

541.29
SuH
R e1

PENELITIAN DASAR



LAPORAN KEGIATAN

**REAKSI RUNAWAY PADA REAKTOR
UNGGUN TETAP KATALITIK**

Oleh:

Suherman, ST., MT.
M. Djaeni, ST, M.Eng
Hadiyanto, ST, M.Sc

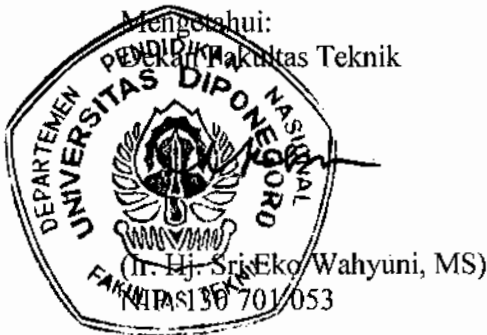
Dibiayai Oleh Proyek Pengkajian dan Penelitian Ilmu Pengetahuan dan Teknologi,
Direktorat Jenderal Pendidikan Tinggi, Departemen Pendidikan Nasional, sesuai dengan
Surat Perjanjian Pelaksanaan Penelitian Dasar
Nomor : 68/P21PT/DPPM/PID/111/2004 tanggal 1 (satu) bulan Maret tahun 2004

**FAKULTAS TEKNIK
UNIVERSITAS DIPONEGORO
Oktober, 2004**

LEMBAR IDENTITAS DAN PENGESAHAN LAPORAN AKHIR HASIL PENELITIAN DASAR

1. Judul Penelitian : Reaksi *Runaway* Pada Reaktor Unggun Tetap Katalitik
2. Ketua Peneliti
- a. Nama Lengkap dan Gelar : Suherman, ST, MT
- b. Jenis Kelamin : L/P
- c. Pangkat/Golongan/NIP : Penata Muda / IIIA / 132 281 752
- d. Jabatan Fungsional : Asisten Ahli
- e. Fakultas/Jurusan : Teknik/Teknik Kimia
- f. Univ/Inst/Akademi/Sek Tinggi : Universitas Diponegoro
- g. Pusat Penelitian : -
3. Jumlah Anggota Peneliti : 2 Orang
4. Lokasi Penelitian : - Laboratorium Komputasi Proses, dan
- Laboratorium Teknik Reaksi
Jurusan Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas
Diponegoro, Semarang
5. Kerjasama dengan Institusi Lain :
- a. Nama Institusi : PT. Pupuk Kaltim
- b. Alamat : Bontang, Kalimantan Timur
6. Masa Penelitian : 9 (sembilan) bulan
7. Biaya yang Diperlukan : Rp. 15.000.000,-
(Lima Belas Juta Rupiah)

Semarang, 28 Oktober 2004
Ketua Peneliti,



(Suherman, ST., MT.)
NIP 132 281 752



UPT-PUSTAK-UNDIP	
No. Daft.:	605/KI/FR/e1
Tgl.:	21/3/02

RINGKASAN

REAKSI *RUNAWAY* PADA REAKTOR UNGGUN TETAP KATALITIK

Suherman, Muhammad Djaeni, dan Hadiyanto
(2004, 46 hal.)

Dalam pengoperasian reaktor unggun tetap katalitik seringkali dijumpai masalah distribusi aliran tidak merata dan panas terlokalisir. Kedua masalah ini sangat komplikatif dan saling mempengaruhi serta akan menurunkan kinerja reaktor. Terlebih jika reaktor melangsungkan reaksi-reaksi yang bersifat eksotermik dan kompleks, maka sangatlah memungkinkan terjadinya reaksi runaway. Reaksi runaway ini ditandai dengan naiknya temperatur reaktor yang sangat tinggi dan mendadak. Jika peristiwa ini terjadi, maka akan sulit ditangani dan terjadilah ledakan reaktor.

