



UNIVERSITAS INDONESIA

**PEMODELAN DAN SIMULASI REAKTOR UNGGUN TETAP
UNTUK REFORMASI AUTOTERMAL METANA
MENGUNAKAN *COMPUTATIONAL FLUID DYNAMICS*
(*CFD*)**

SKRIPSI

HARIS FASANUYASIRUL

0806367922

FAKULTAS TEKNIK

PROGRAM STUDI TEKNIK KIMIA EKSTENSI

DEPOK

JUNI 2011

LEMBAR PENGESAHAN

Laporan skripsi dengan judul :

PEMODELAN DAN SIMULASI REAKTOR UNGGUN TETAP UNTUK REFORMASI AUTOTERMAL METANA MENGGUNAKAN *COMPUTATIONAL FLUID DYNAMICS (CFD)*

Oleh :

Haris Fasanuyasirul
NPM. 0806367922

Telah berhasil dipertahankan di hadapan dewan penguji dan diterima sebagai bagian persyaratan yang diperlukan untuk memperoleh gelar Sarjana Teknik pada Program Studi Ekstensi Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Indonesia

DEWAN PENGUJI

Pembimbing : Dr. rer. nat. Ir. Yuswan Muharam, MT.

Penguji I : Kamarza Mulia, MSc., PhD.

Penguji II : Dr. Ir. Andy Noorsaman, DEA.

Penguji III : Tania Surya Utami, ST. MT.



Ditetapkan di : Depok

Tanggal :

PERNYATAAN KEASLIAN SKRIPSI

Saya menyatakan dengan sesungguhnya bahwa laporan skripsi dengan judul,

PEMODELAN DAN SIMULASI REAKTOR UNGGUN TETAP UNTUK REFORMASI AUTOTERMAL METANA MENGGUNAKAN *COMPUTATIONAL FLUID DYNAMICS (CFD)*

Yang dibuat untuk melengkapi sebagian persyaratan menjadi Sarjana Teknik pada Departemen Teknik Kimia Fakultas Teknik Universitas Indonesia, sejauh yang saya ketahui bukan merupakan tiruan atau duplikasi dari laporan skripsi yang sudah dipublikasikan dan atau pernah dipakai di lingkungan Universitas Indonesia maupun di Perguruan Tinggi atau Instansi manapun, kecuali bagian yang sumber informasinya dicantumkan sebagaimana mestinya.

Depok, Juni 2011

Penulis

KATA PENGANTAR

Puji dan syukur kepada Allah SWT atas berkat dan rahmat-Nya tugas laporan skripsi ini dapat diselesaikan. Dalam penyusunan laporan skripsi ini, penulis banyak mendapat bantuan, bimbingan, dan dukungan dari berbagai pihak. Oleh karena itu, penulis mengucapkan terima kasih yang sebesar-besarnya kepada:

1. Bapak Dr. Ir. Sukirno, M.Eng. selaku pembimbing akademis penulis
2. Bapak Dr.rer.nat.Ir.Yuswan Muharam, MT., untuk kesabaran dan totalitas selama membimbing pengerjaan skripsi
3. Bapak, Mama dan Adik tercinta, untuk kasih sayang, perhatian, doa, dan dukungan setiap saat
4. Nita Irawana, untuk asa dan cita-cita bersama
5. Sultan, Hendro, Ika dan Ismail, untuk tingkah laku dan kebersamaan selama penelitian
6. Mas Sri, Mas Taufik, Mas Heri, Mas Rinan, Mang Ijal dan karyawan DTK lainnya untuk bantuan teknis dan non teknis
7. Teman-teman yang tidak bisa disebutkan satu per satu, untuk dukungan moril dan materil selama ini

Penulis menyadari masih terdapat banyak kekurangan dalam penulisan laporan skripsi ini. Oleh karena itu, saran dan kritik sangat penulis harapkan untuk memperbaiki penulisan di masa yang akan datang.

Depok, Juni 2011

Penulis

HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI

TUGAS AKHIR UNTUK KEPENTINGAN AKADEMIS

Sebagai sivitas akademik Universitas Indonesia, saya yang bertanda tangan di bawah ini :

Nama : Haris Fasanuyasirul
NPM : 0806367922
Program Studi : Teknik Kimia - Ekstensi
Departemen : Teknik Kimia
Fakultas : Teknik
Jenis Karya : Skripsi

demi pengembangan ilmu pengetahuan, menyetujui untuk memberikan kepada Universitas Indonesia **Hak Bebas Royalti Noneksklusif (*Non-exclusive Royalty-Free Right*)** atas karya ilmiah saya yang berjudul :

**Pemodelan dan Simulasi Reaktor Unggun Tetap Untuk Reformasi
Autothermal Metana Menggunakan *Computational Fluid Dynamics* (CFD)**

beserta perangkat yang ada (jika diperlukan). Dengan Hak Bebas Royalti Noneksklusif ini Universitas Indonesia berhak menyimpan, mengalih media/format-kan, mengelola dalam bentuk pangkalan data (*database*), merawat, dan memublikasikan tugas akhir saya selama tetap mencantumkan nama saya sebagai penulis/pencipta dan sebagai pemilik Hak Cipta.

Demikian pernyataan ini saya buat dengan sebenarnya.

Dibuat di : Depok, Jawa Barat, Indonesia

Pada tanggal : 28 Juni 2011

Yang menyatakan

(Haris Fasanuyasirul)

ABSTRAK

Nama : Haris Fasanuyasirul
Program Studi : Teknik Kimia – PPSE
Judul :

PEMODELAN DAN SIMULASI REAKTOR UNGGUN TETAP UNTUK REFORMASI AUTOTERMAL METANA MENGGUNAKAN *COMPUTATIONAL FLUID DYNAMICS (CFD)*

Gas sintesis (syngas) dari gas bumi merupakan bahan baku masa depan untuk industri energi dan kimia dalam teknologi *Gas to Liquid* (GTL). Konsep produksi syngas melalui reformasi autotermal ditemukan oleh Lurgi and Haldor Topsoe (1996) untuk mengatasi masalah konsumsi energi dengan cara menggabungkan proses oksidasi dan reformasi kukus metana dalam satu reaktor. Dalam penelitian ini dilakukan pemodelan dan simulasi reaktor unggun tetap untuk reformasi autotermal dengan menggunakan kinetika Xu dan Froment (1989) untuk reformasi Metana dan Ma dkk (1996) untuk oksidasi Metana. Penelitian ini dilakukan karena dalam melakukan desain, optimisasi dan *scale-up* reaktor perlu dilakukan prediksi dan estimasi untuk mengetahui berbagai parameter yang terlibat dalam sistem sehingga dapat merencanakan sistem pada kondisi yang seefisien mungkin. Validasi model dilakukan dengan data-data eksperimen skala laboratorium (Scognamiglio dkk., 2009) dan simulasi dilakukan dengan bantuan program COMSOL. Hasil validasi pada temperatur 970 K, tekanan 2 atm dan rentang laju alir $2,5 \times 10^{-4} - 1 \times 10^{-4} \text{ Nm}^3/\text{s}$ menunjukkan deviasi rata-rata sebesar 0,74% pada konversi Metana dan kesesuaian yang bagus untuk selektivitas produk. Hasil simulasi menunjukkan kondisi optimum yaitu pada laju alir $1 \times 10^{-4} \text{ Nm}^3/\text{s}$, tekanan 400 kPa dan rasio S/C = 0 dengan perolehan konversi metana dan yield syngas masing-masing 0,96 dan 0,66.

Kata kunci : *reformasi metana autotermal, pemodelan reaktor, COMSOL*

ABSTRACT

Name : Haris Fasanuyasirul
Major : Chemical Engineering – Extended Program
Title :

PACKED BED REACTOR MODELING AND SIMULATION FOR AUTOTHERMAL REFORMING OF METHANE USING COMPUTATIONAL FLUID DYNAMICS (CFD)

Synthesis gas (syngas) from natural gas is a future energy and chemical industry feedstock in Gas To Liquid technology. Syngas production concept via autothermal reforming is found by Lurgi and Topsoe to overcome energy consumption by combining oxidation and steam reforming process in one reactor. In this research, packed bed reactor modeling and simulation conducted for autothermal reforming using kinetics model and parameter suggested by Xu and Froment (1989) for reforming reactions and Ma et al (1996) for oxidation reaction. This research held because in reactor design, optimization and scale-up, it is necessary to predict the reactor performance so that the design can be done efficiently. Model validation conducted using laboratory scale experimental data (Scognamiglio et al, 2009) and the simulation aimed by COMSOL Multiphysics software. The validation result at 970 K, 2 atm, flow range $2,5 \times 10^{-4} - 1 \times 10^{-4}$ Nm^3/s shows average deviation 0,74% on methane conversion and good agreement on the product selectivity. The simulation result shows that the optimum condition is at flow rate 1×10^{-4} Nm^3/s , pressure 400 kPa and S/C ratio = 0 with methane conversion and syngas yield attained respectively 0,96 and 0,66.

Keywords : *autothermal reforming of methane, reactor modeling, COMSOL*

DAFTAR ISI

JUDUL	i
LEMBAR PENGESAHAN	ii
PERNYATAAN KEASLIAN SKRIPSI.....	iii
KATA PENGANTAR	iv
ABSTRAK	vi
ABSTRACT.....	vii
DAFTAR ISI.....	viii
DAFTAR GAMBAR	xi
DAFTAR TABEL.....	xiii
DAFTAR SIMBOL.....	xiv
BAB I PENDAHULUAN.....	1
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Perumusan Masalah	2
1.3 Tujuan Penelitian	3
1.4 Batasan Masalah.....	3
1.5 Sistematika Penulisan	4
BAB II TINJAUAN PUSTAKA.....	5
2.1 Proses Pembentukan Gas Sintesis.....	5
2.1.1 Reformasi Metana Secara Autotermal	7
2.2 Kinetika.....	11
2.2.1 Kinetika Reaksi Katalitik	11
2.2.2 Katalis Reformasi Metana.....	13
2.2.3 Kinetika Reformasi Metana Secara Autotermal	15
2.3 Reaktor	18
2.3.1 Reaktor Reformasi Autotermal	18
2.3.1.1 Reaktor Unggun Tetap	18

2.3.1.2 Reaktor Membran.....	19
2.3.1.3 Reaktor Unggun Terfluidisasikan	20
2.3.2 Reaktor Unggun Tetap	22
2.4 Pemodelan dan Simulasi	23
2.4.1 Pemodelan.....	20
2.4.1.1 Pemodelan Reaktor Unggun Tetap	26
2.4.1.2 Kondisi Batas	33
2.4.2 Pemodelan dengan Teknologi CFD	34
2.4.2.1 Teknologi <i>Computational Fluid Dynamics</i> (CFD)	34
2.4.2.2 Metode Elemen Hingga.....	36
2.5 Simulasi dengan COMSOL Multiphysics.....	37
BAB III METODOLOGI PENELITIAN.....	40
3.1 Studi Literatur	41
3.2 Penyusunan Model Matematis Reaktor Unggun Tetap	42
3.3 Aplikasi Model pada COMSOL Multiphysics.....	42
3.4 Validasi Program.....	42
3.5 Validasi Model.....	43
3.5 Simulasi.....	44
BAB IV PEMODELAN REAKTOR UNGGUN TETAP	45
4.1 Neraca Skala Reaktor.....	46
4.1.1 Neraca Massa	46
4.1.2 Neraca Energi.....	49
4.1.2 Neraca Momentum.....	51
4.2 Neraca Lapisan Batas	52
4.2.1 Neraca Massa	52
4.2.2 Neraca Energi.....	53

4.3 Neraca Skala Partikel	53
4.3.1 Neraca Massa	54
4.3.2 Neraca Energi.....	55
4.4 Kondisi Batas	56
4.4.1 Kondisi Batas Skala Reaktor.....	56
4.4.2 Kondisi Batas Skala Partikel.....	57
4.5 Estimasi dan Korelasi Parameter	57
4.6 Pemodelan dengan COMSOL Multiphysics	65
BAB V HASIL DAB PEMBAHASAN	66
5.1 Validasi Model.....	66
5.2 Profil Konsentrasi	68
5.2.1 Profil Konsentrasi di Reaktor.....	68
5.2.2 Profil Konsentrasi di Katalis	70
5.3 Profil Temperatur	83
5.3.1 Profil Temperatur di Reaktor.....	83
5.3.2 Profil Temperatur di Katalis.....	84
5.4 Profil Tekanan Sepanjang Reaktor.....	84
5.5 Simulasi.....	86
5.5.1 Pengaruh Laju Alir Umpan.....	86
5.5.2 Pengaruh Tekanan Umpan	89
5.5.3 Pengaruh Rasio Umpan.....	93
BAB VI KESIMPULAN DAN SARAN	97
6.1 Kesimpulan	97
6.1 Saran.....	97
DAFTAR REFERENSI	xv
LAMPIRAN A PEMODELAN DENGAN COMSOL	

