

# SINTESIS SYNGAS DARI GLISEROL DENGAN REAKSI STEAM REFORMING MENGGUNAKAN KATALIS $\text{Cu}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-K}_2\text{O}$

**Harly Demustila**

Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Sultan Ageng Tirtayasa

Jl. Jenderal Sudirman KM.3 Cilegon-42435

e-mail : [harly\\_demustila@yahoo.com](mailto:harly_demustila@yahoo.com)

mobilphone : +6281310677313

## ABSTRAK

Penelitian ini berupaya untuk membuat *Syngas* dari gliserol dengan reaksi *Steam Reforming* menggunakan komponen aktif logam Cu. Fase aktif logam Cu sangat aktif pada rentang temperatur relatif rendah, yaitu sekitar 200-300 °C. Percobaan kali ini bertujuan untuk mempelajari pengaruh komponen aktif logam Cu dengan menggunakan penyangga  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  dan promotor  $\text{K}_2\text{O}$ , sehingga diharapkan sintesis *Syngas* dengan menggunakan reaksi *Steam Reforming* gliserol dapat berlangsung pada temperatur relatif lebih rendah. Percobaan dilakukan dalam tiga tahap. Tahap pertama, pembuatan tiga katalis terdiri dari katalis 4%Cu/ $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-0,15}\%\text{K}_2\text{O}$ , 6%Cu/ $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-0,15}\%\text{K}_2\text{O}$  dan 8%Cu/ $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-0,15}\%\text{K}_2\text{O}$ . Tahap kedua, karakterisasi seluruh katalis dengan uji kuat remuk menggunakan metode *Crushing Strength* dan uji luas permukaan aktif katalis dengan metode *BET Isothermal*. Tahap ketiga, uji aktifitas seluruh katalis di dalam reaktor *Fixed Bed* pada temperatur 300 °C, tekanan atmosfer dan rasio mol *Steam*/gliserol=6 selama 7 jam. Katalis 8%Cu/ $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-0,15}\%\text{K}_2\text{O}$  ternyata mampu menghasilkan konversi gliserol terbesar yaitu 86,35%. Penelitian lebih lanjut masih diperlukan terhadap katalis  $\text{Cu}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-K}_2\text{O}$  dengan konsentrasi fase aktif lebih besar untuk reaksi *Steam Reforming* gliserol.

**Kata Kunci:** *Steam Reforming, gliserol, Syngas, katalis  $\text{Cu}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-K}_2\text{O}$ .*

## ABSTRACT

*This study seeks to make Syngas from glycerol by Steam Reforming reactions using Cu active component. The active phase of Cu is very active at relatively low temperature range, which is about 200-300 °C. The experiment is aimed to study the effect of the active component Cu metal using  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  buffer and  $\text{K}_2\text{O}$  promoters, so expect the synthesis of Syngas by using reaction Steam Reforming of glycerol can take place at relatively lower temperatures. Experiments were carried out in three stages. The first stage consists of the manufacture of the three catalyst 4%Cu/ $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-15}\%\text{K}_2\text{O}$ , 6%Cu/ $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-0,15}\%\text{K}_2\text{O}$  dan 8%Cu/ $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-0,15}\%\text{K}_2\text{O}$ . The second phase, the entire catalyst characterization with *Crushing Strength* test method and active surface area catalyst test by the *BET Isothermal* method. The third stage, the entire catalyst activity test in the *Fixed Bed* reactor at a temperature of 300 °C, atmospheric pressure and the mole ratio of steam/glycerol=6 for 7 hours. 8%Cu/ $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-0,15}\%\text{K}_2\text{O}$  catalyst was able to produce the greatest glycerol conversion is 86.35%. Further research is still needed  $\text{Cu}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-K}_2\text{O}$  catalyst with a greater concentration of the active phase for the reaction *Steam Reforming* of glycerol.*

**Key Word:** *Steam Reforming, glycerol, Syngas,  $\text{Cu}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-K}_2\text{O}$  catalyst.*

## 1. PENDAHULUAN

Salah satu sumber energi alternatif yang cukup menarik sebagai pengganti minyak bumi adalah Biodiesel. Biodiesel dihasilkan dari reaksi transesterifikasi langsung minyak nabati, dimana trigliserida bereaksi dengan alkohol rantai pendek dengan adanya bantuan katalis, sehingga menghasilkan produk utama *Fatty Acid Methyl Ester* (FAME) atau lebih dikenal sebagai Biodiesel dan produk samping berupa gliserol. Biodiesel ini mempunyai beberapa keunggulan menarik karena bahan bakunya diperoleh dari sumber yang dapat diperbarui, kemampuan biodegradabilitasnya tinggi dan tidak beracun, sehingga pembuatan Biodiesel dapat juga menurunkan emisi gas beracun seperti CO, SO<sub>x</sub>, hidrokarbon dan materi partikulat yang tidak dapat terbakar selama proses pembakaran di dalam mesin diesel.<sup>[1],[2],[3],[4]</sup>

Biodiesel merupakan salah satu jenis sumber energi hayati yang pemanfaatannya di Indonesia mendapat dukungan dari pemerintah melalui Perpres No. 5 Tahun 2006 yang menyebutkan bahwa target substitusi Biodiesel pada tahun 2024 minimal 5% terhadap konsumsi energi nasional dan Inpres No. 1 Tahun 2006 yang menyebutkan bahwa secara bertahap Biodiesel akan menggantikan peran Petrodiesel. Adapun kualifikasi Biodiesel B-5 yang diperkenalkan pada tanggal 20 Mei 2006 mengandung komposisi 5% *Fatty Acid Methyl Ester* (FAME) dan 95% Petrodiesel. Adapun dampak dari kebijakan ini, sampai akhir tahun 2006 diperoleh penghematan impor Petrodiesel sekitar 720.000 kiloliter.<sup>[5]</sup> Berdasarkan data Asosiasi Produsen Biofuel Indonesia (Aprobi) ditargetkan produksi Biodiesel pada semester II tahun 2012 mencapai 297.000 kiloliter per hari. Hal ini disebabkan adanya kebijakan pemerintah Indonesia untuk menaikkan kualifikasi Biodiesel B-5 menjadi B-7,5 yang mulai diberlakukan sejak tanggal 1 Februari 2012, sehingga potensi total Biodiesel yang dihasilkan Indonesia berada pada kisaran 108.405.000 kiloliter per tahun.<sup>[6],[7],[8]</sup>

