PENGEMBANGAN KATALIS Ni/Al₂O₃ UNTUK STEAM REFORMING TAR HASIL GASIFIKASI

Deviana Pramitasari, Subagio*

**Kelompok Keahlian Perancangan dan Pengembangan Proses Teknik Kimia
Program Studi Teknik Kimia, Fakultas Teknologi Industri
Institut Teknologi Bandung
Jalan Ganesha 10, Bandung 40132
Email: subagio@yahoo.com**

Abstrak

Penelitian ini merupakan suatu bagian dalam pengembangan teknologi penghilangan tar gasifikasi secara sekunder dengan cara perengkahan katalitik menggunakan reaksi steam reforming toluen. Tujuan penelitian ini adalah mendapatkan katalis berbasis nikel yang memiliki kinerja yang baik untuk steam reforming tar (toluen) dengan memilih penyangga γ -Al₂O₃ atau α -Al₂O₃, dan menambah promotor CaO untuk menghambat deaktivasi akibat pembentukan arang. Kinerja katalis ditentukan dari uji aktivitas di dalam reaktor fixed bed pada temperatur 700 °C, tekanan atmosferik, selama 10 jam dan uji stabilitas yang diindikasikan menggunakan XRD dan TGA. Hasil pengujian aktivitas memperlihatkan bahwa katalis Ni/ γ -Al₂O₃ menghasilkan aktivitas yang paling baik dengan rata - rata konversi toluen 96%. Penambahan promotor CaO 2% dan 5% berat menurunkan aktivitas katalis Ni/ γ -Al₂O₃ dan menghambat pembentukan arang, tetapi tidak mengurangi laju deaktivasi katalis. Hasil XRD katalis Ni/ γ -Al₂O₃ setelah reaksi 10 jam menunjukkan tidak adanya perubahan fasa dari γ -Al₂O₃ ke α -Al₂O₃, yang berarti katalis masih tetap stabil.

Kata Kunci: perengkahan tar, katalis nikel, konversi toluen, stabilitas.

Abstract

This research studied the secondary tar removal in gasification technology through catalytic toluene steam reforming reactions. The objective of this study was to obtain a nickel catalyst that has good performance for steam reforming of tar (toluene) by selecting the γ -Al₂O₃ or α -Al₂O₃ supports, and adding promoter to inhibit deactivation due to coke formation. The performance of the catalyst is determined from the activity test in a fixed bed reactor at a temperature of 700 °C, atmospheric pressure, Time on Stream (TOS) 10 hours and stability test indicated by XRD and TGA. The catalyst showed the best performance was the Ni/ γ -Al₂O₃ catalyst with the average of toluene conversion of 96%. The addition of 2% and 5% by weight of CaO decreased the catalytic activity. Although it proved to inhibit the formation of coke, it did not reduce the rate of deactivation of catalyst. The XRD analysis showed that the Ni/ γ -Al₂O₃ after 10 hours in operation did not undergo any phase changes, thus the catalyst was still stable.

Keywords: tar cracking, steam reforming, nickel catalyst, toluene conversion, stability.

*korespondensi

1. Pendahuluan

Penggunaan bahan bakar fosil, seperti minyak bumi sebagai sumber energi dapat menimbulkan masalah yang serius. Selain persediaan yang semakin menipis, penggunaan minyak bumi dapat menyebabkan timbulnya permasalahan lingkungan seperti pemanasan global. Karena itu, perlu adanya energi alternatif pengganti minyak bumi sebagai sumber energi yang dapat terbarukan. Salah satu alternatif untuk mengganti minyak bumi tersebut adalah penggunaan biomassa (Swierczynski dkk., 2007). Biomassa tersebut meliputi produk samping hasil pertanian, seperti tongkol jagung, sekam padi, dan sampah padatan hasil industri.

