

PARALLEL REACTION ON CATALYTIC HYDROGENATION REACTION OF
CIS-ISOEUGENOL INTO 2-METHOXY-4-PROPYLPHENOL

**Reaksi Paralel Pada Reaksi Hidrogenasi Katalitik *cis*-Isoeugenol Menjadi
2-Metoksi-4-Propilfenol**

Muchalal *

Chemistry Department, Faculty of Mathematics and Natural Sciences
Gadjah Mada University, Yogyakarta

Received 16 April 2005; Accepted 2 May 2005

ABSTRACT

Catalytic hydrogenation of eugenol (Mr 164) and isoeugenol (Mr 164) by using synthetic catalyst Ni/ γ -Al₂O₃ had been carried out. Eugenol transformation into 2-methoxy-4-propylphenol (Mr 166) as a main product could be achieved in 100% and no conversion reaction of eugenol into isoeugenol. If the raw material was 96% *trans*-isoeugenol or 61% *cis*-isoeugenol then the product was 67% or 92% of 2-methoxy-4-propylphenol. On the catalytic hydrogenation of *trans*-isoeugenol into 2-methoxy-4-propylphenol there was no parallel reaction of *trans*-isoeugenol into *cis*-isoeugenol. Conversely, catalytic reaction of *cis*-isoeugenol into 2-methoxy-4-propylphenol always followed by conversion reaction of *cis*-isoeugenol into *trans*-isoeugenol. Transformation of *cis*-isoeugenol into 2-methoxy-4-propylphenol below 200 °C was equilibrium reaction and above 200 °C was an irreversible reaction.

Keywords: Catalytic hydrogenation, *cis*-isoeugenol

PENDAHULUAN

Muchalal dan Respati [1] melaporkan pada reaksi isomerisasi eugenol (m/z 164) menjadi isoeugenol (m/z 164), sebagai senyawa turunannya selalu ditemukan produk samping yaitu 2-metoksi-4-propilfenol. Kalau ditinjau dari massa molekular produk yaitu 166, perubahan eugenol menjadi 2-metoksi-4-propilfenol adalah reaksi hidrogenasi, karena ada kenaikan massa molekular 2 sma lebih besar. Kadarohman [2] melaporkan bahwa reaksi pembentukan *trans*-isoeugenol dari eugenol adalah reaksi yang dikontrol secara termodinamika sedang pembentukan *cis*-isoeugenol dikontrol secara kinetika. Media reaksi yang digunakan Muchalal dan Respati [1] maupun Muchalal dan Kadarohman [3] untuk reaksi isomerisasi eugenol menjadi isoeugenol, adalah media basa campuran KOH – etilena glikol. Reaksi isomerisasi yang sama dilakukan dengan bahan dasar *cis*-isoeugenol dan *trans*-isoeugenol sebagai pengganti eugenol. Percobaan ini digunakan untuk merunut tahapan reaksi pembentukan 2-metoksi-4-propilfenol. Pada penelitian Muchalal dan Kadarohman [3] ditemukan bahwa bila *cis*-isoeugenol digunakan sebagai bahan awal ternyata selama reaksi berlangsung ada perubahan struktur *cis* - isoeugenol menjadi

trans-isoeugenol. Dalam keadaan itu terjadi reaksi paralel yaitu *cis*-isoeugenol menjadi *trans*-isoeugenol dan *cis*-isoeugenol menjadi 2-metoksi-4-propilfenol. Kadarohman [2] menyatakan bahwa bila *trans*-isoeugenol digunakan sebagai senyawa awal reaksi isomerisasi, reaksi yang sejenis (paralel) dari *trans*-isoeugenol menjadi *cis*-isoeugenol tidak ditemukan