Sejalan dengan meningkatnya produksi Biodiesel setiap tahun di Indonesia, meningkat pula produk samping berupa gliserol. Secara teoritis, setiap reaksi untuk mengubah 1 bagian minyak nabati menjadi *Fatty Acid Methyl Ester* (FAME), maka dihasilkan juga 0,1 bagian gliserol.<sup>[9]</sup> Jadi dapat diperkirakan gliserol yang dihasilkan oleh Indonesia sangat besar jumlahnya. Selama ini gliserol murni digunakan sebagai bahan tambahan dalam jumlah relatif kecil untuk keperluan bahan baku berbagai industri diantaranya sebagai bahan pemanis makanan dan minuman, pelarut obat-obatan, perawatan kecantikan tubuh dan mulut, bahan polimer, dan bahan peledak. Menurut data Miller-Klein Associates pada tahun 2010, Uni Eropa dan Amerika Serikat saja menghasilkan 2.200.000 ton gliserol, sehingga mengakibatkan jatuhnya harga gliserol di pasar dunia. Pada tahun 2003 harga gliserol mentah berada di sekitar US\$1200/ton, lalu turun menjadi US\$ 600/ton di tahun 2006, sekarang harga telah jatuh ke US\$0-\$70/ton.<sup>[10]</sup> Pada saat sekarang ini gliserol yang berharga murah bahkan nyaris hampir tidak laku di pasar dunia menimbulkan masalah baru terhadap cara penyimpanan gliserol tersebut. Untuk mengatasi permasalahan ini perlu dicari terobosan baru yang mampu mengubah gliserol menjadi produk yang lebih bernilai secara ekonomi. Meskipun gliserol dapat langsung digunakan sebagai bahan bakar, namun gliserol dapat diolah menjadi bahan kimia yang lebih berharga. Gliserol dapat diolah dengan menggunakan proses oksidasi, reduksi, halogenisasi, etherifikasi, dan esterifikasi untuk menghasilkan berbagai komoditas kimia lainnya, seperti *dihydroxyacetone*, *mesoxalic acid*, *1,3-propanediol*, *1,3-dichloropropanol*, *glyceryl ethers*, *glycerol carbonate*, dan *glyceryl esters*. Namun seluruh proses ini masih perlu dikaji lebih mendalam lagi dari berbagai aspek kelayakannya, karena komoditas bahan kimia yang dihasilkan hanya dapat dimanfaatkan dalam cakupan tertentu dan terbatas.<sup>[11]</sup>

Salah satu cara yang cukup menjanjikan untuk memanfaatkan gliserol yang berlimpah yaitu dengan mengkonversi gliserol menjadi *Syngas* melalui reaksi *Steam Reforming*. Reaksi *Steam Reforming* merupakan salah satu metode yang cukup menjanjikan untuk mengkonversi gliserol menjadi *Syngas*.<sup>[12]</sup>

Ada beberapa alasan penting yang menjadi bahan pertimbangan agar tetap terus menggunakan gliserol sebagai bahan baku reaksi *Steam Reforming* untuk menghasilkan *Syngas* yaitu:<sup>[13]</sup>

- 1) Reaksi *Steam Reforming* gliserol pada tekanan rendah, yaitu pada rentang sekitar 1-5 atm dapat diarahkan untuk menghasilkan gas H<sub>2</sub> yang dapat dipergunakan kembali untuk memenuhi

kebutuhan energi yang bersih dan ramah lingkungan pada proses pembuatan Biodiesel itu sendiri, menjalankan *Fuel Cell*, proses di dalam *Refinery Hydrotreating*, dan sebagai reaktan dalam proses hidrodeoksigenasi.

- 2) Reaksi *Steam Reforming* gliserol pada tekanan sedang yaitu pada rentang sekitar 20-50 atm dapat diarahkan untuk menghasilkan *Syngas* ( $H_2 + CO$ ) yang dapat dipergunakan pada reaksi *Methanol Synthesis* dan pembuatan bahan kimia lainnya. Seperti diketahui bahwa metanol ini sendiri dipergunakan sebagai salah satu pereaktan di dalam proses pembuatan Biodiesel, sehingga pada dasarnya pembuatan Biodiesel ini menggunakan umpan bahan baku yang bersumber dari bahan yang dapat diperbaharui.
- 3) Reaksi *Steam Reforming* gliserol pada tekanan sedang yaitu pada rentang sekitar 20-50 atm dapat diarahkan untuk menghasilkan *Syngas* ( $H_2 + CO$ ) yang dapat dipergunakan pada reaksi *Fischer-Tropsch Synthesis (FTS)* sebagai bahan baku pembuatan bahan bakar cair.
- 4) Reaksi *Steam Reforming* gliserol pada tekanan sedang yaitu pada rentang sekitar 20-50 atm dapat diarahkan kepada proses terintegrasi antara reaksi *Steam Reforming* gliserol yang bersifat endotermal dengan reaksi *Fischer-Tropsch Synthesis (FTS)* atau dengan reaksi *Methanol Synthesis* yang bersifat eksotermal, sehingga menciptakan efisiensi energi untuk pembuatan bahan kimia dan bahan bakar.

Berdasarkan berbagai pertimbangan tersebut, maka penelitian lebih lanjut terhadap reaksi *Steam Reforming* gliserol dapat ditetapkan sebagai pilihan terbaik pada saat ini untuk menghasilkan *Syngas*. Berbagai penelitian telah dilakukan terutama untuk mendapatkan katalis murah dan ketersediaan bahan baku berlimpah untuk reaksi *Steam Reforming* gliserol yang mempunyai aktifitas, selektifitas, dan stabilitas tinggi.<sup>[14]</sup>

Tujuan penelitian ini adalah untuk mempelajari dan menentukan konsentrasi fase aktif yang terbaik diantara ketiga katalis  $Cu/\gamma-Al_2O_3-K_2O$  terhadap konversi gliserol dan perolehan *Syngas* selama berlangsungnya reaksi *Steam Reforming* gliserol.

Ruang lingkup penelitian ini terbatas meliputi hanya pada pembuatan katalis dengan variasi konsentrasi fase aktif katalis  $Cu$  sebesar 4, 6 dan 8% dan penambahan promotor katalis 0,15%  $K_2O$  ke dalam penyangga  $\gamma-Al_2O_3$  dengan menggunakan metode *Impregnation*.