Tujuan penelitian ini adalah mencari penyebab terjadinya reaksi runaway pada reaktor unggun tetap katalitik. Salah satu penyebab terbesar adalah pengoperasian reaktor yang berada dalam kondisi yang tidak sesuai dengan desain. Untuk itu, akan dipelajari pengaruh laju alir massa umpan, konsentrasi reaktan di umpan, temperatur umpan dan temperatur pendingin terhadap kecenderungan terjadinya reaksi runaway. Reaksi yang dikaji adalah reaksi oksidasi metanol menjadi formaldehid menggunakan katalis Besi Molibdenum Oksida (Fe/Mo/O) seperti yang digunakan pada reaktor di unit produksi formaldehid PT. Pupuk Kaltim.

Penelitian dilaksanakan dengan melakukan kegiatan eksperimental di laboratorium dan simulasi menggunakan komputer. Reaktor dirancang dari pipa gelas tahan panas yang dibalut dengan sabuk pemanas dimana temperatur sabuk pemanas dikendalikan menggunakan termostatur. Untuk mendapatkan data temperatur reaktor maka digunakan termokopel. Sedangkan simulasi menggunakan komputer dilakukan melalui beberapa tahapan yakni; pemodelan, pengumpulan data pendukung, dan validasi. Selanjutnya dilakukan simulasi dengan menganalisis sensitivitas laju alir massa umpan, konsentrasi reaktan di umpan, temperatur umpan dan temperatur pendingin terhadap terjadinya reaksi runaway.

Hasil penelitian menunjukkan bahwa; (i) program komputer yang digunakan dalam simulasi ini telah terbukti benar menurut kaidah-kaidah proses dan hasil prediksinya secara kualitatif dan kuantitatif mendekati hasil eksperimen, (ii) di dalam reaktor unggun tetap terjadi distribusi aliran tidak merata dan temperatur *hot spot*, (iii) analisis sensitivitas parameter operasi menunjukkan bahwa perubahan kondisi temperatur umpan, temperatur dinding dan laju

alir massa umpan tidak akan mengarah atau mendorong terjadinya reaksi *runaway*, (iv) reaksi *runaway* hanya akan terjadi jika konsentrasi metanol di umpan sangat tinggi (melebihi batas desain reaktor), dalam penelitian ini direkomendasikan fraksi metanol dalam umpan tidak boleh lebih dari 0,1.

Jurusan Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Diponegoro Semarang

Nomor : 68/P21PT/DPPM/PID/III/2004

SUMMARY

RUNAWAY REACTION ON FIXED BED CATALYTIC REACTOR

Suherman, Muhammad Djaeni, dan Hadiyanto

(2004, 46 pages)

The frequently problems on the operation of fixed bed reactor are flow maldistribution and hot spot. These are very complicate, dependent and will decrease the performance of reactor. Intended for exothermic reactions and complex, the reactor is possibly will thermal runaway reaction. This reaction is indicated with greatly and suddenly of increasing of temperature. Therefore, the accident of reactor will be occurred.

The aim of this research is finding the source of thermal runaway reaction on fixed bed catalytic reactor. The operation of reactor isn't on design operation condition is one of the source of runaway reaction. For this case, it will be studied the effect of feed rate, mol feed fraction, feed temperature and wall temperature, to runaway reaction. The studied reaction is partial oxidation of methanol to formaldehyde using Ferric Molibdate Oxide (Fe/Mo/O) like in formaldehyde production unit of PT. Pupuk Kaltim.

This research is considered the experimental in laboratory and computer simulation. Reactor is designed from glass, which it is heated and controlled by termo-regulator. The temperature is indicated by termocouple. Computer simulation are consist of modelling, literature data collection and validation. The variable of simulation are feed rate, feed fraction, feed temperature and wall temperature.

The result show; (i) computer program is valid based on chemical engineering tools and the prediction is good compared experimental data, (ii) the flow maldistribution and hot spot is occurred on fixed bed catalytic reactor, (iii) feed temperature, wall temperature, and feed rate is not affected to runaway reaction, (iv) runaway reaction will be occurred if feed fraction of methanol is higher than design value, in this case not more than 0.1.