Biomassa merupakan salah satu sumber energi alternatif yang dapat dimanfaatkan melalui proses gasifikasi. Hasil dari proses ini adalah gas produser yang terdiri dari karbon monoksida, hidrogen, karbon dioksida, nitrogen, juga sejumlah kecil metana. Gas produser juga mengandung partikel debu, logam alkali, dan tar. Tar adalah komponen yang terdiri dari asam organik, aldehid, keton, alkohol, fenol, dan hidrokarbon aromatik. Keberadaan tar pada gas produser tidak diinginkan karena dapat menyebabkan penyumbatan pada peralatan proses gasifikasi dan juga menurunkan efisiensi proses (Swierczynski dkk., 2007; Uddin dkk., 2007). Oleh sebab itu, perlu adanya teknologi untuk menghilangkan atau menghancurkan tar yang dihasilkan dari proses gasifikasi tersebut.

Terdapat dua teknologi penghilangan tar, yaitu secara primer dan sekunder (Swierczynski dkk., 2007). Primer adalah perlakuan di dalam *gasifier*, sedangkan penghilangan tar secara sekunder adalah perlakuan setelah keluar dari *gasifier*. Metode yang paling baik untuk menghilangkan tar (>95%) dan banyak dikembangkan adalah metode sekunder (Milne dkk., 1998) dengan perengkahan katalitik memanfaatkan reaksi *steam reforming* (Swierczynski dkk. 2007; Ju Park, 2009; Srinakruang, 2005; Milne, 1998). Oleh sebab itu, pada penelitian ini digunakan perengkahan katalitik dengan reaksi *steam reforming*.

Katalis yang biasa digunakan untuk perengkahan tar adalah katalis berbasis nikel karena memiliki aktivitas yang tinggi (Swierczynski, 2007; Ju Park, 2009; Corella,

1998), tetapi juga banyak peneliti yang menggunakan katalis alam seperti dolomit, olivin, dan juga batu kapur. Namun, katalis dari mineral-mineral alam memiliki aktivitas yang lebih rendah daripada katalis nikel (Ju Park, 2009). Katalis berbasis nikel untuk proses *steam reforming* sering menggunakan oksida Al₂O₃, karena mampu menghasilkan kinerja katalis yang baik (Ju Park, 2009; Miyazawa T., 2006). Katalis nikel untuk *steam reforming* mudah mengalami deaktivasi, oleh sebab itu sering ditambahkan promotor CaO dengan tujuan menghambat pembentukan arang.

Tujuan penelitian ini adalah mendapatkan katalis berbasis nikel yang memiliki kinerja yang baik untuk *steam reforming* tar dengan memilih penyangga γ -Al₂O₃ atau α -Al₂O₃, dan menambah promotor CaO untuk menghambat deaktivasi akibat pembentukan arang.

2. Metodologi

2.1 Percobaan

Penelitian ini terdiri dari tiga tahapan percobaan, yaitu sintesis penyangga alumina dan katalis Ni/Al₂O₃, pengujian aktivitas katalis, dan pengujian stabilitas katalis (uji pembentukan arang). Secara keseluruhan, tahapan dalam penelitian ini dapat dilihat pada diagram alir penelitian pada Gambar 1.

Penyangga γ -Al₂O₃ dan α -Al₂O₃ dibuat dari bahan baku *boehmite (catapal B)* dengan metode sol gel. *Boehmite* sebelum digunakan untuk sintesis penyangga diuji TGA (*Thermogravimetric Analysis*) dan DTA (*Differential Thermal Analysis*) terlebih dahulu untuk menentukan temperatur perubahan fasa pada alumina.

Dalam penelitian ini, untuk membuat 1 resep penyangga γ -Al₂O₃ dan α -Al₂O₃ diperlukan 3 gram serbuk *catapal B*, yang kemudian dicampur dengan air. Untuk mempermudah pembentukan penyangga menjadi bentuk yang diinginkan, *catapal B* ditambah larutan asam nitrat (HNO₃) dengan konsentrasi 2,5% berat untuk menghasilkan gel alumina. Penambahan larutan amonium hidrida (NH₄OH) juga dilakukan dengan tujuan agar campuran gel alumina menjadi lebih menggumpal dan memadat sehingga 'adonan' dapat dibentuk ekstrudat dengan diameter 2 mm dan panjang sekitar 50 mm. Penyangga kemudian dikeringkan pada temperatur 120 °C selama 2,5 jam dan kemudian dikalsinasi pada temperatur

tertentu selama 2 jam. Kemudian penyangga hasil sintesis dikarakterisasi dengan XRD (*XRay Diffraction*) untuk mengetahui struktur fasanya dan diukur luas permukaannya dengan metode BET (Brunauer Emmett dan Teller) *surface areameter, The Gas Sorption Process NOVA*.

