

**PENGARUH EFISIENSI PEMBASAHAN KATALIS TERHADAP KONVERSI SO₂
DALAM REAKTOR TRICKLE BED**

Mahfud¹, F. Husodo², C. Irawan³

ABSTRACT

Trickle-bed reactors, in which gas and liquid flow concurrently downward, is potentially useful for oxidation catalytic of SO₂ with activated carbon as catalyst. To predict trickle bed reactor performance and model its behaviour, it is necessary to know what fraction of the catalyst is effectively wetted by the liquid phase. It is known that contacting efficiency can have a significant effect on the catalyst effectiveness factor for partially wetted catalyst particles. The dynamics tracer method with pulse input is an efficient method for determination of liquid-solid contacting. Axial dispersion, residence time distribution also can be evaluated with this method. The aims of this research are to study the influence of catalyst wetting efficiency in trickle bed reactor on reaction catalytic oxidation SO₂. The experimental apparatus is a trickle bed reactor with 4.8 10⁻² m column diameter and 35 10⁻² m length. The column is packed with activated carbon. The operating conditions of reactor are liquid flow rate 12.2 – 23.7 10⁻⁶ m³/s, gas flow rate 133 – 243.4 10⁻⁶ m³/s, atmospheric pressure, and room temperature. The NaCl solution is used as a tracer with impulse injection mode and a conductometer, which connected to personal computer, detects the outlet tracer concentrations. The results show that the wetting efficiency increases significantly with liquid flow rate, but it slightly increases with gas flow rate. Wetting efficiency is considerably influenced by the form of packing particle and increased with the bed voidage. Catalytic oxidation of SO₂ in trickle bed reactor attains steady state condition about no more than 60 minutes. Conversion of reaction increases with liquid phase rate and the increasing wetting efficiency will increase this conversion.

Keywords: trickle bed reactor, wetting efficiency, activated carbon, oxidation SO₂

INTISARI

Reaktor *Trickle-bed* dimana aliran gas dan liquid searah kebawah sangat potensial digunakan untuk reaksi oksidasi SO₂ dengan karbon aktif sebagai katalis. Untuk memprediksi unjuk kerja reaktor dan model prilakunya, maka perlu diketahui berapa fraksi katalis yang terbasahi secara efektif oleh fasa cair. Telah diketahui bahwa efisiensi kontak dapat mempunyai efek signifikan pada faktor efektifitas katalis untuk katalis yang sebagian terbasahi. Metode pelacak secara dinamik dengan *pulse input* merupakan metode yang tepat untuk menentukan kualitas kontak padat-cair. Dispersi axial, distribusi waktu tinggal dapat juga dievaluasi dengan metode ini. Tujuan dari penelitian ini adalah mempelajari pengaruh efisiensi pembasahan katalis dalam reaktor trikle bed terhadap konversi reaksi katalitik oksidasi SO₂. Peralatan percobaan adalah reaktor trickle bed dengan diameter kolom 4,8 10⁻² m dan panjang kolom 35.10⁻² m. Kolom diisi partikel karbon aktif. Kondisi operasi dari reaktor adalah laju alir liquid 12,2 – 23,7 10⁻⁶ m³/s, laju alir gas 133 – 243,4 10⁻⁶ m³/s, tekanan atmosferik, dan suhu kamar. Larutan NaCl digunakan sebagai pelacak dengan cara injeksi *pulse input*. Konsentrasi pelacak keluar diukur dengan sebuah konduktometer yang terhubung dengan komputer. Hasil penelitian menunjukkan bahwa efisiensi terbasahi meningkat dengan laju alir liquid secara signifikan, tetapi sedikit meningkat dengan laju alir gas. Efisiensi terbasahi sangat dipengaruhi oleh bentuk partikel isian dan meningkat dengan besarnya porositas unggun. Reaksi oksidasi katalitik SO₂ dalam reaktor *trickle bed* mencapai keadaan mantap setelah percobaan berlangsung lebih dari 60 menit. Konversi reaksi sedikit meningkat dengan peningkatan laju alir liquid dan peningkatan efisiensi pembasahan katalis.

