



## UJI AKTIVITAS KATALIS Ni-Mo/ZEOLIT PADA REAKSI HIDRORENGKAH FRAKSI SAMPAH PLASTIK (POLIETILEN)

**Kuguh Daryoso\*), Sri Wahyuni, dan Subiyanto Hadi Saputro**

Jurusan Kimia FMIPA Universitas Negeri Semarang

Gedung D6 Kampus Sekaran Gunungpati Telp. (024)8508112 Semarang 50229

### Info Artikel

Sejarah Artikel:  
Diterima Februari 2012  
Disetujui Maret 2012  
Dipublikasikan Mei 2012

Keyword:  
Ni-Mo/ZA  
hydrocracking  
polyethylene  
GC-MS

### Abstract

The catalytic activity test of Ni-Mo/Zeolite catalyst in the hydrocracking reaction of polyethylene (HDPE) waste fraction have been investigated. The purpose of this study was to determine the catalytic activity of Ni-Mo/ZA on hydrocracking reactions of polyethylene waste. This research studied the effect of the mass ratio of catalyst / feed and reaction temperature. The catalysts were prepared by the following procedure: activation by acid and salt (1% HF, 6 M HCl, and 1 N NH<sub>4</sub>Cl), calcination with N<sub>2</sub>, oxidation with O<sub>2</sub>, and finally reduction with H<sub>2</sub>. Further Ni and Mo was impregnated into zeolite with the order: Mo first, then Ni (ratio of Ni : Mo is 1:2). Characterization of catalysts include the determination of surface area by BET method, the acidity of catalyst by gravimetric method, and the distribution of the bimetallic Ni-Mo metal by Atomic Absorption Spectrophotometer (AAS) respectively. Polyethylene plastic waste first treat by the pyrolysis method at a temperature of 550°C while flowing N<sub>2</sub>. Hydrocracking process was operated in a flow- fixed bed reactor by varying the mass ratio of catalyst / feed 1 : 4, 2 : 4, 3 : 4, and operating temperature at 350°C, 400°C, 450°C, 500°C, 550°C for 2 hours. The liquid product of hydrocracking process was analyzed by GC and GC-MS. Analysis of data showed that the greatest catalytic activity of Ni-Mo/ZA at a temperature 500°C resulting a conversion of 1.334%. GC-MS analysis showed that the liquid hydrocracking products at the optimum temperature has a chemical composition consisting of ethanal, 2-propanone and 3-Methyl-2-pentanone.

## Pendahuluan

Plastik merupakan salah satu jenis polimer yang secara umum berbahan dasar polipropilena (PP), polietilena (PE), polistirena (PS), polimetil metakrilat (PMMA), high density polyethylene (HDPE) dan polivinilklorida (PVC). Plastik hingga saat ini masih merupakan bahan yang banyak digunakan oleh kalangan industri maupun rumah tangga. Penggunaan plastik yang sangat tinggi memunculkan akibat terjadinya penumpukan sampah plastik, terutama sampah polietilen yang biasa dipakai sebagai bahan pembuat botol obat, botol susu cair, jerigen pelumas, botol kosmetik, dll. Kemasan berbahan polietilen hanya digunakan untuk sekali pakai sehingga sampah dari bahan polietilen semakin menumpuk seiring seringnya penggunaan bahan polietilen. Sampah plastik merupakan sampah yang tidak mudah diurai secara cepat oleh mikroorganisme.

Pengolahan sampah plastik yang paling sederhana adalah dengan pembakaran, tetapi metode ini tidak ramah bagi lingkungan karena akan meningkatkan emisi gas yang potensial menjadi polutan dan menyebabkan efek rumah kaca, seperti gas karbon dioksida, gas klor,  $\text{SO}_x$  dan beberapa partikulat pencemar lainnya. Penanganan yang tepat terhadap limbah plastik diperlukan sebagai upaya mengantisipasi dampak pencemaran lingkungan hidup dan menjadikan limbah plastik terutama jenis polietilen menjadi produk yang lebih bermanfaat (Rodiansono et al., 2007).

Beberapa cara telah dilakukan untuk mengolah sampah plastik, baik melalui proses fisika maupun proses kimiawi. Proses kimiawi yang telah dilakukan seperti memecah rantai polimer plastik yang sering disebut depolymerization (Joo dan Guin, 1997). Hidrorengkah merupakan suatu cara untuk memecah rantai molekul hidrokarbon yang besar menjadi molekul yang lebih kecil. Pemecahan ini dapat dilakukan dengan menggunakan suhu dan tekanan yang tinggi tanpa adanya katalis, atau suhu dan tekanan yang rendah dengan menggunakan katalis (Clark, 2003).