Katalis dibuat dengan mengimpregnasikan penyangga alumina ke dalam larutan nikel nitrat ($\text{Ni}(\text{NO}_3)_2$) untuk mendapatkan katalis dengan 15% berat

nikel, kemudian dikeringkan pada temperatur 110 °C selama 6 jam dan dikalsinasi pada temperatur 550 °C selama 3 jam. Katalis dikarakterisasi dengan XRD, BET, dan AAS (*Atomic Absorption Spectrometry*) untuk mengetahui kadar nikel hasil sintesis katalis. Penambahan promotor CaO sejumlah 2% dan 5% berat ke dalam katalis $\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ dilakukan untuk melihat penghambatan terbentuknya arang dalam reaksi *steam reforming*.

Gambar 1. Diagram alir penelitian

Gambar 2. Skema rangkaian alat percobaan perengkahan tar di Laboratorium Teknik Reaksi Kimia (TRK) ITB

Sebelum pengujian aktivitas dilakukan proses *purging* yang bertujuan untuk menghilangkan oksigen dari rangkaian alat percobaan, seperti skema pada Gambar 2. *Purging* dilakukan dengan menggunakan gas nitrogen dengan laju alir 70 mL/menit pada temperatur ruang sampai area O₂ analisis kromatografi gas dibawah 1000, kemudian dilanjutkan dengan aktivasi katalis dengan mengalirkan gas H₂ dan N₂ dengan perbandingan 1:10. Temperatur reaktor dinaikkan hingga 20°C di atas temperatur reaksi dengan laju pemanasan 25°C/ 10 menit dan dipertahankan pada temperatur tersebut sampai perbandingan konsentrasi H₂ dan N₂ konstan.

Uji aktivitas katalis dilakukan dengan menggunakan *steam reforming* toluen pada reaktor *fixed bed (tubular)* yang memiliki diameter dalam 1,5 cm dan panjang 10 cm. Kondisi reaksi yang digunakan pada penelitian ini adalah temperatur operasi 700 °C, tekanan atmosferik, dan LHSV = 0,231 per jam. Umpan berupa toluen, air, dan nitrogen dengan konsentrasi toluen di dalam nitrogen yaitu 0,00164-0,00219% mol dan jumlah air yang digunakan 0,18-0,2% mol. Pengujian kinerja katalis dilakukan dengan uji aktivitas selama 10 jam, dan stabilitas dinilai dari turunnya aktivitas dan jumlah arang yang terbentuk selama reaksi 10 jam dengan metode TGA.

2.2 Analisis

Analisis yang dilakukan terhadap hasil percobaan adalah uji aktivitas katalis yang dinyatakan dalam konversi toluen dan uji stabilitas yang diindikasikan dari jumlah arang yang terbentuk pada katalis.

2.2.1 Analisis uji aktivitas

Penentuan jumlah toluen yang terkonversi, dilakukan dengan bantuan *Gas Chromatograph* SP 263-30 Hitachi tipe FID (*Flame Ionization Detector*), dengan kolom SE-30. Konversi toluen dianalisis tiap satu jam sekali pada masukan dan keluaran reaktor. Dengan menggunakan data luas area sampel, dapat dihitung konversi toluen dengan persamaan berikut:

$$\% \text{konversi toluen} = \frac{\text{Area}_{in} - \text{Area}_{out}}{\text{Area}_{in}} \times 100\% \quad (1)$$

2.2.2 Analisis jumlah pembentukan arang

Jumlah arang yang terbentuk dapat diketahui dari pengujian TGA pada katalis Ni/γ-Al₂O₃ setelah reaksi 10 jam dan pada katalis dengan penambahan CaO 5% berat setelah reaksi 10 jam. Selain itu ada atau tidaknya arang yang terbentuk pada katalis setelah reaksi dapat diindikasikan dari puncak-puncak difraktogram XRD, dengan identifikasi yang dibantu oleh *software Xpoder*.