Berdasar atas kesimpulan awal penelitian Muchalal dan Respati [1] yaitu transformasi eugenol menjadi 2-metoksi-4-propilfenol adalah reaksi hidrogenasi maka akan dicoba reaksi transformasi eugenol menjadi produk yang sama dengan cara reaksi hidrogenasi langsung dengan gas H₂ yang dikatalis oleh logam nikel yang diimbangkan pada padatan oleh γ -alumina atau γ -Al₂O₃. Preparasi dan penggunaan katalis Ni/ γ -Al₂O₃ untuk reaksi hidrogenasi telah dilaporkan oleh beberapa peneliti [4-8]. Muchalal [4] telah membuat suatu reaktor untuk mensintesis katalis dari gelas Pyrex tahan suhu 400 °C yang dihubungkan dengan evaporator Buchi, dan telah berhasil mensintesis 50 g katalis logam nikel yang diimbangkan pada γ -alumina. Spesifikasi katalis yang diperoleh juga telah dilaporkan Muchalal [4].

* Email address : muchalal@yahoo.com

METODE PENELITIAN

Reaksi hidrogenasi eugenol, *trans*-isoeugenol dan *cis*-isoeugenol dengan katalisator Ni/ γ -Al₂O₃ dilakukan dalam reaktor yang dilengkapi dengan pemanas mantel yang disain oleh Muchalal. Kondisi reaksi hidrogenasi adalah 10 mL bahan awal masing-masing eugenol, *trans*-isoeugenol dan *cis*-isoeugenol, 0,5 g katalis Ni/ γ -Al₂O₃, suhu reaksi 200 °C, durasi reaksi 3 jam serta dialiri gas hidrogen. Reaksi yang sama dilakukan hanya untuk *trans*-isoeugenol tetapi untuk reaksi ini dilakukan pengambilan hasil reaksi untuk setiap jam reaksi selama 4 jam reaksi untuk dianalisis perubahan kuantitas senyawa yang terjadi maupun sisa senyawa awalnya.

Untuk melacak dan merunut langkah reaksi isomerisasi dari reaktan menjadi produk reaksi dilakukan pula reaksi isomerisasi terhadap bahan campuran *cis*-isoeugenol (61%) dan *trans*-isoeugenol (31%), dengan kondisi reaksi yang sama seperti di atas hanya berbeda durasi reaksinya. Durasi reaksi katalitik terhadap *cis*-isoeugenol hanya 3 jam, dan setiap jam reaksi diambil beberapa tetes untuk dianalisis perubahan kuantitas masing-masing dengan kromatografi gas.

Spesifikasi katalis yang digunakan adalah (1) kandungan logam Ni dalam katalis adalah 4,3%

massa (2), luas permukaan katalis 108,555 m²/g, volume pori-pori 0,157 mL/g dan rerata jejari pori 28,855 Å.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil reaksi hidrogenasi katalitik terhadap masing-masing eugenol, *trans*-isoeugenol dan *cis*-isoeugenol sebagai bahan awal dengan kondisi reaksi, 10 mL, 0,5 g katalis Ni(4.3%)/ γ -Al₂O₃, suhu 200 °C waktu reaksi 3 jam. Hasil reaksi disajikan pada Tabel 1.

Reaksi hidrogenasi katalitik terhadap *trans*-isoeugenol sebagai bahan awal, dengan kondisi reaksi 10 mL *trans*-isoeugenol (kadar 96,3%), 0,5 gram katalis Ni/ γ -Al₂O₃ (4,3%), suhu reaksi 200 °C selama 4 jam, hasilnya disajikan pada Tabel 2.

Data pada Tabel 2 menunjukkan bahwa selama perjalanan transformasi *trans*-isoeugenol menjadi produk utama reaksi hidrogenasi katalitik yaitu 2-metoksi-4-propilfenol, hampir tidak dapat dilacak adanya transformasi *trans*-isoeugenol menjadi *cis*-isoeugenol, karena persentase *cis*-isoeugenol selama reaksi berlangsung hampir tidak berubah. Penurunan kuantitas *trans*-isoeugenol selama reaksi selalu seimbang dengan naiknya kuantitas produk reaksi dan tidak diikuti dengan naiknya kuantitas *cis*-isoeugenol.

