Jurnal Kejuruteraan 38(7) 2026: 3597-3606
https://doi.org/10.17576/jkukm-2026-38(7)-33

# Pengoptimuman Permukaan Tindak Balas bagi Parameter Pengasidan dan Kebolehkitaran Semula Pelarut dalam Penyahpolimeran Plastik Polietilena Tereftalat berasaskan Pelarut Eutektik Dalam (DES)

(Response Surface Optimization of Acidification Parameters and Solvent Recyclability for Deep Eutectic Solvent (DES)-Based Depolymerization of Polyethylene Terephthalate)

Nurasyqin Abdul Fattah[a], Muhammad Adzrin Adlie[a], Muhammad Zulhaziman Mat Salleh[a,b], Khairul Naim Ahmad[a,b], Abdullah Amru Indera Luthfi[a,b]

[a]*Department of Chemical and Process Engineering, Faculty of Engineering and Built Environment, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600 UKM Bangi, Selangor, Malaysia*

[b]*Smart Circular Design (SmaCD) Research Group, Faculty of Engineering and Built Environment, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600 UKM Bangi, Selangor, Malaysia*

[c]*Research Centre for Sustainable Process Technology (CESPRO), Faculty of Engineering and Built Environment, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600 UKM Bangi, Selangor, Malaysia*

[*]*Corresponding author: zulhaziman@ukm.edu.my*

*Received 29 March 2026, Received in revised form 10 July 2026*
*Accepted 10 August 2026, Available online 30 October 2026*

ABSTRACT

*In the context of polyethylene terephthalate (PET) depolymerization, growing attention has been directed toward the use of alternative capable of functioning as both solvent and catalyst. These dual-function systems offer notable advantages, including reduced energy requirements, simplified processing, and enhanced sustainability. From a process optimization perspective, three key stages govern overall energy and material efficiency: (i) PET depolymerization, (ii) the subsequent acidification step for the recovery of terephthalic acid (TPA), and (iii) solvent recovery for reuse in subsequent depolymerization cycles. The depolymerization step has been widely studied, however, the latter two stages remain underexplored. To enhance process sustainability, the acidification stage was optimized by minimizing acid and water consumption while maintaining high product quality. A Box–Behnken Design (BBD) within the framework of Response Surface Methodology (RSM) was employed to optimize key parameters, including acid volume, acid concentration, and water content for dilution. Model predictions using tetrabutylammonium bromide and sulfolane-based DES suggested that 13 mL of water, 2.5 mL of HCl, and 36 wt% acid concentration would yield 79.7% TPA, while laboratory validation achieved 83.0%, corresponding to a mean error of 4.1%. In terms of solvent recovery, the DES was successfully reused for up to three consecutive cycles without significant structural degradation or loss of solvolytic performance. The recovered TPA is a high-value monomer with broad market potential, and Fourier Transform Infrared (FT-IR) spectroscopy analysis confirms its quality as comparable to that of virgin material. This enhances its appeal for supporting a circular and sustainable plastics economy.*

*Keywords: Depolymerization; polyethylene terephthalate; acidification; monomer recovery; circularity*

ABSTRAK

*Dalam konteks penyahpolimeran polietilena tereftalat (PET), penggunaan pelarut alternatif yang mampu berfungsi serentak sebagai pelarut dan mangkin semakin mendapat perhatian. Sistem dwifungsi ini menawarkan pelbagai kelebihan, termasuk pengurangan keperluan tenaga, penyederhanaan proses operasi serta peningkatan kelestarian proses. Dari perspektif pengoptimuman proses, terdapat tiga peringkat utama yang menentukan kecekapan penggunaan tenaga dan bahan, iaitu (i) penyahpolimeran PET, (ii) proses pengasidan untuk pemulihan asid tereftalik (TPA), dan*

*(iii) pemulihan pelarut bagi tujuan penggunaan semula dalam kitaran penyahpolimeran berikutnya. Walaupun peringkat penyahpolimeran telah banyak dikaji, aspek pengasidan dan pemulihan pelarut masih kurang diberi perhatian. Oleh itu, kajian ini memberi tumpuan kepada pengoptimuman proses pengasidan dengan objektif mengurangkan penggunaan asid dan air tanpa menjejaskan kualiti produk yang dihasilkan. Kaedah Reka Bentuk Box–Behnken (BBD) di bawah kerangka Metodologi Permukaan Tindak Balas (RSM) telah digunakan untuk mengoptimumkan parameter yang mempengaruhi pemulihan TPA, iaitu isipadu asid, kepekatan asid dan kandungan air untuk pencairan. Berdasarkan model yang dibangunkan, keadaan optimum yang diramalkan menggunakan DES berasaskan tetrabutilamonium bromida dan sulfolana ialah 13 mL air, 2.5 mL HCl dan kepekatan HCl sebanyak 36% berat, dengan hasil TPA sebanyak 79.7%. Eksperimen pengesahan yang dijalankan pada skala makmal berjaya mencapai kadar pemulihan TPA sebanyak 83.0%, bersamaan dengan ralat mutlak 4.1%. Dari aspek pemulihan, DES berjaya digunakan semula sehingga tiga kitaran tanpa menunjukkan penurunan prestasi penyahpolimeran yang ketara. TPA yang berjaya dipulihkan merupakan monomer bernilai tinggi dengan potensi pasaran yang luas, manakala analisis Spektrum Spektroskopi Inframerah Transformasi Fourier (FT-IR) mengesahkan bahawa kualiti monomer yang dihasilkan adalah setanding dengan TPA tulen*

*Kata kunci: Penyahpolimeran; polietilena tereftalat (PET); pengasidan; pemulihan monomer; ekonomi kitaran*

## PENGENALAN

Pencemaran plastik kini menjadi salah satu isu alam sekitar global yang semakin membimbangkan, dengan polietilena tereftalat (PET) merupakan antara termoplastik yang paling banyak dihasilkan dan digunakan di seluruh dunia. PET dihasilkan melalui proses pempolimeran kondensasi antara asid tereftalik (TPA) dan etilena glikol (EG). Bahan ini mendapat perhatian meluas dalam pelbagai aplikasi industri kerana mempunyai ketahanan mekanikal yang tinggi, berat yang ringan, rintangan kimia yang baik serta ketelusan optik yang sangat baik. Namun, penggunaan berlebihan menimbulkan cabaran besar terhadap kelestarian alam sekitar kerana bahan ini sukar terurai secara semula jadi dan boleh kekal dalam persekitaran selama beberapa dekad (Geyer et al. 2017; Sinha et al. 2010).