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1 Skema Unit Reformasi Autotermal (Rostrup-Nielsen, 2000)	7
Gambar 2.2 Skema Unit Reformasi Autotermal (Pina J dkk., 2006).....	8
Gambar 2.3 Skema Unggun Katalis Nikel ATR dengan Tiga Region	10
Gambar 2.4 Skema Tahapan Reaksi Katalitik Heterogen dalam Reaktor	11
Gambar 2.5 Tahapan Perancangan Reaktor Katalitik	13
Gambar 2.6 Skema Reaktor Unggun Tetap	19
Gambar 2.7 Skema Reaktor Membran Untuk Oksidasi Parsial.....	20
Gambar 2.8 Skema Dasar Reaktor Unggun Terfluidisasi.....	21
Gambar 2.9 Reaktor Unggun Tetap Tipe Multitube	23
Gambar 2.10 Klasifikasi Model Matematika	25
Gambar 2.11 Model Berdasarkan Jenis Persamaan	26
Gambar 2.12 Sistem Koordinat Silindrikal untuk Fasa Fluida	27
Gambar 2.13 Sistem Koordinat Sferikal untuk Fasa Padat	28
Gambar 2.14 Klasifikasi Model Reaktor Unggun Tetap	30
Gambar 3.1 Diagram Alir Penelitian	41
Gambar 4.1 Kontrol Volume Skala Reaktor	47
Gambar 4.2 Kontrol Volume Skala Katalis	54
Gambar 5.1 Perbandingan Konversi CH ₄ Model dan Eksperimen	67
Gambar 5.2 Perbandingan Selektivitas Produk Model dan Eksperimen	68
Gambar 5.3 Profil Konsentrasi Spesi di Reaktor	69
Gambar 5.4 Profil Konsentrasi CH ₄ di Katalis	71
Gambar 5.5 Profil Konsentrasi CH ₄ di Katalis ke Arah Radial pada $x = 0,2$	71
Gambar 5.6 Profil Konsentrasi O ₂ di Katalis	73
Gambar 5.7 Profil Konsentrasi O ₂ di Katalis ke Arah Radial pada $x = 0,2$	74

Gambar 5.8 Profil Konsentrasi H ₂ O di Katalis	75
Gambar 5.9 Profil Konsentrasi H ₂ O di Katalis ke Arah Radial pada $x = 0,2$	76
Gambar 5.10 Profil Konsentrasi H ₂ di Katalis	77
Gambar 5.11 Profil Konsentrasi H ₂ di Katalis ke Arah Radial pada $x = 0,2$	78
Gambar 5.12 Profil Konsentrasi CO di Katalis.....	79
Gambar 5.13 Profil Konsentrasi CO di Katalis ke Arah Radial pada $x = 0,2$	80
Gambar 5.14 Profil Konsentrasi CO ₂ di Katalis	81
Gambar 5.15 Profil Konsentrasi CO ₂ di Katalis ke Arah Radial pada $x = 0,2$...	82
Gambar 5.16 Profil Temperatur Sepanjang Reaktor.....	83
Gambar 5.17 Profil Temperatur di Katalis.....	84
Gambar 5.18 Profil Tekanan Sepanjang Reaktor.....	85
Gambar 5.19 Konversi CH ₄ pada Laju Alir Umpan Berbeda.....	86
Gambar 5.20 Yield Syngas pada Laju Alir Umpan Berbeda.....	87
Gambar 5.21 Konversi CH ₄ di Katalis pada Laju Alir Umpan Berbeda	88
Gambar 5.22 Konversi CH ₄ pada Tekanan Umpan Berbeda.....	90
Gambar 5.23 Yield Syngas pada Tekanan Umpan Berbeda	91
Gambar 5.24 Konversi CH ₄ di Katalis pada Tekanan Umpan Berbeda	92
Gambar 5.25 Konversi CH ₄ pada Rasio Umpan Berbeda.....	94
Gambar 5.26 Yield Syngas pada Rasio Umpan Berbeda.....	95
Gambar 5.27 Konversi CH ₄ di Katalis pada Rasio Umpan Berbeda.....	96

DAFTAR TABEL

Tabel 2.1 Reaksi-reaksi Pembentukan <i>Syn Gas</i> (Rostrup-Nielsen, 2000).....	5
Tabel 2.2 Sifat Fisik Katalis.....	17
Tabel 2.3 Konstanta Laju Reaksi	17
Tabel 2.4 Konstanta Keseimbangan	17
Tabel 2.2 Konstanta Adsorpsi	18
Tabel 3.1 Parameter Operasi untuk Validasi Model (Scognamiglio, 2009)	43
Tabel 5.1 Kondisi Validasi Model Reaktor (Scognamiglio, 2009).....	66
Tabel 5.2 Hasil Validasi Model	67

DAFTAR SIMBOL

a_v	= luas permukaan eksternal persatuan volume	$m_p^2 m_r^{-3}$
C	= konsentrasi	$\text{mol } m_g^{-3}$
\hat{C}_v	= kapasitas panas	$J K^{-1} g^{-1}$
D_p	= diameter partikel	m
\mathcal{D}_e	= koefisien difusi pori	$m_g^3 m_p^{-1} \text{det}^{-1}$
h_f	= koefisien perpindahan panas	$J m^{-2} \text{det}^{-1} K^{-1}$
J	= fluks difusif	$\text{mol } m_r^{-2} \text{det}^{-1}$
K	= konduktivitas panas efektif	$J m^{-2} \text{det}^{-1} K^{-1}$
k_g	= koefisien perpindahan massa	$m_g^3 m_p^{-1} \text{det}^{-1}$
L	= panjang unggun	m
P	= tekanan	atm
Pr	= bilangan Prandtl	-
r	= posisi arah radial	m
r_i	= laju reaksi	$\text{mol } g^{-1} \text{det}^{-1}$
r_p	= jari-jari partikel	m
Sc	= bilangan Schmidt	-
T	= temperatur	K
u_z	= kecepatan arah aksial	$m_r \text{det}^{-1}$
u_r	= kecepatan arah radial	$m_r \text{det}^{-1}$
u_s	= kecepatan superfisial	$m_g m_r \text{det}^{-1}$
x	= posisi arah radial	m
ϵ	= fraksi kekosongan unggun	-
ΔH	= panas reaksi	$J \text{mol}^{-1}$
ρ	= densitas	$\text{kg } m^{-3}$
μ	= viskositas	$\text{kg } m^{-1} \text{det}^{-1}$

BAB I PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Tingginya konsumsi masyarakat akan bahan bakar minyak (BBM), seiring dengan pertumbuhan penduduk yang tinggi setiap tahunnya menjadi isu sentral energi belakangan ini. Selain itu, kebutuhan industri petrokimia akan bahan baku yang berasal dari produk turunan minyak bumi yang terus meningkat juga menjadi isu tersendiri bagi sektor perindustrian akhir-akhir ini. Kedua hal tersebut tidak bisa diimbangi oleh produksi dan ketersediaan cadangan minyak bumi yang ada di perut bumi negara kita. Sebagai bangsa yang dianugerahi oleh beragam sumber daya alam (SDA), sudah saatnya bagi bangsa ini untuk mulai melirik SDA lain, seperti gas bumi, untuk diolah sehingga dapat mengurangi porsi minyak bumi, baik sebagai sumber energi maupun bahan baku industri lainnya. Indonesia memiliki cadangan gas yang lebih besar dari pada cadangan minyak, di mana sumber gas tersebut tersebar secara luas diseluruh Indonesia. Mengingat cadangan minyak Indonesia dari tahun ke tahun semakin menipis dan diperkirakan beberapa tahun lagi Indonesia akan menjadi net importer minyak bumi, maka salah satu cara untuk mengatasi hal tersebut adalah dengan memanfaatkan gas bumi sebagai alternatif pengganti minyak bumi. Untuk itu, diversifikasi dan penguasaan teknologi merupakan faktor penting disamping kesadaran akan kelestarian lingkungan.

Produksi campuran gas CO dan H₂ telah menjadi bagian penting dari teknologi industri kimia selama satu abad. Pada mulanya, campuran gas ini diperoleh dengan cara mereaksikan uap dengan karbon, yang diketahui sebagai *water gas*. Pada saat digunakan pertama kali sebagai bahan bakar, *water gas* dengan cepat menarik perhatian sebagai sumber H₂ dan CO untuk bahan baku produksi bahan kimia, yang belakangan dikenal sebagai *syngas*. Tren konversi hidrokarbon menjadi hydrogen dan *syngas* akan memainkan peran penting di abad ke-21 mulai dari plant *Gas To Liquid* (GTL) skala besar dan plant hydrogen untuk kilang minyak hingga unit kecil penyedia hydrogen untuk *fuel cell*. Teknologi GTL merupakan salah satu teknologi

yang saat ini tengah berkembang di dunia karena kemampuannya dalam mengolah gas bumi guna menghasilkan bahan bakar cair sintetis yang mirip dengan produk-produk turunan minyak bumi, bahkan dengan kualitas yang lebih baik (Rostrup-Nielsen, 2000). Produk yang dihasilkan dari teknologi GTL ini meliputi nafta, *middle distillate*, dan lilin (*wax*), atau dapat juga diarahkan ke produk dimetil eter (DME), dan metanol. Dari beberapa produk GTL tersebut, *middle distillate* (diesel dan bahan bakar jet) dapat mengganti langsung diesel berbasis minyak bumi yang digunakan selama ini dalam mesin diesel (*compression ignition engines*). Produk samping yang dihasilkan berupa hidrokarbon ringan (*tail gas*) masih dapat dimanfaatkan sebagai pembangkit tenaga (*power generation*), sedangkan hidrogen dapat diolah lanjut menjadi pupuk/urea atau dimanfaatkan sebagai sumber energi dalam merancang kilang GTL terintegrasi.

Secara konvensional pemanfaatan gas bumi untuk pembuatan bahan bakar sintetis seperti minyak diesel sintetis dan bensin sintetis membutuhkan konversi atau reformasi gas bumi menjadi gas sintesis, yang merupakan campuran gas CO dan H₂ (Reyes, 2003). Campuran gas tersebut melalui reaksi *Fischer Tropsch* (FT) membentuk bahan bakar sintetis. Rasio mol H₂/CO yang dibutuhkan sekitar 2. Terdapat tiga pendekatan dasar untuk mereformasi gas bumi, yaitu reformasi kukus (*steam reforming*) di mana metana direaksikan dengan kukus, reformasi CO₂ (*CO₂ reforming*) di mana metana direaksikan dengan CO₂, dan oksidasi parsial (*partial oxidation*) di mana metana direaksikan secara parsial dengan oksigen. Kombinasi dari dua atau tiga reaksi di atas mungkin dilakukan untuk memperoleh ratio mol H₂/CO yang diinginkan.

Dengan potensi 171,3 TCF cadangan gas bumi di Indonesia (PGN, 2008), teknologi GTL prospektif untuk dikembangkan dan menuntut banyak pekerjaan masa depan, salah satunya adalah perancangan unit reformasi metana. Untuk memperoleh rancangan unit reformasi metana skala penuh/komersil, perlu dilakukan perancangan secara bertahap untuk mendapatkan reaktor dengan performa yang diinginkan dengan investasi rendah. Perancangan reaktor secara bertahap tersebut membutuhkan

pekerjaan pemodelan dan simulasi kinerja reaktor untuk mendapatkan dimensi dan parameter proses yang tepat sesuai dengan skala reaktor yang akan dirancang bangun.

1.2 Perumusan Masalah

Berdasarkan latar belakang yang telah dipaparkan di atas, maka rumusan masalah dari penelitian ini adalah bagaimana memperoleh model matematis reaktor unggun tetap yang valid untuk reformasi metana secara autotermal yang kemudian dilakukan simulasi dengan bantuan komputer agar dapat diketahui interaksi dari berbagai parameter yang berpengaruh terhadap kinerja sistem.

1.3 Tujuan

Tujuan dari penelitian ini adalah untuk :

- Memperoleh model matematis yang valid untuk reaktor unggun tetap untuk proses reformasi autotermal metana dengan memperhitungkan kinetika, perpindahan massa dan energi ke arah aksial dan radial untuk fluida dan katalis
- Mengetahui hubungan antara variabel bebas dan variabel terikat yang mempengaruhi kinerja sistem

1.4 Batasan Masalah

Pada penelitian ini yang akan menjadi batasan masalah adalah sebagai berikut :

- Reaktor unggun tetap dan dimodelkan heterogen dua fasa
- Model matematik satu dimensi, pada arah aksial untuk reaktor dan arah radial untuk katalis pada kondisi tunak, dengan mempertimbangkan tahanan difusi/dispersi, lapisan batas dan reaksi kimia
- Mempertimbangkan neraca massa, energi dan momentum
- Neraca momentum didekatkan dengan persamaan Ergun
- Kinetika yang digunakan adalah kinetika Xu dan Froment (1989) untuk reformasi metana dan Ma dkk (1996) untuk oksidasi metana
- Fasa gas dianggap ideal

- Model divalidasi dengan data eksperimen Scognamiglio (2009)
- Perhitungan dan simulasi dibantu dengan program COMSOL Multiphysics
- Variabel bebas yang akan menentukan nilai dari variabel terikat dalam simulasi adalah laju alir umpan, tekanan umpan dan rasio umpan
- Variabel terikat yang akan dilihat perilakunya dalam simulasi adalah profil temperatur gas dan padat, profil konsentrasi spesi dan profil tekanan

1.5 Sistematika Penulisan

Dalam penulisan laporan ini terbagi dalam

Bab I Pendahuluan

Menjelaskan tentang latar belakang penulisan, tujuan penulisan dan batasan masalah

Bab II Tinjauan Pustaka

Membahas teori dan literatur yang berkaitan dengan topik penulisan sebagai rujukan yang menunjang penulisan yaitu mengenai proses reformasi metana, kinetika reformasi metana secara autotermal, reaktor unggun tetap, dan *computational fluid dynamics (cfd)*

Bab III Metode Penelitian

Membahas tentang prosedur penelitian yang di dalamnya dijelaskan mengenai langkah-langkah yang dilakukan untuk mencapai tujuan

Bab IV Pemodelan Reaktor Unggun Tetap

Membahas tentang pemodelan matematis reaktor unggun tetap dan langkah-langkah pengerjaan aplikasi model pada COMSOL Multiphysics 3.5

Bab V Hasil dan Pembahasan

Membahas tentang validasi model dan analisis dari hasil perhitungan numerik yang diselesaikan oleh COMSOL Multiphysics 3.5.