## 2. KAJIAN PUSTAKA

Secara umum katalis yang digunakan untuk reaksi *Steam Reforming* gliserol harus dapat melakukan fungsi ganda. Ada dua jenis situs katalitik yang terbentuk pada reaksi *Steam Reforming* gliserol, yaitu situs hidrogenisasi-dehidrogenisasi dan situs asam. Pada aktifitas katalis yang berfungsi ganda seperti di dalam reaksi *Steam Reforming* gliserol, maka perlu menghindari tingkat keasaman yang berlebihan dengan menambahkan semacam zat kimia tambahan pada permukaan katalis yang sering disebut sebagai promotor katalis.<sup>[15]</sup>

Dou dkk., 2008 mempelajari secara rinci tentang mekanisme reaksi *Steam Reforming* gliserol ini. Pada tahap pertama di dalam reaksi *Steam Reforming* gliserol dijelaskan bahwa terjadi reaksi dekomposisi bahan baku gliserol menjadi *Syngas*.<sup>[9]</sup>



Berdasarkan persamaan reaksi (2-6), dekomposisi gliserol dapat menghasilkan perolehan total gas  $H_2$  sebesar 57%,<sup>[14]</sup> kemudian diikuti oleh reaksi *Water-Gas Shift* yang mempunyai dua kemungkinan terjadinya reaksi tergantung kepada kondisi temperatur reaksi.<sup>[9]</sup> Jika reaksi *Water-Gas Shift* ini terjadi pada kondisi temperatur rendah, maka mekanisme reaksinya adalah sebagai berikut :<sup>[16]</sup>



Tetapi jika reaksi *Water-Gas Shift* ini terjadi pada kondisi temperatur tinggi, maka mekanisme reaksinya adalah sebagai berikut :<sup>[16]</sup>



Dengan menjumlahkan persamaan reaksi (2-7) dan persamaan reaksi 3 x (2-8) akan menghasilkan reaksi *Steam Reforming* gliserol yang lengkap seperti sebagai berikut :<sup>[16]</sup>



Reaksi di atas berakibat pada tingkat kemurnian gas  $H_2$  yang dihasilkan melalui reaksi *Steam Reforming* gliserol secara konvensional tidak akan pernah melebihi 70%. Walau bagaimanapun persamaan reaksi (2-7) dan (2-8) secara termodinamika cenderung lebih menyukai kondisi tekanan rendah dan temperatur sedang dalam kisaran 773-783 K.<sup>[16]</sup> Sebagai contoh, jika reaksi *Steam Reforming* gliserol dilakukan tanpa menggunakan katalis, konversi gliserol menjadi produk *Syngas* yang dihasilkan berdasarkan pada mekanisme persamaan reaksi (2-9) hanyalah sekitar 1,6%.<sup>[17]</sup>

Ebshish A. dkk., 2011, menyatakan bahwa penambahan promotor 0,3% Cu ke dalam komponen aktif katalis Ni dapat meningkatkan luas permukaan aktif katalis 5% Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dari 211,27 m<sup>2</sup>/g menjadi 216,98 m<sup>2</sup>/g. Peningkatan luas permukaan aktif katalis kemungkinan disebabkan oleh terlepasnya beberapa molekul Al dari matriks selama pengolahan dengan larutan Ni yang kemungkinan menyebabkan peningkatan keporositasan. Berkurangnya luas permukaan dengan penambahan beberapa promotor kemungkinan disebabkan oleh terisinya beberapa pori oleh promotor.<sup>[18]</sup>

Husin, H. dkk., 2010, melakukan penelitian tentang pengaruh berbagai konsentrasi komponen aktif katalis Cu terhadap selektifitas gas  $H_2$  dan  $CO_2$  serta *Yield* gas  $H_2$  pada rentang temperatur 150-300 °C, tekanan atmosfer, dan rasio *Steam*/metanol (S/C)=1. Konsentrasi komponen aktif katalis Cu divariasikan dari 5%, 10%, 15%, 20%, 25%, dan 30%. Pada loading katalis 10% dan 15% Cu memiliki intensitas yang hampir sama dengan katalis komersial, tetapi pada loading katalis 30% dan 35% Cu tidak terjadi perbedaan yang cukup berarti pada peningkatan intensitas Cu. Sintesis katalis dengan loading 15% Cu mempunyai konversi 95% pada temperatur 350 °C dan selektifitas terhadap gas  $H_2$  juga menunjukkan performace yang bagus seiring dengan meningkatnya temperatur reaksi *Steam Reforming* metanol. Pada loading katalis 15% Cu diperoleh selektifitas paling tinggi. Selektifitas terhadap gas  $CO_2$  tampak tidak beraturan, hasilnya tidak menunjukkan kecenderungan yang sama dengan selektifitas gas  $H_2$ .<sup>[19]</sup>

Wen, G., dkk., 2008, menyatakan bahwa tingkat aktifitas katalis dengan menggunakan penyangga  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> diperoleh urutan sebagai berikut : Pt > Cu > Ni > Co.<sup>[17]</sup>

Namun, Palo, D.R., 2007, menyimpulkan bahwa logam Cu memperlihatkan keadaan kurang aktif untuk menyerap gas  $CH_4$  secara kimia pada temperatur lebih kecil dari 800 °C di dalam reaksi *Steam Reforming*  $CH_3OH$ . Hal ini menjadikan logam Cu mempunyai keunggulan tersendiri, sehingga penggunaan logam Cu pada konsentrasi optimal pada reaksi *Steam Reforming* gliserol diharapkan dapat menghambat pembentukan deposit karbon sekecil mungkin.<sup>[20]</sup> Demikian pula  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> digunakan sebagai penyangga katalis berbasis logam Cu, karena mampu menyediakan luas permukaan aktif katalis tinggi, sehingga dapat meningkatkan dispersi katalis logam Cu dan mengurangi kerentanan terhadap sintering thermal.<sup>[20]</sup>

Ishikura, 2007 menyatakan bahwa jumlah mol gas  $H_2$  yang diperoleh dari reaksi *Steam Reforming* gliserol meningkat seiring dengan meningkatnya perbandingan jumlah mol S/C. Fraksi mol gas  $H_2$  yang diperoleh lebih tinggi pada keadaan perbandingan jumlah mol S/C yang lebih rendah. Pada keadaan perbandingan jumlah mol S/C yang tinggi, terdapat perolehan mol  $H_2O$  dalam jumlah yang cukup banyak pada hasil reaksi *Steam Reforming* gliserol, sehingga perolehan jumlah mol  $H_2O$  yang tidak bereaksi di dalam perhitungan akan mengurangi fraksi mol gas  $H_2$ , tetapi dalam jumlah yang tidak terlalu berarti. Perolehan gas  $H_2$  paling besar ternyata diperoleh dengan cara melebihkan jumlah mol  $H_2O$  pada semua rentang kondisi temperatur.<sup>[14]</sup>