Kitar semula plastik merupakan antara pendekatan pengurusan sisa yang paling meluas diamalkan di seluruh dunia (Shrivastava 2018) kerana kematangan teknologinya, ketersediaan infrastruktur pemprosesan, serta tahap kesedaran awam yang semakin meningkat. Bagi plastik berasaskan PET, kaedah yang paling lazim digunakan ialah kitar semula mekanikal kerana kos operasinya yang lebih rendah dan daya maju ekonomi yang baik (Mwanza 2021). Walau bagaimanapun, kitar semula mekanikal mempunyai beberapa kekangan, termasuk kemerosotan sifat bahan selepas beberapa kitaran pemprosesan (Ragaert et al. 2017). Oleh itu, kitar semula kimia melalui proses penyahpolimeran telah muncul sebagai alternatif yang berpotensi untuk memulihkan PET kepada monomer asalnya dan menghasilkan produk bernilai tinggi (Abedsoltan 2023).

Dalam proses penyahpolimeran PET, kaedah hidrolisis dianggap sebagai salah satu pendekatan yang paling berpotensi kerana ia menghasilkan secara langsung monomer utama pembentuk PET, iaitu TPA dan EG (Geyer et al. 2016). Sebaliknya, kaedah penyahpolimeran lain seperti glikolisis dan metanolisis lazimnya menghasilkan produk perantaraan (Babaei et al. 2024). Hal ini boleh mengehadkan aplikasi dan nilai komersial produk yang dihasilkan. Walau bagaimanapun, salah satu cabaran utama dalam proses hidrolisis ialah keperluan penggunaan asid pada peringkat pemendakan bagi menukarkan garam tereftalat yang terbentuk kepada TPA tulen, yang boleh meningkatkan penggunaan bahan kimia serta impak alam sekitar proses tersebut.

Pada masa kini, pelarut eutektik dalam (DES) semakin mendapat perhatian sebagai alternatif yang lebih lestari kepada pelarut dan mangkin konvensional. DES terbentuk melalui gabungan penerima ikatan hidrogen (HBA) dan penderma ikatan hidrogen (HBD), menghasilkan campuran eutektik yang mempunyai takat lebur jauh lebih rendah berbanding komponen penyusunnya (Smith et al. 2014). DES mempunyai kelebihan utama iaitu kebolehsuaian mengikut keperluan proses kimia tertentu di samping memerlukan kos penyediaan yang rendah (Zhang et al. 2012). Selain itu, DES juga berpotensi untuk dikitar semula dan digunakan semula dalam beberapa kitaran tindak balas, sekali gus mengurangkan penghasilan sisa sekunder serta kos operasi proses (Vigier et al. 2015).

Walaupun mempunyai pelbagai kelebihan, penggunaan DES dalam penyahpolimeran PET masih merupakan bidang penyelidikan yang aktif, khususnya berkaitan pengoptimuman parameter proses pengasidan. Kebanyakan kajian terdahulu lebih menumpukan kepada kehilangan berat PET sebagai petunjuk keberkesanan proses (Paparella et al. 2023). Sehubungan itu, kajian ini dijalankan untuk menilai keberkesanan DES yang terdiri daripada tetrabutilamonium bromida (TBABr) dan sulfolana (Sulf) dalam proses penyahpolimeran hidrolitik PET. Kaedah Reka Bentuk Box-Behnken (BBD) di bawah Pendekatan Metodologi Permukaan Tindak Balas (RSM) digunakan bagi mengoptimumkan parameter-parameter penting yang mempengaruhi pemulihan TPA. Di samping itu,

kebolehkitar semula DES turut dinilai melalui beberapa kitaran tindak balas bagi menentukan potensi penggunaannya dalam jangka masa panjang serta aspek kelestarian proses.

Kajian ini selaras dengan Matlamat Pembangunan Mampan Pertubuhan Bangsa-Bangsa Bersatu (SDG), khususnya SDG 12 yang menekankan penggunaan dan pengeluaran yang bertanggungjawab. Dengan memberi tumpuan kepada pembangunan kaedah kitar semula kimia PET yang berpotensi meningkatkan pemulihan sumber dan menyokong ekonomi kitaran, kajian ini diharapkan dapat menyumbang kepada amalan pengurusan sisa plastik yang lebih lestari.

## BAHAN DAN KAEDAH KAJIAN

### BAHAN-BAHAN

Bagi penilaian menggunakan sampel pasca-penggunaan, botol plastik PET telah dikumpulkan daripada tong-tong kitar semula. Botol-botol tersebut dibasuh dengan teliti, label ditanggalkan, dan dikeringkan sebelum dipotong menjadi kepingan kecil berukuran lebih kurang 1 cm × 1 cm.

Komponen DES termasuk TBABr, 99% dan Sulf, 99% telah diperoleh daripada Sigma-Aldrich (St. Louis, MO, USA). Bahan kimia yang digunakan untuk proses hidrolisis dan pemendakan kepada TPA termasuk natrium hidroksida (NaOH, 98%) dan asid hidroklorik (HCl, 37%) masing-masing diperoleh daripada Chemiz (Shah Alam, Selangor, Malaysia) dan RM Chemicals (Mississauga, ON, Canada). Akhir sekali, bagi pencirian TPA kitar semula, asid tereftalik tulen (TPA, 99%) yang digunakan sebagai perbandingan telah dibeli daripada Chemiz (Malaysia). Semua bahan kimia ini digunakan tanpa sebarang penulenan tambahan.

### KAEDAH PENYEDIAAN DES

DES disediakan dengan mencampurkan TBABr sebagai HBA dan sulfolana sebagai HBD pada nisbah molar 1:7. Campuran tersebut dipanaskan pada suhu 90°C sambil dikacau pada kadar 100 rpm sehingga menghasilkan campuran homogen. DES yang terhasil kemudiannya disimpan di dalam bekas kedap udara pada suhu bilik bagi mengelakkan degradasi atau pencemaran sebelum digunakan dalam eksperimen seterusnya.