Bab VI Kesimpulan dan Saran

Berisikan kesimpulan-kesimpulan yang didapatkan dari penelitian beserta saran-saran untuk penelitian berikutnya.

BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

Untuk mendukung kegiatan penelitian, pada bab ini akan dijelaskan mengenai teori-teori penunjang yang berkaitan pemodelan reaktor unggun tetap untuk proses reformasi metana secara autotermal. Teori-teori yang akan dipaparkan adalah mengenai proses reformasi metana, kinetika reformasi metana secara autotermal, reaktor unggun tetap, dan teknik *Computational Fluid Dynamic (CFD)* dengan COMSOL Multiphysics.

2.1 Proses Pembentukan Gas Sintesis

Konversi hidrokarbon berperan penting dalam memenuhi kebutuhan produksi hidrogen, gas sintesis dan suplai hidrogen untuk unit fuel cell. Konversi gas alam (metana) menjadi gas sintesis menjadi tren dalam memenuhi kebutuhan produksi bahan kimia dan bahan bakar alternatif seperti metanol, dimetil eter dan bahan bakar sintesis (*syn fuel*). Terdapat tiga pendekatan dasar yang digunakan untuk memproduksi gas sintesis dari metana, atau reformasi metana, yaitu reformasi kukus (*steam reforming*), reformasi CO₂ (*dry reforming*), dan oksidasi parsial (*partial oxidation*). Di bawah ini adalah reaksi-reaksi pembentukan gas sintesis yang dirangkum oleh Rostrup-Nielsen (2000) :

Tabel 2.1 Reaksi-reaksi Pembentukan *Syn Gas* (Rostrup-Nielsen, 2000)

Reaksi	$-\Delta H_{298}^{\circ} \left(\frac{kJ}{mol} \right)$
Reformasi Kukus $CH_4 + H_2O \leftrightarrow CO + 3H_2$ $CO + H_2 \leftrightarrow CO_2 + H_2$	-206 41
Reformasi CO ₂ $CH_4 + CO_2 \leftrightarrow CO + 2 H_2$	-247
Reformasi Autotermal $CH_4 + 3/2 O_2 \leftrightarrow CO + 2 H_2O$ $CH_4 + H_2O \leftrightarrow CO + 3H_2$ $CO + H_2O \leftrightarrow CO_2 + H_2$	520 -206 41
Oksidasi Parsial Katalitik $CH_4 + 1/2 O_2 \leftrightarrow CO + 2 H_2$	38

Dalam rangkumannya Rostrup-Nielsen menyatakan bahwa pemilihan teknologi reformasi metana ini tergantung pada skala operasi dan kebutuhan pengolahan lanjut dari gas sintesis yang diproduksi. Untuk metanol, reformasi tubular menjadi alternatif paling murah untuk kapasitas di bawah 1000 – 1500 MTPD, dimana pada reformasi autotermal dilakukan untuk kapasitas sekitar 6000 MTPD. Hal ini disebabkan oleh perbedaan skala keekonomian untuk reformer tubular dan plant oksigen.

Pada reformasi kukus, kebutuhan energi panas cukup tinggi karena besarnya panas endotermik, yaitu 206 MJ/kmol. Di samping itu, karena adanya campuran fasa gas dan padat oleh penggunaan katalis dalam reaktor, reformasi kukus membutuhkan pertukaran panas yang tidak efisien sehingga biaya kapital reaktor menjadi mahal. Kelemahan lain adalah rasio mol H_2/CO yang dihasilkan sekitar 3 dan kadar CO_2 tinggi. Keuntungan reformasi ini adalah sedikit terbentuk endapan karbon yang mendeaktifasi katalis.

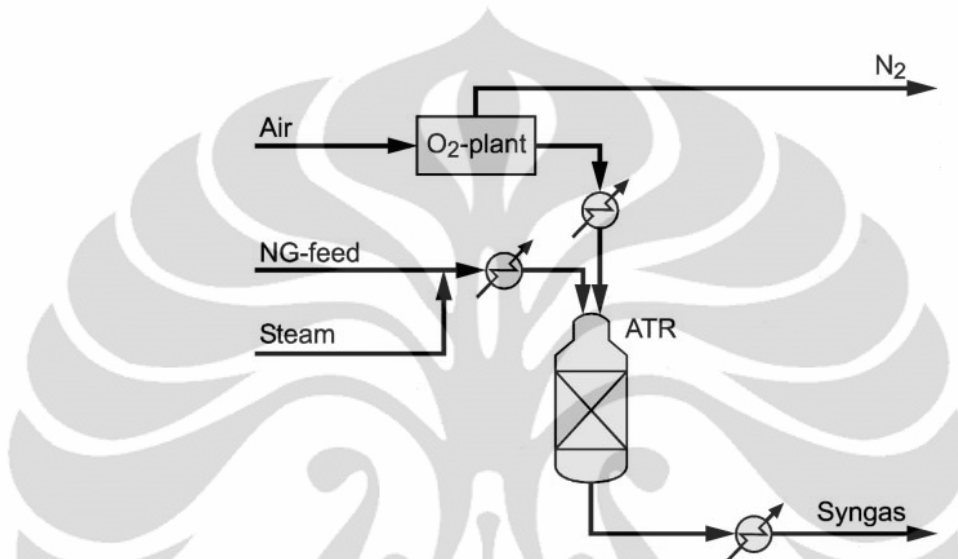
Proses oksidasi parsial termal berlangsung eksotermik, dengan panas reaksi -35.9 MJ/kmol, dan secara teoritis menghasilkan gas sintesis dengan rasio mol H_2/CO kurang dari 2, yang kurang diinginkan untuk sintesis-sintesis berikutnya. Reaksi oksidasi parsial juga menghasilkan endapan karbon, walaupun dengan penggunaan logam-logam mulia yang relatif mahal untuk katalis, masalah ini bisa diatasi. Oksidasi parsial membutuhkan oksigen murni yang membutuhkan biaya refrigerasi sangat mahal untuk pemisahan udara menjadi oksigen dan nitrogen murni.

Boleh dikatakan bahwa *dry reforming* lebih baik daripada *steam reforming* dalam hal komposisi produk syn gas yang dihasilkan. Meskipun, *dry reforming* ideal sulit direalisasikan karena konversi yang tidak komplit karena faktor termodinamik pada temperatur operasi 20 – 40 bar. Selain itu, pada reformasi CO_2 , terdapat banyak endapan karbon sehingga deaktivasi katalis mudah terjadi. Katalis dari logam mulia, yang cukup mahal, mesti digunakan untuk mengatasi hal ini.

Untuk unit fischer-tropsch skala besar, *autotermal reforming* (ATR) menjadi solusi paling murah dalam konteks memenuhi kebutuhan rasio H_2/CO mendekati 2. Walaupun untuk reformasi autotermal, investasi relatif besar masih dibutuhkan untuk memproduksi oksigen murni secara kriogenik. Investasi ini bisa ditekan dengan

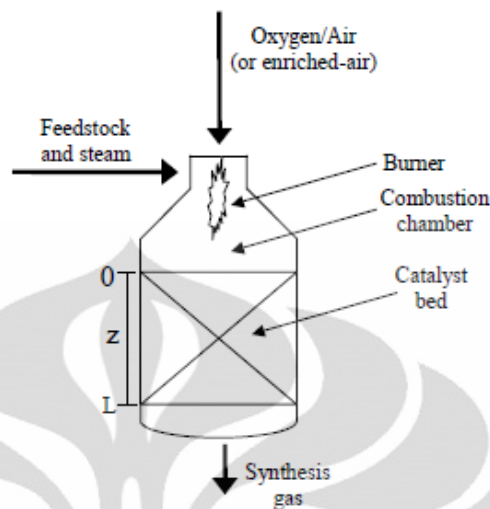
menggunakan membran untuk memisahkan oksigen dari udara, walaupun kebutuhan umpan penukar panas masih besar (Bradford dkk., 1996)

2.1.1 Reformasi Metana Secara Autotermal



Gambar 2.1 Skema Unit Reformasi Autotermal (Rostrup-Nielsen, 2000)

Reformasi autotermal merupakan gabungan dari oksidasi metana dan reformasi kukus. Oksidasi eksotermis terjadi terlebih dahulu untuk mensuplai panas yang dibutuhkan oleh reformasi kukus endotermis. Untuk kebutuhan unit Fischer-Tropsch skala besar, reformasi autotermal bisa menjadi solusi yang paling murah dengan memberikan rasio $H_2/CO = 2$ (Nielsen dkk., 2000) Pada penelitian yang dilakukan oleh Pina, J dkk (2006) skema reaktor yang diusulkan dapat dilihat pada gambar berikut :



Gambar 2.2 Skema Unit Reformasi Autotermal (Pina J dkk., 2006)

Dengan membagi model ke dalam dua reaktor yang dipasang seri untuk zona oksidasi dan zona reformasi. Sedangkan reaksi yang terjadi adalah :



Dimana reaksi (1) adalah oksidasi metana, reaksi (2) dan (3) adalah reformasi metana dan reaksi (4) adalah reaksi water gas shift (WGS). Katalis yang digunakan adalah Ni/MgO-Al₂O₃ dengan ekspresi kinetika yang diusulkan Xu dan Froment (1989) untuk reformasi metana. Model yang divalidasi oleh data-data eksperimen Christensen dan Primdahl (1994) memprediksikan profil konsentrasi dan temperatur sepanjang unggun katalis dan gradien konsentrasi dalam partikel katalis. Perbedaan signifikan antara temperatur aliran ruwah gas dan permukaan katalis dan pembatasan yang signifikan oleh difusi intrapartikel telah ditemukan, menunjukkan kebutuhan perhitungan tahanan untuk transfer massa dan panas. Pengukuran temperatur gas keluaran zona oksidasi sangat membantu untuk menentukan perluasan dari reaksi

homogen (2) dan (4) yang terjadi pada zona termal. Model yang diusulkan berguna untuk mengidentifikasi parameter operasi kritis dan menganalisa pengaruhnya terhadap performa unit reformasi autotermal.

Penelitian sebelumnya, dilakukan oleh Shukri dkk (2004) dengan reaksi berbeda untuk oksidasi yang mengadopsi ekspresi kinetika oleh Trimm dan Lahm (1980) untuk oksidasi dan Xu dan Froment (1989) untuk reformasi metana berikut :



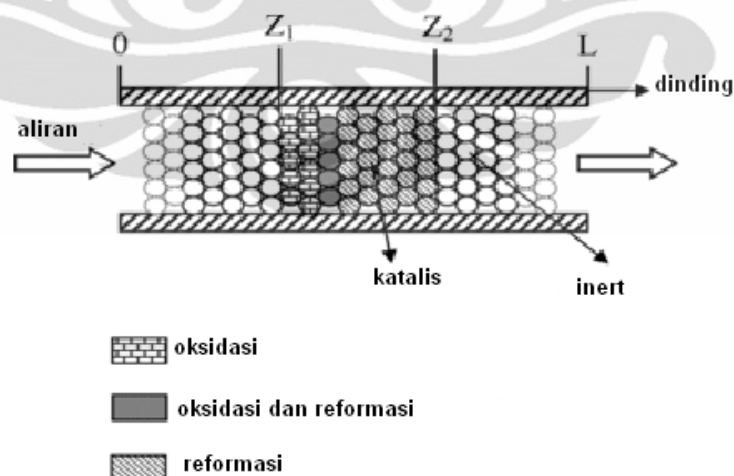
Penelitian tersebut menyimpulkan bahwa peningkatan rasio $\text{H}_2\text{O}/\text{CH}_4$ setelah harga tertentu menurunkan konversi metana dan fraksi $y_{\text{H}_2} - y_{\text{CO}}$. Selain itu, model yang disusun secara tunak, satu dimensi dalam reaktor unggun tetap dengan katalis Pt/ Al_2O_3 untuk oksidasi dan Ni/ $\text{MgO}-\text{Al}_2\text{O}_3$ untuk reformasi metana menunjukkan bahwa menaikkan temperatur inlet akan memfasilitasi produksi hidrogen, akan tetapi sistem dapat berada di bawah kondisi operasi yang riskan eksplosif. Peneliti mengusulkan penggunaan reaktor membran untuk mereduksi kadar CO di dalam sistem.