Golebiowski, A dkk., 2004, penambahan promotor ke dalam katalis bergantung kepada cara penambahan promotor ke dalam sistem, apakah ditambahkan ke dalam fase aktif katalis atau ke dalam penyangga katalis. Promotor katalis K<sub>2</sub>O ternyata dapat menghambat laju pembentukan endapan karbon ketika ditambahkan ke dalam fase aktif katalis Ni, tetapi sekaligus juga mengurangi aktifitas fase aktif katalis Ni. Penambahan promotor katalis K<sub>2</sub>O ke dalam penyangga  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pada prinsipnya tidak menambah daya tahan katalis terhadap laju pembentukan endapan karbon pada fase aktif katalis Ni.<sup>[21]</sup>

David A.M. dkk., 2005 memperlihatkan komponen aktif katalis Cu yang dilapisi dengan katalis komersial Ni-Raney merupakan katalis aktif dan stabil untuk reaksi *Steam Reforming* etanol pada temperatur rendah sekitar 523-573 K dan tekanan atmosfer.<sup>[22]</sup>

Twigg, M.V. 2003, penggunaan katalis berbasis logam Cu sebagai komponen aktif telah lama digunakan untuk reaksi *Steam Reforming* pada temperatur relatif rendah. Pada dasarnya katalis dengan

kandungan logam Cu tinggi memberikan konversi dan selektifitas tinggi di dalam reaksi *Steam Reforming* pada temperatur rendah, namun permasalahan paling penting bahwa katalis berbasis logam Cu tidak disarankan untuk reaksi *Steam Reforming* pada temperatur relatif tinggi, karena mengalami sintering thermal dengan cepat, terbakar dengan sendirinya jika terpapar dengan udara, dan terdeaktifasi dengan cepat.<sup>[23]</sup>

Takano, A. dkk., 1994, meneliti pengaruh berbagai penyangga katalis terhadap komponen aktif katalis Ni. Berdasarkan dari pengamatan mereka diperoleh sejumlah fakta ternyata aktifitas katalis di dalam reaksi *Reforming* CH<sub>4</sub> dengan CO<sub>2</sub> sangat bervariasi tergantung kepada tipe penyangga katalis yang digunakan menurut tingkatan sebagai berikut : Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> > SiO<sub>2</sub> > MgO > SiO<sub>2</sub>.<sup>[24]</sup>

### 3. METODOLOGI PENELITIAN

Secara umum penelitian yang dilakukan terdiri dari tiga tahap percobaan utama, yaitu :

- 1) Sintesis katalis monometalik dilakukan terdiri dari tiga katalis 4% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K, 6% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K dan 8% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K untuk reaksi *Steam Reforming* gliserol.
- 2) Pengujian karakteristik katalis hasil sintesis katalis dilakukan dengan pengujian kekuatan mekanik dan pengujian luas permukaan aktif katalis.
- 3) Pengujian aktifitas katalis hasil sintesis katalis monometalik selama 7 jam pada tekanan atmosferik, temperatur 300 °C, dan rasio mol *Steam*/C=6 di dalam reaksi *Steam Reforming* gliserol dengan menghitung konversi gliserol.

#### 3.1. Bahan-bahan

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah sebagai berikut :

- 1) Penyangga  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>
- 2) Larutan KOH p.a.
- 3) Garam Cu(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>.3H<sub>2</sub>O
- 4) Aqua dm.

#### 3.2. Alat-alat

Alat-alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah sebagai berikut:

- 1) Peralatan laboratorium standar
- 2) *Furnace*
- 3) Reaktor *Fixed Bed*
- 4) Alat uji *Crushing Strength*
- 5) Timbangan Analitis
- 6) Oven
- 7) Penangas Listrik

#### 3.3. Prosedur Percobaan

Di dalam pembuatan katalis monometalik Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-K<sub>2</sub>O dengan menggunakan metode *Impregnation* terdapat dua tahap proses *Impregnation* yang akan dilakukan terhadap katalis. Pada tahap pertama *Impregnation* penyangga  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> direndam ke dalam larutan KOH. Pada tahap kedua *Impregnation* penyangga  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-K<sub>2</sub>O direndam ke dalam larutan logam fase aktif yang mengandung garam logam aktif Cu(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>.3H<sub>2</sub>O.

##### 3.3.1. *Impregnation* Tahap Pertama

Penyangga  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang diperoleh dari Laboratorium Teknik Reaksi Kimia ITB bekerjasama dengan Pertamina dalam jumlah tertentu dikeringkan terlebih dahulu di dalam oven pada temperatur 130 °C selama 3 jam, lalu ditentukan volume pori penyangga. Larutan KOH dengan konsentrasi sebesar 0,15% K<sub>2</sub>O dari berat penyangga dilarutkan ke dalam aqua dm hingga mencapai volume total pori penyangga  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> yang sebelumnya telah ditentukan. Selanjutnya penyangga  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> direndam ke dalam larutan KOH selama 2 jam, lalu dibiarkan pada udara terbuka pada temperatur sekitar 28-30 °C selama 8 jam, kemudian dikeringkan pada temperatur 130 °C selama 3 jam, lalu dikalsinasi pada temperatur 450 °C selama 3 jam. Laju pemanasan dilakukan pada 10 °C/menit.

### 3.3.2 Impregnation Tahap Kedua

Penyangga  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-0,15\% K}_2\text{O}$  setelah dilakukan perlakuan *Impregnasi* tahap pertama dalam jumlah tertentu dikeringkan terlebih dahulu di dalam oven pada temperatur 130 °C selama 3 jam, lalu ditentukan volume pori penyangga. Larutan logam dari fase aktif yang mengandung garam logam aktif  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$  dalam variasi konsentrasi tertentu, yaitu sebesar 4, 6 dan 8% dari total berat penyangga  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-0,15\% K}_2\text{O}$  dilarutkan di dalam aqua dm hingga mencapai volume total pori penyangga  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-0,15\% K}_2\text{O}$  yang sebelumnya telah ditentukan. Lalu, penyangga  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-0,15\% K}_2\text{O}$  direndam ke dalam larutan logam dari fase aktif yang mengandung garam  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$  selama kurang lebih 3 jam, lalu dibiarkan pada udara terbuka pada temperatur sekitar 28-32 °C selama 7 jam, kemudian dikeringkan pada temperatur 130 °C selama 3 jam, lalu dikalsinasi pada temperatur 450 °C selama 7 jam. Pemanasan dilakukan dengan laju 10 °C/menit.