Proses hidrorengkah sering menggunakan katalis heterogen untuk mempercepat reaksi perengkahan. Penggunaan katalis heterogen lebih menguntungkan, selain lebih stabil dalam suhu tinggi, katalis jenis ini juga lebih mudah dalam pemisahan atau pengambilan kembali dari produk. Pada umumnya katalis heterogen

terdiri atas logam aktif yang diimbangkan pada padatan pengemban seperti zeolit (Trisunaryanti, 2005). Menurut Liu, et al., (2006) zeolit mempunyai aktivitas katalis yang tinggi, tidak mudah menggumpal, mempunyai porositas yang besar, serta stabil terhadap suhu tinggi, selain itu, keberadaan zeolit di Indonesia cukup melimpah dan relatif murah sehingga zeolit berpotensi dijadikan katalis dalam proses hidrorengkahan. Pengembangan logam-logam transisi ke dalam zeolit dapat meningkatkan keasaman katalis. Katalis dari logam seperti Ni dan Mo merupakan katalis yang sangat umum dalam proses perengkahan Nasikin, et al., (2009). Modifikasi zeolit dengan Ni dan Mo yang diimbangkan dalam zeolit alam diharapkan memiliki karakter yang baik dan selektif sebagai katalis dalam proses hidrorengkah sampah plastik (polietilen).

Pada penelitian ini akan dilakukan uji aktivitas katalis Ni-Mo/zeolit alam dalam proses hidrorengkah umpan sampah plastik polietilen dengan memvariasi jumlah massa katalis dengan umpan polietilen. Variasi massa katalis dengan umpan diharapkan akan diperoleh senyawa hidrokarbon yang mempunyai rantai karbon yang lebih pendek, selain itu juga dilakukan variasi temperatur operasi hidrorengkah sehingga diperoleh temperatur optimum reaksi. Temperatur optimum adalah temperatur suatu reaksi yang dapat mencapai laju maksimum dan dapat menghasilkan produk dengan jumlah optimum.

## Metode Penelitian

Alat-alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah Alat-alat gelas (Iwaki TE-32 pyrex), Termometer, Pengayak 100 mesh, Lumpang Porselin, Oven, Furnace (Thermometer Type 21100 Tube Furnace), Reaktor Kalsinasi, Reaktor Pirolisis, Alat Destilasi, Timbangan Elektrik, Desikator, GC HP 5890 Series II, GC-MS (Shimadzu QP-2010s), Gas Sorption Analyzer NOVA 1000 (BATAN Yogyakarta).

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah: ember cat berjenis HDPE, zeolit alam (PT. Prima Zeolita),  $\text{NH}_4\text{Cl}$ ,  $\text{HCl}$ ,  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ,  $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$  yang kesemuanya buatan Merck, gas hidrogen, gas oksigen, gas nitrogen (PT. Samator Gas), air bebas ion.

Untuk meningkatkan kinerja dari zeolit maka zeolit perlu diaktivasi. Zeolit alam dari Wonosari Yogyakarta diaktivasi menggunakan

HF 1%, HCl 6 M, dan  $\text{NH}_4\text{Cl}$  1 M. Sedangkan untuk meningkatkan jumlah situs asam zeolit direndam dalam larutan amonium heptamolibdat ( $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24}\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ) kemudian direfluks dengan larutan nikel nitrat heksahidrat  $\text{Ni}(\text{NO}_3)_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$  sehingga diperoleh sampel Ni-Mo/Zeolit (perbandingan Ni : Mo = 1 : 2)

Katalis yang diperoleh dimasukkan dalam reaktor kemudian dilakukan kalsinasi, oksidasi, dan reduksi. Sampel katalis yang diperoleh kemudian dilakukan karakterisasi menggunakan Spektrofotometer Serapan Atom (SSA), Gas Sorption Analyzer NOVA 1000 dan keasaman dengan metode gravimetri.

Metode pirolisis digunakan untuk mengubah sampah plastik polietilen menjadi umpan. Proses pirolisis dilakukan pada kondisi tertutup pada temperatur  $550^\circ\text{C}$  sehingga dihasilkan produk berupa cairan, padatan kokas dan gas. Produk cair yang keluar ditampung sedangkan produk gas dan padatan kokas tidak digunakan dalam proses hidreregangkah.