Tabel 1 Konversi reaktan (eugenol, *trans*-isoeugenol, *cis*-isoeugenol) menjadi 2-metoksi-4-propilfenol sebagai produk reaksi

Nomor Percobaan	Komposisi awal, %			Produk reaksi (%)	Rendemen hasil (%)
	Eugenol	<i>Trans</i> -isoeugenol	<i>Cis</i> -Isoeugenol		
1	100	0	0	99	99
2	0	96	1	67	70
3	0	31	61	92	> 100 ^{*)}

*) Perhitungan rendemen dari persen produk reaksi dibagi pesen *cis*-isoeugenol dengan menganggap tidak ada konversi dari *trans*-isoeugenol

Tabel 2 Perubahan kuantitas senyawa selama reaksi hidrogenasi katalitik *trans*-isoeugenol menjadi 2-metoksi-4-propilfenol

Waktu reaksi, jam	<i>Trans</i> -isoeugenol, %	<i>Cis</i> -Isoeugenol, %	Produk reaksi, %
0	96,3	3,7	0
1	65,9	6,5	27,5
2	47,6	5,0	47,4
3	30,3	3,3	66,4
4	21,1	2,4	76,2

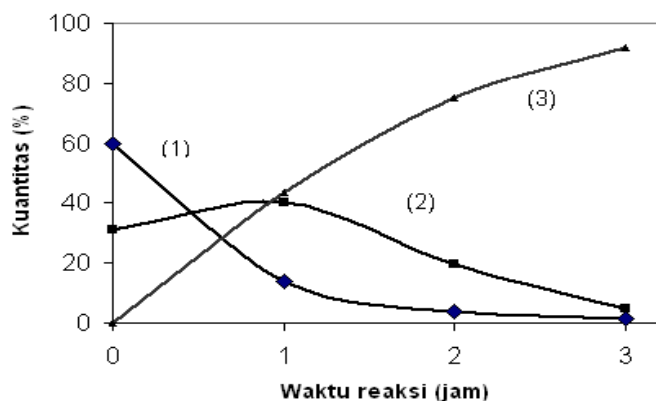
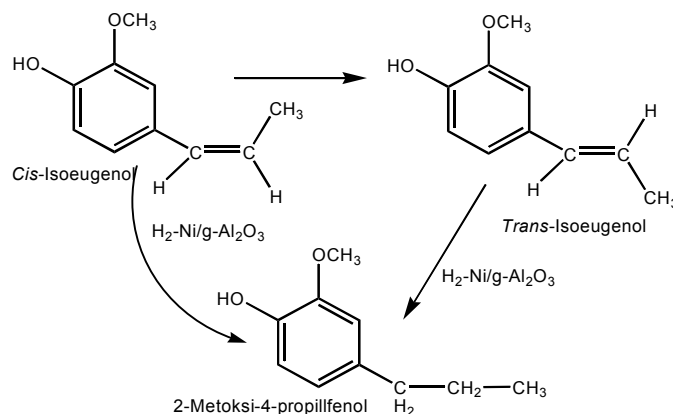
Tabel 3 Perubahan kuantitas senyawa bahan awal maupun produk reaksi pada reaksi hidrogenasi katalitik campuran *cis*-isoeugenol dan *trans*-isoeugenol

Lama reaksi, jam	<i>Cis</i> -Isoeugenol, %	<i>Trans</i> -Isoeugenol, %	Produk reaksi, %	Rasio <i>cis/trans</i>	Rasio <i>Cis/Produk</i>
0	61	31	-	2 : 1	60 : 0
1	13,76	40,14	38,98	1 : 3	1 : 3
2	3,76	19,67	74,90	1 : 5	1 : 7
3	1,24	4,9	91,89	1 : 5	1 : 91

Tabel 4 Pengurangan dan penambahan persentase kuantitas *cis*-isoeugenol, *trans*-isoeugenol dan 2-metoksi-4-propilfenol sebagai produk reaksi.

