

DAFTAR ISI

Halaman Judul	i
Halaman setelah Halaman Judul	ii
Halaman Persetujuan Promotor	iii
Halaman Persetujuan Penguji	iv
Pernyataan Promovendus	v
Kata Pengantar	vi
Daftar Isi	ix
Daftar Gambar	xiii
Daftar Tabel	xviii
Daftar Lambang dan Notasi	xx
Intisari	xxii
Summary	xxiv
BAB I. PENDAHULUAN	
1.1.1 1.1 Latar Belakang	1
1.2 Rumusan dan Batasan Masalah	6
1.3 Keaslian	6
1.4 Tujuan	14
1.5 Manfaat	14



BAB II. TINJAUAN PUSTAKA

2.1. Metanol	15
2.2. Etilen	16
2.3. Propilen	18
2.4. Katalis	19
2.4..1. Zeolite Socony Mobil (ZSM-5)	20
2.4..2. SAPO-34	22
2.4..3. Modifikasi katalis dengan impregnasi logam	23
2.5. Proses Sintesis Olefin dari Metanol	25
2.6. Deaktivasi Katalis	30
2.7. Kinetika Sintesis Olefin dari Metanol	31

BAB III. LANDASAN TEORI

3.1 <i>Molecular sieve</i>	37
3.2 Model Matematika Sintesis Olefin dari Metanol dalam Reaktor Fixed Bed Berkatalis	40

3.3 Model Kinetik Reaksi Sintesis Olefin dari Metanol	41
3.3.1. Model <i>four</i> lump	41
3.3.2. Model <i>eight</i> lump	43
3.3.3. Model mikrokinetik	44
3.3.4. Model Langmuir Hinshelwood Hougen Watson	47
3.4 Perkiraan dan Validasi Parameter Model Kinetik	56
3.5 Impregnasi Katalis	58
 BAB IV. HIPOTESIS	 63
 BAB V. METODOLOGI PENELITIAN	
5.1 Kerangka Penelitian	64
5.2 Bahan dan Alat	66
5.3 Proses Impregnasi Logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) pada ZSM-5	68
5.4 Prosedur Sintesis Olefin dari Metanol	70
5.4.1. Uji Kinerja Katalis	70
5.4.2. Kinetika Reaksi Sintesis Metanol menjadi Olefin	71
5.5 Variabel Penelitian	71
5.6 Karakterisasi Katalis	71
5.6.1. <i>X-Ray Diffraction (XRD)</i>	71
5.6.2. <i>SEM-EDX</i>	72
5.6.3. <i>Pyridin-FTR</i>	73
5.6.4. <i>Isotherm Adsorpsi N₂</i>	74

5.7 Analisis Produk	75
5.7.1. Aktivitas Katalis	76
5.7.2. Selektivitas	76
5.8. Pengolahan Data	77
 BAB VI. PEMBAHASAN	
6.1. Karakterisasi Katalis	78
6.1.1. <i>XRD</i>	78
6.1.2. <i>SEM-EDX</i>	83
6.1.3. Analisis Adsorpsi N ₂	87
6.1.4. <i>Pyridin FTIR</i>	94
6.2. Uji Kinerja Katalis	102
6.2.1. Katalis Parent ZSM-5 (tanpa modifikasi)	102
6.2.2. Modifikasi katalis ZSM-5 dengan logam (Mg/Ca/Sr/Ba/La) 5 wt.% pada suhu 500 °C	107
6.2.3. Modifikasi katalis ZSM-5 dengan logam (Mg/Ca/Sr/Ba/La) 3 wt.% pada suhu 500 °C	120
6.2.4. Pengaruh konsentrasi logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) terhadap selektivitas produk	130
6.2.5. Pengaruh suhu terhadap selektivitas produk	132
6.2.6. Pengaruh Suhu vs WHSV terhadap Produk	138
6.3. Studi Kinetika Reaksi MTO	
6.3.1. Model <i>four lump</i>	141