Kata kunci : reaktor trickle bed, efisiensi pembasahan, karbon aktif, oksidasi SO₂

^{1,2} Staf pengajar Jurusan Teknik Kimia, FTI, ITS Surabaya, mahfud@shem-eng.its.ac.id

³ Staf pengajar program studi Teknik Kimia, UNLAM, BanjarBaru

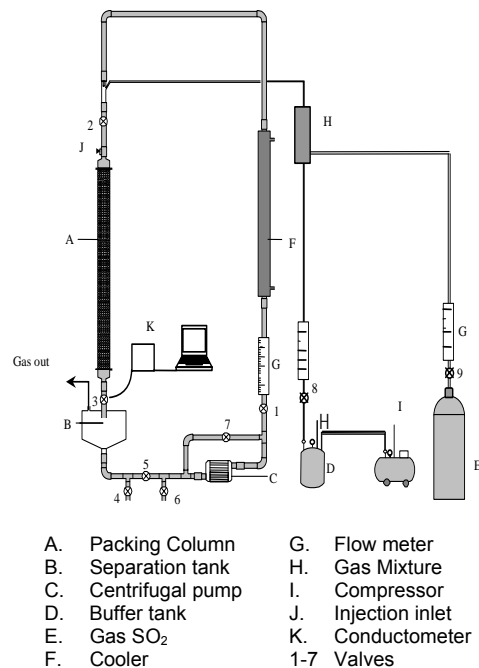
PENDAHULUAN

Reaktor *Trickle bed* adalah reaktor *fixed bed* dengan isian partikel katalis dimana aliran gas dan liquid searah kebawah. Partikel katalis selalu berpori dan biasanya berbentuk bonkahan, pellet, silinder atau bola dengan ukuran antara 1 sampai 3 mm (Dudukovic and Mills, 19-81; Gianetto and Speechia, 1992). Reaktor ini banyak digunakan dalam Industri kimia, Petrokimia dan Industri perminyakan, salah satu aplikasinya untuk pengendalian polusi dan pengolahan limbah cair (Gianetto, 1978, Ng, 1987; Wammes, 19-91). Perbandingan dengan reaktor multifase yang lain, koefisien perpindahan massa yang relatif besar dan fleksibilitas daerah operasinya. Kebanyakan reaktor trickle bed di Industri beroperasi pada tekanan tinggi sekitar 20 – 30 MPa, agar supaya meningkatkan kelarutan gas, perpindahan panas yang baik dan menurunkan kecepatan deaktivasi katalis. Akan tetapi banyak penelitian (Herskowitz and Smith, 1983; Wammes, 1991; Gianetto and Speechia, 1992; Kiared et. al, 1992) yang mengoperasikan pada tekanan atmosfer untuk oksidasi katalitik SO₂ dengan katalis karbon aktif.

Emisi gas yang mengandung SO₂, khususnya dari stasiun pembangkit tenaga dapat dikendalikan secara efektif dengan oksidasi katalitik gas-liquid solid. Produk dari oksidasi adalah asam sulfat yang dapat diambil menjadi bahan kimia yang penting, yang memungkinkan proses desulfurisasi untuk pengendalian udara dapat menguntungkan. Karbon aktif dilaporkan dapat menjadi katalis yang penting untuk sistim ini. (Hartman and Coughlin, 1972; Pavko et al, 1981; Fu et al, 1989). Studi kami yang terdahulu (Mahfud dan Irawan, 2000) tentang oksidasi katalitik SO₂ dalam reaktor trickle bed menggunakan katalis karbon aktif granular sebagai isian, menunjukkan bahwa konversi reaksi dipengaruhi faktor hidrodinamik, khususnya laju alir liquid. Hal ini mungkin dapat disebabkan efisiensi pembasahan katalis yang dipengaruhi laju alir liquid. Oleh karena itu, diperlukan untuk mengklarifikasi pengaruh efisiensi pembasahan terhadap konversi reaksi dalam reaktor trickle bed. Teknik pelacak dipilih untuk menentukan efisiensi

pembasahan katalis bagian luar (*external catalyst wetting efficiency*), karena metode ini relatif cepat dan banyak memberikan informasi dan memungkinkan menentukan efisiensi pembasahan katalis pada kondisi operasi sesungguhnya (Dudukovic and Mills, 1981).

