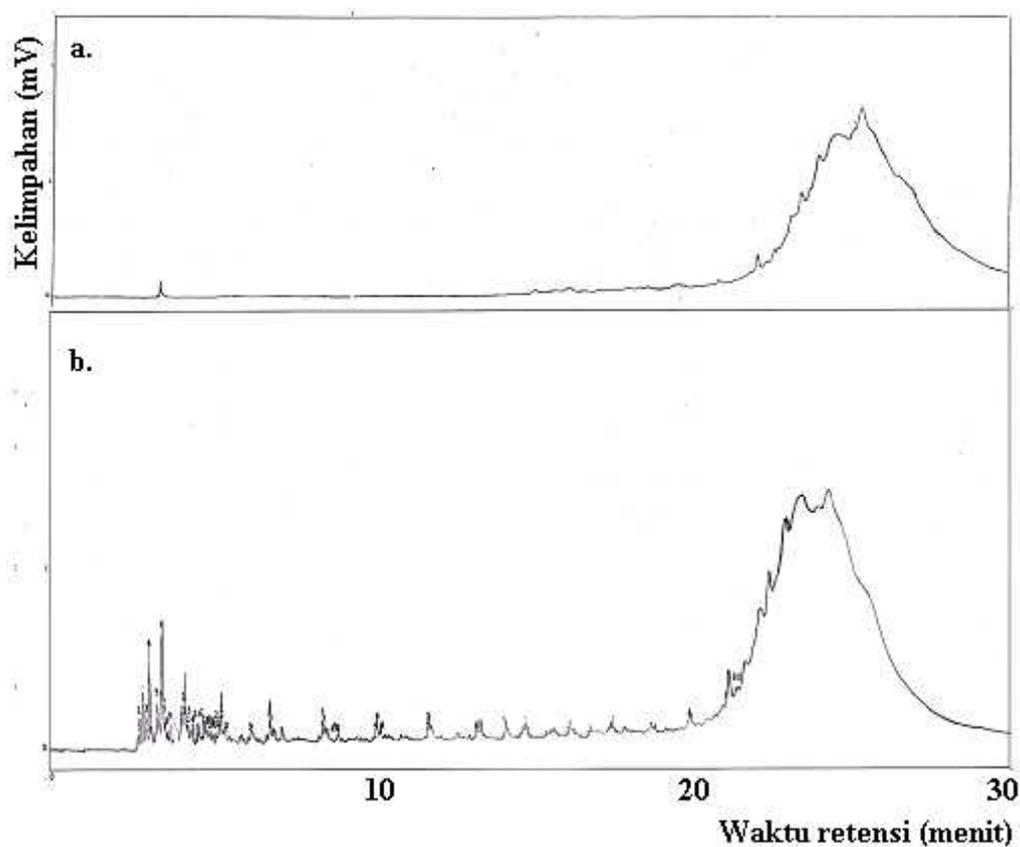
yang sama tersebut bukan berarti akan menyebabkan rendemen fraksi ringan dari suatu perengkahan pada tiap temperatur bernilai sama dikarenakan kokas yang terbentuk memiliki letak yang berbeda. Kokas yang telah berhasil menutupi sebagian besar sisi aktif katalis akan menyebabkan deaktivasi katalis sehingga rendemen fraksi ringan dalam CHP akan mengalami penurunan. Pada temperatur 300 °C terlihat bahwa rendemen CHP memiliki nilai tertinggi dibandingkan pada temperatur 250, 350, dan 400 °C dimungkinkan karena kokas yang terjadi hanya menutupi sebagian kecil sisi aktif katalis.

Rendemen total perengkahan katalis ZAA meliputi rendemen CHP, rendemen gas dan rendemen kokas. Pada temperatur 250 °C nilai rendemen total sebesar 86,45 %, temperatur 300 °C sebesar 71,10 %, temperatur 350 °C sebesar 83,36 % dan pada temperatur 400 °C sebesar 70,96 %. Rendemen total perengkahan katalis ZAA pada temperatur 250 °C dan 300 °C memiliki nilai yang lebih kecil daripada rendemen total perengkahan tanpa katalis pada temperatur yang sama (91,34 % dan 83,48 %) dikarenakan dominasi rendemen fase gas pada perengkahan tanpa katalis adalah lebih besar. Pada temperatur 350 °C dan 400 °C rendemen total perengkahan katalis ZAA mengalami kenaikan daripada rendemen total perengkahan tanpa katalis pada temperatur yang sama (62,73 % dan 59,78 %) hal tersebut dikarenakan dominasi rendemen fase gas pada perengkahan katalis ZAA lebih besar sebagai akibat deaktivasi katalis.