Chemical Engineering Department, Engineering Faculty, Diponegoro University, Semarang

Number: 68/P21PT/DPPM/PID/III/2004

PRAKATA

Alhamdulillah, kami panjatkan ke hadirat Allah Swt, atas rahmat dan hidayah-Nya, sehingga penelitian kami yang berjudul **“Reaksi Runaway pada Reaktor Unggun Tetap Katalitik”**, dapat kami selesaikan dengan baik.

Kegiatan penelitian ini dibiayai oleh Proyek Pengkajian dan Penelitian Ilmu Pengetahuan dan Teknologi, Direktorat Jenderal Pendidikan Tinggi, Departemen Pendidikan Nasional, sesuai dengan Surat Perjanjian Pelaksanaan Penelitian Dasar, Nomor: 68/P21PT/DPPM/PID/III/2004 tanggal 1 (satu) bulan Maret tahun 2004.

Penelitian ini dilaksanakan selama 9 bulan, terdiri atas kegiatan eksperimental di Laboratorium Rekayasa Proses dan Laboratorium Komputasi Proses di Jurusan Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Diponegoro. Kegiatan penelitian dibantu juga oleh PT. Pupuk Kaltim yang telah memberikan katalis. Dalam pelaksanaanya, penelitian ini juga melibatkan mahasiswa.

Kami berharap, semoga hasil penelitian ini dapat memberikan sumbangsih bagi kemajuan ilmu pengetahuan dan teknologi. Kami menyadari, bahwa dalam penulisan laporan penelitian ini masih jauh dari kesempurnaan. Untuk itu kritik dan saran dari para pembaca sangat kami harapkan.

Akhirnya kepada semua pihak yang telah membantu kelancaran pelaksanaan kegiatan penelitian ini, kami ucapkan terima kasih.

Semarang, 28 Oktober 2004

ttd

Tim Peneliti

DAFTAR ISI

	Halaman
LEMBAR IDENTITAS DAN PENGESAHAN	ii
RINGKASAN DAN <i>SUMMARY</i>	iii
PRAKATA	vi
DAFTAR ISI	vii
DAFTAR TABEL	viii
DAFTAR GAMBAR	ix
DAFTAR LAMPIRAN	x
I. PENDAHULUAN	
1.1. Latar Belakang	1
1.2. Perumusan Masalah	2
II. TINJAUAN PUSTAKA	
2.1 Reaksi Oksidasi Metanol Menjadi Formaldehid	5
2.2 Perpindahan Momentum, Panas dan Massa	8
2.3 Reaksi <i>Runaway</i>	11
III. TUJUAN DAN MANFAAT PENELITIAN	
3.1 Tujuan Penelitian	14
3.2 Manfaat Penelitian	14
IV. METODE PENELITIAN	
4.1 Percobaan Laboratorium	15
4.2 Simulasi Komputer	16
V. HASIL DAN PEMBAHASAN	
5.1 Verifikasi Program	21
5.2 Analisis Dua Dimensi	22
5.3 Sensitivitas Kondisi Operasi Terhadap Temperatur <i>Runaway</i>	30
5.4 Kegiatan Eksperimental	35
VI. KESIMPULAN DAN SARAN	
6.1 Kesimpulan	36
6.2 Saran	36
DAFTAR PUSTAKA	37