### REKA BENTUK EKSPERIMEN MENGGUNAKAN REKA BENTUK BOX-BEHNKEN (BBD)

BBD telah digunakan bagi mengoptimumkan proses penyahpolimeran PET menggunakan TBABr dan Sulf. Kaedah BBD dipilih kerana keupayaannya untuk menilai interaksi antara pemboleh ubah dengan bilangan eksperimen yang lebih rendah berbanding reka bentuk eksperimen lain. Tiga pemboleh ubah bebas telah dikaji, iaitu isipadu air suling yang digunakan untuk melarutkan produk disodium tereftalat yang terhasil selepas proses penyahpolimeran, isipadu HCl, dan kepekatan HCl. Julat bagi setiap parameter ditentukan berdasarkan kajian awal (Abdul Fattah et al. 2025; Attallah et al. 2021; Rollo et al. 2023).

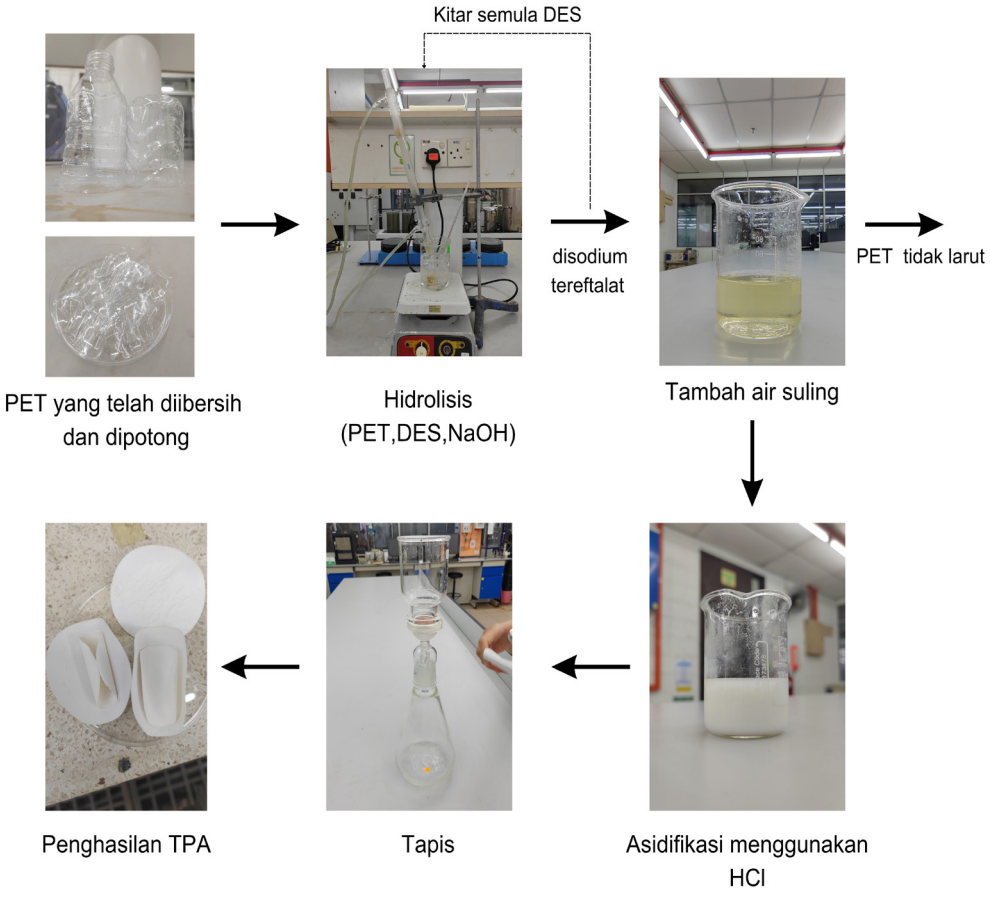
Reka bentuk eksperimen yang dibangunkan merangkumi beberapa larian eksperimen dengan tiga ulangan titik pusat bagi meningkatkan kebolehpercayaan data serta keteguhan model statistik yang dibangunkan. Kecekapan proses dinilai berdasarkan peratus pemulihan TPA yang diperoleh selepas proses penyahpolimeran. Pemilihan parameter tindak balas yang digunakan dalam model BBD diperincikan dalam Jadual 1.

JADUAL 1. Parameter tindak balas bagi proses pengasidan

| Larian | A-Isipadu air suling (mL) | B-Isipadu HCl (mL) | C-Kepekatan HCl (wt%) |
|---|---|---|---|
| 1 | 30 | 1 | 27 |
| 2 | 10 | 1 | 27 |
| 3 | 20 | 1 | 17 |
| 4 | 30 | 2 | 17 |
| 5 | 20 | 2 | 27 |
| 6 | 20 | 1 | 37 |
| 7 | 30 | 3 | 27 |
| 8 | 10 | 2 | 17 |
| 9 | 20 | 3 | 37 |
| 10 | 20 | 3 | 17 |
| 11 | 10 | 2 | 37 |
| 12 | 10 | 3 | 27 |
| 13 | 20 | 2 | 27 |
| 14 | 30 | 2 | 37 |
| 15 | 20 | 2 | 27 |

PENYAHPOLIMERAN DAN PEMULIHAN TPA

Aliran kerja eksperimen bagi proses hidrolisis, pengasidan dan kitar semula DES ditunjukkan dalam Rajah 1. Penyahpolimeran PET dilakukan menggunakan parameter awal yang diadaptasi daripada kajian terdahulu (Abdul Fattah et al. 2025). Campuran DES dan NaOH dipanaskan kepada suhu yang ditetapkan, diikuti dengan penambahan 0.6 g sampel PET yang diperoleh daripada botol minuman terpakai. Tindak balas kemudiannya dijalankan menggunakan plat pemanas yang dilengkapi dengan pengacau magnet pada suhu 130°C selama 40 minit.




RAJAH 1. Aliran kerja eksperimen bagi proses penyahpolimeran, pengasidan dan kitar semula DES

Selepas tindak balas selesai, reaksi dihentikan dengan meletakkan campuran dibawah air sejuk sebelum air suling ditambah mengikut isipadu yang telah ditetapkan oleh reka bentuk BBD. Penambahan air suling menyebabkan pemendakan baki PET yang tidak larut, sekali gus memudahkan pengasingan antara monomer dan sisa pepejal. Endapan yang terbentuk kemudiannya dituras dan disimpan untuk analisis lanjut.