3. Hasil dan Pembahasan

3.1 Sintesis dan karakterisasi penyangga alumina (γ - Al_2O_3 dan α - Al_2O_3)

Perbedaan pembuatan kedua jenis penyangga alumina (γ - Al_2O_3 dan α - Al_2O_3) dari *catapal B* adalah pada temperatur kalsinasinya. Oleh sebab itu, dalam penelitian ini sebelum *catapal B* dipanaskan, dilakukan pengujian TGA dan DTA terlebih dahulu untuk mengetahui dan memastikan temperatur perubahan fasa yang terjadi pada *catapal B* menjadi gamma alumina (γ - Al_2O_3) dan alfa alumina (α - Al_2O_3).

Berdasarkan hasil TGA dan DTA (Gambar 3), dapat dilihat bahwa perubahan fasa dari *catapal B* ke γ - Al_2O_3 mulai terjadi pada temperatur 550 °C, sedangkan perubahan fasa dari γ - Al_2O_3 menjadi α - Al_2O_3 mulai terjadi pada temperatur 1200 °C. Karena operasi *steam reforming* dilakukan pada temperatur 700 °C, maka temperatur kalsinasi untuk mendapatkan γ - Al_2O_3 dari *catapal B* harus lebih tinggi dari temperatur operasi yaitu 750 °C, sedangkan untuk mendapatkan α - Al_2O_3 kalsinasi dilakukan pada temperatur 1200 °C.

Gambar 3. Hasil TGA dan DTA *catapal B*

Gambar 4. Difraktogram penyangga γ - Al_2O_3 dan α - Al_2O_3 hasil sintesis

Pada penelitian ini digunakan *software Xp powder* untuk membantu mengidentifikasi puncak-puncak yang terbentuk pada penyangga hasil sintesis. Dari hasil pengujian dengan XRD yang kemudian dianalisis menggunakan *software* tersebut, ditunjukkan bahwa puncak yang terbentuk dari penyangga hasil sintesis adalah γ -Al₂O₃ (difraktogram bawah pada Gambar 4) dan α -Al₂O₃ (difraktogram atas pada Gambar 4), yang berarti sintesis penyangga pada penelitian ini telah berhasil dilakukan. Dari kedua difraktogram pada Gambar 4 terlihat bahwa fasa α -Al₂O₃ lebih kristalin daripada fasa γ -Al₂O₃, yang ditunjukkan dari puncak-puncak yang lebih *smooth*. Rangkuman hasil karakterisasi kedua penyangga alumina disajikan pada Tabel 1.

Dari Tabel 1 dapat dilihat bahwa luas permukaan penyangga γ -Al₂O₃ jauh lebih besar dibanding dengan luas permukaan α -Al₂O₃, yaitu 167,8 m²/g vs 10,1 m²/g, karena kalsinasi pada temperatur tinggi yang dilakukan untuk mendapatkan α -Al₂O₃ menyebabkan pori-pori kecil yang terdapat pada penyangga *collapse* dan menyatu satu sama lain (Richardson, 1989), sehingga luas permukaan penyangga menjadi berkurang. Itu pula yang menyebabkan volume pori

pada kalsinasi 1200°C menjadi lebih kecil. Data volum pori tersebut digunakan untuk menentukan jumlah larutan impregnan katalis.