Reaktor *trickle bed* yang digunakan pada penelitian ini berisi karbon aktif sebagai katalis yang dioperasikan pada suhu kamar dan tekanan atmosfer. Diameter dalam reaktor adalah $4,8 \times 10^{-2}$ m dengan tinggi 35×10^{-2} m berupa kolom kaca yang terbuat dari bahan fiber glass. (Gambar 1)



Gambar 1. Peralatan Percobaan

Kolom ini dilengkapi dengan tempat injeksi tracer, valve pengambilan sampel dan pada bagian bawah dihubungkan ke konduktometer. Selain itu di bagian bawah kolom, terdapat tangki pemisah untuk memisahkan fasa cair dan gas. Fasa cair dapat disirkulasikan oleh pompa dengan dilewatkan melalui cooler sebelum masuk kembali ke kolom. Pada bagian sebelum kolom dilengkapi dengan saluran dari pencampur gas. Pencampur ini digunakan untuk mencampur udara yang berasal dari kompresor dan gas SO₂ yang diperoleh dari tabung penyimpan.

pan. Untuk penelitian efisiensi terbasahi, saluran pencampur dari gas SO₂ ditutup sehingga hanya udara yang masuk ke dalam reaktor.

Laju alir volumetrik fasa cair diatur dengan menggunakan rotameter yang telah dikalibrasi yang terpasang pada rangkaian peralatan, begitu juga laju alir volumetrik fasa gas diatur. Konsentrasi pelacak (tracer) diukur dengan menggunakan konduktometer OMEGA CDTX-83 yang dihubungkan komputer. Dengan menggunakan program acuisisi data (Datataker DT600) secara *single ended current input* maka data konsentrasi dapat tercatat di komputer yang kemudian diproses secara numerik.

Adapun prosedur pengujian dengan cara: air sebagai fase cair diisikan kedalam tangki penampung / pemisah. Kemudian disirkulasikan dengan menggunakan pompa ke puncak kolom. Laju alir gas dan liquid diatur sesuai variabel yang ditetapkan.

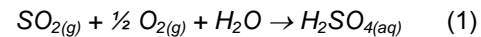
Pengukuran efisiensi pembasahan katalis dilakukan dengan metode dinamik yang telah digunakan oleh Al-Dahhan et.al (1996). Pengukuran ini memerlukan dua macam kondisi operasi reaktor : aliran liquid saja (*full-liquid flow*) dan aliran dua fase. Kondisi *Full-liquid flow* ditentukan dengan memasukkan fase liquid pada laju alir tertentu ke dalam kolom tanpa fase gas. Pelacak NaCl (larutan) diinjeksikan dengan cara *pulse input* pada bagian atas kolom dan konsentrasi pelacak pada bagian keluar reaktor didekati dengan konduktometer yang dihubungkan dengan komputer, yang selanjutnya data yang diperoleh diolah untuk perhitungan diffusivitas efektif dalam *full liquid* (D_{FL}). Sedangkan aliran dua fasa ditentukan dengan mengalirkan secara bersamaan fase liquid (air) dan gas (udara) pada laju alir tertentu kedalam kolom. Setelah keadaan mantap, sejumlah larutan NaCl diinjeksikan dengan cara *pulse input*, selanjutnya dengan cara yang sama diperoleh diffusivitas efektif dalam dua fasa (D_{TF}). Efisiensi pembasahan (*Wetting efficiency*) dihitung dari akar perbandingan antara *diffusivitas efektif* dalam *full liquid* dan *diffusivitas efektif* dalam dua fasa. Diffusivitas efektif dihitung dari kurva distribusi waktu tinggal

melalui perhitungan momen orde-1, orde-2 dan varian.