Nilai aktivitas katalis sebagai kemampuan katalis untuk mengrendemen dalam bentuk CHP dan gas pada temperatur 250 °C sebesar 85,12 %, pada temperatur 300 °C sebesar 69,77 %, pada temperatur 350 °C sebesar 82,03 %, dan pada temperatur 400 °C sebesar 69,45 %. Kenaikan temperatur secara umum akan menurunkan nilai aktivitas katalis dikarenakan adanya pembentukan kokas yang menutupi sisi aktif katalis akan tetapi harus dilihat pula nilai rendemen fraksi ringan yang terjadi. Aktivitas katalis yang besar akan menyebabkan nilai rendemen total yang besar pula.

Perengkahan parafin menggunakan katalis NiMo/ZAA

Berat optimum cairan hasil perengkahan yang diperoleh pada perengkahan ini terjadi pada temperatur 300 °C sebesar 72 % b, yang merupakan berat CHP terbesar dari seluruh jenis perengkahan. Analisis data lebih lanjut menggunakan kromatogram dari kromatografi gas. Contoh perbandingan kromatogram parafin awal dan CHP menggunakan katalis NiMo/ ZAA disajikan pada Gambar 4.



Gambar 4. Kromatogram (a) Parafin awal dan (b) CHP menggunakan katalis NiMo/ZAA pada temperatur 250 °C.

Fraksi ringan cairan hasil perengkahan parafin menggunakan katalisis NiMo/ZAA pada berbagai temperatur dilihat dari perbandingan kromatogram parafin awal dengan kromatogram cairan hasil perengkahan pada waktu retensi tertentu. Sama seperti hasil CHP sebelumnya, fraksi ringan pada perengkahan parafin menggunakan katalis NiMo/ZAA untuk temperatur 250 dan 300 °C adalah $C_6 - C_{12}$. Pada temperatur 350 dan 400 °C tidak dijumpai keberadaan beberapa fraksi ringan. Hal ini dimungkinkan karena katalis mengalami deaktivasi. Analisa lebih lanjut adalah menentukan besarnya presentase rendemen fraksi ringan melalui perhitungan.

Hasil perhitungan nilai aktivitas katalis NiMo/ZAA, rendemen CHP, rendemen gas, rendemen kokas, dan rendemen total dari perengkahan menggunakan katalis NiMo/ZAA pada temperatur 250, 300, 350, dan 400 °C disajikan dalam Tabel 4. Berdasarkan data dari Tabel 5, rendemen CHP perengkahan paraffin menggunakan katalis NiMo/ZAA pada temperatur 300 °C bernilai optimum sebesar 31,33 %. Rendemen CHP pada temperatur 250 °C ini jika dibandingkan dengan perengkahan tanpa katalis pada temperatur yang sama (20,14 %) dan rendemen CHP katalis ZAA (21,78 %) adalah lebih kecil. Hal ini dikarenakan aktivitas katalis belum begitu optimal yang mungkin disebabkan karena

temperatur sebagai energi untuk terjadinya ikatan reaktan dengan katalis belum mencukupi dan modifikasi pengembangan logam Ni dan Mo sebagai situs asam Lewis kurang efektif dibandingkan dengan situs aktif asam Brönsted H^+ dari ZAA pada temperatur tersebut.

Tabel 4. Nilai aktivitas, rendemen CHP, rendemen gas dan rendemen total perengkahan paraffin menggunakan katalis NiMo/ZAA

Temperatur (°C)	Aktivitas (%)	Rendemen CHP (%)	Rendemen Gas (%)	Rendemen Kokas (%)	Rendemen Total (%)
250	82,34	13,81	68,53	1,33	83,67
300	57,73	31,33	26,40	1,33	59,06
350	68,06	9,86	58,20	1,45	69,51
400	64,82	4,61	60,21	1,72	66,53

Rendemen CHP pada temperatur 300 °C sebesar 31,33 % merupakan nilai rendemen optimum dari seluruh perengkahan yang dilakukan. Nilai tersebut jauh lebih besar dari rendemen CHP pada temperatur yang sama perengkahan tanpa katalis (28,28 %) dan perengkahan dengan katalis ZAA (23,50 %). Pada temperatur 300 °C ini merupakan temperatur yang optimum bagi katalis dalam rendemen CHP pada seluruh perengkahan. Hal ini disebabkan oleh energi ikatan reaktan dengan katalis dari temperatur yang diberikan adalah tepat sehingga proses mekanisme perengkahan katalitik untuk menghasilkan pembentukan ion karbokation sebagai hasil senyawa fraksi ringan berjalan secara optimum. Pada temperatur ini pula situs aktif asam Lewis dari logam Ni dan Mo lebih efektif daripada situs aktif asam Brönsted H^+ dari ZAA. Situs aktif asam yang lebih efektif tersebut menjadikan protonasi katalis terhadap paraffin untuk menghasilkan senyawa fraksi ringan akan lebih optimum.