6.3.2.	Model <i>eight</i> lump	145
6.3.3.	Model mikrokinetika	150
6.3.4.	Model LHHW	153
BAB VII	KESIMPULAN DAN SARAN	
7.1	Kesimpulan	162
7.2	Saran	162
DAFTAR PUSTAKA		164

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1.	Blok diagram produksi metanol dari biomassa	16
Gambar 2.2.	Reaksi polimerisasi etilen	17
Gambar 2.3.	Tahapan Reaksi Metanol menjadi olefin	27
Gambar 2.4.	Mekanisme <i>hydrocarboon pool</i>	34
Gambar 2.5.	Model kinetika reaksi metanol to olefin	35
Gambar 2.6.	Reaksi metanol to propilen	35
Gambar 2.7.	Model kinetika MTO	36
Gambar 3.1.	Struktur saluran ZSM-5	38
Gambar 3.2.	Neraca massa di reaktor <i>fixed bed</i>	40
Gambar 3.3	Skema Model LHHW pada reaksi metanol menjadi olefin	47
Gambar 3.4.	Skema algoritma optimasi kinetika reaksi sintesis olefin dari metanol	57
Gambar 3.5	Distribusi merata dari logam aktif terimpregnasi data meningkatkan luas permukaan katalis.	59
Gambar 3.6.	Akumulasi logam aktif terimpregnasi di mulut pori dan menyebabkan penurunan luas permukaan zeolite logam aktif terimpregnasi lebih banyak	60
Gambar 3.7	Akumulasi logam aktif terimpregnasi di permukaan katalis	61
Gambar 3.8.	Kompetisi dan akumulasi logam aktif terimpregnasi pada mulut pori dengan LPS yang menurun	61
Gambar 3.9	Struktur katalis ZSM-5	62

Gambar 6.10	Logam impregnasi menempel di katalis induk ZSM-5	62
Gambar 5.1.	Kerangka penelitian sintesis olefin dari metanol	65
Gambar 5.2.	Rangkaian alat proses sintesis metanol menjadi olefin	67
Gambar 5.3.	Tahapan impregnasi logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) pada katalis ZSM-5	68
Gambar 5.4.	Alat <i>press powder</i> katalis	69
Gambar 6.1.	Difraktogram modifikasi katalis ZSM-5 dengan logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) (a) 3 wt.%; (b) 5wt. %	78
Gambar 6.2.	Gambar SEM dari ZSM-5 yang diimpregnasi dengan logam (Ca/Mg/Sr/Ba/La) (a) 3 wt.% dan (b) 5 wt.%.	83
Gambar 6.3	Distribusi impregnasi logam (Mg/Ca/Sr/Ba/La) 3 dan 5 wt.% pada katalis ZSM-5	85
Gambar 6.4	Konfigurasi unsur logam pada katalis ZSM-5 setelah Logam (Mg/Ca/Sr/Ba/La): (a) 3 wt.% dan (b) 5 wt.%	87
Gambar 6.5a.	Kurva <i>Isotherm</i> Adsorpsi N ₂ pada katalis ZSM-5 modifikasi logam (Mg/Ca/Sr/Ba/La) 3 wt.%	88
Gambar 6.5b.	Kurva <i>Isotherm</i> Adsorpsi N ₂ pada katalis ZSM-5 modifikasi logam (Mg/Ca/Sr/Ba/La) 5 wt.%.	89
Gambar 6.6.	Hubungan antara Distribusi Ukuran Pori dengan volum Pori pada katalis ZSM-5 terimpregnasi logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) (a) 3 wt.% dan (b) 5 wt.%	90
Gambar 6.7.	<i>Mapping EDX</i> 3Mg-ZSM-5	92
Gambar 6.8.	Analisis Pyridin-FTIR pada katalis ZSM-5 modifikasi logam	