Kondisi Operasi dan variabel

- Temperatur : 29 °C
- Tekanan : Atmosferik
- Jenis packing : Karbon aktif
 - Granular : d = 4,76 x 10⁻³ m
 - silinder : d = 3 x 10⁻³ m;
 - L = 6,5 x 10⁻³ m
- Laju alir Liquid : 12,2 – 23,7 .10⁻⁶ m³/s
- Laju alir gas : 133 – 243,4 .10⁻⁶ m³/s
- Kadar SO₂ masuk : 0,105 – 1,12 %

Reaksi global yang terjadi dinyatakan dengan persamaan stoichimetri berikut :



Fluks konsumsi spesifik dan fraksi SO₂ yang bereaksi pada keadaan mantap dihitung dari rumus berikut :

$$r_{\text{SO}_2} \cdot V = Q_G \frac{P}{RT} (y_{\text{SO}_2, \text{out}} - y_{\text{SO}_2, \text{in}}) \quad (2)$$

$$X = \frac{y_{\text{SO}_2, \text{out}} - y_{\text{SO}_2, \text{in}}}{y_{\text{SO}_2, \text{out}}} \quad (3)$$

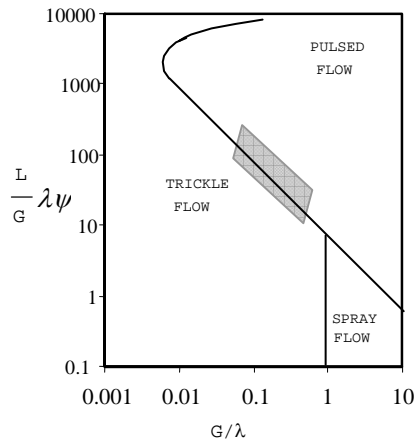
PEMBAHASAN

Regim hidrodinamika untuk penelitian ini ditunjukkan pada gambar 2. Bagian yang diarsir menunjukkan daerah *experimental*, dan dapat diklasifikasikan sebagian regim *trickling* dan sebagian regim *pulsing* menurut Charpentier (1976), atau dapat dikelompokkan dalam daerah interaksi buruk (*poor interaction zone*). Kecepatan superfisial terletak diantara 6,75 – 13,09 . 10⁻³ m/s untuk fase liquid dan 73,5 – 134,5 . 10⁻³ m/s untuk fase gas. Fluks massa Liquid adalah 24207,75 – 46939,66 kg/m².h dan fluks massa gas 317,4 – 580,9 kg/m².h.

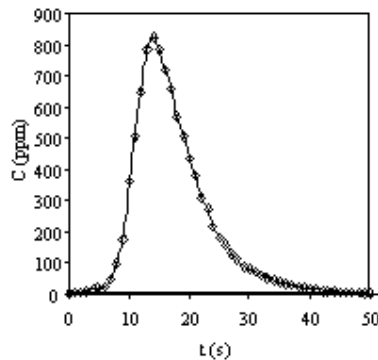
Gambar 3 menunjukkan suatu contoh profil konsentrasi pelacak pada bagian keluar kolom untuk kondisi aliran *full liquid flow*.

Penentuan efisiensi pembasahan katalis didasarkan pada diffusivitas efektif dari packing pada kondisi aliran dua fase dan kondisi aliran liquid saja (*full liquid*). *Full liquid* adalah kondisi aliran liquid dengan asumsi semua bagian luar katalis terbasahi. Diffusivitas efektif diperoleh

dari grafik varian (σ_D^2) vs laju alir liquid. Harga diffusivitas efektif untuk karbon aktif granular adalah $3,36 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ dan $1,47 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ untuk karbon aktif silinder.