Nilai rendemen CHP pada temperatur 350 dan 400 °C mengalami penurunan masing-masing sebesar 9,86 % dan 4,61 %. Penurunan nilai rendemen tersebut dikarenakan proses desorpsi ikatan reaktan dengan katalis kurang optimal sebagai akibat adanya temperatur yang tinggi dan juga dikarenakan adanya kokas yang menutupi sisi aktif katalis sehingga katalis mengalami deaktivasi. Nilai rendemen CHP pada temperatur 350 °C jika dibandingkan dengan rendemen CHP perengkahan katalis ZAA (17,76 %) pada temperatur yang sama adalah lebih kecil, menunjukkan bahwasanya deaktivasi katalis NiMo/ZAA lebih cepat terjadi daripada katalis ZAA pada temperatur yang tinggi.

Rendemen CHP perengkahan katalis NiMo/ZAA pada temperatur 400 °C (4,61 %) jika dibandingkan dengan rendemen CHP perengkahan katalis ZAA (3,29 %) adalah lebih besar. Hal ini menunjukkan bahwa meskipun deaktivasi katalis NiMo/ZAA lebih cepat terjadi pada temperatur tinggi akan tetapi aktivitas katalisnya dalam rendemen CHP masih lebih tinggi daripada katalis ZAA.

Rendemen gas dari perengkahan paraffin menggunakan katalis NiMo/ZAA pada temperatur 250 °C sebesar 68,53 %. Nilai ini lebih besar daripada perengkahan rendemen gas pada katalis ZAA (63,33 %) dikarenakan pada temperatur ini aktivitas katalis NiMo/ZAA dalam rendemen CHP kurang optimum sehingga rendemen yang dominan adalah gas. Pada temperatur 300 °C rendemen gas mengalami penurunan menjadi 26,40 %, nilai ini jauh lebih kecil daripada perengkahan katalis ZAA (46,27 %) dan perengkahan tanpa katalis (55,20 %) dikarenakan aktivitas katalis yang lebih cenderung dalam rendemen CHP. Rendemen gas pada temperatur 350 °C mengalami kenaikan menjadi 58,20 %, nilai ini lebih kecil dari perengkahan katalis ZAA (64,27 %) dan perengkahan tanpa katalis (60 %). Nilai rendemen gas pada temperatur 400 °C mengalami sedikit kenaikan menjadi 60,21 % yang nilainya lebih kecil pula dibandingkan dengan perengkahan katalis ZAA (66,16 %). Hal ini menunjukkan bahwa meskipun terjadi deaktivasi, katalis NiMo/ZAA memiliki aktivitas yang tinggi dalam rendemen CHP.

Nilai rendemen kokas perengkahan menggunakan katalis NiMo/ZAA pada tiap temperatur yang diperoleh pada temperatur 250 °C dan 300 °C adalah sama, yaitu sebesar 1,33 %. Nilai rendemen kokas pada temperatur 350 °C mengalami kenaikan menjadi sebesar 1,45 % dan pada temperatur 400 °C nilai rendemen kokas adalah yang tertinggi dari seluruh perengkahan sebesar 1,72 %. Hal tersebut menunjukkan bahwa deaktivasi katalis terjadi pada temperatur yang tinggi. Kokas yang telah berhasil menutupi sebagian besar sisi aktif katalis akan menyebabkan deaktivasi katalis sehingga rendemen fraksi ringan dalam CHP akan mengalami penurunan. Pada temperatur 300 °C terlihat bahwa rendemen CHP memiliki nilai tertinggi dibandingkan pada temperatur 250, 350, dan 400 °C dimungkinkan karena kokas yang terjadi hanya menutupi sebagian kecil sisi aktif katalis.