Faktor hidrodinamika berupa konveksi dan dispersi dapat diperhitungkan dalam penyusunan model untuk meningkatkan akurasi model dengan situasi riil, seperti yang dilakukan oleh Karimi dkk (2005). Karimi sendiri mengadopsi kinetika yang diusulkan oleh Kaihu H. dan Hughes R. (2001) dengan katalis Ni/ γ - Al_2O_3 sebagai berikut :



Dengan reaksi (9) dan (10) adalah reformasi metana, reaksi (11) adalah reaksi *water gas shift* (WGS) dan reaksi (12) adalah reaksi oksidasi metana. Model yang disusun untuk reaktor unggun terfluidisasikan ini membagi dua modelnya ke dalam konsep dua fasa fluidisasi, emulsi dan gelembung untuk submodel hidrodinamiknya. Peneliti juga menyatakan bahwa jika parameter model dua fasa dinamik dievaluasi secara spesifik terhadap katalis yang digunakan, prediksi model akan lebih baik.

Faktor kunci dalam proses ATR adalah evaluasi interaksi antara reaksi oksidasi dan reformasi, seperti yang telah dilaporkan oleh penelitian sebelumnya bahwa proses ATR membutuhkan tiga bentuk katalis berbeda untuk mencegah overlap antara dua zona, yaitu zona eksotermis dan endotermis (Diego Scognamiglio dkk., 2009). Tiga komposisi katalis tersebut adalah $\text{NiAl}_2\text{O}_4 + \alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, dengan aktivitas katalitik rendah untuk reaksi oksidasi pada region satu; region kedua, $\text{NiO}/\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$, yang sangat aktif mengkatalisasi reaksi oksidasi total; dan $\text{Ni}/\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ yang sangat aktif untuk reaksi reformasi metana. Model matematis yang disusun untuk reformasi autotermal dalam reaktor unggun tetap memberikan prediksi profil temperatur yang bagus untuk zona oksidasi dan reformasi, walaupun dalam model yang divalidasi dengan data eksperimen skala laboratorium (Diego Scognamiglio dkk. 2009) ini faktor *pressure drop* tidak diperhitungkan.

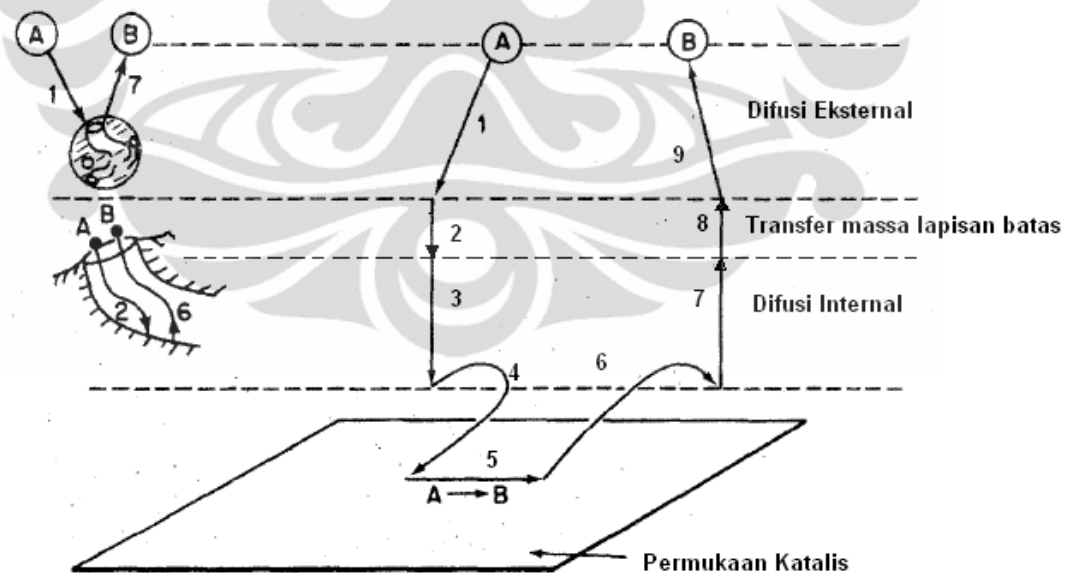


Gambar 2.3 Skema Unggun Katalis Nikel ATR dengan Tiga Region (Scognamiglio. 2009)

2.2 Kinetika

2.2.1 Kinetika Reaksi Katalitik

Katalis mengubah suatu laju reaksi dengan cara memberikan alur molekular (mekanisme) yang berbeda. Katalis tersebut mempercepat laju reaksi dengan mengadsorpsi reaktan secara kimia ke dalam inti aktif yang spesifik atau pusat (kemisorpsi). Molekul diaktifasi oleh ikatan yang terbentuk oleh komponen permukaan dan menjadi lebih reaktif terhadap senyawa yang ada disekitarnya. Dengan reaksi yang berkali-kali, permukaan katalis dapat dirancang untuk memilih bagian yang diinginkan. Sebagai contoh, CO dan H₂ bereaksi untuk membentuk produk dalam jumlah besar, tetapi dengan Ni, Cu, atau katalis Fe produk utamanya adalah metana, metanol atau hidrokarbon tertentu. Ini karena masing-masing logam mempunyai karakteristik kimia yang berbeda-beda yang mana reaksi permukaan secara langsung membentuk produk yang spesifik. Reaksi katalitik terjadi di permukaan katalis, sehingga spesi yang terlibat dalam reaksi perlu untuk sampai dan keluar dari permukaan.

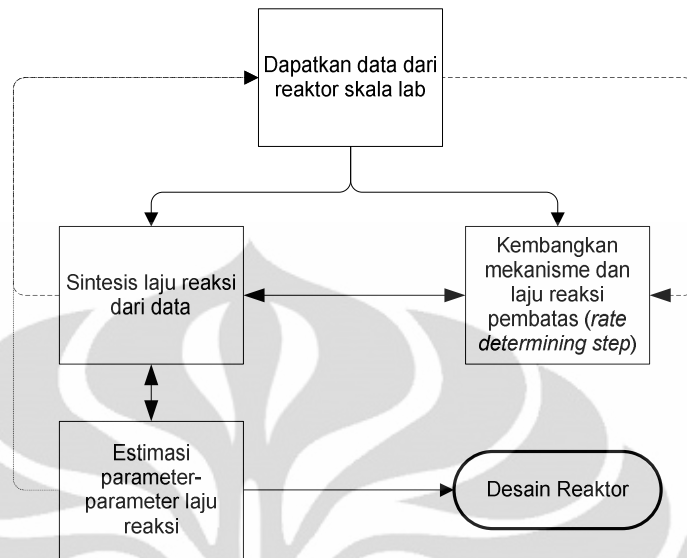


Gambar 2.4 Skema Tahapan Reaksi Katalitik Heterogen dalam Reaktor (Fogler, 2006)

Dari skema di atas dapat dilihat bagaimana reaksi katalitik berlangsung dalam suatu reaktor. Berikut keterangannya :

1. Difusi reaktan dari aliran ruwah ke sekitar permukaan luar pelet katalis (difusi eksternal)
2. Transfer massa melewati lapisan batas dari fasa gas ruwah ke permukaan eksternal katalis
3. Difusi reaktan dari permukaan luar melalui pori-pori katalis ke sekitar permukaan katalitik (difusi internal)
4. Adsorpsi reaktan ke permukaan katalis
5. Reaksi pada permukaan katalis (misal, $A \rightarrow B$)
6. Desorpsi produk dari permukaan katalis
7. Difusi produk dari permukaan interior katalis ke mulut pori katalis di permukaan eksternal
8. Transfer massa produk melewati lapisan batas menuju aliran ruwah fasa gas
9. Transfer massa produk ke keluaran reaktor

Untuk situasi dimana laju difusi terjadi lebih cepat dibandingkan laju reaksi intrinsik, dapat dikatakan bahwa laju reaksi intrinsik lebih mempengaruhi reaksi secara keseluruhan dibandingkan dengan difusi. Sebaliknya, jika laju intrinsik yang menjadi *rate limiting step*, faktor difusi yang menjadi kontrol untuk reaksi keseluruhan. Diagram di bawah ini menjelaskan bagaimana data-data kinetik berperan dalam perancangan reaktor katalitik.



Gambar 2.5 Tahapan Perancangan Reaktor Katalitik (Fogler, 2006)

Kegunaan lain dengan adanya mekanisme reaksi seperti ditunjukkan sebelumnya adalah membantu mendefinisikan fungsi katalis sehingga mempermudah dalam perancangan katalis. Mekanisme ini mengindikasikan apakah katalis bisa digunakan atau tidak

2.2.2 Katalis Reformasi Metana

Katalisis adalah satu dari sekian faktor kunci untuk pengembangan-pengembangan dari pekerjaan mengenai *syn gas*, katalisis memainkan peranan yang sangat penting untuk perancangan reaktor lanjut, fleksibilitas bahan baku, dan pengendalian dari pembentukan karbon. Katalisis reaksi reformasi telah banyak dipelajari oleh banyak peneliti dan memberikan masukan penting untuk studi-studi fundamental.

Logam golongan VIII dari tabel periodik aktif untuk reformasi metana (Liguras dkk,2003) dengan urutan keaktifan $Rh > Pt > Pd > Ru$. Rostrup-Nielsen juga telah mempelajari keaktifan dari $Ru, Rh > Ir > Ni, Pt, Pd$. Dikatakan juga bahwa nikel pada loading tertinggi sama efektif dengan logam Rh, Pt dan Pd .

Pada umumnya aktivitas katalis tergantung pada area permukaannya (jumlah sisi aktif). Aktivitas katalitik sangat tergantung pada dispersi partikel-partikelnya.

Sebagai contoh, untuk katalis Ni, dispersi logamnya 5% dengan ukuran partikel 20-50 nm. Telah dipelajari bahwa loading 15-20%-berat katalis Ni tidak akan meningkatkan aktivitas. Rostrup-Nielsen telah menyimpulkan bahwa aktivitas per area permukaan logam menurun dengan peningkatan dispersi. Hal ini dikarenakan penurunan dari *large ensemble landing sites* pada partikel yang lebih kecil. Berikut adalah beberapa katalis yang digunakan untuk reformasi kukus dan oksidasi parsial :

1. Katalis Rhodium

Katalis Rh/ monolit digunakan oleh Horn dkk untuk menginvestigasi mekanisme dari oksidasi parsial katalitik dari metana dengan mengukur dan membandingkan spesi dan profil temperatur dengan simulasi numeris. Konversi keseluruhan CO₂ dicapai saat kontak dengan katalis sepanjang 2 mm untuk semua rasio C/O dan laju alir.

Support katalis Ce-ZrO₂ untuk Rh dapat memberikan aktivitas tertinggi untuk konversi metana dalam reaktor membran dengan suhu operasi 500 – 800° C pada 3%-berat Rh/CeZrO₂, dengan konversi metana 28,1% (Kusakabe,2004).

2. Katalis Nikel

Katalis Ni/CeZrO₂ dapat memberikan performa konversi metana yang baik pada suhu 500 – 600°C dikarenakan oksidasi CO melalui reaksi WGS. (Kusakabe, 2004).

Katalis nikel yang disupport keramik sering digunakan dalam reformasi kukus, banyak studi menunjukkan bahwa katalis akan terdeaktivasi oleh sintering partikel dan terjadinya reaksi dengan support, deteriorasi termal support, dan deposisi karbon.

Katalis Ni tanpa support adalah serbuk nikel murni dengan area permukaan 0,44 m²g⁻¹. Katalis ini dapat mencapai aktivitas stabilitas tertinggi untuk reformasi metana pada rentang temperatur sedang. (Rakass dkk, 2006)

3. Katalis Ruthenium

Ishihara dkk menemukan bahwa kehadiran ruthenium meningkatkan performa katalitik dari katalis berbasis Nikel yang disupport oleh MgO, La₂O₃ dan Al₂O₃ pada saat loading ruthenium ditingkatkan hingga 15%. Studi yang sama juga

menunjukkan hal yang sama jika dilakukan sebaliknya (menambahkan Ni hingga 15% pada katalis berbasis Ru). Lebih jauh, dirancang katalis bimetal dengan komposisi 2%-berat Ru – 15%-berat Ni dengan alasan kuat untuk meningkatkan ketahanan terhadap deposisi karbon.

4. Katalis Platinum

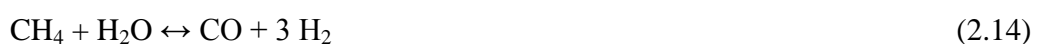
Souza dkk mempelajari bahwa support memiliki peranan penting. Pt/ZrO₂ memberikan aktivitas awal tertinggi tapi terdeaktivasi sangat cepat karena coking, bagaimanapun Pt/CeO₂ memiliki stabilitas terbaik terhadap resistansi coking dan interaksi Pt memungkinkan disosiasi CO₂ terjadi di permukaan.