(Mg/Ca/Ba/Sr/La) 3 wt. %	94
Gambar 6.9. Analisis Pyridin-FTIR pada katalis ZSM-5 modifikasi logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) 5 wt. %	96
Gambar 6.10. Visualisasi impregnasi logam Mg di katalis ZSM-5	100
Gambar 6.11. Pengaruh suhu reaksi terhadap konversi dengan menggunakan katalis <i>parent</i> -ZSM-5	102
Gambar 6.13 Pengaruh suhu reaksi terhadap produk selektivitas olefin dengan menggunakan katalis <i>parent</i> ZSM-5	105
Gambar 6.13 Pengaruh suhu reaksi terhadap produk selektivitas olefin dengan menggunakan katalis <i>parent</i> ZSM-5	106
Gambar 6.14 Pengaruh impregnasi logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) terhadap konversi metanol pada suhu 500 °C	108
Gambar 6.15 Penggumpalan situs aktif pada permukaan katalis	112
Gambar 6.16 Pengotoran kokas pada permukaan katalis	113
Gambar 6.17 Pengaruh impregnasi logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) terhadap komposisi distribusi produk pada suhu 500 °C: (a) 5Mg-ZSM-5; (b) 5Ca-ZSM-5; (c) 5Ba-ZSM-5; (d) 5Sr-ZSM-5; (e) 5La-ZSM-5	113
Gambar 6.18 Ilustrasi pembentukan produk dalam pori katalis	118
Gambar 6.19 Pengaruh impregnasi logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) 5 wt. % terhadap selektivitas olefin pada suhu 500 °C	119
Gambar 6.20 Pengaruh impregnasi logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) 3 wt. % terhadap konversi metanol pada suhu 500 °C	120

Gambar 6.21	Pengaruh impregnasi logam 3 wt.% terhadap BAS ZSM-5	121
Gambar 6.22	Lokasi kokas di dalam katalis ZSM-5	122
Gambar 6.23	Pengaruh impregnasi logam terhadap luas permukaan katalis dan volume pori katalis	123
Gambar 6.24.	Pengaruh impregnasi logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) terhadap komposisi distribusi produk pada suhu 500 °C: a) 3Mg-ZSM-5; b) 3Ca-ZSM-5; c) 3Ba-ZSM-5; d) 3Sr-ZSM-5; e) 3La-ZSM-5	124
Gambar 6.25	Pengaruh impregnasi logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) terhadap selektivitas olefin pada suhu 500 °C: a) 3Mg-ZSM-5; b) 3Ca-ZSM-5; c) 3Ba-ZSM-5; d) 3Sr-ZSM-5; e) 3La-ZSM-5	128
Gambar 6.26.	Pengaruh konsentrasi logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) terhadap produk distribusi. Dengan kondisi reaksi: 450 °C; WHSV metanol 4.75 h ⁻¹ . (a) etilen (b) propilen (c) butilen (d) light olefin	131
Gambar 6.27.	Pengaruh suhu terhadap produk distribusi dan konversi metanol pada katalis Ca-ZSM-5 dengan WHSV 4.75 h ⁻¹ dan berat katalis 0,1 g	132
Gambar 6.28.	Pengaruh suhu terhadap aktivitas katalis pada WHSV yang berbeda: (a) etilen; (b) propilen; (c) butilen; (d) total olefin	138
Gambar 6.29.	Pengaruh suhu terhadap aktivitas katalis pada WHSV	

yang berbeda; (a) C₁-C₄; (b) C₅⁺; (c) DME; (d) P/E 140

Gambar 6.30 Perhitungan produk distribusi pada proses MTO dengan

katalis Ca-ZSM-5 pada suhu (a) 400 °C (b) 450 °C,

(c) 500 °C dibandingkan dengan data eksperimen

sebagai fungsi W/F (1/WHSV) 142

Gambar 6.31 Perhitungan produk distribusi pada proses MTO dengan

katalis Ca-ZSM-5 pada suhu 400 °C (a) 450 °C, (b) 500 °C(c)

dibandingkan dengan data eksperimen sebagai fungsi

space time. 146

Gambar 6.32 Perhitungan produk distribusi pada proses MTO dengan

katalis Ca-ZSM-5 pada suhu 400 °C (a) 450 °C, (b) 500 °C (c)