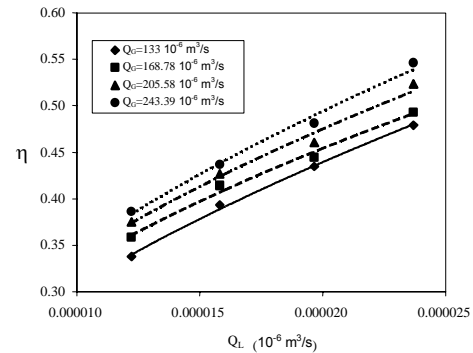
Gambar 2. Batas-batas regim menurut Charpentier (1976)



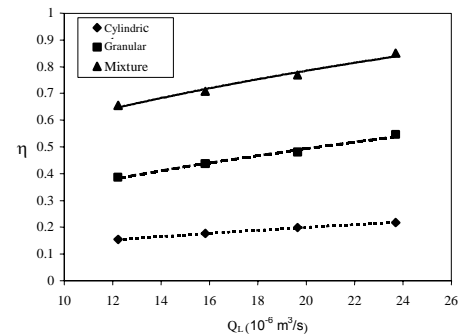
Gambar 3. Profil konsentrasi pelacak bagian keluar reaktor untuk packing karbon aktif (full liquid ; $Q_L = 19,65 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$)

Efisiensi pembasahan fungsi laju alir liquid untuk beberapa laju alir gas disajikan pada gambar 4. Gambar ini menunjukkan bahwa secara umum efisiensi pembasahan meningkat secara signifikan dengan peningkatan laju alir liquid, dan harga efisiensi pembasahan yang diperoleh relatif rendah (0,34 – 0,55) dibandingkan dengan yang diperoleh oleh Al-Dahhan et al. (1996), hal ini bisa disebabkan karena perbedaan regim hidrodinamika yang berbeda dan mungkin akibat distribusi liquid diatas kolom kurang bagus. Peningkatan laju alir liquid akan

meningkatkan liquid hold-up, sehingga permukaan luar katalis lebih banyak memiliki kesempatan berkontak dengan liquid. Akan tetapi peningkatan laju alir gas akan meningkatkan penurunan tekanan yang menyebabkan permukaan film cairan di permukaan katalis lebih besar karena penyebaran yang bagus dari aliran liquid.



Gambar 4. Efisiensi pembasahan Vs laju alir liquid



Gambar 5. Efisiensi pembasahan untuk berbagai bentuk partikel packing

Gambar 5 menggambarkan pengaruh bentuk partikel packing pada efisiensi pembasahan. Gambar ini menunjukkan bahwa bentuk partikel karbon aktif sangat berpengaruh pada efisiensi pembasahan. Efisiensi pembasahan untuk packing karbon aktif silinder adalah 14,7 – 21,8% dan untuk bentuk granular adalah 33,8 – 54,6%. Akan tetapi efisiensi pembasahan untuk campuran packing 2 bentuk tersebut diatas meningkat tinggi sekali berkisar antara 52,3 – 85%. Hal ini dapat disebabkan karena peningkatan porositas unggun : yang pertama (granular $\epsilon_B = 0,26$) lebih kecil dari yang kedua

(silinder $\varepsilon_B = 0,23$) dan yang ketiga (campuran granular & silinder $\varepsilon_B = 0,37$).

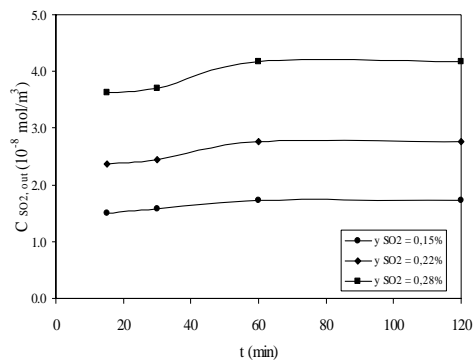
Hasil dari penelitian ini menunjukkan bahwa campuran 2 bentuk partikel karbon aktif meningkatkan porositas unggun dan meningkatkan liquid hold up dan akibatnya meningkatkan efisiensi pembasahan sampai 40-70%.