### 3.3.3. Uji Kekuatan Mekanikal Katalis

Pengujian luas permukaan aktif katalis dilakukan dengan metode BET *isothermal*. Bahan-bahan yang digunakan untuk melakukan uji luas permukaan aktif katalis yaitu katalis yang baru dibuat untuk reaksi *Steam Reforming* gliserol dan peralatan yang digunakan yaitu peralatan laboratorium standar untuk uji luas permukaan aktif katalis, yaitu BET *isothermal*. Sebelum dilakukan uji luas permukaan aktif katalis, sampel katalis dengan massa 0,75 g harus terlebih dahulu dihaluskan menjadi serbuk katalis.

### 3.3.4. Uji Aktifitas Katalis untuk Reaksi *Steam Reforming* Gliserol

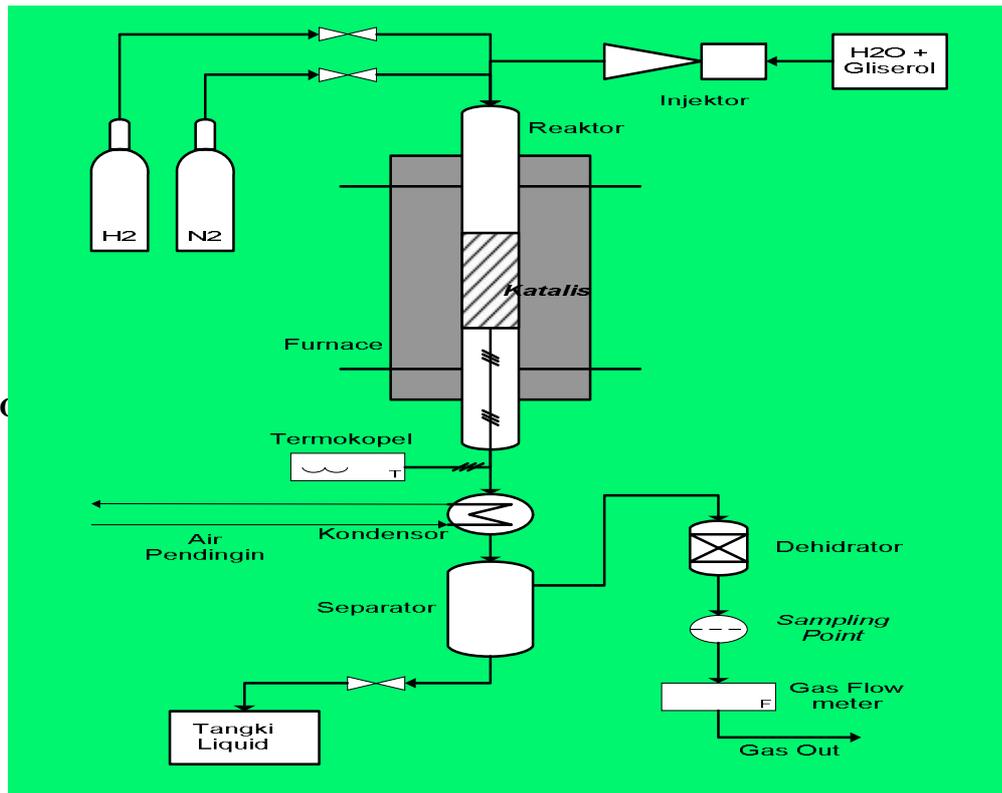
Bahan-bahan yang digunakan untuk melakukan pengujian aktifitas katalis terdiri dari 46% larutan gliserol pa., *Steam*, gas  $\text{H}_2$ , dan  $\text{N}_2$ . Peralatan yang digunakan yaitu peralatan laboratorium standar untuk reaksi *Steam Reforming* gliserol. Ada beberapa tahap pengujian terhadap reaktor *Steam Reforming* gliserol sebelum digunakan untuk menjalankan reaksi *Steam Reforming* gliserol.

Pertama, tahap pembilasan awal dengan mengalirkan gas  $\text{N}_2$  secara berkesinambungan pada laju alir 120 mL/menit, sehingga konsentrasi gas  $\text{O}_2$  di dalam reaktor *Steam Reforming* gliserol kurang dari 0,01%. Konsentrasi gas  $\text{O}_2$  yang tersisa, kemudian diperiksa menggunakan *Gas Chromatography*.

Kedua, tahap mereduksi katalis dengan menggunakan gas  $\text{H}_2$ . Proses reduksi dilakukan di dalam reaktor *Steam Reforming* gliserol dengan laju gas  $\text{H}_2$  120 mL/menit pada temperatur 450 °C dengan waktu pemanasan selama 3 jam sampai terbentuk tetesan air pada kondensor. Proses reduksi segera dihentikan apabila tetesan air telah menghilang dari kondensor.

Ketiga, tahap pembilasan akhir dengan mengalirkan gas  $\text{N}_2$  secara berkesinambungan pada laju alir 120 mL/menit, sehingga konsentrasi gas  $\text{H}_2$  di dalam reaktor *Steam Reforming* gliserol kurang dari 0,01%. Konsentrasi gas  $\text{H}_2$  yang tersisa, kemudian diperiksa menggunakan *Gas Chromatography*. Setelah pembilasan akhir, reaksi *Steam Reforming* gliserol diatur pada kondisi operasi yang telah ditetapkan sebelumnya.

Pengujian aktifitas katalis dilakukan di dalam sebuah reaktor *Steam Reforming* gliserol dengan menempatkan 1 g katalis secara *Fixed Bed* pada temperatur tetap 300 °C, tekanan atmosfer, rasio mol  $\text{Steam}/\text{C} = 6$ , dan waktu berlangsung reaksi *Steam Reforming* gliserol selama 7 jam, sehingga dari hasil reaksi *Steam Reforming* gliserol dapat diketahui seberapa besar kemampuan aktifitas katalis dengan melakukan perhitungan konversi gliserol menjadi produk *Syngas*.