Bagi proses pemendakan TPA, filtrat yang mengandungi disodium tereftalat hasil tindak balas penyahpolimeran dengan NaOH diasidkan menggunakan larutan HCl. Isipadu dan kepekatan HCl yang digunakan ditentukan berdasarkan reka bentuk eksperimen BBD. Tindak balas ini menghasilkan pemendakan TPA dalam bentuk pepejal putih.

Endapan tersebut dituras menggunakan sistem penuras vakum, dibasuh beberapa kali dengan air suling bagi menyingkirkan bendasing, dan dikeringkan pada suhu 60°C semalaman. TPA yang telah dikeringkan kemudiannya disimpan untuk analisis lanjut bagi menentukan tahap penukaran PET dan ketulenan produk yang diperoleh. Peratus penukaran PET dikira menggunakan Persamaan (1):

$$\text{Penukaran PET (\%)} = \frac{W_1 - W_2}{W_1} \times 100 \quad (1)$$

Di mana $W_1$ adalah berat awal PET yang digunakan untuk proses penyahpolimeran dan $W_2$ adalah berat PET selepas proses penyahpolimeran.

Peratus hasil TPA yang terhasil selepas proses pengasidan menggunakan HCl pula dikira menggunakan Persamaan (2):

$$\text{Hasil TPA (\%)} = \frac{\text{Berat TPA}}{\text{Berat teoritikal TPA}} \times 100\% \quad (2)$$

Dimana berat TPA adalah jumlah TPA yang dihasilkan selepas proses asidifikasi dan berat teoritikal TPA adalah berat maksimum yang boleh dihasilkan secara teori daripada peratus penukaran PET.

## PENGOPTIMUMAN, PENGESAHAN DAN KEBOLEHKITAR SEMULA DES

Selepas setiap larian eksperimen selesai dijalankan, data yang diperoleh termasuk peratus penukaran PET dan hasil pemulihan TPA direkodkan dan dianalisis menggunakan perisian Design-Expert (versi 12, Stat-Ease Inc., Minneapolis, MN). Analisis statistik ini digunakan bagi membangunkan model ramalan, mengenal pasti interaksi signifikan antara pemboleh ubah, serta menentukan keadaan optimum bagi proses penyahpolimeran PET.

Model yang dibangunkan kemudiannya digunakan untuk meramalkan parameter optimum yang mampu menghasilkan penukaran PET dan hasil TPA yang maksimum. Bagi mengesahkan ketepatan model tersebut, eksperimen pengesahan dijalankan di bawah keadaan optimum yang diramalkan. Prosedur eksperimen yang sama seperti proses penyahpolimeran dan pemulihan TPA digunakan. Keselarasan antara keputusan eksperimen dan nilai yang diramalkan oleh model dapat menunjukkan bahawa model yang dibangunkan mempunyai kebolehpercayaan dan keteguhan yang tinggi.

Kebolehkitar semula DES dinilai melalui penggunaan semula pelarut tersebut dalam beberapa kitaran penyahpolimeran berturut-turut. Selepas setiap tindak balas, DES dipisahkan menggunakan corong pemisah. DES yang diperoleh digunakan semula tanpa sebarang pengubahsuaian terhadap komposisinya. Beberapa kitaran penggunaan semula dijalankan dan prestasi setiap kitaran dinilai berdasarkan peratus penukaran PET yang dicapai.

Sebarang penurunan prestasi DES sepanjang kitaran penggunaan semula direkodkan bagi menilai kestabilan jangka panjang serta potensi ekonomi DES sebagai mangkin hijau dalam proses penyahpolimeran PET. Bagi mengukur prestasi DES selepas setiap kitaran penggunaan semula, kecekapan relatif dikira berdasarkan peratusan degradasi PET yang dicapai berbanding penggunaan awal. Pengiraan tersebut dinyatakan dalam Persamaan (3):

$$\text{DES (r)} = \frac{W_1 - W_2\,(\text{n})}{W_1 - W_2\,(\text{i})} \times 100 \quad (3)$$

Di mana DES (r) merujuk kepada kecekapan relatif DES yang dikitar semula selepas larian ke-n, n ialah bilangan kitaran penyahpolimeran yang dijalankan, manakala i merupakan peratus penurunan berat PET yang diperoleh pada kitaran pertama.

# KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN

## PENGOPTIMUMAN PROSES PENGASIDAN SELEPAS PENYAHPOLIMERAN PET MENGGUNAKAN BBD

Bagi mengoptimumkan proses penyahpolimeran PET menggunakan DES TBABr/Sulf, reka bentuk BBD, tiga faktor tiga aras telah digunakan. Parameter yang dipilih ialah isipadu air, isipadu HCl, dan kepekatan HCl, manakala respons yang diukur ialah peratus pemulihan TPA. Hasil pemulihan TPA yang diperoleh daripada setiap eksperimen diringkaskan dalam Jadual 2 di bawah.

JADUAL 2. Peratus (%) pemulihan TPA

| Larian | Pemulihan TPA (%) |
|---|---|
| 1 | 20.55 |
| 2 | 34.2 |
| 3 | 16.8 |
| 4 | 60.7 |
| 5 | 76 |
| 6 | 46.5 |
| 7 | 69.2 |
| 8 | 61.3 |
| 9 | 70.6 |
| 10 | 67 |
| 11 | 73.8 |
| 12 | 77.3 |
| 13 | 67 |
| 14 | 70 |
| 15 | 71 |

Analisis regresi menunjukkan bahawa model kuadratik yang dibangunkan adalah signifikan secara statistik dengan nilai $p$ sebanyak 0.0052 dan nilai pekali penentuan ($R^2$) sebanyak 0.976. Nilai $R^2$ terlaras dan $R^2$ ramalan masing-masing adalah 0.9327 dan 0.7167. Perbezaan antara nilai $R^2$ terlaras dan $R^2$ ramalan melebihi 0.20 menunjukkan bahawa pengurangan model perlu dipertimbangkan bagi meningkatkan ketepatan ramalan model. Dalam kajian ini, perbezaan nilai ini dikaitkan dengan kemasukan faktor isipadu air suling dalam model, yang didapati tidak memberikan kesan ketara secara statistik terhadap pemulihan TPA. Walaupun penghapusan faktor ini berpotensi meningkatkan parameter statistik model, faktor tersebut dikekalkan bagi menunjukkan pengaruh sebenar isipadu air terhadap proses pengasidan secara menyeluruh.