3.2 Sintesis dan karakterisasi katalis Ni/Al₂O₃

Pembuatan katalis dilakukan dengan mengimpregnasikan penyangga γ -Al₂O₃ dan α -Al₂O₃ hasil sintesis dengan menggunakan larutan nikel nitrat (Ni(NO₃)₂·6H₂O). Dengan volum pori γ -Al₂O₃ dan α -Al₂O₃ adalah 0,6 dan 0,3 mL/gram, maka untuk mendapatkan katalis 15% Ni/ γ -Al₂O₃ impregnasi dilakukan sebanyak 2 kali dengan konsentrasi larutan nikel nitrat 0,773 gram/mL, sedangkan untuk 15% Ni/ α -Al₂O₃ dilakukan sebanyak 4 kali dengan konsentrasi larutan impregnan 0,727 gram/mL. Hasil karakterisasi katalis sintesis disajikan pada Tabel 2.

Berdasarkan perbandingan puncak XRD dari ketiga katalis yang ditampilkan pada Gambar 5, menunjukkan bahwa katalis sintesis Ni/ α -Al₂O₃ memiliki puncak dan intensitas yang hampir sama dengan katalis Nikel komersial, maka analisis di awal diperkirakan katalis sintesis Ni/ α -Al₂O₃ akan memiliki kinerja yang hampir sama bagusnya dengan Nikel komersial.

Tabel 1. Hasil karakterisasi penyangga γ -Al₂O₃ dan α -Al₂O₃

Parameter	Penyangga	
	Kalsinasi 750 °C	Kalsinasi 1200 °C
XRD(fasa yang terbentuk)	γ -Al ₂ O ₃	α -Al ₂ O ₃
Luas permukaan spesifik (S _{Act}), m ² /g	167,8	10,1
Volum pori, mL/gram	0,6	0,3

Gambar 5. Perbandingan difraktogram XRD katalis sintesis dan nikel komersial

Tabel 2. Hasil karakterisasi nikel sintesis dan nikel komersial

Parameter	Katalis		
	Ni/ γ -Al ₂ O ₃	Ni/ α -Al ₂ O ₃	Ni komersial
Ukuran	10 - 12 mesh	10 - 12 mesh	10 - 12 mesh
Luas permukaan spesifik (S _{ACT}), m ² /g	118,6	9,7	29,1
Kadar Ni	12,1%	10%	8,2%
Fasa XRD	NiO, γ -Al ₂ O ₃ , NiAl ₂ O ₃	NiO, α -Al ₂ O ₃	NiO, α -Al ₂ O ₃ , TiO ₂ , Gibbsite

Hasil pengukuran luas permukaan kedua katalis hasil sintesis menunjukkan luas permukaan yang berkurang dari penyangga sebelum diimpregnasi, karena pori – pori yang terdapat pada penyangga telah diisi oleh fasa aktif (nikel). Hasil pengukuran kadar nikel pada katalis sintesis menggunakan *Atomic Absorption Spectrometry* (AAS), yaitu 12,1% berat pada katalis Ni/ γ -Al₂O₃ dan 10% berat pada katalis Ni/ α -Al₂O₃, dimana kedua katalis sintesis ini memiliki kadar nikel yang lebih rendah dari target yang diinginkan, yaitu 15% berat. Hal ini terjadi karena pada saat proses impregnasi larutan impregnan ke dalam penyangga terdapat larutan yang menempel pada pinggiran gelas ukur dan cawan yang digunakan untuk proses kalsinasi, sehingga kemungkinan jumlah larutan yang masuk ke dalam pori-pori penyangga menjadi berkurang. Sebagai pembanding, katalis nikel komersial memiliki kadar nikel 8,2% berat.

3.3 Analisis hasil uji aktivitas katalis dengan reaksi *steam reforming* toluen

Aktivitas katalis pada penelitian ini dinyatakan dalam persen konversi toluen.

Kurva hasil konversi berbagai katalis ditampilkan pada Gambar 6.