Uji Aktivitas Katalis dilakukan dengan cara mengambil sebanyak 5 gram umpan di panaskan sampai terbentuk uap dan dialirkan ke reaktor berisi katalis dengan bantuan aliran gas  $\text{H}_2$  (dengan variasi perbandingan katalis : umpan 1 : 4, 2 : 4, 3 : 4) selain itu juga dilakukan variasi temperatur Hidreregangkah pada  $350^\circ\text{C}$ ,  $400^\circ\text{C}$ ,  $450^\circ\text{C}$ ,  $500^\circ\text{C}$ , dan  $550^\circ\text{C}$ . Uap hasil hidreregangkah kemudian dialirkan ke kondensator sehingga didapatkan produk kondensat dalam fase cair. Produk kondensat yang dihasilkan kemudian analisis menggunakan GC dan GC-MS.

### Hasil dan Pembahasan

Untuk meningkatkan kinerja dari zeolit maka zeolit perlu diaktivasi. Aktivasi dengan HF 1% bertujuan untuk menghilangkan pengotor-pengotor dalam zeolit yang belum hilang saat pencucian dengan aquades sedangkan HCl untuk dealuminasi dalam framework zeolit yang akan keluar membentuk  $\text{AlCl}_3$ . Sedangkan perendaman dengan larutan  $\text{NH}_4\text{Cl}$  dimaksudkan untuk menggantikan kation-kation penyeimbang dalam zeolit dengan  $\text{H}^+$  sehingga didapatkan H-Zeolit Alam.

Impregnasi logam nikel berfungsi untuk meningkatkan jumlah situs asam/situs aktif. Hal ini dikarenakan adanya orbital d yang belum terisi penuh oleh elektron. Sedangkan logam Mo berfungsi sebagai promotor untuk memperkuat kinerja katalis. Semakin besar konsentrasi ion logam yang diembankan akan

cenderung menutupi bagian mulut pori. Hal ini mengakibatkan ion-ion logam tidak dapat masuk sampai ke dalam pori secara merata. Dalam impregnasi ini larutan ion logam dibuat tidak terlalu encer dan tidak terlalu pekat yaitu 1% dari berat zeolit.

Setelah dilakukan aktivasi serta impregnasi logam bimetal Ni-Mo dalam zeolit alam, dilakukan proses kalsinasi, oksidasi, dan reduksi. Kalsinasi katalis bertujuan untuk memperbaiki dispersi logam pada permukaan zeolit. Oksidasi katalis dilakukan untuk mengubah kompleks logam menjadi oksida logam, sedangkan proses reduksi dilakukan untuk mengubah ion logam menjadi atom logam.

**Tabel 1.** Kandungan logam bimetal Ni-Mo dalam katalis Ni-Mo/ZA

| Sampel           | Parameter Uji | Hasil Pengukuran (ppm) |          |          | Hasil Rata-rata | perbandingan |
|------------------|---------------|------------------------|----------|----------|-----------------|--------------|
|                  |               | I                      | II       | III      |                 |              |
| Katalis Ni-Mo/ZA | Ni            | 2214,212               | 2180,865 | 2197,539 | 2197,538        | 1            |
|                  | Mo            | 5366,045               | 5523,407 | 5602,407 | 5497,286        | 2,5          |

Berdasarkan Tabel 1. Dapat dilihat bahwa jumlah logam Ni dan Mo yang terembankan dalam kerangka zeolit sebesar 2197,538 dan 5497,286 ppm. Secara perhitungan teoritis, jika dilihat dari kandungan logam dari garamnya dan pengembanan dilakukan dengan sempurna maka akan menghasilkan rasio Ni : Mo sebesar 1 : 2 tetapi dalam penelitian ini didapatkan rasio Ni : Mo lebih dari 1 : 2 yaitu 1 : 2,5. Hal ini dikarenakan ion logam Mo memiliki ukuran molekul yang lebih besar daripada ukuran ion logam Ni diembankan terlebih dahulu. Ion logam Mo yang diembankan terlebih dahulu cenderung menutup mulut pori zeolit. Hal ini akan mengganggu proses pengembanan ion logam Ni karena ion logam Ni tidak dapat masuk ke dalam pori yang telah ditutup oleh ion logam Mo.

