

ABSTRAK

PEMANFAATAN LIPASE NABATI UNTUK PRODUKSI ASAM LEMAK BEBAS DALAM SKALA PRODUKSI KECIL

Oleh
Astri Nur Istyami
NIM: 33014003
(Program Studi Doktor Teknik Kimia)

Asam lemak merupakan produk antara yang sangat penting dalam industri oleokimia. Selain menjadi produk turunan minyak nabati, asam lemak juga berpotensi untuk diolah lebih lanjut menjadi bahan bakar nabati *drop-in*, yaitu jenis bahan bakar yang dapat langsung digunakan pada mesin kendaraan tanpa pencampuran dengan bahan bakar fosil. Selama ini, produksi asam lemak membutuhkan energi dalam jumlah besar serta menyebabkan kerusakan pada sebagian produk asam lemak. Teknologi alternatif yang saat ini dikembangkan adalah hidrolisis trigliserida dengan enzim lipase (dikenal juga dengan lipolisis), yang berpotensi lebih ekonomis karena dapat dilangsungkan pada kondisi operasi di sekitar temperatur kamar dan tidak menyebabkan kerusakan produk. Tingginya biaya produksi lipase dari mikroorganisme memunculkan alternatif sumber lipase lainnya yang lebih mudah diolah dan murah, yaitu biji dan getah tumbuhan. Beberapa sumber lipase nabati telah dilaporkan sebelumnya, namun membutuhkan kondisi tertentu, seperti rasio lipase terhadap substrat yang sangat tinggi, rasio pelarut organik terhadap substrat yang sangat tinggi, atau waktu reaksi yang sangat lama.

Tujuan umum penelitian ini adalah mengembangkan teknologi proses produksi asam lemak berkondisi operasi lunak dengan bantuan lipase nabati. Untuk menghasilkan kelayakan proses yang baik, mula-mula dilakukan pengujian kinerja lipase dari berbagai sumber nabati. Pengujian dilakukan terhadap 16 (enam belas) sumber lipase nabati, yaitu biji jarak pagar (*Jatropha curcas*), biji jarak kepyar (*Ricinus communis*), biji kapok randu (*Ceiba pentandra*), biji kepoh (*Sterculia foetida*), biji mabai (*Milletia pinnata*), biji bintaro (*Cerbera manghas*), biji nyamplung (*Calophyllum inophyllum*), biji buah roda (*Hura crepitans*), biji saga utan (*Adenantha pavonina*), biji karet (*Hevea brasiliensis*), dedak padi (*Oryza sativa*), getah patah tulang (*Euphorbia tirucalli*), getah kemboja (*Plumeria rubra*), getah bintaro (*Cerbera manghas*), getah pepaya (*Carica papaya*) dan getah nangka (*Artocarpus heterophyllus*). Di antara sumber-sumber lipase yang diuji, getah kemboja menghasilkan derajat hidrolisis tertinggi pada kadar *crude enzim* rendah (1%-substrat) dan tanpa melibatkan pelarut organik.

Untuk meningkatkan kelayakan proses, dilakukan optimasi terhadap variabel-variabel yang diduga memengaruhi reaksi lipolisis dengan lipase getah kembang. Variabel yang ditinjau adalah pH, temperatur, rasio pelarut organik terhadap minyak, rasio air terhadap minyak, ukuran partikulat lipase, penambahan ion aktivator, dan waktu penyimpanan lipase. Mula-mula dilakukan dengan kuantifikasi pengaruh masing-masing variabel terhadap derajat lipolisis untuk menyeleksi variabel dengan pengaruh terbesar. Selanjutnya, optimasi dengan *Response Surface Method*. Kinerja lipase getah kembang optimum pada pH 8,25, yaitu mencapai derajat hidrolisis sebesar 74,5% dalam waktu 10 jam.

Untuk meningkatkan efisiensi proses, dilakukan upaya amobilisasi terhadap lipase dari getah kembang. Amobilisasi merupakan proses pemerangkapan enzim pada permukaan atau di dalam matriks penyangga. Teknik ini bertujuan supaya enzim mudah diperoleh kembali di akhir reaksi dan dapat digunakan kembali. Di dalam penelitian ini, dilakukan amobilisasi lipase getah kembang dengan metode adsorpsi (pada penyangga berupa serbuk aseton dedak padi, biji polipropilen, dan biji polietilen) serta metode enkapsulasi (dalam matriks kalsium alginat). Amobilisasi dengan metode adsorpsi, meskipun efektif pada lipase mikrobial yang berwujud cair, tidak efektif dilakukan terhadap lipase partikulat getah kembang. Amobilisasi dengan metode enkapsulasi, meskipun lebih efektif dibandingkan metode adsorpsi, memiliki kelemahan berupa kontaminasi matriks terhadap produk, terutama pada reaktor berpengaduk. Membandingkan kinerja dan ketersediaan lipase bebas (tidak diamobilisasi) dan lipase amobil, bentuk yang direkomendasikan untuk lipase dari partikulat getah kembang adalah lipase bebas.