Hasil uji aktivitas menunjukkan bahwa ketiga katalis memiliki tren konversi yang menurun seiring dengan bertambahnya TOS (*Time On Stream*). Katalis Ni/ γ -Al₂O₃ memiliki aktivitas yang hampir sama dengan aktivitas katalis nikel komersial. Katalis Ni/ γ -Al₂O₃ memiliki konversi toluen awal 98% dan turun menjadi 94% pada TOS 10 jam, sedangkan katalis nikel komersial memiliki konversi awal 96%, dan turun hingga 93% pada TOS 10 jam. Katalis Ni/ α -Al₂O₃ memiliki aktivitas yang lebih rendah daripada katalis Ni/ γ -Al₂O₃ maupun katalis komersial, dengan konversi awal 93% dan setelah 10 jam reaksi konversi mencapai 87%. Rata – rata hasil konversi katalis pada penelitian ini cukup baik jika dibandingkan dengan konversi tar yang diinginkan dari proses penghilangan tar secara katalitik pada gasifikasi di temperatur 600 – 850 °C menggunakan katalis nikel, yaitu 95% (Coll dkk.,2001).

Katalis nikel komersial mengandung kadar nikel yang lebih kecil dari katalis Ni/ α -Al₂O₃, yaitu 8,2% vs 10% (lihat kembali Tabel 2), namun tren konversi yang dihasilkan

Gambar 6. Hasil uji aktivitas berbagai katalis pada temperatur operasi 700 °C dan TOS 10 jam

lebih tinggi dari katalis Ni/ α -Al₂O₃. Tetapi katalis nikel komersial (29,1 m²/g) memiliki luas permukaan lebih besar daripada katalis Ni/ α -Al₂O₃ (9,7 m²/g). Besarnya luas permukaan nikel komersial dengan kadar nikel yang kecil menjadikan nikel dapat tersebar dengan baik di permukaan penyangga (dispersi tinggi). Sebaliknya luas permukaan katalis Ni/ α -Al₂O₃ yang kecil, kemungkinan menyebabkan adanya fasa aktif (nikel) yang jumlahnya cukup banyak teraglomerasi di permukaan katalis, dimana luas permukaan kecil ini tidak mampu memuat (loading) fasa aktif yang berjumlah 10% berat (dispersi rendah). Tetapi untuk membuktikan hal tersebut, katalis Ni/ α -Al₂O₃ perlu dikarakterisasi menggunakan SEM (*Scanning Electron Microscopy*). Adanya aglomerasi fasa aktif akan mengurangi luas kontak antara fasa aktif dan reaktan yang menyebabkan aktivitas katalis menjadi lebih rendah.

Berbeda dengan katalis Ni/ γ -Al₂O₃, dengan kadar nikel dan luas permukaan yang lebih tinggi dari katalis nikel komersial (12,1% vs 8,2%) dan (118,6 vs 29,1 m²/g), namun katalis ini tidak menunjukkan hasil aktivitas yang lebih baik dari katalis nikel komersial. Hal ini disebabkan oleh terbentuknya struktur fasa NiAl₂O₃ (lihat kembali Gambar 5) pada katalis Ni/ γ -Al₂O₃ yang kemungkinan tidak aktif, sehingga menyebabkan aktivitas katalis Ni/ γ -Al₂O₃ menjadi lebih rendah dari katalis nikel komersial.

Hasil uji aktivitas ketiga katalis menunjukkan deaktivasi yang hampir sama. Deaktivasi katalis ditunjukkan dari penurunan konversi toluen setiap jamnya, yang diakibatkan oleh terbentuknya arang di permukaan katalis.

3.4 Analisis pembentukan arang pada katalis Ni/ γ -Al₂O₃ dengan XRD

Pembentukan arang pada katalis Ni/ γ -Al₂O₃ setelah reaksi 10 jam, dianalisis menggunakan XRD, dengan puncak yang dibandingkan dengan katalis sebelum reaksi seperti pada Gambar 7.

Dari kurva XRD dapat dilihat bahwa fasa nikel muncul setelah reaksi *steam reforming* berlangsung. Fasa nikel terbentuk pada saat proses reduksi, dimana oksida dari nikel bereaksi dengan hidrogen sehingga membentuk nikel dan uap air. Fasa NiO masih terbentuk pada katalis setelah

reaksi tetapi dengan intensitas yang lebih rendah, yaitu pada $2\theta = 43, 62, 75$, dan 79 . Setelah reaksi *steam reforming*, karbon teridentifikasi pada kurva XRD pada $2\theta = 44,3$ dan $75,9$, yang diberi lambang *plus*, dimana proses identifikasi dilakukan menggunakan *software Xpolder* sehingga 2θ dan intensitasnya dapat ditentukan. Teridentifikasinya karbon dalam XRD memperkuat bukti bahwa katalis setelah reaksi mengandung arang (karbon).