**Tabel 2.** Penentuan jumlah situs asam dalam katalis Ni-Mo/ZA

| Sampel         | Keasaman (mmol/gram) |                     |
|----------------|----------------------|---------------------|
|                | Total (Amonia)       | Permukaan (Piridin) |
| H-ZA           | 2,7314               | 0,3299              |
| Ni-Mo/ZA (1:2) | 3,6517               | 0,5119              |

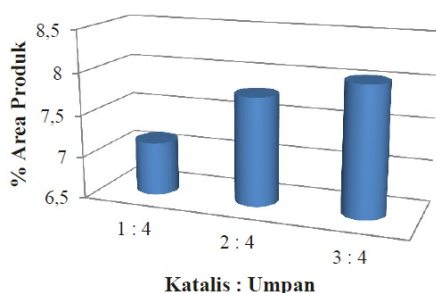
Tabel 2. menunjukkan bahwa keasaman total maupun permukaan katalis Ni-Mo/ZA yaitu sebesar 3,6517 dan 0,5119 mmol/gram lebih besar dari H-zeolit alam yang hanya sebesar 2,7314 dan 0,3299. Hal ini dikarenakan logam Ni dan Mo merupakan logam transisi yang memiliki orbital d kosong atau terisi setengah penuh yang efektif untuk menerima pasangan elektron dari basa adsorbat. Hal ini berarti dengan mengembankan logam Ni dan

Mo membuat keasaman yang lebih tinggi sehingga meningkatkan aktivitas zeolit.

**Tabel 3.** Hasil penentuan luas permukaan spesifik, rerata jejari pori, dan volume total pori katalis menggunakan metode BET

| Sampel      | Luas Permukaan Spesifik (m <sup>2</sup> /g) | Jari-Jari Pori Rerata (Å) | Volume Pori (cc/g)        |
|-------------|---|---------------------------|---------------------------|
| Zeolit Alam | 14,743                                      | 18,379                    | 13,549 x 10 <sup>-3</sup> |
| NiMo/ZA     | 17,229                                      | 26,917                    | 23,188 x 10 <sup>-3</sup> |

Dari Tabel 3. tampak bahwa luas permukaan, rerata jari-jari pori dan volume pori untuk katalis Ni-Mo/ZA lebih besar bila dibandingkan dengan Zeolit Alam. Hal ini menunjukkan bahwa secara fisik katalis Ni-Mo/ZA yang telah dipreparasi lebih unggul daripada Zeolit Alam. Dalam reaksi perengkahan umpan hasil pirolisis, reaktan yang masuk ke dalam katalis adalah molekul yang rata-rata berukuran besar. Oleh karena itu, volume pori katalis yang besar juga memberikan kesempatan yang lebih besar kepada reaktan untuk dapat masuk ke dalam pori katalis sehingga aktivitas katalis dalam mendukung terjadinya reaksi meningkat.

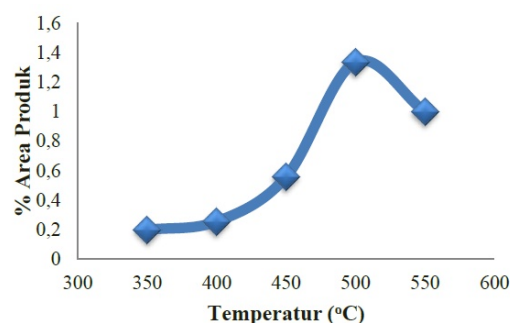


**Gambar 1.** Grafik pengaruh perbandingan massa katalis : umpan terhadap % area produk reaksi hidorengkah polietilen menggunakan Ni-Mo/ZA

Proses pirolisis dilakukan dengan menaikkan temperatur secara bertahap sampai cairan pirolisis keluar dari retort yaitu pada temperatur 550°C. Dari hasil pengamatan visual cairan yang keluar dari retort berwarna kekuningan dan memadat menjadi seperti pasta ketika melewati pendingin. Ditinjau dari sifat fisik umpan hasil pirolisis menunjukkan bahwa telah terjadi depolimerisasi yaitu adanya perubahan bentuk fisik dari padatan menjadi gel. Analisis hasil cairan dengan kromatografi gas menunjukkan bahwa cairan hasil pirolisis mengandung lebih dari 80 senyawa yang cukup sulit untuk diidentifikasi satu per satu. Banyaknya senyawa yang terbentuk selama proses pirolisis merupakan hasil dari reaksi termal cracking yaitu perengkahan yang terjadi karena adanya pemanasan.