#### 4. HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN

##### 4.1. Karakterisasi Katalis Reaksi Steam Reforming Gliserol

Pengaruh fasa aktif terhadap kuat remuk diidentifikasi dengan cara membandingkan kuat remuk penyangga dengan kuat remuk fase aktif katalis. Katalis-katalis tersebut diuji kuat remuknya dengan menggunakan alat uji *Crushing Strength*. Pengukuran dilakukan dengan memberikan tekanan kepada katalis. Pengukuran tersebut dilakukan secara berulang sebanyak sepuluh kali agar diperoleh hasil yang lebih akurat. Data perbandingan kuat remuk katalis logam Cu untuk reaksi *Steam Reforming* gliserol hasil sintesis disajikan pada tabel 1.

**Tabel 1. Data Kuat Remuk Penyangga dan Fase Aktif Katalis**

No.	Jenis Katalis	Kuat Remuk (N/mm)
1.	$\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$	18,78
2.	$\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-}0,15\%\text{K}_2\text{O}$	18,32
3.	$4\%\text{Cu}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-}0,15\%\text{K}_2\text{O}$	17,85
4.	$6\%\text{Cu}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-}0,15\%\text{K}_2\text{O}$	16,75
5.	$8\%\text{Cu}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-}0,15\%\text{K}_2\text{O}$	15,75

Katalis logam Cu hasil sintesis ini dianalisis luas permukaan aktifnya menggunakan metode *Isothermal* BET. Berikut ini data pada tabel 2 hasil pengukuran luas permukaan katalis logam Cu untuk reaksi *Steam Reforming* gliserol dengan penyangga  $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$  sebagai pembanding.

**Tabel 2. Data Luas Permukaan Penyangga dan Fase Aktif Katalis**

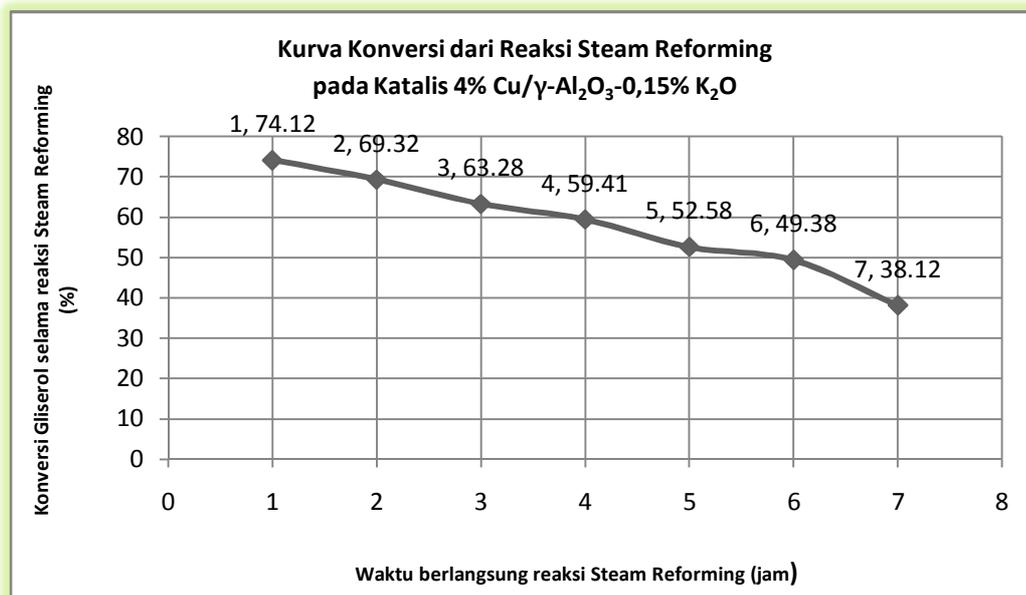
No.	Jenis Penyangga-Katalis	Luas Permukaan Katalis ( $\text{m}^2/\text{g}$ )
1.	$\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$	186,42
2.	$\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-}0,15\%\text{K}$	166,09
3.	$4\%\text{Cu}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-}0,15\%\text{K}$	130,36
4.	$6\%\text{Cu}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-}0,15\%\text{K}$	129,35
5.	$8\%\text{Cu}/\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-}0,15\%\text{K}$	128,39

Berdasarkan data pengukuran luas permukaan aktif katalis dapat dilihat pengaruh penambahan fasa aktif logam Cu berdampak pada menurunnya total luas permukaan aktif katalis logam Cu. Katalis logam Cu dengan komposisi 8% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O ternyata memiliki luas permukaan katalis paling rendah jika dibandingkan dengan variasi katalis Cu lainnya.