DAFTAR TABEL

Tabel 2.1 Beberapa reaksi samping

Halaman
~ 6

DAFTAR GAMBAR

	Halaman
Gambar 2.1 Siklus redoks Machiels	7
Gambar 2.2 Profil fraksi ruang kosong ke arah radial	10
Gambar 2.3 Hubungan P_{emr} terhadap Re	11
Gambar 2.4 Hubungan λ_{er}^f terhadap Re	11
Gambar 2.5 Profil temperatur sepanjang reactor unggun tetap	12
Gambar 2.6 Kestimbangan energi oksidasi	13
Gambar 4.1 Skema peralatan laboratorium	16
Gambar 4.2 Diagram blok metodologi simulasi	17
Gambar 5.1 Perbandingan hasil simulasi dengan data eksperimen	21
Gambar 5.2 Profil kecepatan superficial	23
Gambar 5.3 Profil densitas fluida	24
Gambar 5.4 Profil debit aliran	24
Gambar 5.5 Profil temperature	25
Gambar 5.6 Profil konstanta perpindahan panas di dinding reaktor	26
Gambar 5.7 Kestimbangan panas di sepanjang reaktor	27
Gambar 5.8 Profil konduktivitas panas efektif ke arah radial	28
Gambar 5.9 Profil konversi methanol	29
Gambar 5.10 Profil laju reaksi	29
Gambar 5.11 Profil konversi reaksi pada arah radial	30
Gambar 5.12 Profil kecepatan superfisial pada arah radial	30
Gambar 5.13 Sensitivitas temperatur umpan	31
Gambar 5.14 Sensitivitas temperatur umpan sama dengan temperatur dinding	32
Gambar 5.15 Sensitivitas temperatur dinding	33
Gambar 5.16 Sensitivitas laju alir massa umpan	34
Gambar 5.17 Sensitivitas fraksi metanol di umpan	35

DAFTAR LAMPIRAN

	Halaman
Lampiran A. Penurunan Persamaan Model Pseudohomogen Dua Dimensi Reaktor Unggun Tetap	A-1
Lampiran B. Semidiskretisasi Persamaan Model Pseudohomogen Dua Dimensi Reaktor Unggun Tetap	B-1
Lampiran C. Penurunan Parameter Transport	C-1
Lampiran D. Pemeriksaan Gradien Konsentrasi dan Temperatur Pada Permukaan Dan di Dalam Katalis	D-1

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Reaktor unggun tetap katalitik merupakan jenis reaktor yang paling banyak digunakan dalam industri proses kimia, seperti pembuatan amoniak, reformasi gas alam dan perengkahan minyak bumi. Reaktor ini berisikan partikel katalis berpori yang berbentuk padatan dan tetap posisinya. Reaktan dan produk mengalir ke dalam reaktor melewati ruang pori dan berinteraksi dengan permukaan katalis. Aliran keluaran reaktor berisikan produk utama, produk samping dan reaktan yang tidak bereaksi. Fraksi massa produk utama dalam gas keluaran reaktor, biasanya dijadikan indikator utama unjuk kerja reaktor. Semakin tinggi fraksi produk utama, semakin baik unjuk kerja reaktor.

Hasil-hasil penelitian terakhir menunjukkan bahwa ruang pori yang terbentuk antar katalis dari bagian pusat reaktor hingga ke bagian dinding reaktor tidak seragam. Hal inilah yang merupakan faktor utama terjadinya distribusi aliran tidak merata (*flow maldistribution*). Selain itu, sebagai konsekuensi dari kesetimbangan panas di sepanjang reaktor, maka pada suatu daerah tertentu di dalam reaktor terbentuk daerah panas terlokalisir (*hotspot*), yakni daerah yang memiliki temperatur lokal paling tinggi. Fenomena distribusi aliran tidak merata dan panas terlokalisir sangat kompleks, berhubungan timbal balik. Kedua fenomena ini dapat mengakibatkan sejumlah masalah operasi atau mempengaruhi parameter-parameter proses lainnya. Beberapa sebab dan akibat yang dapat ditimbulkan adalah sebagai berikut (Makertihartha, 1998):