Fasa alumina yang terbentuk pada katalis Ni/ γ -Al₂O₃ setelah reaksi 10 jam masih berupa γ -Al₂O₃ (diberi lambang kotak pada gambar), tidak berubah fasa menjadi α -Al₂O₃, sehingga dapat disimpulkan bahwa katalis Ni/ γ -Al₂O₃ setelah reaksi 10 jam masih cukup baik stabilitasnya.

3.5 Efek penambahan CaO terhadap kinerja katalis Ni/ γ -Al₂O₃

Penambahan CaO dilakukan ke dalam pembuatan katalis yang memiliki aktivitas tertinggi, yaitu katalis Ni/ γ -Al₂O₃ dengan jumlah 2% dan 5% berat. Penambahan CaO dilakukan saat pembuatan penyangga. Hasil pengukuran luas permukaan katalis dengan CaO ditampilkan pada Tabel 3.

Tabel 3. Hasil pengukuran luas permukaan katalis Ni/CaO- γ -Al₂O₃

Katalis	Luas permukaan (m ² /g)
Ni/ γ -Al ₂ O ₃	118,6
Ni/2%CaO- γ -Al ₂ O ₃	121,4
Ni/5%CaO- γ -Al ₂ O ₃	132,4

Hasil pengukuran luas permukaan katalis dengan CaO menunjukkan luas permukaan yang lebih besar dari katalis Ni/ γ -Al₂O₃ tanpa CaO, karena CaO dapat memperbesar rentang distribusi ukuran pori (mesopori).

Pengujian aktivitas katalis Ni/CaO- γ -Al₂O₃ juga dilakukan dengan TOS (*Time On Stream*) 10 jam, dimana hasil pengujian aktivitas katalis disajikan dalam Gambar 8. Aktivitas katalis dengan CaO menunjukkan nilai yang lebih rendah dari katalis tanpa CaO. Dengan kata lain, penambahan CaO menurunkan aktivitas katalis Ni/ γ -Al₂O₃, selain itu juga penambahan CaO tidak memberikan efek yang signifikan terhadap penurunan deaktivasi katalis, yang dilihat dari turunnya konversi setiap jamnya.

Gambar 7. Pola difraksi katalis Ni/ γ -Al₂O₃ sebelum reaksi dan setelah reaksi 10 jam

Gambar 8. Hasil uji aktivitas katalis dengan CaO pada TOS 10 jam

3.6 Analisis kuantitatif pembentukan arang pada katalis

Metode yang dipilih untuk menganalisis jumlah arang pada katalis adalah metode analisis termal (TGA). Dengan TGA, pemanasan katalis dilakukan pada temperatur 900 °C dalam aliran udara dengan laju kenaikan 10 °C/menit. Pengujian ini dilakukan terhadap katalis Ni/ γ -Al₂O₃ dan Ni/5% CaO- γ -Al₂O₃ yang telah digunakan dalam reaksi *steam reforming* toluen selama 10 jam.

Pembakaran arang pada katalis terjadi di atas temperatur 600 °C. Katalis Ni/ γ -Al₂O₃ terjadi pengurangan massa sebesar 3,41 mg pada temperatur di atas 607 °C, yang berarti arang yang terbentuk sebesar 9,5%, sedangkan pada katalis Ni/5% CaO- γ -Al₂O₃ arang yang terbentuk jauh lebih rendah, yaitu 0,65%. Dapat disimpulkan bahwa penambahan CaO dapat menghambat pembentukan arang, karena adanya CaO dapat menghambat stabilitas dan menetralkan keasaman penyangga. Dalam hal ini arang yang terbentuk berkurang sebesar 8,85%.