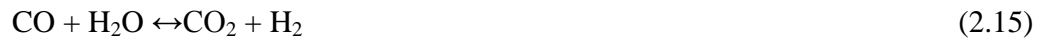
5. Katalis Palladium

Studi tentang aktivitas katalis Palladium dilakukan untuk reformasi ethanol, ditemukan bahwa selektivitas Hidrogen meningkat hingga 95% pada temperatur mendekati 650° C. Ketika rasio steam/ethanol mendekati satu, pembentukan karbon diabaikan dan jika rasio dibawah harga stoikiometriknya, pembentukan karbon terjadi dan katalis terdeaktivasi

2.2.3 Kinetika Reformasi Metana Secara Autotermal

Banyak studi dilakukan untuk menganalisis mekanisme kinetik untuk proses reformasi autotermal dan oksidasi parsial katalitik. Berdasarkan jenis katalis, ada dua kemungkinan utama mekanisme kinetik yang terjadi : langsung dan tidak langsung. Pada kasus katalis berbasis nikel, banyak studi melaporkan bahwa mekanisme reaksi yang terjadi adalah tidak langsung, dan proses bisa dideskripsikan dengan mengkombinasikan mekanisme reaksi untuk oksidasi (pers 13) dengan mekanisme reaksi untuk reformasi (pers 14 dan 15) dan reaksi water gas shift (pers 16). Ekspresi kinetika untuk reformasi metana dan WGS diusulkan oleh Xu dan Froment (1989) berdasarkan analisis termodinamik dari serangkaian kemungkinan reaksi yang terjadi. Sedangkan ekspresi kinetika untuk oksidasi metana diusulkan oleh Ma dkk (1996).





Model kinetik untuk oksidasi, banyak tersedia untuk katalis logam mulia (platinum, rhodium, palladium, iridium) pada temperatur rendah (< 1000 K), dimana, model kinetik untuk katalis nikel berdasarkan eksperimen pada temperatur < 973 K dengan konsentrasi campuran rendah, tekanan parsial reaktan rendah dan kondisi-kondisi yang jauh dari kondisi riil untuk reformasi autotermal. Untuk beberapa alasan, dalam memodelkan proses autotermal, pendekatan yang paling umum dilakukan adalah dengan memadukan model kinetik untuk reformasi metana dengan oksidasi metana dengan katalis platinum yang disesuaikan dengan faktor adsorpsi untuk nikel (Scognamiglio dkk, 2009).

$$r_1 = \frac{k_1 P_{\text{CH}_4} P_{\text{O}_2}^{0,5}}{(1 + K_{\text{c,CH}_4} P_{\text{CH}_4} + K_{\text{c,O}_2} P_{\text{O}_2}^{0,5})^2} \quad (2.17)$$

$$r_2 = \frac{\frac{k_2}{P_{\text{H}_2}^{2,5} \left(P_{\text{CH}_4} P_{\text{H}_2\text{O}} - \frac{P_{\text{CO}} P_{\text{H}_2}^3}{K_{\text{eq}}} \right)}}{(1 + K_{\text{CO}} P_{\text{CO}} + K_{\text{H}_2} P_{\text{H}_2} + K_{\text{CH}_4} P_{\text{CH}_4} + K_{\text{H}_2\text{O}} (P_{\text{H}_2\text{O}}/P_{\text{H}_2}))^2} \quad (2.18)$$

$$r_3 = \frac{\frac{k_4}{P_{\text{H}_2}^{3,5} \left(P_{\text{CO}} P_{\text{H}_2\text{O}} - P_{\text{CO}_2} P_{\text{H}_2}^3 / K_{\text{eq}} \right)}}{(1 + K_{\text{CO}} P_{\text{CO}} + K_{\text{H}_2} P_{\text{H}_2} + K_{\text{CH}_4} P_{\text{CH}_4} + K_{\text{H}_2\text{O}} (P_{\text{H}_2\text{O}}/P_{\text{H}_2}))^2} \quad (2.19)$$

$$r_4 = \frac{\frac{k_3}{P_{\text{H}_2} \left(P_{\text{CH}_4} P_{\text{H}_2\text{O}} - P_{\text{CO}} P_{\text{H}_2} / K_{\text{eq}} \right)}}{(1 + K_{\text{CO}} P_{\text{CO}} + K_{\text{H}_2} P_{\text{H}_2} + K_{\text{CH}_4} P_{\text{CH}_4} + K_{\text{H}_2\text{O}} (P_{\text{H}_2\text{O}}/P_{\text{H}_2}))^2} \quad (2.20)$$

Ekspresi kinetika di atas adalah ekspresi untuk reaksi dengan katalis berbasis Nikel dengan sifat fisik berikut

Tabel 2.2 Sifat Fisik Katalis

Sifat Fisik	Harga
Kandungan NiO	16.5 %-berat
Kandungan CaO	6.0 %-berat
Kandungan SiO	0.1 %-berat
Kandungan Al ₂ O ₃	Seimbang
Kerapatan Ruah	0.95 kg/L
Kekuatan	400 N/cm
Ukuran Partikel	1 -1.18 mm
Porositas	0.47

Sumber : Scognamiglio (2009)

Berikut adalah parameter kinetik yang dievaluasi oleh Chan dkk (2005) untuk oksidasi dan reformasi pada katalis nikel komersial.

Tabel 2.3 Konstanta Laju Reaksi

Reaksi	k_{oi} (mol/kg _{cat} .s)
$\text{CH}_4 + 2 \text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2 + 2 \text{H}_2\text{O}$	$3,287 \times 10^2 \text{ (bar}^{-1.5}\text{)}$
$\text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{CO} + 3 \text{H}_2$	$9,048 \times 10^{11} \text{ (bar}^{0.5}\text{)}$
$\text{CH}_4 + 2 \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{CO}_2 + 4 \text{H}_2$	$5,43 \times 10^5 \text{ (bar}^{-1}\text{)}$
$\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$	$2,14 \times 10^9 \text{ (bar}^{0.5}\text{)}$

Sumber : Scognamiglio (2009)

Tabel 2.4 Konstanta Kestimbangan

Reaksi	K_i^{eq}
$\text{CH}_4 + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{CO} + 3 \text{H}_2$	$5,75 \times 10^{12} \exp(-11476/T) \text{ (bar}^2\text{)}$
$\text{CH}_4 + 2 \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{CO}_2 + 4 \text{H}_2$	$1,26 \times 10^2 \exp(4639/T)$
$\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{CO}_2 + \text{H}_2$	$7,24 \times 10^{10} \exp(-21646/T) \text{ (bar}^2\text{)}$

Sumber : Scognamiglio (2009)

Tabel 2.5 Konstanta Adsorpsi

Senyawa	k_{oj}
CH ₄	$2,02 \times 10^{-3} \text{ bar}^{-1}$
O ₂	$7,4 \times 10^{-5} \text{ bar}^{0,5}$
CH ₄	$1,995 \times 10^{-3} \text{ bar}^{-1}$
CO	$8,11 \times 10^{-5} \text{ bar}^{-1}$
H ₂	$7,05 \times 10^{-9} \text{ bar}^{-1}$
H ₂ O	$1,68 \times 10^4 \text{ bar}$

Sumber : Scognamiglio (2009)

Dimana

k_i , konstanta laju reaksi ke-i = $k_{oi} \exp[-\Delta H_i/(RT)]$

$K_{c,j}$, konstanta adsorpsi senyawa metana dan oksigen dalam oksidasi = $k_{oj} \exp[-\Delta H_i/(RT)]$

K_j , konstanta adsorpsi senyawa j dalam reaksi 14 – 16 = $k_{oj} \exp[-\Delta H_i/(RT)]$

2.3 Reaktor

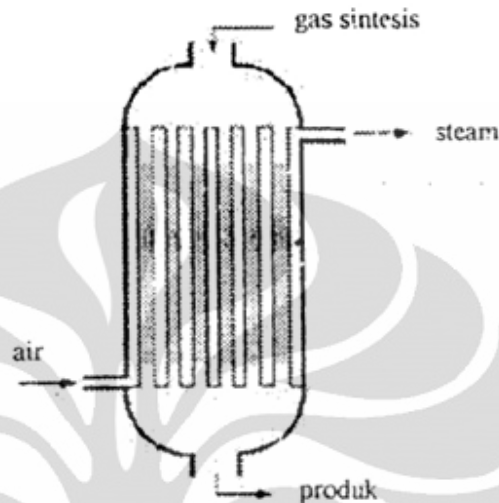
2.3.1 Reaktor Reformasi Autotermal

Tipe-tipe reaktor yang telah dipelajari secara eksperimental untuk produksi *syn gas* secara autotermal :

2.3.1.1 Reaktor Unggun Tetap (*Fixed Bed Reactor*)

Rancangan *Fixed Bed* sederhana, fleksibel dan mudah di *scale-up*. Akan tetapi konstruksinya mahal dan banyak membutuhkan vessel paralel untuk kilang besar. Tube yang sempit menimbulkan kehilangan tekanan (*pressure drop*) pada reaktor sehingga katalis yang besar banyak digunakan sebagai alternatif walaupun menghasilkan faktor efektifitas yang rendah. Transfer panas radial dari katalis menjadi rendah dan menimbulkan gradien temperatur di dalam tube. Hal ini mengakibatkan: (1) kondisi menjadi tidak isotermal yang mengakibatkan kontrol terhadap komposisi produk menjadi sukar, karena nilai α menurun dengan meningkatnya temperatur, (2) *hot spot* dapat terbentuk dalam unggun menimbulkan sintering katalis dan reaktor menjadi tidak stabil, (3) keterbatasan konversi 35 - 50 %

per pass (membatasi kenaikan temperatur) dan membutuhkan *recycle* reaktan yang tidak terkonversi.



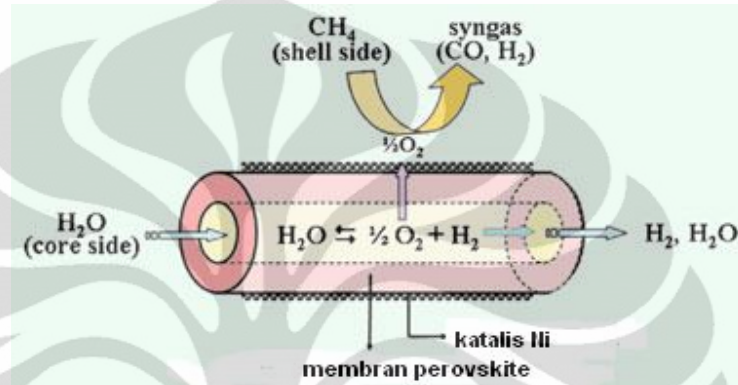
Gambar 2.6 Skema Reaktor Unggun Tetap (Froment, 1979)

2.3.1.2 Reaktor Membran

Reaktor membran dapat menjadi alternatif solusi untuk meningkatkan konversi ketika reaksi dapat balik (reversibel) dibatasi secara termodinamis, dan meningkatkan selektivitas ketika multireaksi terjadi dalam suatu sistem reaktor. Pembatasan termodinamik adalah reaksi yang kesetimbangannya bergeser ke kiri hingga konversi yang dicapai rendah. Jika reaksi yang terjadi eksotermis, meningkatkan temperatur akan menggeser reaksi ke kiri dan menurunkan temperatur akan mengakibatkan laju reaksi yang sangat lambat. Jika reaksi endotermis, meningkatkan temperatur akan menggeser reaksi ke kanan untuk mencapai konversi yang lebih tinggi, walaupun untuk banyak reaksi katalitik, kondisi temperatur tinggi berpotensi mendeaktivasi katalis (Fogler, 2006).

Terminologi reaktor membran mendeskripsikan suatu tipe reaktor yang dilengkapi dengan membran. Membran ini dapat berperan sebagai *barrier* terhadap komponen tertentu melakukan kontak dengan katalis, atau menjadi katalis itu sendiri jika membran tersebut diimpregnasi dengan katalis.