1. distribusi aliran tidak merata dapat terjadi karena ketidakseragaman ruang kosong dalam unggun yang terbentuk antar katalis khususnya pada daerah dekat dinding,
2. distribusi aliran tidak merata mendorong terjadinya reaksi samping akibat distribusi temperatur yang tidak sama,
3. distribusi aliran tidak merata mengurangi waktu tinggal reaktan,
4. distribusi aliran tidak merata dapat membentuk variasi temperatur yang besar,
5. variasi temperatur yang besar menghasilkan daerah panas terlokalisir,
6. variasi temperatur yang besar merubah sifat-sifat fisik fluida,
7. variasi sifat-sifat fisik fluida mengakibatkan instabilitas aliran,
8. laju panas yang tinggi hasil reaksi kimia mengakibatkan profil densitas yang besar mengakibatkan distribusi aliran tidak merata akibat adanya daerah aliran cepat dan lambat,

9. daerah aliran lambat menghasilkan temperatur yang tinggi sehingga partikel katalis dapat mengalami "sintering".
10. kenaikan kecepatan fluida akan mengarah ke pengurangan terjadinya distribusi aliran tidak merata,
11. kecepatan yang rendah akan berhubungan dengan tingginya konversi dan tingginya konversi ini akan menyebabkan distribusi aliran tidak merata.

Pada reaksi-reaksi yang sifatnya sangat eksotermis, kedua fenomena ini akan sangat membahayakan, yakni memungkinkan terjadinya reaksi tak terkendal (*runaway*). Reaksi *runaway* terjadi apabila panas yang dilepaskan oleh reaksi jauh lebih besar dari panas yang dapat diserap oleh pendingin. Karakteristik terjadinya peristiwa ini adalah adanya kenaikan temperatur dan tekanan terhadap waktu secara eksponensial (Froment dan Bischoff, 1990; Baptista dan Castro, 1996). Akibatnya dinding reaktor akan mengalami kerusakan dan yang lebih berbahaya adalah kemungkinan terjadinya ledakan. Selain itu, selama peristiwa ini berlangsung akan dilepaskan gas-gas berbahaya yang beracun dan mudah terbakar (Kersten, dkk., 2002)

Oleh karena itu pengetahuan yang bersifat fundamental dan komprehensif tentang fenomena terjadinya reaksi "*runaway*" sangat perlu untuk diketahui. Hal ini dapat dicapai dengan melakukan kajian eksperimen dan numerik secara komprehensif. Kedua kajian ini dilakukan untuk mengukur sensitivitas parameter perancangan dan operasi reaktor terhadap terjadinya reaksi *runaway*.

1.2 Perumusan Masalah

Salah satu jenis reaksi yang menggunakan jenis reaktor unggun tetap dan memungkinkan terjadinya reaksi *runaway* adalah reaksi oksidasi parsial hidrokarbon. Reaksi ini akan membentuk produk antara bernilai membentuk gugus-gugus senyawa seperti -CHO, -COOH, -COC-, dan -CN. Reaksi ini umumnya menggunakan katalis logam transisi oksida yang berfungsi menyediakan oksigen dalam jumlah terbatas sebagai reaktan dan bersifat ekotermik. Selektivitas katalis diukur dari perbandingan antara jumlah produk yang diinginkan dibandingkan jumlah reaksi samping yang terjadi. Produk samping ini pada umumnya berupa CO dan CO₂ yang merupakan produk reaksi oksidasi lanjutan. Sekali reaksi oksidasi lanjutan terjadi, maka kemungkinan terjadinya reaksi *runaway* sangat besar. Hal ini disebabkan karena reaksi oksidasi total bersifat lebih eksotermik dibandingkan reaksi oksidasi parsial (Gates, BC, dkk., 1979).