Efisiensi pembasahan dapat dikorelasikan fungsi laju alir gas dan liquid sbb:

$$\eta = 0.000734 \cdot L^{0.496} \cdot G^{0.197} \text{ granular}$$

$$\eta = 0.002161 \cdot L^{0.356} \cdot G^{0.332} \text{ gran-sil.}$$

$$\eta = 0.000428 \cdot L^{0.533} \cdot G^{0.0797} \text{ silinder}$$



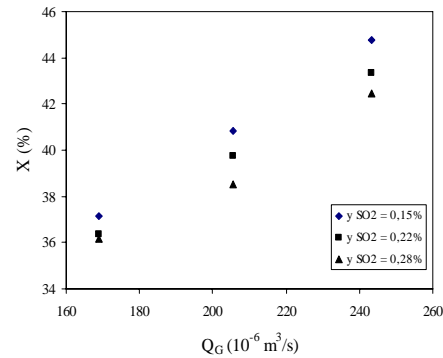
Gambar 6. Profil Konsentrasi SO_2 keluar

Gambar 6 menunjukkan profil konsentrasi SO_2 pada bagian keluar reaktor (berkeselimbangan SO_2 terlarut dalam fase *liquid*). Dari gambar tersebut menunjukkan bahwa pada awal operasi konsentrasi SO_2 meningkat secara konstan sampai suatu konsentrasi tertentu (sekitar 60 menit), kemudian mencapai keadaan mantap (nilai konversi konstan). Fenomena ini menunjukkan bahwa keadaan awal proses absorpsi SO_2 terjadi dalam fase liquid, kemudian setelah konsentrasi SO_2 jenuh dan berkeselimbangan, konsumsi SO_2 hanya karena reaksi katalitik

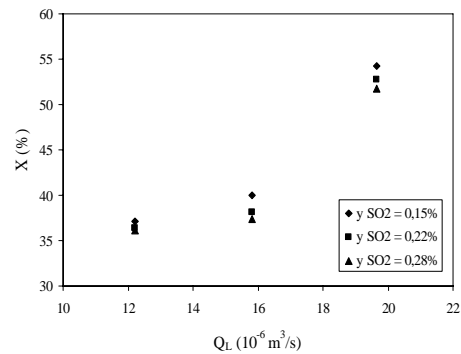
Konversi SO_2 meningkat dengan peningkatan laju alir gas seperti ditunjukkan oleh Gambar 7. Pengaruh ini dapat disebabkan oleh peningkatan efisiensi pembasahan katalis dan juga karena peningkatan perpindahan massa. Akan tetapi peningkatan laju alir gas akan menurunkan waktu kontak dalam reaktor.

Gambar 8 menunjukkan peningkatan laju alir liquid meningkatkan konversi SO_2 secara signifikan. Hal ini juga

disebabkan oleh peningkatan faktor hidrodinamik dan perpindahan massa, dan juga karena peningkatan efisiensi pembasahan katalis, tetapi tidak menurun dengan penurunan waktu kontak dengan gas dalam reaktor.



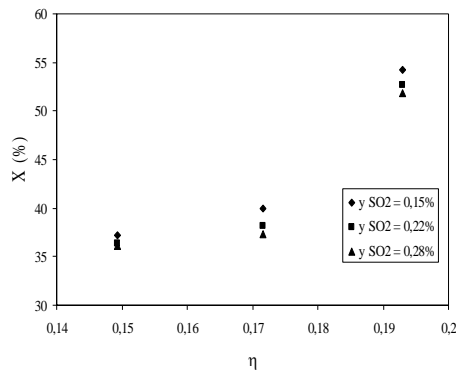
Gambar 7. Efek laju alir Gas pada konversi SO_2



Gambar 8. Efek laju alir liquid pada konversi SO_2

Hubungan antara konversi reaksi katalitik dengan efisiensi pembasahan ditunjukkan dalam gambar 9. Dari gambar ini menunjukkan bahwa konversi meningkat dengan peningkatan efisiensi katalis.

Peningkatan efisiensi pembasahan katalis akan berpengaruh pada luas permukaan dimana reaksi katalitik berlangsung, sehingga akan meningkatkan laju dan konversi reaksi. Hal ini menunjukkan tidak adanya reaksi gas padat katalitik pada permukaan katalis yang tidak terbasahi. Oleh karena itu efisiensi pembasahan merupakan faktor yang penting untuk ujuk kerja reaktor trickle bed.