Rendemen total hasil perengkahan katalis NiMo/ZAA mengalami penurunan dengan adanya kenaikan temperatur. Nilai rendemen total pada temperatur 250 °C sebesar 83,67 %, pada temperatur 300 °C memiliki nilai rendemen total sebesar 59,06 % dan pada temperatur 350 °C sebesar 69,51 %. Nilai rendemen total pada temperatur 400 °C mengalami penurunan menjadi 66,53 %. Rendemen total yang terjadi didominasi dalam

bentuk rendemen gas. Nilai rendemen total perengkahan katalis NiMo/ZAA pada tiap temperatur jika dibandingkan dengan rendemen total pada perengkahan katalis ZAA adalah lebih kecil dikarenakan dominasi rendemen gas dari perengkahan paraffin menggunakan katalis NiMo/ZAA yang lebih kecil dari katalis ZAA.

Aktivitas katalis NiMo/ZAA secara umum mengalami penurunan dengan adanya kenaikan temperatur. Aktivitas katalis NiMo/ZAA pada temperatur 250 °C adalah sebesar 82,34 % dan pada temperatur 300 °C sebesar 57,73 %. Aktivitas katalis pada temperatur 350 °C mengalami kenaikan menjadi 68,06 % yang didominasi dalam bentuk gas. Pada temperatur 400 °C aktivitas katalis mengalami penurunan menjadi 64,82 %. Aktivitas katalis NiMo/ZAA adalah lebih kecil dibandingkan dengan aktivitas katalis ZAA. Hal ini dikarenakan rendemen fraksi ringan dalam bentuk gas dalam perengkahan parafin adalah lebih dominan daripada fraksi CHP yang diharapkan.

KESIMPULAN

Berdasarkan hasil analisis dan pembahasan diperoleh bahwa rendemen total tertinggi adalah pada rekasi perengkahan termal. Namun begitu pada peneltian ini dititik beratkan pada konversi parafin menjadi fraksi ringan dalam bentuk cairan. Oleh karena itu aktivitas katalitik optimum ditinjau berdasarkan besarnya rendemen fraksi cair adalah pada reaksi perengkahan parafin dengan katalis NiMo/ZAA pada temperatur 300 °C sebesar 31,33 %.

DAFTAR PUSTAKA

- Augustine, R.L, 1996, *Heterogeneous Catalysis for the Synthetic Chemist*, Marcel Dekker Inc. New York.
- Egrova, M., 2005, *Study of Aspect of Deep Hidrodesulfurization by Means of Model Reactions*, Dissertation, Novosibirsk State University.
- Heracleous, E. and Lemonidou, A.A., 2003, *Ethilene Production Via Oxidative Dehydrogenation In The Presence of Nickel-Based Catalyst*, Workshop of CPERI, Aristotele University of The Servoriki, Greece.
- Adjaye, 1996, Catalytic Conversion of A Biofuel to Hydrocarbons, *Fuel Processing Technology*, vol. 48, pp. 115-143.
- Nasution, A.S and Jasifi, E., 1999, Hydrocracking of Heavy Distillate Into Clean Diesel Oil Using NiMo/Al₂O₃-SiO₂, *Prosiding Seminar Nasional Kimia*, FMIPA, UGM, Yogyakarta.
- Nugrahaningtyas, K. D., Widjonarko, D.M., Trisunaryanti, W, Triyono, 2009, Preparation and Characterization Of NiMo/Active Natural Zeolite Catalysts, *Proceeding Of The 2009 International Conference on Chemical, Biological and Evironmental Engineering*, NTU, Singapura, pp. 171-174.

- Nurchahyo, I., 2005, *Uji Aktivitas dan Regenerasi Katalis NiPd(4:1)/Zeolit Alam Aktif Untuk Hidrorengkah Sampah Plastik Polipropilene menjadi Fraksi Bensin dengan Sistem Semi Alir*, Tesis, UGM, Yogyakarta.
- Santos, R F. dos, and E A Urquieta-Gonzalez, 1998, n-Heptane Cracking On Usy Zeolite The Effect Of Reaction Temperature On Activity and Deactivation, *Brazilian Journal of Chemical Engineering*, vol. 15, no. 2.
- Syarifah, I., 2000, Ni-ZAA Alam Untuk Perengkahan Fraksi Minyak Bumi, *Prosiding Seminar Nasional Kimia*, Jurusan Kimia, FMIPA, UGM, Yogyakarta.
- Triyono, 1994, *Kimia Fisika*, Dasar-dasar Kinetika dan Katalis, Depdikbud Dirjen Pendidikan Tinggi.