Durasi reaksi, jam	Δ <i>Cis</i> -IEU, %	Δ <i>Trans</i> -IEU, %	Δ Produk, %	Konversi, % *)
0 – 1	13,76 – 61 = – 46,25	40,14 – 31 = + 9,14	38,98 – 0 = 38,98	102
1 – 2	3,76 – 13,76 = – 10	19,67 – 40,14 = –20,47	74,90 – 38,98 = 34,92	117,8
2 – 3	1,24 – 3,76 = – 2,52	4,90 – 19,67 = – 14,77	91,89 – 74,90 = 16,99	98,26

*) Dianggap tidak ada transformasi *trans*-isoeugenol menjadi 2-metoksi-4-propilfenol

**Gambar 1** Hubungan persentase kuantitas *cis*-isoeugenol (1), *trans*-isoeugenol (2) dan 2-metoksi-4-propilfenol (3) sebagai produk reaksi**Gambar 2** Skema reaksi transformasi *cis*-isoeugenol menjadi 2-metoksi-4-propilfenol

Reaksi hidrogenasi katalitik terhadap bahan awal campuran *cis*-isoeugenol (kadar 61%) dan *trans*-isoeugenol (kadar 31%) dilakukan dengan kondisi reaksi 10 mL campuran tersebut, 0,5 gram katalis Ni(4,3%) γ -Al₂O₃, suhu 200 °C waktu reaksi 3 jam. Hasil reaksinya disajikan pada Tabel 3. Tabel 3 memberi informasi bahwa pada reaksi hidrogenasi katalitik campuran *cis*-isoeugenol (61%) dan *trans*-isoeugenol (31%) selama 3 jam dengan pengamatan kuantitas produk setiap jam reaksi, penurunan kuantitas *cis*-isoeugenol tidak sebanding dengan naiknya kuantitas produk reaksi dari 0% menjadi 91,89%, bahkan pada 1 jam reaksi ditemukan adanya kenaikan kuantitas *trans*-isoeugenol dari 13,76% menjadi 40,14%, atau pada 0 jam rasio *cis*/produk adalah 60 : 0 tetapi pada jam pertama reaksi katalitik rasio *cis*/produk menjadi 1 : 3 yang seharusnya 0 : 1. Dengan demikian pada reaksi hidrogenasi katalitik terhadap *cis*-isoeugenol selain terjadi reaksi *cis*-isoeugenol menjadi 2-metoksi-4-propilfenol, terjadi pula reaksi transformasi *cis*-isoeugenol menjadi *trans*-isoeugenol. Dari Tabel 3, diketahui pula bahwa setelah reaksi berjalan 1 jam terjadi reaksi kesetimbangan antara *cis*-isoeugenol dengan *trans*-isoeugenol. Kemudian terjadi penurunan kuantitas *cis*-isoeugenol yang diikuti oleh penurunan kuantitas *trans*-isoeugenol. Perubahan persentase kuantitas masing-masing tersebut diajikan lebih jelas pada Gambar 1.

Berdasarkan angka-angka yang ada pada Tabel 3 kemudian dilakukan perhitungan terhadap pertambahan dan pengurangan persen *cis*-isoeugenol dan *trans*-isoeugenol serta penambahan persen masing-masing produk berikut rendemennya, hasilnya disajikan pada Tabel 4. Kondisi reaksinya adalah campuran 10 mL *cis*-isoeugenol (kadar 61%) dan *trans*-isoeugenol (kadar 31%), 0,5 gram katalis Ni/ γ -Al₂O₃ (4,3%), suhu reaksi 200 °C dan durasi reaksi 3 jam.