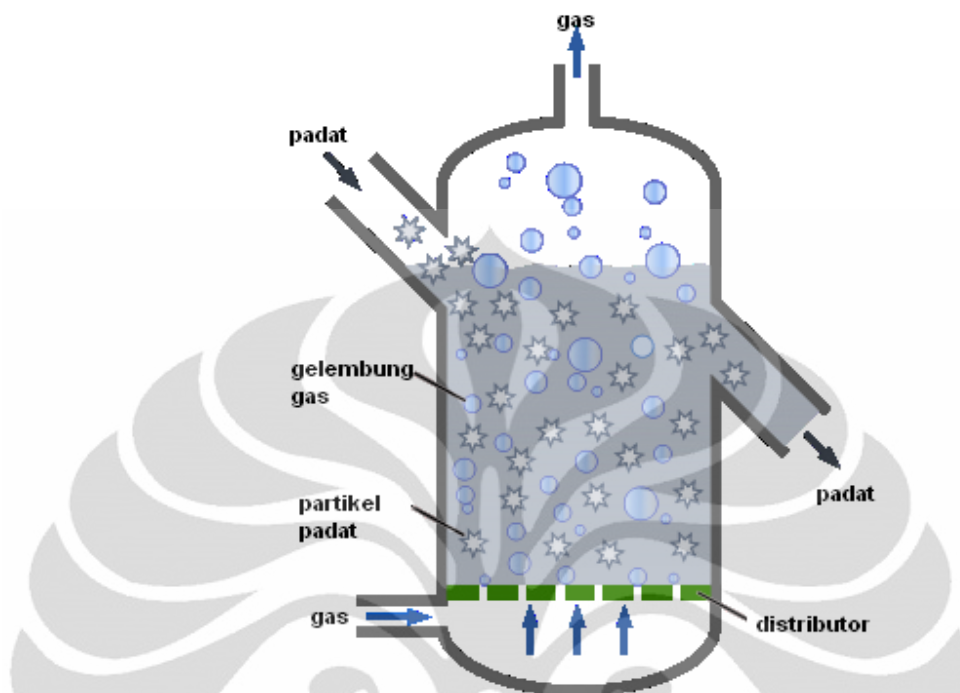
Untuk proses produksi *syn gas* sendiri, penggunaan reaktor membran digunakan sebagai solusi untuk menekan biaya separasi oksigen dari udara yang diperlukan untuk oksidasi parsial. Selama ini separasi oksigen dari udara dilangsungkan secara kriogenik yang membutuhkan biaya relatif mahal. (Tsai dkk, 1995)



Gambar 2.7 Skema Reaktor Membran Untuk Oksidasi Parsial

2.3.1.3 Reaktor Unggun Terfluidisasi (*Fluidized Bed Reactor*)

Reaktor tipe unggun terfluidisasi adalah tipe reaktor yang memanfaatkan prinsip fluidisasi untuk memproses reaksi heterogen untuk memperoleh gradien temperatur dan pencampuran partikel yang lebih merata dibandingkan dengan reaktor unggun tetap, serta untuk pengoperasian kontinu yang lebih efisien. Fluida dialirkan melalui material katalis granular sehingga terjadi “*bubling*”. *Bubling* merupakan suatu kondisi unggun dimana kecepatan fluida mencapai kecepatan minimum fluidisasi. Dimana gaya seret dapat menahan berat partikel unggun, sehingga unggun mulai mengembang dan terbentuk rongga-rongga dalam bed seperti gelembung uap yang akan membangkitkan sirkulasi partikel unggun dan mempunyai sifat seperti fluida. Untuk produksi *syn gas*, penggunaan reaktor ini dimaksudkan untuk meningkatkan transfer panas dan distribusi katalis secara lebih merata, serta untuk mengeliminasi pengaruh pembatasan difusi (Karimi, 2005.).



Gambar 2.8 Skema Reaktor Unggun Terfluidisasi

Kelemahan dari reaktor tipe ini adalah susah untuk di-*scale up* karena sangat sulit memprediksi aliran panas dan massa yang kompleks di dalam unggun dan dibutuhkan ukuran reaktor yang lebih besar untuk kapasitas yang sama dengan unggun tetap, karena pergerakan partikel ini mengekspansi ukuran unggun di dalam reaktor. Selain itu, butuh energi yang cukup besar untuk meningkatkan kecepatan fluida hingga terjadi *bubling*.

2.3.2 Reaktor Unggun Tetap (*Fixed Bed Reactor*)

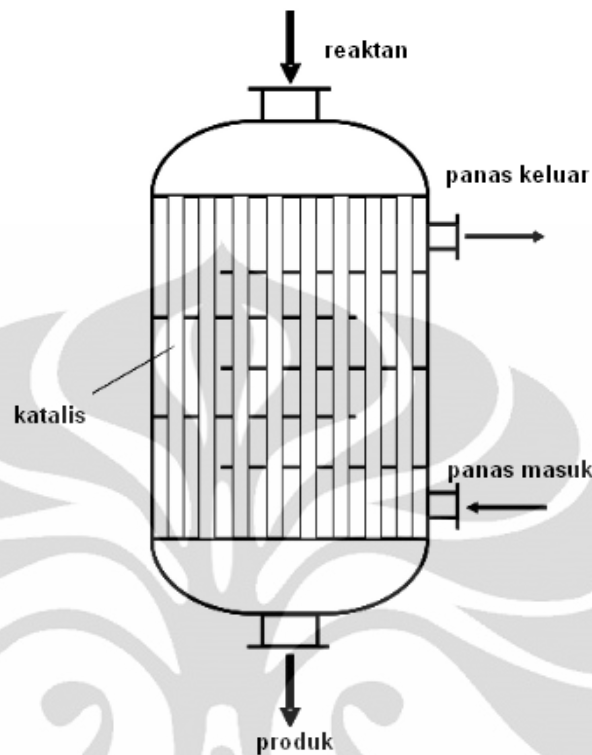
Reaktor unggun tetap merupakan reaktor yang dalam prosesnya mempunyai prinsip kerja pengontakan langsung antara pereaktan dengan partikel-partikel katalis, biasanya digunakan untuk umpan yang mempunyai viskositas kecil. Reaktor unggun katalitik dapat didefinisikan sebagai suatu *tube* silindrikal yang dapat diisi dengan partikel-partikel katalis. Selama operasi, gas atau liquid atau keduanya akan melewati *tube* dan partikel-partikel katalis, sehingga akan terjadi reaksi.

Kelebihan dari reaktor ini adalah :

- Dapat digunakan untuk mereaksikan dua macam gas sekaligus
- Kapasitas produksi cukup tinggi
- Pemakaian tidak terbatas pada kondisi reaksi tertentu (eksoterm atau endoterm) sehingga pemakaian lebih fleksibel
- Aliran fluida mendekati *plug flow*, sehingga dapat diperoleh hasil konversi yang tinggi
- Oleh karena adanya *hold-up* yang tinggi, maka menghasilkan pencampuran radial yang lebih baik dan tidak ditemukan pembentukan saluran (*channeling*)
- Pemasokan katalis per unit volum reaktor besar
- *Hold up* liquid tinggi
- Katalis benar-benar dibasahi
- Transfer massa gas-liquid lebih tinggi daripada reaktor *trickle bed* karena interaksi gas-liquid lebih besar

Sedangkan kekurangannya :

- Resistansi difusi intra partikel sangat besar
- *Rate* transfer massa dan transfer panas rendah
- Pemindahan katalis sangat sulit dan memerlukan *shut down* alat
- Konversi lebih rendah
- Kontrol temperatur lebih sulit, karena terbentuknya *hot spot*
- Ada kemungkinan terjadi reaksi samping homogen pada liquid
- *Pressure drop* tinggi



Gambar 2.9 Reaktor Unggun Tetap Tipe Multitube

2.4 Pemodelan dan Simulasi

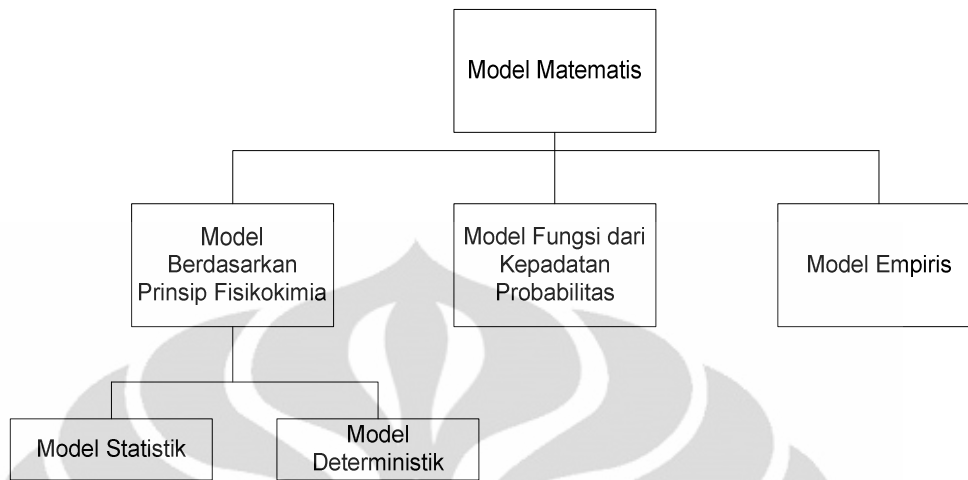
2.4.1 Pemodelan

Model adalah rencana, representasi, atau deskripsi yang menjelaskan suatu objek, sistem, atau konsep, yang seringkali berupa penyederhanaan atau idealisasi. Secara fundamental, pemodelan di dalam kajian-kajian proses teknik kimia dan proses adalah :

- Penggambaran kinerja suatu aktivitas, sistem atau proses
- Membangun persamaan matematis yang dapat menggambarkan kinerja suatu proses (secara fisik)

Ilmu sains dan rekayasa modern memerlukan logika kualitatif yang baik sebelum formulasi awal dari permasalahan dapat dilakukan. Dengan demikian, dikenal sebagai problem pendahuluan fisikokimia, yang diperoleh dari pengalaman

atau eksperimen (empiris). Lebih sering, teori dikembangkan setelah observasi detail dari suatu permasalahan. Dengan demikian, langkah pertama dalam formulasi masalah adalah kualitatif penting (*fuzzy logic*). Langkah pertama ini biasanya meliputi menggambar sistem yang akan dipelajari/diselesaikan. Langkah kedua adalah mengumpulkan semua informasi fisika dan kimia, hukum-hukum kekekalan dan ekspresi laju. Pada langkah ini, seorang insinyur harus membuat serangkaian keputusan-keputusan penting tentang konversi dari imej mental ke simbol-simbol, dan pada waktu yang sama, seberapa detail model dari sistem harus dibuat. Seorang insinyur juga harus mengklasifikasikan tujuan riil dari pemodelan. Apakah model hanya digunakan untuk tren yang terjadi dalam performa operasional suatu alat? Apakah model digunakan untuk tujuan perancangan dan prediktif? Apakah kita menginginkan kondisi tunak atau transien? Ruang lingkup dan pendalaman dari keputusan awal akan menjelaskan kompleksitas akhir deskripsi matematis. Langkah ketiga memerlukan penentuan elemen sistem finite atau diferensial, yang diikuti oleh penyusunan hukum kekekalan. Berikutnya, problem dari kondisi batas harus ditetapkan, dan aspek ini harus dilakukan dengan pertimbangan-pertimbangan yang teliti. Ketika permasalahan sudah ditetapkan secara kuantitatif, solusi matematis yang sesuai ditentukan, hasil akhir dari pekerjaan ini bisa berupa formula matematis elementer, atau solusi numeris berupa sederetan angka. Banyak model dinamis melibatkan neraca massa komponen *unsteady-state* dan/atau neraca energi dengan volume tak konstan. Pada gambar 2.10, bisa dilihat pengelompokan model matematis.

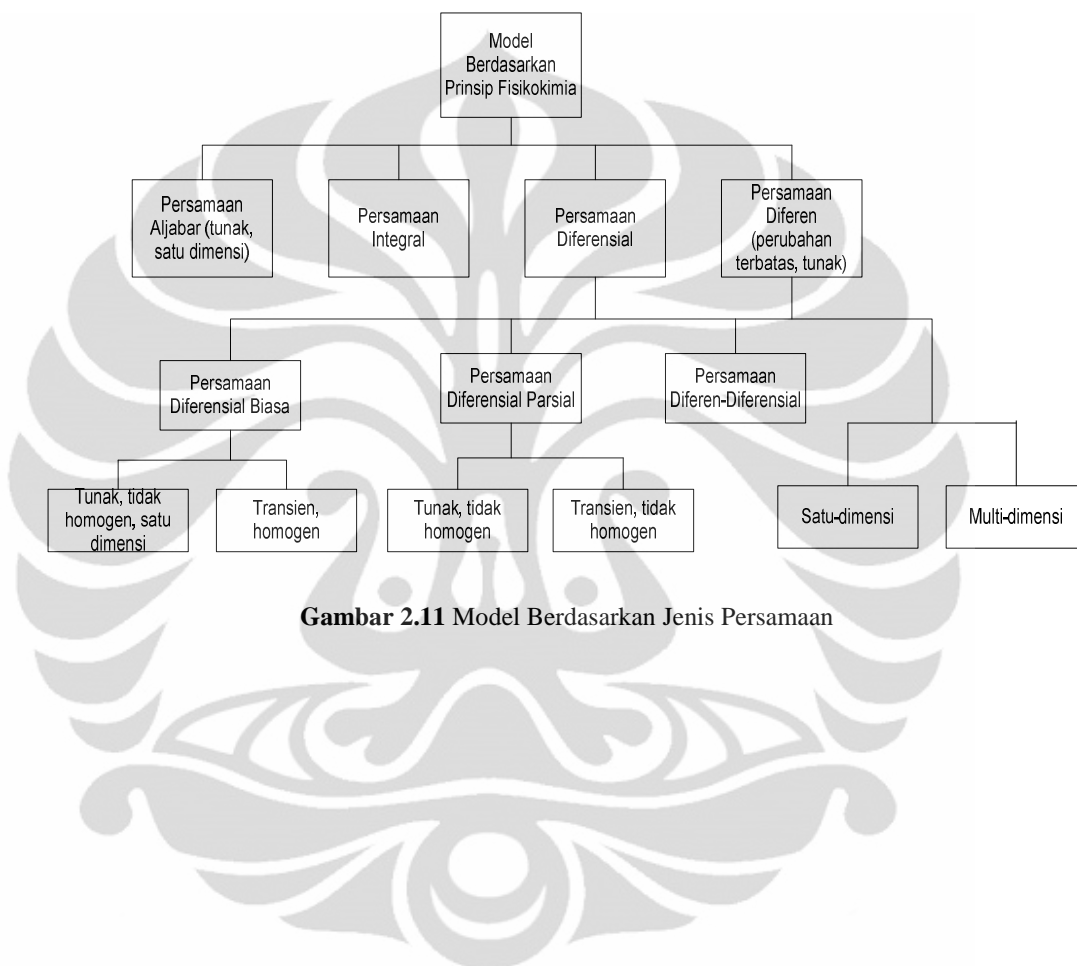


Gambar 2.10 Klasifikasi Model Matematika

Adapun tahap-tahap pemodelan secara umum adalah :