Selain itu, ujian ketidakpadanan model didapati tidak signifikan ($p$ = 0.422), menunjukkan bahawa model ini mempunyai keupayaan yang baik untuk menerangkan hubungan antara pemboleh ubah eksperimen dan hasil yang

diperoleh. Ringkasan analisis statistik bagi proses pemulihan TPA dirumuskan dalam Jadual 3.

JADUAL 3. Analisis statistik bagi proses pemulihan TPA dalam proses pengasidan

| Ringkasan padanan model | | | | |
|---|---|---|---|---|
| Model | Nilai-P | Ketidak padanan Nilai-P | $R^2$ terlaras | $R^2$ ramalan |
| Linear | 0.0027 | 0.1089 | 0.6305 | 0.4705 |
| 2FI | 0.7980 | 0.0831 | 0.5492 | 0.0161 |
| Kuadratik | 0.0052 | 0.4216 | 0.9327 | 0.7167 |
| Kubik | 0.4216 | | 0.9486 | |
| **Ringkasan model yang dipilih** | | | | |
| | Jumlah kuasa dua | Min kuasa dua | Nilai-F | Nilai-P |
| Model | 5385.13 | 598.35 | 22.57 | 0.0016 |
| A | 86.09 | 86.09 | 3.25 | 0.1314 |
| B | 3451.75 | 3451.75 | 130.21 | < 0.0001 |
| C | 377.81 | 377.81 | 14.25 | 0.0130 |
| AB | 7.66 | 7.66 | 0.2889 | 0.6140 |
| AC | 2.63 | 2.63 | 0.0993 | 0.7654 |
| BC | 170.36 | 170.36 | 6.43 | 0.0522 |
| $A^2$ | 21.05 | 21.05 | 0.7940 | 0.4137 |
| $B^2$ | 1281.76 | 1281.76 | 48.35 | 0.0009 |
| $C^2$ | 22.99 | 22.99 | 0.8672 | 0.3945 |
| **Statistik kesesuaian model** | | | | |
| Sisihan piawai | 5.15 | | | |
| Min | 58.80 | | | |
| Pekali variasi (%) | 8.76 | | | |
| Kejituan mencukupi | 14.6 | | | |

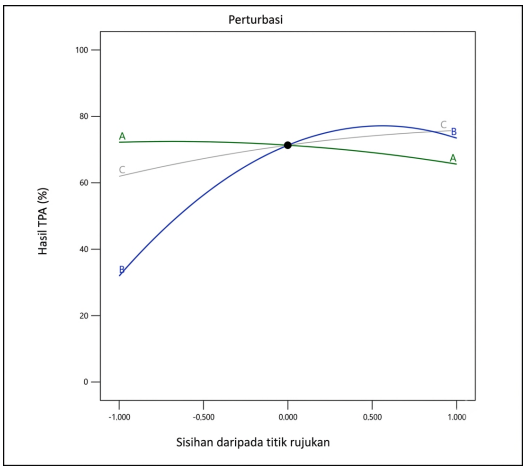
## KESAN FAKTOR INDIVIDU DAN INTERAKSI FAKTOR TERHADAP PEMULIHAN TPA

Kaedah BBD melalui perisian Design-Expert telah digunakan bagi membina hubungan antara peratus TPA yang terhasil dengan parameter operasi yang terlibat serta menentukan keadaan optimum bagi prestasi proses. Hasil analisis regresi menghasilkan model kuadratik yang menggambarkan hubungan antara tindak balas dengan faktor-faktor proses yang dikaji. Model regresi kuadratik yang diperoleh ditunjukkan dalam Persamaan (4):

$$\text{Pemulihan TPA (\%)} = 71.34 - 3.28A + 20.77B + 6.87C + 1.38AB - 0.8111AC - 6.53BC - 2.39A^2 - 18.63B^2 - 2.50C^2 \quad (4)$$

Di mana A menunjukkan isipadu air suling (mL), B ialah isipadu HCl (mL) dan C ialah kepekatan HCl (wt%).

Analisis seterusnya menggunakan kaedah RSM menghasilkan plot perturbasi. Lengkung tindak balas satu faktor yang ditunjukkan dalam Rajah 2 menunjukkan bahawa isipadu HCl (B) memberikan kesan positif yang paling ketara terhadap pemulihan TPA. Sebaliknya, isipadu air suling (A) hanya memberikan kesan yang kecil dalam julat parameter yang dikaji. Kepekatan HCl (C) pula menunjukkan peningkatan hasil yang sederhana dan menghampiri keadaan tepu pada kepekatan yang lebih tinggi.