Bila diperhatikan perubahan kuantitas karena hanya transformasi dari *cis*-isoeugenol menjadi produk reaksi tanpa melihat perubahan kuantitas *trans*-isoeugenol akan diperoleh hasil rendemen yang selalu lebih besar dari 100%. Data dari Tabel 4 maupun Gambar 1 memberi keterangan bahwa reaksi hidrogenasi katalitik *cis*-isoeugenol menjadi 2-metoksi-4-propilfenol selalu diikuti reaksi paralel dan bila bahan awal reaksi hidrogenasi katalitik adalah *trans*-isoeugenol, tidak ditemukan reaksi paralel dari *trans*-isoeugenol menjadi *cis*-isoeugenol. Berdasarkan Tabel 2, penurunan kuantitas *trans*-isoeugenol diikuti oleh naiknya kuantitas produk reaksi sedangkan kuantitas *cis*-isoeugenol hampir tidak berubah (Tabel 2). Dengan demikian dapat disimpulkan, bahwa pada suhu di bawah 200 °C terdapat reaksi kesetimbangan antara *cis*-isoeugenol dengan *trans*-isoeugenol, tetapi setelah mencapai suhu 200 °C reaksi *cis*-isoeugenol menjadi *trans*-isoeugenol adalah reaksi searah.

Reaksi paralel juga telah dilaporkan oleh Kadarohman dan Muchalal [3] walaupun kondisi reaksinya berbeda.

Skema reaksi hidrogenasi katalitik *cis*-isoeugenol menjadi 2-metoksi-4-propilfenol sebagai produk utama dan reaksi paralel *cis*-isoeugenol menjadi *trans*-isoeugenol disajikan dalam Gambar 2.

KESIMPULAN

Selama reaksi berlangsung di setiap saat yang sama terdapat reaksi : (1) *cis*-isoeugenol menjadi *trans*-isougenol ; (2) *cis*-isoeugenol menjadi 2-metoksi-4-propilfenol dan (3) *trans*-isoeugenol menjadi 2-metoksi-4-propilfenol

UCAPAN TERIMA KASIH

Diucapkan banyak terima kasih atas uji coba yang telah berhasil menggunakan reaktor Muchalal untuk (1) mensintesis katalis Ni(4,3%)/ γ -Alumina dan (2) reaksi hidrogenasi katalitiknya kepada Sdr. Kurniawan Tri Wibowo. S.Si, Adhy Pramono S.Si, Sa'adullah S.Si dan Adi Heri Santoso, S.Si

DAFTAR PUSTAKA

1. Muchalal dan Respati T. S., 1999, *Berkala Ilmiah MIPA*, 1, IX, 48 – 56
2. Kadarohman, A., 1994, *Mempelajari Mekanisme dan Kontrol Reaksi Isomerisasi Eugenol Menjadi Isomerisasi Eugenol Menjadi Isouegenol*. Laporan Penelitian, FMIPA UGM, Jogjakarta
3. Muchalal, dan Kadarohman, A., 1999, *Penelitian Pendahuluan Reaksi Isomerisasi Eugenol Menjadi Isouegenol*, Usulan Penelitian, MIPA UGM, Jogjakarta
4. Muchalal, 2004, *Berkala Ilmiah MIPA*, 14 (2), 27 – 43
5. Santoso, A.H., 2004, *Preparasi dan Karakterisasi Katalis Ni/O-Al₂O₃ untuk Hidrogenasi Trans-Isoeugenol*, Skripsi FMIPA-UGM, Jogjakarta.
6. Kurniawan T.W., 2004, *Aktivitas Katalis Ni/ γ -Alumina 1,79% dan 4,31% Pada Penggunaan Berulang Untuk Reaksi Hidrogenasi Trans-Isoeugenol*, Skripsi FMIPA – UGM, Jogjakarta.
7. Sa'adullah, 2004, *Studi Perbandingan γ -Alumina dan Karbon Aktif Sebagai Bahan Pengemban Katalis Nikel Untuk Reaksi Hidrogenasi Trans-Isoeugenol*, Skripsi FMIPA – UGM, Jogjakarta
8. Pramono, A., 2004, *Studi Reaksi Eugenol, Trans-Isoeugenol dan Cis-Isoeugenol Menggunakan Katalis Ni/ γ -Al₂O₃*. Skripsi FMIPA – UGM, Jogjakarta