1. Formulasi persoalan, pengumpulan objektif dan kriteria keputusan;
2. Pengamatan terhadap proses dan klasifikasinya untuk membagi proses menjadi beberapa subsistem (elemen proses);
3. Penentuan hubungan antara subsistem;
4. Analisis variabel dan hubungan antar variabel pada setiap elemen proses
5. Pembentukan persamaan matematika dengan menggunakan variabel dan parameter;
6. Pengumpulan data;
7. Pengamatan representasi proses oleh model; perbandingan hasil simulasi dengan data proses nyata;
8. Instalasi model; interpretasi dan pemeriksaan hasil
9. Analisis sensitivitas model untuk mengidentifikasi parameter yang berpengaruh kuat dan lemah terhadap respons model;
10. Penyederhanaan model.
11. Tahap 4 – 9 diulang, sampai interpretasi hasil model sesuai dengan kriteria objektif dan solusi yang diharapkan

Gambar 2.11 menunjukkan kelompok persamaan matematis yang dapat dihasilkan dari pemodelan berdasarkan prinsip fisikokimia.

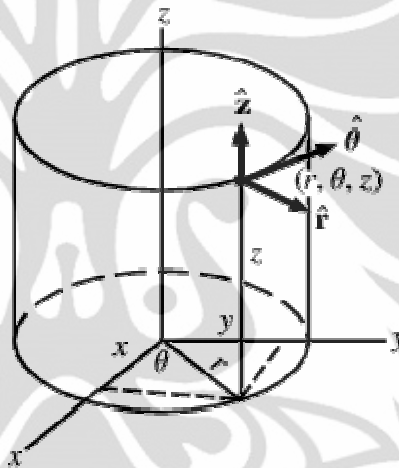


Gambar 2.11 Model Berdasarkan Jenis Persamaan

2.4.1.1 Pemodelan Reaktor Unggun Tetap

Secara umum, untuk proses yang melibatkan proses perpindahan maka akan melibatkan prinsip tiga kesetimbangan yaitu neraca massa, neraca energi dan neraca momentum. Ketiga aspek tersebut bersama-sama membentuk sebuah fenomena perpindahan yang secara simultan mempengaruhi profil dalam sistem reaktor.

Untuk reaktor unggun tetap tubular heterogen, model dibuat berdasarkan hukum konservasi untuk fasa fluida, yang bergerak di sistem koordinat silindrikan dan fasa padat, dengan sistem koordinat sferikal. Berikut ini adalah neraca massa dan energi untuk kedua sistem koordinat, silindrikan dan sferikal :



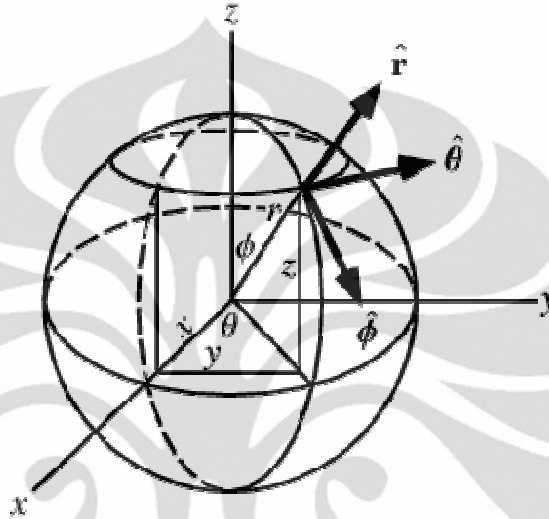
Gambar 2.12 Sistem Koordinat Silindrikan untuk Fasa Fluida

Neraca massa dan energi untuk koordinat silindrikan :

$$\underbrace{\frac{\partial c}{\partial t}}_{\text{akumulasi}} + \underbrace{\left(v_r \frac{\partial c}{\partial r} + v_\theta \frac{1}{r} \frac{\partial c}{\partial \theta} + v_z \frac{\partial c}{\partial z} \right)}_{\text{konveksi}} = \underbrace{\mathcal{D}_e \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial c}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 c}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2 c}{\partial z^2} \right)}_{\text{dispersi}} + \underbrace{\int}_{\text{source}} \quad (2.21)$$

$$\rho \hat{C}_v \left(\underbrace{\frac{\partial T}{\partial t}}_{\text{akumulasi}} + \underbrace{v_r \frac{\partial T}{\partial r} + v_\theta \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial \theta} + v_z \frac{\partial T}{\partial z}}_{\text{konveksi}} \right) = \underbrace{k \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial^2 T}{\partial \theta^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right]}_{\text{konduksi}} + \underbrace{2\mu \left\{ \left(\frac{\partial v_r}{\partial r} \right)^2 + \left[\frac{1}{r} \left(\frac{\partial v_\theta}{\partial \theta} + v_r \right) \right]^2 + \left(\frac{\partial v_z}{\partial z} \right)^2 \right\}}_{\text{disipasi viskos}}$$

$$\underbrace{\mu \left\{ \left(\frac{\partial v_\theta}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial v_z}{\partial \theta} \right)^2 + \left(\frac{\partial v_z}{\partial r} + \frac{\partial v_r}{\partial z} \right)^2 + \left[\frac{1}{r} \frac{\partial v_r}{\partial \theta} + r \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{v_\theta}{r} \right) \right]^2 \right\}}_{\text{disipasi viskos}} + \underbrace{\sum}_{\text{source}} \quad (2.22)$$



Gambar 2.13 Sistem Koordinat Sferikal untuk Fasa Padat

Neraca massa dan energi untuk koordinat sferikal :

$$\underbrace{\frac{\partial C}{\partial t}}_{\text{akumulasi}} + \underbrace{\left(v_r \frac{\partial C}{\partial r} + v_\theta \frac{1}{r} \frac{\partial C}{\partial \theta} + v_\phi \frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial C}{\partial \phi} \right)}_{\text{konveksi}} = \underbrace{\mathcal{D}_e \left(\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial C}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial C}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{r^2 \sin^2 \theta} \frac{\partial^2 C}{\partial \phi^2} \right)}_{\text{dispersi}} + \underbrace{\sum}_{\text{source}} \quad (2.23)$$

$$\rho \hat{C}_v \left(\underbrace{\frac{\partial T}{\partial t}}_{\text{akumulasi}} + \underbrace{\frac{\partial T}{\partial r} v_r + v_\theta \frac{1}{r} \frac{\partial T}{\partial \theta} + \frac{v_\phi}{r \sin \theta} \frac{\partial T}{\partial \phi}}_{\text{konveksi}} \right) = \underbrace{k \left[\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2 \sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial T}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{r^2 \sin^2 \theta} \frac{\partial^2 T}{\partial \phi^2} \right]}_{\text{konduksi}} + \underbrace{2\mu \left\{ \left(\frac{\partial v_r}{\partial r} \right)^2 + \left(\frac{1}{r} \frac{\partial v_\theta}{\partial \theta} + v_r \right)^2 + \left(\frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial v_\phi}{\partial \phi} + \frac{v_r}{r} + \frac{v_\theta \cot \theta}{r} \right)^2 \right\}}_{\text{disipasi viskos}} +$$

$$\underbrace{\mu \left\{ \left[r \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{v_\theta}{r} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial v_r}{\partial \theta} \right]^2 + \left[\frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial v_r}{\partial \phi} + r \frac{\partial}{\partial r} \left(\frac{v_\theta}{r} \right) \right]^2 + \left[\frac{\sin \theta}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\frac{v_\phi}{r \sin \theta} \right) + \frac{1}{r \sin \theta} \frac{\partial v_\theta}{\partial \phi} \right]^2 \right\}}_{\text{dissipasi viskos}} + \int_{\text{source}} \quad (2.24)$$

Sedangkan untuk neraca momentum menggunakan pendekatan Persamaan Ergun sebagai berikut :

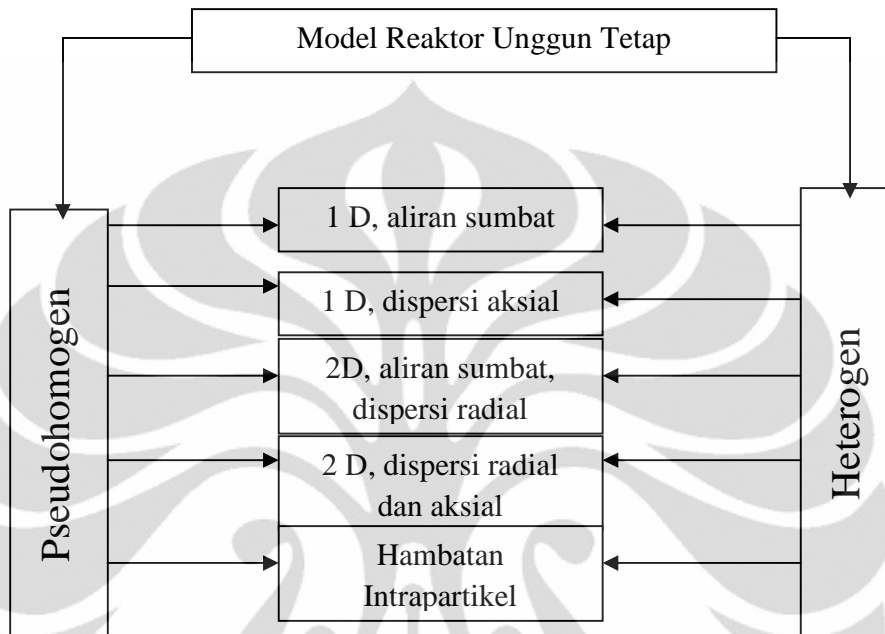
$$\frac{\Delta P}{L} g_c = \frac{1.75(1-\varepsilon)}{\varepsilon^3} \times \frac{Gv}{D_p} + \frac{150(1-\varepsilon)^2}{\varepsilon^3} \times \frac{\mu v}{D_p^2} \quad (2.25)$$

Persamaan Ergun mengkorelasikan *pressure drop* per panjang unggun dengan berbagai karakteristik seperti kecepatan, kerapatan fluida, viskositas, ukuran, bentuk, permukaan padatan granular dan fraksi void.

Pada proses pemodelan akan diturunkan persamaan matematis dari sistem reaktor tubular unggun tetap. Dalam menurunkan persamaan tentunya harus diperhitungkan berbagai aspek yang terlibat di dalam sistem dan kemudian merepresentasikannya ke dalam persamaan matematis. Secara umum, untuk proses yang melibatkan proses perpindahan maka akan melibatkan prinsip tiga kesetimbangan yaitu Neraca Massa, Neraca Energi dan Neraca Momentum. Ketiga aspek tersebut bersama-sama membentuk sebuah fenomena perpindahan yang secara simultan mempengaruhi profil sepanjang reaktor.

Dalam desain reaktor dan analisa selalu berbenturan dengan derajat kerumitan yang bisa ditoleransi. Model reaktor unggun tetap secara garis besar dibagi dua yaitu pseudo-homogen dan heterogen. Pada model pseudo-homogen permukaan katalis diasumsikan terpapar seluruhnya oleh aliran ruah fluida sehingga dianggap tidak ada hambatan transfer massa maupun energi dari katalis fasa padat ke fluida maupun sebaliknya. Sedangkan pada model heterogen, neraca massa maupun energi diperhitungkan untuk setiap fasa dan hambatan transport massa dan energi antar fasa turut diperhitungkan. Model reaktor juga dibagi berdasarkan dimensinya. Model satu dimensi hanya memperhitungkan satu arah saja yaitu arah aksial sedangkan model dua dimensi turut

memperhitungkan fenomena transportasi arah aksial maupun radial. Pembagian selengkapnya terlihat dari diagram di bawah.