Gambar 9. Hubungan antara efisiensi pem-basahan dan konversi SO₂ (Q_L=12,22.10⁻⁶ m³/s; Q_G=168,78.10⁻⁶ m³/s)

KESIMPULAN

Efisiensi pembasahan katalis meningkat secara signifikan dengan laju alir liquid, tetapi sedikit meningkat dengan laju alir gas.

Nilai Efisiensi pembasahan relatif rendah berkisar antara 0,34 – 0,55.

Efisiensi pembasahan sangat dipengaruhi oleh bentuk dari packing (partikel isian) dan meningkat dengan semakin besarnya porositas unggun (bed void-age).

Konversi reaksi meningkat dengan naiknya laju alir liquid, maupun dengan naiknya laju alir gas.

Konversi reaksi meningkat dengan peningkatan efisiensi pembasahan katalis. Oleh karena itu efisiensi katalis merupakan faktor yang penting untuk pengoperasian optimal dari reaktor trickle bed.

NOTASI

C : konsentrasi	[mol.m ⁻³]
Q : laju alir	[m ³ .s ⁻¹]
t : waktu	[s]
d : diameter partikel	[m]
D : diffusivitas	[m ² .s ⁻¹]
V : volume	[m ³]
G : fluks massa gas	[kg.m ⁻² .s ⁻¹]
L : fluks massa liquid	[kg.m ⁻² .s ⁻¹]
y : mol fraksi gas	[-]
X : konversi reaksi	[-]

symbol

ε _B : porositas bed	[-]
--------------------------------	-----

η : efisiensi pembasahan	[-]
μ ₁ : moment orde 1	[s]
μ ₂ : moment orde 2	[s ²]
σ ² : varian	[s ²]

Subscripts

G	= fase gas
L	= fase liquid
FL	= aliran full liquid
TF	= aliran dua fase

DAFTAR PUSTAKA

- Al-Dahhan, M.H. and M.P. Dudukovic, 1996, "Catalyst Bed Dilution for Improving Catalyst Wetting in Laboratory Trickle-Bed Reactors", *AIChE J.*, 42, 2594.
- Charpentier, J.C. and M. Favier, 1975, "Some Liquid Holdup Experimental Data in Trickle Bed Reactors for Foaming and Nonfoaming Hydrocarbons", *AIChE J.*, 21, 1213.
- Dudukovic, M.P. dan P.L. Mills, 1981, "Evaluation of Liquid-Solid Contacting in Trickle-Bed Reactors by Tracer Methods", *AIChE J.*, 27, 893.
- Fu, C.-C., B. J. McCoy, and J.M. Smith, 1989, "Slurry Reactor Studies of Homogeneous and Heterogeneous Reaction", *AIChE J.*, 35, 259.
- Gianetto, A., and V. Specchia, 1992, "Trickle Bed Reactor: state of the art and perspectives", *Chem. Eng. Sci.*, 24, 6.
- Goto, S., and Smith, J.M., 1975, "Trickle Bed Reactor Performance", *AIChE J.*, 21, 4.
- Hartman, M., and R.W. Coughlin, 1972, "Oxidation of SO₂ in a Trickle-Bed Reactor Packed with Carbon", *Chem. Eng. Sci.*, 27, 867.
- Herskowitz, M., and J.M. Smith, 1983, "Trickle-Bed Reactors: A Review" *AIChE J.*, 29, 1.
- Kiared, K., Mahfud, and A. Zoulalian, 19-91, "Study and Analysis of Catalytic Sulfur Dioxide in Verlifex Three-Phase Reactor", *1st International Conference on Environmental Pollution (ICEP. 1)*, 1, 204.
- Mahfud, and C.Irawan, 2001, "Oxydation of SO₂ in Trickle Bed Reactor",

*Indonesian Journal of Chem.
Eng.*, 1,1.
Wammes, W.J.A., Middelkamp, J., Huis-
man, W.J., DeBass, C.M., and

Westerterp, K.R., 1991, "Hydro-
dynamics in a Cocurrent Gas-Li-
quid Trickle Bed at Elevated
Pressure", *AIChE J.*, 37, 12.