Gambar 9. Kurva TGA katalis Ni/γ-Al₂O₃ tanpa CaO

Gambar 10. Kurva TGA katalis Ni/5% CaO-γ-Al₂O₃

4. Kesimpulan

Penelitian perengkahan tar dengan reaksi *steam reforming* toluen menggunakan katalis berbasis nikel telah berhasil dilakukan. Sintesis penyangga γ-Al₂O₃ dan α-Al₂O₃ terbukti dari munculnya fasa – fasa tersebut pada hasil XRD. Sintesis katalis Ni/Al₂O₃ telah berhasil dilakukan, terbukti dari adanya fasa nikel oksida dan alumina dari hasil XRD. Uji komposisi dengan AAS menghasilkan kadar nikel 12,1% berat dalam katalis Ni/γ-Al₂O₃ dan 10% berat dalam katalis Ni/α-Al₂O₃ (keduanya lebih rendah dari target yang diinginkan: 15%).

Dari hasil penelitian ditunjukkan bahwa katalis yang memberikan kinerja paling baik untuk *steam reforming* toluen adalah katalis Ni/γ-Al₂O₃ dengan rata – rata konversi 96%. Dalam pengujian aktivitas selama 10 jam, semua katalis terdeaktivasi dengan laju yang hampir sama, dimana salah satu penyebab deaktivasi tersebut adalah akibat pembentukan arang. Penyangga γ-Al₂O₃ pada katalis Ni/γ-Al₂O₃ tetap stabil (tidak berubah fasa menjadi α-Al₂O₃) setelah dioperasikan selama 10 jam pada 700 °C. Penambahan promotor CaO 2% dan 5%

menurunkan aktivitas katalis dan menghambat pembentukan arang, tetapi tidak mengurangi laju deaktivasi.

Daftar Pustaka

Park, H. J.; Park, S. H.; Sohn, J. M.; Park, J.; Jeon, J. K.; Kim, S. S.; Park, Y. K., *Steam reforming of biomass gasification tar using benzene as a model compound over various ni supported metal oxide catalysts. Science Direct, Biosource Technology. 2009*, 101, S101-S103.

Corella, J.; Orio A.; Aznar M. P. *Biomass gasification with air in fluidized bed: reforming of the gas composition with commercial steam reforming catalysts. Ind. Eng. Chem. Res. 1998*, 37, 4617-4624.

Milne, T. A.; Evans, R. J. *Biomass Gasifier 'Tars': Their Nature, Formation, and Conversion; Technical Report for National Renewable Energy Laboratory, (NREL/TP-570-25357), United States, 1998.*

Miyazawa, T.; Kimura, T.; Nishikawa, J.; Kado, S.; Kunimori, K.; Tomishige, K. *Catalytic*

performance of supported ni catalysts in partial oxidation and steam reforming of tar derived from the pyrolysis of wood biomass. *Catalysis Today*. **2006**, 116, 254-262.

Richardson, J. T. Principles of Catalyst Development. *Plenum Press-New York*, September 30th, 1989.

Srinakruang, J.; Sato, K.; Vitidsant, T.; Fujimoto, K. A Highly Efficient Catalyst for Tar Gasification with Steam. *Science Direct, Catalysis Communications*. **2005**, 6, 437-440.

Swierczynski, D.; Libs, S.; Courson, C. Steam reforming of tar from a biomass gasification

process over ni/olivine catalyst using toluene as a model compound. *Applied Catalysis B: Environmental*. **2007**, 74, 211-222.

Uddin, Md. Azhar; Tsuda, H.; Wu, S.; Sasaoka, E. dkk., Catalytic Decomposition of Biomass Tars with Iron Oxide Catalysts. *Science Direct, Fuel*. **2007**, 451-459.

Coll, R. ; Salvado, J. dkk., Steam Reforming Model Compounds, of Biomass Gasification Tars: Conversion at Different Operating Conditions and Tendency Towards Coke Formation. *Fuel Process Technol*. **2001**, 74, 19-31.