#### 4.2. Uji Aktivitas dan Analisis Produk Reaksi Katalitik Reaksi *Steam Reforming* Gliserol.

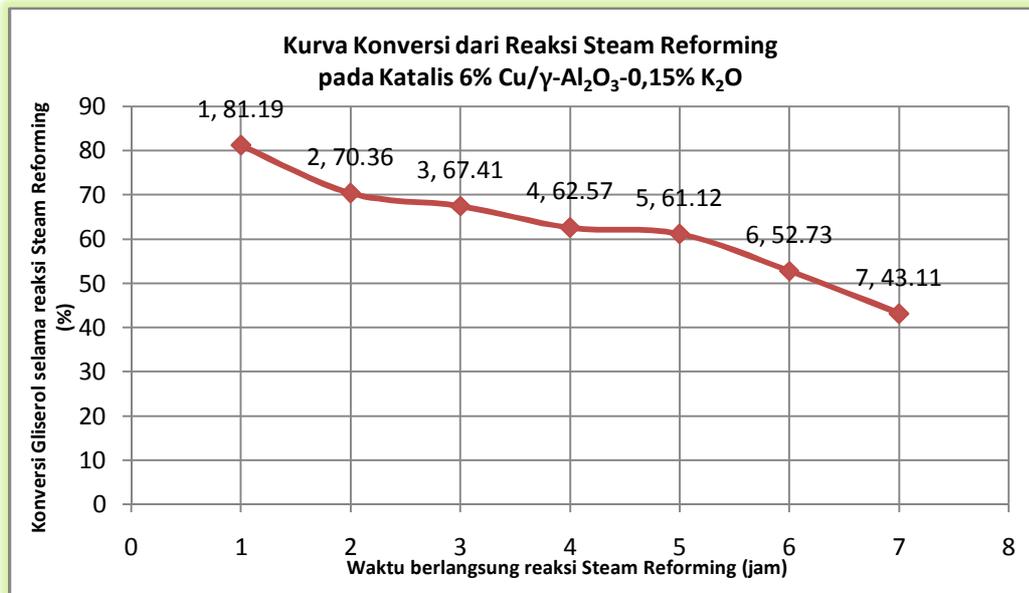
Katalis yang digunakan untuk reaksi *Steam Reforming* gliserol pada penelitian kali ini adalah katalis berbasis Cu dengan penyangga  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dan promotor K<sub>2</sub>O yang ditambahkan ke dalam penyangga. Untuk dapat melihat pengaruh fasa aktif Cu terhadap reaksi *Steam Reforming* gliserol maka dilakukan variasi kadar Cu dari konsentrasi 4, 6 dan 8%. Menurut penelitian Liu, L. dkk., 2011, fase aktif logam Cu memiliki aktivitas yang baik dalam menjalankan reaksi *Steam Reforming* CH<sub>4</sub> dan berlangsung pada kondisi temperatur lunak sekitar 300 °C dan tekanan 1 atm. Simpulan ini sesuai dengan hasil penelitian ini bahwa semakin besar fase aktif logam Cu maka konversi gliserol semakin besar. Hal ini juga didukung oleh penelitian Husin, H. dkk., 2010 bahwa konsentrasi fase aktif logam Cu menunjukkan kemampuan konversi gliserol yang sangat baik pada rentang fase aktif dari 10-20% dari total berat katalis. Berdasarkan dari gambar 2, 3 dan 4 dapat diambil kesimpulan sementara bahwa pada katalis 8% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O memberikan pengaruh relatif lebih stabil terhadap performa katalis dibanding dengan katalis 4% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O dan 6% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O.

Pada penelitian ini konversi gliserol paling besar diperoleh dari katalis 8% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O yaitu sebesar 86,35%. Pada katalis 8% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O dapat dilihat bahwa terjadi penurunan aktivitas katalis yang tidak terlalu signifikan pada saat berlangsungnya reaksi *Steam Reforming* gliserol selama 7 jam. Pada katalis 8% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O dapat diprediksikan bahwa terdapat efek sinergis antara fase aktif logam Cu dengan penyangga  $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O di dalam menjalani reaksi *Steam Reforming* gliserol. Berdasarkan hasil penelitian ini, maka diperlukan penelitian lebih lanjut terhadap interaksi antar situs aktif, situs aktif dengan reaktan, situs aktif dengan penyangga, situs aktif dengan promotor, dan situs aktif dengan kondisi reaksi.



Gambar 2. Konversi Gliserol vs Waktu dengan Katalis 4%Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O

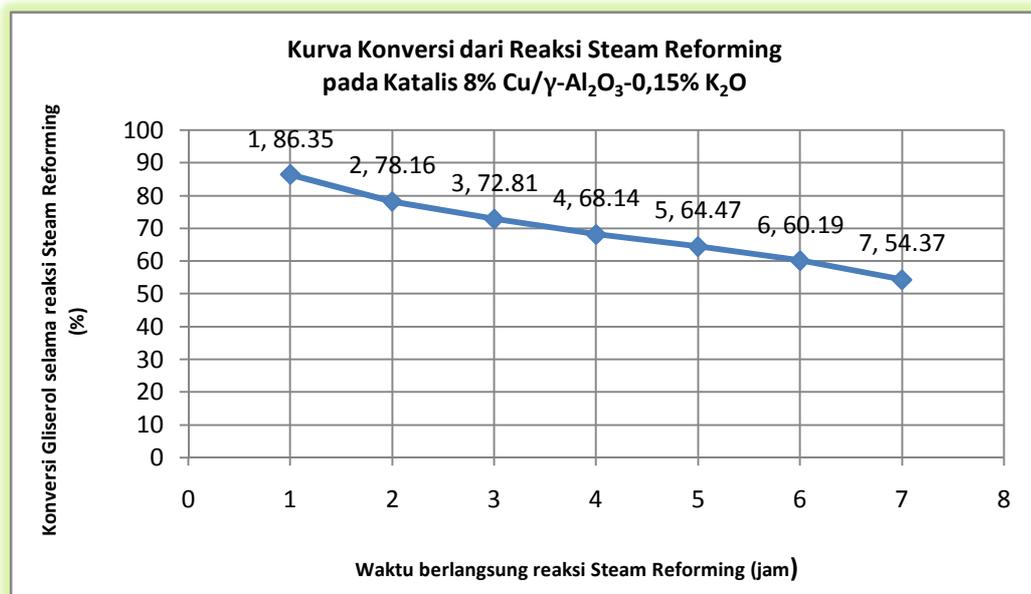
Penurunan konversi gliserol pada penggunaan katalis dengan konsentrasi 4% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O hanya sebesar  $\pm$  38%, sedangkan pada katalis 6% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O terjadi penurunan konversi sebesar  $\pm$  43% dan katalis 8% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O terjadi penurunan konversi gliserol sebesar  $\pm$  55%. Katalis dengan kadar 8% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O dapat dikatakan memiliki performa yang lebih stabil dibandingkan dengan katalis Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O lainnya.



**Gambar 3. Konversi Gliserol vs Waktu dengan Katalis 6% Cu/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O**

Pada penelitian ini didapatkan kendala berupa pemisahan produk cair yang tidak berjalan dengan baik, dimana kondensasi fraksi air tidak dapat berjalan dengan sempurna dikarenakan waktu kontak fasa uap berlangsung dengan sangat singkat. Hal ini disebabkan pula oleh perpindahan panas di dalam kondenser tidak dapat berjalan dengan baik karena luas permukaan kontak yang rendah.

Penyusunan neraca massa produk cair dilakukan menggunakan program MS-Excel 2007 dengan menebak besarnya konversi gliserol dengan komposisi produk hasil analisa *Gas Chromatographi* disesuaikan dengan komposisi produk dari simulasi perhitungan. Perhitungan dapat dilakukan dengan syarat asumsi error pada setiap analisis adalah sama. Untuk menyamakan error tersebut diperlukan faktor koreksi pada data keluaran analisa *Gas Chromatographi* yaitu respon faktor. Respon faktor merupakan faktor penormal sampel agar dapat dilakukan perbandingan antar sampel. Respon faktor disusun berdasarkan rata-rata data standar.