Dari Gambar 1. dapat dilihat bahwa

konversi terbesar dihasilkan pada proses hidorengkah dengan perbandingan katalis : umpan 3 : 4 yaitu sebesar 8,032% lebih besar jika dibandingkan dengan perbandingan katalis : umpan 2 : 4 sebesar 7,788 dan 1 : 4 sebesar 7,130. Hal ini menunjukkan bahwa luas permukaan katalis berpengaruh terhadap produk hidorengkah meskipun peningkatan konversi tidak signifikan pada penelitian ini. Semakin banyak katalis yang digunakan maka semakin besar luas permukaan katalis, sehingga semakin banyak situs asam aktif yang berperan dalam proses perengkahan. Dari Tabel 3 dapat dikatakan bahwa perbandingan katalis : umpan 1 : 4 memiliki efektifitas yang paling baik meskipun pada perbandingan ini menghasilkan konversi paling rendah. Hal ini dikarenakan pada perbandingan katalis : umpan sebesar 2 : 4 dan 3 : 4 peningkatan konversi yang terjadi kurang signifikan jika dibandingkan pada perbandingan katalis : umpan sebesar 1 : 4.



**Gambar 2.** Grafik pengaruh temperatur reaksi terhadap % area produk reaksi hidorengkah polietilen menggunakan Ni-Mo/ZA

Berdasarkan Gambar 2. dapat dilihat adanya peningkatan persentase konversi seiring meningkatnya temperatur yaitu pada temperatur 350, 400, 450, 500°C kemudian menurun pada temperatur 550°C. Persen area produk tertinggi diperoleh pada temperatur 500°C yaitu sebesar 1,334 %. Sesuai teori kinetika, reaksi dapat berlangsung bila terjadi kontak antar molekul reaktan dengan orientasi yang tepat dan energi yang cukup. Selain itu peningkatan temperatur juga akan meningkatkan laju reaksi. Peningkatan laju reaksi ini disebabkan oleh meningkatnya konstanta laju reaksi yang merupakan fungsi dari temperatur. Semakin tinggi temperatur maka semakin besar konstanta laju reaksinya. Namun pada temperatur yang terlampaui tinggi yaitu diatas temperatur optimum terjadi penurunan presentase konversi produk. Hal ini dikarenakan laju reaksi yang terlampaui cepat sehingga umpan dalam bentuk gas bergerak



terlalu cepat saat terjadi interaksi dengan situs aktif katalis. Pergerakan yang terlampau cepat menyebabkan proses perengkahan reaktan yang terjadi tidak maksimal.

#### Simpulan

Berdasarkan hasil penelitian dan dapat diambil kesimpulan Katalis Ni Mo/Zeolit Alam yang telah dipreparasi berperan dalam proses hidorengkah sampah polietilen menghasilkan produk hidorengkah dengan rantai hidrokarbon yang pendek. Rasio massa katalis Ni-Mo/Zeolit alam dengan umpan optimum yang menghasilkan konversi sampah polietilen paling besar didapat pada perbandingan 0,75 : 1 yaitu sebesar 8,032 %. Temperatur optimum yang menghasilkan konversi sampah polietilen paling besar diperoleh pada temperatur 5000C yaitu sebesar 1,334 %.

#### Daftar Pustaka

Clarck, Jim. 2003. Cracking Alkanes. <http://www.chemguide.co.uk/organicrops/crackingalkanes-thermand catalytic.htm>

Joo, H.S., dan Guin, J.A., 1997, "Hydrocracking of a Plastics Pyrolysis Gas Oil to Naphtha", *Energy & Fuels*, 11, 586-592.

Liu, J., Cao, Z., Xu, X. 2006. Hydro – upgrading of FCC Gasoline on Ni-Mo-P/USY Catalyst. *Buletin of the Catalysis Society of India*, 5 (2006) 87-93.

Nasikin, M., Susanto, B. H., Hirsaman, M. A., dan Wijanarko, A. 2009. Biogasoline from palm oil by simultaneous and Hydrogenation over Nimo/zeolite Catalyst. *World Appl. Sci.J.*, 5: 74-75.

Rodiansono, Trisunaryanti, W., dan Triyono. 2007. Pembuatan, Karakterisasi dan Uji aktivitas Katalis NiMo/Z dan NiMo/Z-Nb2O5 Pada Reaksi Hidorengkah Fraksi Sampah Plastik Menjadi Fraksi Bensin. *Berkala MIPA*, 17 (2), Mei 2007.

Trisunaryanti, W., Triwahyuni, E., dan Sudiono, S. 2005. Preparasi, Modifikasi dan Karakterisasi Katalis Ni-Mo/Zeolit Alam dan Mo-Ni/Zeolit Alam. *TEKNOIN*, Vol.10, No.4, Desember 2005.