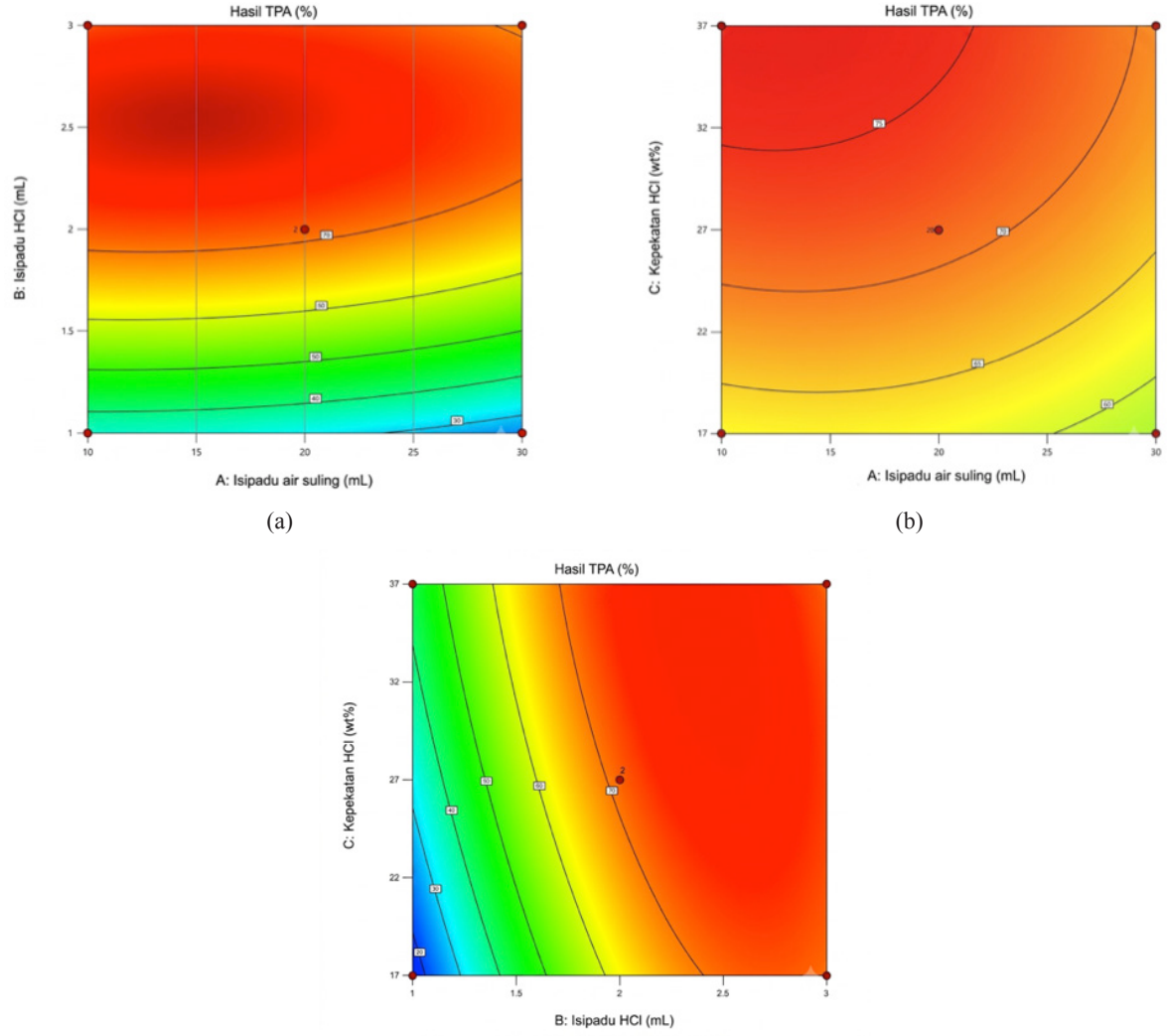



RAJAH 2. Plot perturbasi bagi isipadu air suling (A), isipadu HCl (B) dan kepekatan HCl (C).

Analisis plot permukaan tindak balas memberikan gambaran yang lebih jelas tentang interaksi antara parameter proses yang mempengaruhi pemulihan TPA, seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 3. Bagi interaksi antara isipadu air suling dan isipadu HCl, peningkatan isipadu HCl daripada 1.0 mL kepada kira-kira 2.5 mL didapati meningkatkan hasil TPA dengan ketara. Fenomena ini boleh dikaitkan dengan peningkatan kepekatan ion hidrogen yang mempercepatkan proses hidrolisis ikatan ester dalam struktur PET.

Walau bagaimanapun, apabila isipadu air suling melebihi 25 mL, hasil TPA mula menunjukkan trend mendatar atau menurun. Keadaan ini berkemungkinan disebabkan oleh pencairan spesies aktif dalam medium tindak balas yang seterusnya mengurangkan kecekapan pemangkinan DES dan memperlahankan kinetik tindak balas. Bagi interaksi antara isipadu air suling dan kepekatan HCl, garisan kontur yang hampir selari menunjukkan bahawa perubahan isipadu air memberikan kesan yang rendah terhadap hasil TPA apabila kepekatan HCl diubah. Ini menunjukkan bahawa interaksi antara kedua-dua parameter tersebut adalah lemah dan air bertindak terutamanya sebagai medium tindak balas tanpa mempengaruhi secara signifikan kekuatan asid dalam proses penyahpolimeran.

Sebaliknya, interaksi antara isipadu HCl dan kepekatan HCl menunjukkan garisan kontur yang tidak selari, menandakan kewujudan kesan sinergistik yang kuat. Peningkatan kepekatan HCl menguatkan lagi kesan peningkatan isipadu HCl, sekali gus meningkatkan kepekatan proton dalam medium tindak balas dan mempercepatkan proses penyahpolimeran PET. Interaksi sinergistik ini membolehkan kadar pemulihan TPA melebihi 75%, menunjukkan bahawa gabungan isipadu dan kepekatan HCl yang tinggi adalah lebih berkesan berbanding peningkatan salah satu parameter sahaja. Secara keseluruhannya, keputusan ini menunjukkan bahawa parameter bagi proses pengasidan memainkan peranan penting dalam menentukan pemulihan TPA dan perlu dioptimumkan bagi mencapai pemulihan monomer maksimum.




RAJAH 3. Plot kontur bagi interaksi antara: (a) isipadu air suling dan isipadu HCl; (b) isipadu air suling dan kepekatan HCl; serta (c) isipadu HCl dan kepekatan HCl.

## KEADAAN OPTIMUM DAN PENGESAHAN MODEL

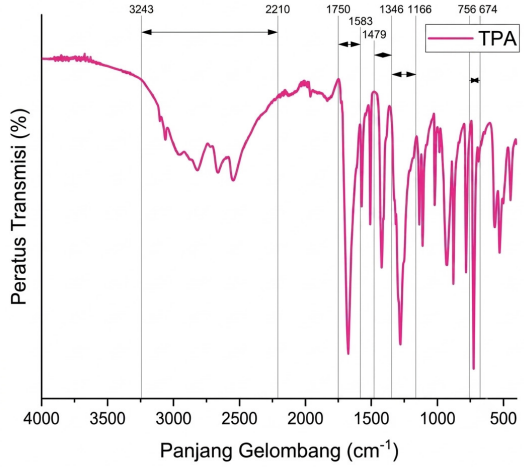
Pengoptimuman telah dijalankan dengan objektif untuk memaksimumkan hasil pemulihan TPA. Berdasarkan model yang dibangunkan, keadaan optimum yang dicadangkan ialah 12.9 mL air suling, 2.46 mL HCl dan 36.2% berat HCl, dengan hasil TPA yang diramalkan sebanyak 79.7%.

Bagi mengesahkan ketepatan model tersebut, eksperimen pengesahan telah dijalankan di bawah keadaan optimum yang diramalkan. Hasil eksperimen menunjukkan pemulihan TPA sebanyak 83.0%, menghasilkan ralat mutlak purata sebanyak 4.1%, iaitu dalam julat variasi yang

boleh diterima. Keputusan ini mengesahkan ketepatan model kuadratik yang dibangunkan serta keberkesanan DES sebagai mangkin dalam keadaan operasi yang sederhana.