Tahap terakhir dalam penelitian ini adalah penyusunan model kinetika reaksi lipolisis minyak nabati dengan lipase dari getah kembang. Model kinetika disusun dengan pendekatan konversi satu tahap: model Michaelis-Menten sederhana, model Michaelis-Menten dengan pengaruh luas permukaan emulsi, model Michaelis-Menten dengan pengaruh fraksi volum air, dan model Michaelis-Menten dengan pengaruh inhibisi asam lemak produk. Dengan mempertimbangkan pembentukan digliserida dan monogliserida, disusun juga model kinetika reaksi dengan pendekatan konversi tiga tahap melalui *curve fitting* dengan bantuan perangkat lunak MATLAB® Simulink. Meskipun model-model konversi satu tahap melibatkan faktor tambahan seperti luas permukaan emulsi, jumlah air, dan inhibisi produk, namun model konversi tiga tahap yang disusun lebih sesuai dengan profil pembentukan produk dari data eksperimen. Model ini dapat digunakan untuk memperkirakan konversi reaksi lipolisis pada waktu tertentu, atau dikembangkan lebih lanjut dengan bantuan data jumlah digliserida dan monogliserida selama reaksi berlangsung.

Kata kunci: amobilisasi lipase, asam lemak bebas, getah kembang, hidrolisis minyak nabati, lipase nabati, lipolisis, *Plumeria rubra*.

ABSTRACT

UTILIZATION OF PLANT LIPASE FOR SMALL PRODUCTION SCALE PROCESS OF FATTY ACID

By

Astri Nur Istyami

NIM: 33014003

(Doctoral Program in Chemical Engineering)

Free fatty acid is an important intermediate product in oleochemical industry. Aside from being converted into oil and fats derivatives, fatty acids can also be processed into drop-in biofuel. This kind of biofuel is readily applied in automotive engine without the necessity of blending with fossil fuel. The current fatty acids production technology requires huge amount of energy and causes unwanted side reactions. Triglyceride hydrolysis can alternatively be done with lipase enzyme, a reaction that is also known as lipolysis. This process is potentially more economic than the conventional one because it feasibly operates in mild operating condition and cause less product deterioration. Due to high production cost of microbial lipase, plant seeds and plant latex became a low-cost alternative source of lipase. Activity of several plant lipases have been reported before, but usually they require very high ratio of crude lipase to substrate, very high ratio of organic solvent to substrate, or very long reaction period.

*The general objective of this research is to develop fatty acid production technology in mild condition process with utilization of plant lipase. To obtain process with good feasibility, performance of various plant-based lipases was evaluated. Evaluation was conducted for 16 plant lipases, i.e. physic nut (*Jatropha curcas*), castor seeds (*Ricinus communis*), kapok seeds (*Ceiba pentandra*), wild almond seeds (*Sterculia foetida*), pongam seeds, (*Milletia pinnata*), sea mango seeds (*Cerbera manghas*), red poon seeds (*Calophyllum inophyllum*), roda seeds (*Hura crepitans*), red lucky seed (*Adenanthera pavonina*), rubber seeds (*Hevea brasiliensis*), rice bran (*Oryza sativa*), aveloz latex (*Euphorbia tirucalli*), plumeria latex (*Plumeria sp.*), sea mango latex (*Cerbera manghas*), papaya latex (*Carica papaya*), and jackfruit latex (*Artocarpus heterophyllum*). Among the lipase source evaluated, frangipani latex lipase performed highest degree of lipolysis at low crude lipase content (1%-substrate) and with the absence of organic solvent.*

To enhance process feasibility, variable optimization of lipolysis with frangipani latex was conducted. Evaluated variables were pH, temperature, organic solvents to oil ratio, water to oil ratio, lipase particulate size, activator ion addition, and crude lipase storage period. The effects of each variables were quantified to screen variables with highest impact to degree of hydrolysis. Optimization was then established with Response Surface Method. Performance of frangipani latex lipase

was optimum on pH 8.25, where degree of lipolysis achieved 74.5% in 10 hours reaction.

To increase process efficiency, immobilization was conducted to frangipani latex lipase. Immobilization is enzyme attachment onto a support surface or into a matrix to enable recycling of enzyme. In this research, immobilization of frangipani latex lipase was conducted with adsorption method (onto surfaces of rice bran acetone powder, polypropylene beads and polyethylene beads) and encapsulation method (into calcium alginate matrix). Immobilization with adsorption method, although was effective for liquid microbial enzyme, was proved not to be effective for frangipani latex particulate lipase. Immobilization with encapsulation method, although was more effective than using adsorption method, prone to breaking of matrix which leads to product contamination, especially in stirred tank reactor. Considering performance and availability between free (unimmobilized) lipase and immobilized lipase, lipase in free form was recommended in utilization of frangipani latex lipase.

The last part of this research was kinetic study of plant oil lipolysis using frangipani latex lipase. Based on the assumption that lipolysis was occurred in one-step conversion, several models based on Michaelis-Menten equation were proposed: simple Michaelis-Menten model, Michaelis-Menten model with effect of emulsion area surface, Michaelis-Menten model with effect of water volume fraction, and Michaelis-Menten model with effect of product inhibition. Three-step conversion model was also proposed by considering that lipolysis was involving formation of diglyceride and monoglyceride, using MATLAB® Simulink software. Although the one-step conversion models acknowledge the effects of factors such as emulsion, water amount, and product inhibition, the three-step conversion model demonstrates better fits to experimental data. This model can be applied to estimate the degree of lipolysis with adequate accuracy or extended further to estimate accurately the various kinetic constants involved, if data on concentrations of diglycerides and monoglycerides formed along the reaction are available or measured.

Keywords: frangipani latex, free fatty acids, lipase immobilization, lipolysis, plant lipase, plant oil hydrolysis, Plumeria rubra.