Reaksi yang akan dikaji dalam penelitian adalah reaksi oksidasi metanol menjadi formaldehid menggunakan katalis Besi Molibdenum Oksida (Fe/Mo/O). Katalis ini dapat diambil dari PT. Pupuk Kaltim pada unit produksi formaldehid. Pada sistem reaktor oksidasi metanol menjadi formaldehid ini memiliki rasio R_d sebesar 5,78 [$R_d = (\text{diameter reaktor}) / (\text{diameter partikel})$]. Pada rasio yang rendah antara diameter reaktor terhadap diameter partikel ($4 < R_d < 8$), struktur unggun ditunjukkan dengan bervariasinya fraksi ruang kosong unggun kearah radial sampai pada jarak dua kali diameter partikel dari dinding reaktor (Benenati dan Brosilow, 1962; Ridgay dan Tarbuck, 1968; Lerou dan Froment, 1977; Goodling dkk., 1983; Govindarao dan Froment, 1986; Delmas dan Froment, 1988). Sehingga pada reaktor ini terjadi fenomena distribusi aliran yang tidak merata ini.

Tinjauan termodinamika reaksi ini memiliki harga perubahan entalpi reaksi dan energi gibbs sangat negatif. Hal ini menunjukkan bahwa reaksi ini sangat eksotermik dan sangat irreversibel. Banyak sekali reaksi-reaksi samping yang mungkin terjadi selama berlangsungnya reaksi oksidasi metanol menjadi formaldehid, baik yang terjadi pada permukaan katalis maupun pada bagian keluaran reaktor. (Le Page, 1987). Hampir semua reaksi samping memiliki harga energi bebas gibbs dan entalpi reaksi yang sangat negatif. Oleh karena itu, diperlukan suatu katalis yang sifatnya sangat selektif serta pengaturan kondisi operasi yang sangat hati-hati, terutama temperatur, sehingga hanya reaksi utama saja yang berlangsung, yakni reaksi oksidasi metanol menjadi formaldehid (Gates, B.C., 1979).

Tinjauan kinetika dan katalisis reaksi menunjukkan bahwa reaksi ini merupakan reaksi oksidasi parsial dengan fasa reaksi heterogen. Reaktan dan produk berada pada fasa gas sedangkan katalis berada pada fasa padat. Penggunaan katalis pada reaksi oksidasi parsial dimaksudkan untuk membatasi jumlah oksigen yang ikut bereaksi, sehingga diharapkan produk samping tidak terjadi (Gates, B.C., dkk., 1979). Studi yang telah dilakukan oleh beberapa peneliti sebelumnya menunjukkan bahwa paduan Besi-Molibdat merupakan katalis terbaik yang memiliki aktivitas dan selektivitas sangat tinggi (Le Page, 1987).

Kegiatan-kegiatan para peneliti sebelumnya mengenai reaksi ini belum menyentuh mengenai kemungkinan terjadinya reaksi *runaway*. Hal ini disebabkan asumsi pengoperasian reaktor yang selalu berada pada batas-batas yang dikehendaki, khususnya temperatur. Temperatur hot spot yang terjadi masih berada jauh dibawah kemampuan

temperatur operasi katalis (Piccoli, 1992; Windes, 1989; Makertiharta, 1996; Gonzo, 1998). Selain itu, penelitian mengenai adanya fenomena distribusi aliran tidak merata pada reaksi ini masih menggunakan asumsi diatas, yakni tidak adanya reaksi samping. Sehingga fenomena kemungkinan terjadinya reaksi runaway tidak dibahas karena tidak ditemukan (Suherman, 2001).

Dalam penelitian yang akan dilakukan ini akan membahas mengenai sensitivitas parameter operasi terhadap kemungkinan terjadinya reaksi *runaway*. Sensitivitas parameter operasi adalah temperatur umpan (T_m), temperatur pendingin (T_w), laju alir massa (m), fraksi metanol dalam umpan (y_M), dan tekanan operasi (P). Tujuan ini hanya bisa dicapai dengan penggunaan model kinetika reaksi yang kompleks dan percobaan kondisi operasi diatas kondisi operasi normal.

Keberhasilan penelitian ini dapat dijadikan sebagai acuan dasar sesungguhnya dalam pengoperasian reaktor unggun tetap katalitik yang melangsungkan reaksi-reaksi eksotermik, yakni mencegah terjadinya reaksi *runaway*.