## PENCIRIAN TPA

Spektrum Spektroskopi Inframerah Transformasi Fourier (FT-IR) bagi pepejal yang berjaya dipisahkan, seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 4, memperlihatkan jalur serapan utama TPA. Jalur regangan O–H yang lebar diperhatikan dalam julat 2210–3243 $cm^{-1}$, manakala jalur regangan karbonil (C=O) yang kuat dikesan dalam julat 1583–1750 $cm^{-1}$. Selain itu, jalur lenturan luar satah bagi ikatan aromatik C–H turut diperhatikan pada julat 674–756 $cm^{-1}$.



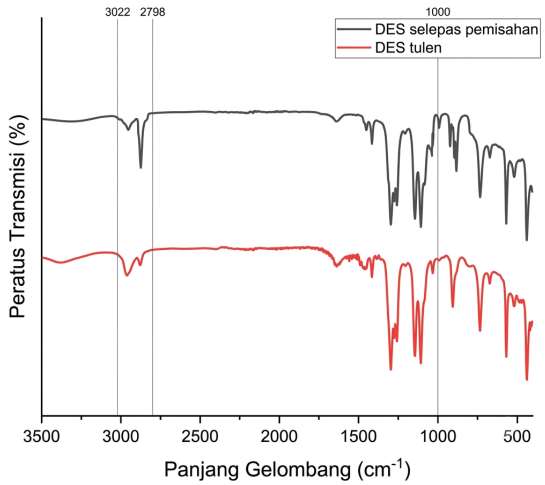

RAJAH 4. Pencirian TPA melalui analisis FT-IR

## KEBOLEHKITAR SEMULA DES

Kebolehkitar semula DES telah dinilai melalui tiga kitaran penggunaan semula berturut-turut. Keputusan menunjukkan bahawa peratus kehilangan berat PET menurun secara beransur-ansur daripada 95.21% bagi DES segar kepada 93.32%, 92.12% dan 88.76% bagi kitaran kedua, ketiga dan keempat. Nilai ini bersamaan dengan kecekapan relatif masing-masing sebanyak 100%, 98.01%, 96.75% dan 93.37%.

Walaupun berlaku sedikit penurunan prestasi, DES masih mengekalkan lebih daripada 93% kecekapan selepas tiga kitaran penggunaan semula. Jadual 4 turut menunjukkan bahawa sejumlah DES baru perlu ditambah pada setiap kitaran bagi mengekalkan prestasi sistem, sekali gus menunjukkan kebergantungan proses terhadap penambahan pelarut baharu.

Analisis FT-IR terhadap DES selepas tindak balas, seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 5, hanya menunjukkan perubahan kecil pada kawasan serapan O–H yang luas dan sedikit peralihan dalam kawasan cap jari. Pemerhatian ini menunjukkan bahawa hanya sedikit komponen mengalami pelarutan separa atau degradasi tanpa menjejaskan struktur keseluruhan DES secara ketara.




RAJAH 5. Perbandingan spektrum FT-IR antara DES asal dan DES selepas tindak balas

Satu puncak baharu pada 2798 $cm^{-1}$ turut dikesan dalam spektrum DES selepas tindak balas, yang tidak ada pada DES asal. Puncak ini dikaitkan dengan getaran regangan C–H yang lazimnya dikaitkan dengan aldehid alifatik atau hasil sampingan organik yang mengandungi karbon. Kehadiran puncak ini menunjukkan bahawa sejumlah kecil fragmen organik hasil penyahpolimeran PET telah diserap ke dalam fasa DES. Walaupun begitu, keamatan puncak tersebut adalah rendah dan tidak menjejaskan kestabilan struktur DES secara keseluruhan. Oleh itu, DES masih boleh digunakan semula sehingga tiga kitaran sebelum penambahan pelarut baharu bagi mengekalkan prestasi optimum. Seterusnya, Jadual 5 merumuskan perbandingan dengan kajian terdahulu dari aspek pemulihan TPA, keadaan operasi, serta kebolehkitaran semula DES.

JADUAL 4. Kecekapan relative DES yang dikitar semula

| Larian hidrolisis | Larian menggunakan DES yang dikitar semula | Komponen DES segar dari jumlah DES (%) | Kehilangan berat PET (%) | Kecekapan relatif (%) |
|---|---|---|---|---|
| 1 (DES tulen) | - | 100 | 95.21 | 100 |
| 2 | 1 | 35.16 | 93.32 | 98.01 |
| 3 | 2 | 32.32 | 92.12 | 96.75 |
| 4 | 3 | 39.02 | 88.76 | 93.37 |

JADUAL 5. Rumusan kajian

| Parameter hidrolisis | DES yang digunakan | Pemulihan TPA (%) | Penggunaan semula DES | Pengoptimuman pengasidan | Rujukan |
|---|---|---|---|---|---|
| 130 °C, 2 jam, HCl 37wt% | Ferric chloride/lactic acid | 94.3 | Tiada | Tiada | (He et al. 2025) |
| 100 °C, 1 jam, air suling 20mL, 2mL HCl, 37wt%, NaOH 1M | Ferric chloride hexahydrate/ p-toluene sulfonic acid | 88.6 | Penambahan PET secara berperingkat | Tiada | (Rollo et al. 2023) |
| 100 °C, 1 jam, air suling 20 mL, 2mL HCl, 37wt%, NaOH 1M | Ferric chloride hexahydrate/ methanesulfonic acid | 96.4 | Penambahan PET secara berperingkat | Tiada | (Rollo et al. 2023) |
| 350W (kuasa gelombang mikro), 90 saat, air suling 35mL, 2mL HCl, 34wt% | Choline chloride/m-cresol | 85 | Tiada | Tiada | (Attallah et al. 2021) |
| NaOH 10wt% | | | | | |
| 130 °C, 40 minit, 13mL air, 2.5mL HCl, 36wt%, NaOH 5.0wt% | TBABr/Sulf | 80 | 3 kitaran | BBD | Kajian ini |

## KESIMPULAN

DES berasaskan TBABr dan Sulf telah berjaya sebagai system pelarut mangkin hijau yang berkesan untuk proses penyahpolimeran hidrolitik PET. Di bawah keadaan optimum yang ditentukan melalui reka bentuk BBD, iaitu sekitar 13 mL air, 2.5 mL HCl dan 36% berat HCl, sistem DES ini berjaya menghasikan pemulihan TPA berketulenan tinggi melebihi 80% pada tekanan atmosfera dan suhu yang sederhana. Selain itu, DES mengekalkan lebih daripada 93% aktiviti pemangkinannya selepas tiga kitaran penggunaan semula, sekali gus membuktikan kestabilan kimia dan potensinya untuk diaplikasikan dalam konsep ekonomi kitaran. Walau bagaimanapun, proses yang dibangunkan masih memerlukan langkah pemendakan menggunakan HCl bagi mendapatkan TPA, dan menunjukkan sedikit penurunan prestasi selepas kitaran penggunaan semula ketiga. Oleh itu, kajian lanjutan perlu memberi tumpuan kepada pembangunan kaedah pemurnian DES yang lebih berkesan serta penggunaan sumber asid yang lebih lestari dan mesra alam.