**Gambar 4. Konversi Gliserol vs Waktu dengan Katalis 8% Cu/γ-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O**

Selektivitas gas H<sub>2</sub> di dalam reaksi *Steam Reforming* gliserol belum dapat dilakukan perhitungan, karena tidak memadainya data untuk menyusun neraca massa yang baik antara produk gas dan produk cair, sehingga rute reaksi secara kuantitatif tidak dapat ditentukan. Kekurangan lainnya dapat dianalisa

adalah tidak idealnya hasil analisa produk *Syngas*, sehingga ketika dibandingkan dengan total mol produk *Syngas* teoritis terdapat simpangan yang sangat besar. Hasil perhitungan produk *Syngas* yang tidak sesuai dengan hasil analisa produk *Syngas* terjadi karena sampling gas tidak menggunakan peralatan yang memadai, seperti penggunaan *syringe* 1 ml konvensional yang tidak sesuai peruntukannya untuk pengambilan sampel gas sehingga terlalu banyak produk *Syngas* yang lepas dari *syringe*. Pada kenyataannya, produk *Syngas* bersifat lebih ringan dari pada udara sehingga sangat mudah bagi produk *Syngas* untuk terlepas ke udara.

## 6. SIMPULAN DAN SARAN

### 6.1. Simpulan

Berdasarkan hasil pembahasan sebelumnya, maka dapat diambil beberapa simpulan sebagai berikut :

- 1) Semakin besar konsentrasi fase aktif logam Cu maka konversi gliserol semakin besar.
- 2) Konversi gliserol dihasilkan berurutan dari yang terbesar oleh katalis 8% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O > 6% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O > 4% Cu/ $\gamma$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-0,15% K<sub>2</sub>O.
- 3) Selektivitas katalis dalam menjalani reaksi *Steam Reforming* gliserol belum dapat ditentukan secara kuantitatif.

### 6.2. Saran

Berdasarkan dari pengalaman selama melakukan percobaan reaksi *Steam Reforming* gliserol ini disarankan untuk melakukan berbagai modifikasi peralatan reaktor *Fixed Bed*, seperti :

- 1) Laju pendinginan pada kondensor yang digunakan harus bisa menyesuaikan terhadap laju perpindahan panas yang dihasilkan dari reaktor *Fixed Bed*.
- 2) Pengambilan sampel produk *Syngas* perlu dipikirkan peralatan sampling gas yang baik.

## DAFTAR KEPUSTAKAAN

<http://www.todayoilprice.com>, "ENERGY PRICES" 31 Maret 2012:23.28

<http://www.oil-price.net/?gclid=CNna3pn6kq8CFUx76wodDxP7xg> "Oil & Gas Trading System" 1 April 2012: 12.48

<http://www.pertamina.com/index.php/detail/new-release/8736/> "Konsumsi Premium dan Solar melampaui kuota Pertamina" 1 April 2012:12.52

<http://www.jurnalkimiagratis.blogspot.com> "Minyak kedelai sebagai sumber Bio-diesel alternatif melalui reaksi transesterifikasi dengan berbagai pilihan katalis" 1 April 2012:12.59

<http://www.pertamina.com/index.php/detail/read/> "Biosolar" 1 April 2012:19.13

<http://www.indonesiafinancetoday.com/read/13106/> "Produksi Biodiesel semester II diproyeksikan 297.000 kiloliter" 1 April 2012:23.57

<http://www.indonesiafinancetoday.com/read/24048/> "Produsen Biofuel targetkan penjualan Biodiesel mencapai 1 juta kiloliter" 2 April 2012:00.39

<http://www.uksw.edu/swca/file/jf/12/lowongan/pdf/wilmar.pdf> "Produksi total Bio-diesel Indonesia terbesar di dunia" 2 April 2012:11.23

Binlin Dou, dkk., "Hydrogen Production by Sorption Enhance Steam Reforming of Glycerol", 2009.

<http://publication.hgsa.com/publications/documents/> "Impact of Biodiesel Production on the Glycerol Market". pdf. 3 April 2012:05.09

Yuguo Zheng, dkk., *“Commodity Chemical Derived from Glycerol, an Important Biorefinery Feedstock”*, 2008.

A. Iriundo dkk., *“Hydrogen Production from Glycerol Over Nickel Catalyst Supported on Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Modified by Mg, Zr, Ce or La”*, 2008.

Xiaodong Wang, dkk., *“Thermodynamic Analysis of Glycerin Steam Reforming”*, 2008.

Santos Ishikura dan Caio Fabio Maciel, *“Steam Reforming of Renewable Feedstoc’s for the Production of Hydrogen”*, 2007.

Istadi. *“Teknologi Katalis untuk Konversi Energi–Fundamental & Aplikasi”*, ISBN: 978-979-756-734-7. Cetakan 1. Penerbit Graha Ilmu-Yogyakarta.

Chin Kui Cheng, dkk., *“Glycerol Steam Reforming over Bimetallic Co–Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>”*, 2010.

Guodong Wen, dkk., *“Production of Hydrogen by Aqueous-Phase Reforming of Glycerol”*, 2008.

Ali Ebshish, dkk., *“The Activity of Ni-Based Catalyst on Steam Reforming of Glycerol for Hydrogen Production”*, 2011.

Husni Husin dan Yanna Syamsuddin, *“Pembuatan Katalis Cu/ZnO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> untuk Proses Steam Reforming Metanol menjadi Hidrogen sebagai Bahan Bakar Alternatif”*, 2010.

Daniel R. Palo, dkk., *“Methanol Steam Reforming for Hydrogen Production”*, 2007.

Andrzej Golebiowski, dkk., *“Influence of Potassium on the Properties of Steam Reforming Catalyst”*, 2004.

Lipin Liu, dkk., *“Hydrogen Production from Ethanol Steam Reforming over Ni-Cu/ZnO Catalyst”*, 2011.

Martyn V. Twigg dan Michael S. Spencer, *“Deactivation of Copper Metal Catalyst for Methanol Decomposition, Methanol Steam Reforming and Methanol Synthesis”*, 2003.

Shaobin Wang dan G.Q. (Max) Lu, *“Catalytic Activities and Coking Characteristic of Oxides–Supported Ni Catalyst for CH<sub>4</sub> Reforming with CO<sub>2</sub>”*, 1998.