dibandingkan dengan data eksperimen sebagai fungsi

space time. 150

Gambar 6.33 Perhitungan produk distribusi pada proses MTO dengan

katalis Ca-ZSM-5 pada suhu 400 °C (a) 450 °C, (b) 500 °C(c)

dibandingkan dengan data eksperimen sebagai fungsi

space time. 155

DAFTAR TABEL

Tabel 1.1.	Modifikasi katalis ZSM-5 dengan logam	11
Tabel 2.1.	Sifat fisik etilen	17
Tabel 2.2.	Sifat fisik propilen	19
Tabel 5.1.	Massa logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) untuk impregnasi	69
Tabel 6.1.	Pengaruh impregnasi logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) pada pola difraksi 2 θ	80
Tabel 6.2.	Pengaruh impregnasi logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) pada kristalinitas	81
Tabel 6.3	Analisis EDX impregnasi logam (Mg/Ca/Ba/Sr/La) pada katalis ZSM-5.	85
Tabel 6.4.	Karakteristik Struktur Pori pada ZSM-5 modifikasi	91
Tabel 6.5	<i>Mapping EDX</i> 3Mg-ZSM-5	93
Tabel 6.6.	Keasaman katalis ZSM-5 dan terimpregnasi logam (Mg/Ca/Sr/Ba/La) 3 dan 5 wt. %.	98
Tabel 6.7	Pengaruh suhu reaksi terhadap rerata produk selektivitas Dengan menggunakan katalis Parent-ZSM-5	104
Tabel 6.8	Pengaruh suhu terhadap selektivitas produk pada reaksi MTO dengan katalis 3Ca-ZSM-5	110
Tabel 6.9	Pengaruh impregnasi 5 wt.% logam (Mg/Ca/Sr/Ba/La) Terhadap rerata produk selektivitas pada suhu 500 °C.	114
Tabel 6.10	Pengaruh impregnasi 5 wt.% logam (Mg/Ca/Sr/Ba/La) Terhadap rerata produk selektivitas pada suhu 500 °C.	125



Tabel 6.11	Pengaruh suhu terhadap rerata selektivitas pada <i>Parent-ZSM-5</i>	133
Tabel 6.12	Energi aktivasi dan faktor <i>pre eksponensial</i> pada reaksi MTO untuk model kinetik <i>four lump</i>	143
Tabel 6.13	Nilai k pada berbagai suhu menurut model <i>four lump</i>	144
Tabel 6.14	Perhitungan prosen ralat untuk model <i>four lump</i>	144
Tabel 6.15	Perbandingan nilai energi aktivasi reaksi oksigenat dengan peneliti sebelumnya	145
Tabel 6.16	Energi aktivasi dan faktor <i>pre eksponensial</i> pada proses MTO menurut model <i>eight lump</i>	147
Tabel 6.17	Nilai k pada berbagai suhu menurut model <i>eight lump</i>	148
Tabel 6.18	Perhitungan prosen ralat untuk model <i>eight lump</i>	149
Tabel 6.19	Nilai <i>pre eksponensial</i> dan energi aktivasi menurut model mikrokinetik	151
Tabel 6.20	Nilai konstanta kecepatan reaksi menurut model mikrokinetik	152
Tabel 6.21	Perhitungan prosen ralat untuk model mikrokinetik	153
Tabel 6.22	Nilai k pada berbagai suhu menurut model LHHW	156
Tabel 6.23	Nilai konstanta keseimbangan adsorpsi menurut Model LHHW	157
Tabel 6.24	Nilai k_0 dan E_a menurut model LHHW	157
Tabel 6.25	Faktor <i>pre eksponensial</i> entalpi adsorpsi menurut model LHHW	158



Tabel 6.26	Perhitungan prosen ralat untuk model LHHW	159
Tabel 6.27	Perbandingan faktor pre-eksponensial dan energi aktivasi pada model kinetika reaksi MTO dengan peneliti sebelumnya	160