## PENGHARGAAN

Penulis merakamkan setinggi-tinggi penghargaan kepada Universiti Kebangsaan Malaysia (UKM) atas pembiayaan penyelidikan ini melalui Geran Universiti Penyelidikan (GUP), dengan nombor geran GUP-2024-074. Penghargaan juga ditujukan kepada Kementerian Pendidikan Tinggi Malaysia menerusi sokongan penyelidikan di bawah skim Fundamental Research Grant Scheme (FRGS) dengan nombor geran FRGS/1/2023/TK05/UKM/02/5.

## PENGISYTIHARAN KEPENTINGAN BERSAING

Tiada.

## RUJUKAN


Abdul Fattah, N., Mat Salleh, M.Z., Yuhana, N.Y., Dambatta, Y.S. & Hadj-Kali, M.K. 2025. Polyethylene terephthalate hydrolysis catalyzed by deep eutectic solvents: COSMO-RS screening and experimental validation. *Catalysts* 15(12): 1154. https://doi.org/10.3390/catal15121154

Abedsoltan, H. 2023. A focused review on recycling and hydrolysis techniques of polyethylene terephthalate. *Polymer Engineering & Science* 63(9): 2651–2674. https://doi.org/10.1002/pen.26406

Attallah, O.A., Janssens, A., Azeem, M. & Fournet, M.B. 2021. Fast, high monomer yield from post-consumer polyethylene terephthalate via combined microwave and deep eutectic solvent hydrolytic depolymerization. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering* 9(50): 17174–17185. https://doi.org/10.1021/acssuschemeng.1c07159

Babaei, M., Jalilian, M. & Shahbaz, K. 2024. Chemical recycling of polyethylene terephthalate: A mini-review. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 12(3): 112507. https://doi.org/10.1016/j.jece.2024.112507

Geyer, B., Lorenz, G. & Kandelbauer, A. 2016. Recycling of poly(ethylene terephthalate)—A review focusing on chemical methods. *eXPRESS Polymer Letters* 10(7): 559–586. https://doi.org/10.3144/expresspolymlett.2016.53

Geyer, R., Jambeck, J.R. & Law, K.L. 2017. Production, use, and fate of all plastics ever made. *Science Advances* 3(7): e1700782. https://doi.org/10.1126/sciadv.1700782

He, Y., Li, X. & Liu, Y. 2025. Depolymerization of polyethylene terephthalate at ultrahigh solid-loading of 50 wt% via $FeCl_3$/lactic acid deep eutectic solvent. *Journal of Environmental Chemical Engineering*: 118221. https://doi.org/10.1016/j.jece.2025.118221

Mwanza, B.G. 2021. Introduction to recycling. Dlm. *Recent Developments in Plastic Recycling*, disunting oleh J. Parameswaranpillai, S.M. Rangappa, A.G. Rajkumar & S. Siengchin, 1–13. Singapore: Springer. https://doi.org/10.1007/978-981-16-3627-1_1

Paparella, A.N., Perrone, S., Salomone, A., Messa, F., Cicco, L., Capriati, V., Perna, F.M. & Vitale, P. 2023. Use of deep eutectic solvents in plastic depolymerization. *Catalysts* 13(7): 1035. https://doi.org/10.3390/catal13071035

Ragaert, K., Delva, L. & Van Geem, K. 2017. Mechanical and chemical recycling of solid plastic waste. *Waste Management* 69: 24–58. https://doi.org/10.1016/j.wasman.2017.07.044

Rollo, M., Raffi, F., Rossi, E., Tiecco, M., Martinelli, E. & Ciancaleoni, G. 2023. Depolymerization of polyethylene terephthalate (PET) under mild conditions by Lewis/Brønsted acidic deep eutectic solvents. *Chemical Engineering Journal* 456: 141092. https://doi.org/10.1016/j.cej.2022.141092

Shrivastava, A. 2018. *Introduction to Plastics Engineering*. Oxford: William Andrew.

Sinha, V., Patel, M.R. & Patel, J.V. 2010. PET waste management by chemical recycling: A review. *Journal of Polymers and the Environment* 18(1): 8–25. https://doi.org/10.1007/s10924-008-0106-7

Smith, E.L., Abbott, A.P. & Ryder, K.S. 2014. Deep eutectic solvents (DESs) and their applications. *Chemical Reviews* 114(21): 11060–11082. https://doi.org/10.1021/cr300162p

Vigier, K.D.O., Chatel, G. & Jérôme, F. 2015. Contribution of deep eutectic solvents for biomass processing: Opportunities, challenges, and limitations. *ChemCatChem* 7(8): 1250–1260. https://doi.org/10.1002/cctc.201500134

Zhang, Q., Vigier, K.D.O., Royer, S. & Jérôme, F. 2012. Deep eutectic solvents: Syntheses, properties and applications. *Chemical Society Reviews* 41(21): 7108–7146. https://doi.org/10.1039/C2CS35178A



Vigier, K.D.O., Chatel, G. & Jérôme, F. 2015. Contribution of deep eutectic solvents for biomass processing: Opportunities, challenges, and limitations. *ChemCatChem* 7(8): 1250–1260. https://doi.org/10.1002/cctc.201500134

Zhang, Q., Vigier, K.D.O., Royer, S. & Jérôme, F. 2012. Deep eutectic solvents: Syntheses, properties and applications. *Chemical Society Reviews* 41(21): 7108–7146. https://doi.org/10.1039/C2CS35178A