Gambar 2.14 Klasifikasi Model Reaktor Unggun Tetap (Iordanidis, 2002)

a. Model pseudo-homogen Satu Dimensi

Model Pseudo-homogen satu dimensi merupakan model reaktor yang paling simple. Pada model ini fenomena transport yang diperhitungkan hanyalah konvektif secara aksial. Karena sifat alirannya yang sama untuk tiap arah radial maka model ini disebut model aliran sumbat (*plug flow*). Pada model ini seluruh sifat dari fluida maupun katalis dirata-ratakan karena model ini mengasumsikan hanya satu fasa. Persamaan model reaktornya adalah

Neraca massa

$$u_{int} \frac{dC_i}{dz} = -R_i(C, T) \quad (2.26)$$

Neraca energi

$$u_{int} \rho_f c_p \frac{dT}{dz} = -R_T(C, T) - \frac{4U_w}{dt} (T - T_w) \quad (2.27)$$

b. Model Heterogen Satu Dimensi

Model ini memperhitungkan fenomena transport yang sama seperti model sebelumnya yaitu konvektif arah aksial. Namun perbedaannya dengan model sebelumnya terletak bahwa model ini memperhitungkan transfer antar fasa katalis ke fasa fluida ruah. Hal ini diakibatkan karena model ini memperhitungkan dua fasa yaitu katalis dan fluida ruah. Model ini juga membedakan antara konsentrasi di permukaan partikel katalis dan konsentrasi pada fluida ruah. Persamaan untuk model ini adalah

Fasa Fluida

$$u_{int} \frac{dC_i}{dz} = k_g a_p (C_{s,i} - C_i) \quad (2.28)$$

$$u_s \rho_f c_p \frac{dT}{dz} \quad (2.29)$$

$$= h_g a_p (T_s - T)$$

$$- \frac{4U_w}{dt} (T - T_w)$$

Fasa Solid

$$k_g a_p (C_{s,i} - C_i) = -R_i(C_s, T_s) \quad (2.30)$$

$$h_g a_p (T_s - T) = -\Delta H_j R_i(C_s, T_s) \quad (2.31)$$

c. Model Heterogen Satu Dimensi Dengan Memperhitungkan Difusi Aksial

Model ini merupakan model yang heterogen sehingga memperhitungkan neraca massa dan energi untuk fasa katalis maupun fluida ruah. Model ini memiliki penambahan suku difusi ke arah difusi aksial untuk menambah akurasi fenomena yang terjadi. Persamaan yang digunakan adalah

Fasa Fluida

$$u_s \frac{dC_i}{dz} - D_{i,m} \frac{d^2 C_i}{dz^2} = k_g a_p (C_{s,i} - C_i) \quad (2.32)$$

$$\begin{aligned} u_s \rho_f c_p \frac{dT}{dz} \lambda_f \frac{d^2 T}{dz^2} & \quad (2.33) \\ & = h_g a_p (T_s - T) \\ & - \frac{4U_W}{dt} (T - T_w) \end{aligned}$$

Fasa Solid

$$k_g a_p (C_{s,i} - C_i) = -R_i(C_s, T_s) \quad (2.34)$$

$$h_g a_p (T_s - T) = -R_T(C_s, T_s) \quad (2.35)$$

d. Model Dua Dimensi Pseudo-homogen

Model dua dimensi ini transfer massa dan energi diperhitungkan untuk arah aksial dan radial. Pada arah aksial fenomena transport yang terjadi umumnya adalah secara konvektif sedangkan untuk arah radial fenomena yang terjadi umumnya adalah difusi. Persamaan yang digunakan adalah

Neraca massa

$$u_s \frac{\partial C_i}{\partial z} - \frac{D}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial C_i}{\partial r} \right) = -R_i(C, T) \quad (2.36)$$

Neraca energi

$$u_s \rho_f c_p \frac{dT}{dz} - \frac{\lambda}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial T}{\partial r} \right) = -R_T(C, T) \quad (2.37)$$

e. Model Dengan Memperhitungkan Hambatan Intrapartikel Katalis

Model ini berdasarkan bahwa setelah reaktan maupun produk melewati lapisan batas maka senyawa tersebut harus berdifusi lagi di dalam pori-pori partikel untuk menuju inti aktif katalis. Fenomena transport yang terjadi pada katalis hanya difusi, tidak seperti aliran fluida ruah, di katalis tidak terdapat aliran konvektif.

Model dasar yang paling banyak digunakan hingga saat ini adalah model pseudo-homogen satu-dimensi (Froment, 1990; Andrigo 1999), yang hanya memperhitungkan transport sebagai aliran sumbat pada arah aksial. Model

tersebut sesuai untuk reaktor yang panjang, laju alir tinggi, ukuran katalis kecil (Andrigo 1999); dan gradien massa dan temperatur ke arah radial kecil sehingga bisa diabaikan (Avci 2006). Sementara untuk mendapatkan ketelitian yang tinggi dan dengan reaktor yang tidak terlalu panjang, laju alir rendah dan ukuran katalis besar maka umumnya digunakan model heterogen.

2.4.1.2 Kondisi Batas

Persamaan pada kondisi batas merupakan persamaan di titik dimana persamaan yang akan diselesaikan memiliki rentang minimal dan rentang maksimal sepanjang intervalnya. Persamaan neraca massa dan energi berupa persamaan diferensial parsial dimana terdapat dua kondisi batas untuk masing-masing arah aksial dan radial. Batasan-batasan yang ditentukan berdasarkan spesifikasi kasus ini baik pada persamaan untuk fasa fluida (skala reaktor) dan untuk fasa padat (skala partikel), meliputi :

- Kondisi batas skala reaktor

Pada arah aksial umpan masuk adalah tetap. Posisi umpan masuk berada pada $z = 0$ dan temperatur masuk adalah konstan, sehingga berlaku hubungan :

pada $z = 0$ (untuk $0 < r < R$)

$$C = C_{in} \quad (2.38)$$

$$T = T_{in} \quad (2.39)$$

Kondisi batas untuk neraca energi dan massa pada skala reaktor analog kecuali pada dinding reaktor dimana terjadi perpindahan massa akibat pemanasan eksternal dari *furnace*

Untuk kondisi batas di posisi lainnya berlaku hubungan bahwa turunan pertama di posisi tersebut adalah nol. Hubungan ini berarti bahwa pada posisi tersebut diasumsikan sudah tidak ada gradient konsentrasi dan temperatur.

Pada $z = L$:

$$dC/dz = 0$$

$$dT/dz = 0$$

pada $r = 0$ (untuk $0 < z < L$) :

$$dC/dr = 0$$

$$dT/dr = 0$$

- **Kondisi batas skala partikel**

Kondisi batas pada skala ini terdapat pada pusat dan permukaan katalis. Pada posisi pusat katalis diasumsikan tidak terjadi lagi perubahan konsentrasi dengan kata lain gradient konsentrasi adalah nol, begitu juga yang terjadi pada neraca energi. Persamaan kondisi batasnya adalah sebagai berikut :

Pada $r_p = 0$:

$$dC_s/dr_p = 0$$

$$dT_s/dr_p = 0$$

pada $r_p = R_p$

$$C = C_s$$

$$Ke (dT/dr_p) = h(T_s - T)$$

2.4.2 Pemodelan dengan Teknologi CFD

2.4.2.1 Teknologi *Computational Fluid Dynamics* (CFD)

Computational Fluid Dynamics (CFD) adalah sebuah analisa dari suatu sistem meliputi aliran fluida, transfer energi, pembakaran serta reaksi kimia yang menggunakan simulasi yang berbasis komputasi (Coker, 2001). Contoh penggunaan dalam ruang lingkup teknik kimia meliputi

- Polimerisasi
- Aliran Multifasa
- Pemodelan Reaksi

CFD mengandung tiga elemen penting, yaitu yaitu *pre-processor*, *solver* dan *post-processor*. *Pre-processor* terdiri dari pemasukan sebuah masalah dalam program CFD menggunakan format yang sesuai. Beberapa langkah dalam *pre-processor* meliputi:

- Menentukan geometri sistem yang akan disimulasikan.
- Menentukan *grid*.
- Menentukan fenomena-fenomena fisik dan kimia yang terjadi di dalam sistem yang dibuat geometrinya.
- Menentukan sifat fisik dan kimia fluida yang digunakan dalam simulasi.
- Menentukan kondisi batas yang tepat

Keakuratan dari CFD sangat bergantung pada jumlah sel pada grid. Semakin banyak jumlah sel yang dibuat semakin akurat perhitungan yang dilakukan oleh CFD. Namun dengan tingginya jumlah sel, maka spesifikasi komputer yang digunakan juga lebih tinggi.

Elemen kedua yaitu *solver*, atau penyelesaian masalah (perhitungan). Ada tiga metode numerik yang digunakan oleh CFD, yaitu metode *finite different*, metode elemen hingga, dan metode spektral. Dalam melakukan perhitungan, ketiga metode ini mengikuti langkah-langkah berikut :

- Pendekatan dari aliran-aliran yang tidak diketahui secara sederhana.
- Diskretisasi atau pemotongan-pemotongan menjadi beberapa elemen yang setiap elemennya memiliki persamaan.
- Solusi dari persamaan aljabar

Elemen ketiga adalah *post-procesor*, yaitu untuk melihat berbagai macam solusi yang telah dihitung pada tahap *solver*. Solusi ini dapat berupa beberapa bentuk meliputi: gambar vektor, gambar permukaan 2D maupun 3D. Penggunaan CFD yang tepat adalah ketika penggunaannya mengerti fenomena fisik dan kimia yang terjadi pada model tersebut. Teknik modelling yang baik diperlukan dalam menentukan asumsi-asumsi sehingga kompleksitas masalah menjadi sederhana. Pengetahuan tentang algoritma solusi numeris yang cukup juga diperlukan. Konsep matematika untuk menentukan kesuksesan algoritma meliputi konvergensi, konsistensi dan stabilitas.

2.4.2.2 Metode Elemen Hingga

Metode elemen hingga atau *Finite Element Method* (FEM) adalah suatu teknik numeris untuk mendapatkan solusi tepat baik dari persamaan diferensial parsial maupun persamaan integral. Solusi ini didasarkan dengan mengeliminasi seluruh persamaan diferensial (*steady state*) ataupun mengubah persamaan diferensial parsial tersebut menjadi sistem dari persamaan diferensial biasa, yang kemudian diintegrasikan secara numeris menggunakan metode Euler, Runga Kutta, dan lainnya.

Dalam menyelesaikan persamaan diferensial parsial, tantangan utamanya adalah membuat suatu persamaan yang mengindikasikan persamaan yang dipelajari. Ada banyak metode untuk melakukan hal ini dengan segala keuntungan dan kesulitannya sendiri. Metode elemen hingga merupakan pilihan yang baik untuk menyelesaikan persamaan diferensial parsial rumit.

Metode elemen hingga pertama kali dibuat untuk menyelesaikan masalah elastisitas kompleks dan analisis struktur dalam teknik sipil dan *aeronautical*. Metode elemen hingga dikembangkan oleh Alexander Hrennikoff (1941) dan Richard Courant (1942).

Berbagai macam spesialisasi dalam teknik mesin (seperti *aeronautical*, biomekanikal dan industri otomotif) biasanya menggunakan metode elemen hingga terintegrasi dalam mendesain dan mengembangkan produk mereka. Metode elemen hingga dapat menggunakan visualisasi detil ketika strukturnya bengkok ataupun diputar dan menunjukkan distribusi tegangannya. Perangkat lunak metode elemen hingga menyediakan pilihan simulasi yang luas untuk mengontrol kompleksitas model dan analisis dari suatu sistem.

FEM dapat menangani beberapa masalah meliputi (Burnett, 1987):

- Berbagai masalah matematika dan fisika meliputi persamaan kalkulus seperti diferensial, integral, dan variasi dari persamaan-persamaan

- Masalah *boundary-value* (seperti masalah *steady state*), masalah eigen (fenomena resonansi dan stabilitas) dan masalah *initial-value* (difusi, vibrasi dan propagasi gelombang)
- Sifat fisik (seperti densitas, permeabilitas, konduktivitas yang bervariasi pada sistem)
- Masalah dapat berupa linear dan non-linear

Selain FEM, ada sebuah metode untuk menyelesaikan persamaan differensial, yaitu *Finite Difference Method* (FDM). Perbedaan antara FEM dan FDM adalah :

- FDM adalah suatu pendekatan ke persamaan differensial, sedangkan FEM adalah pendekatan ke hasilnya
- FEM dapat mengatasi masalah dalam geometri rumit, sedangkan FDM hanya dapat menyelesaikan geometri dasar seperti persegi panjang dan lingkaran.
- FDM lebih mudah jika dibandingkan dengan FEM
- Kualitas pendekatan FEM jauh lebih tinggi dibandingkan FDM

2.4.2.3 Simulasi dengan COMSOL Multiphysics

COMSOL Multiphysics (sebelumnya FEMLAB) adalah perangkat lunak analisis elemen hingga, solver dan simulasi untuk berbagai aplikasi fisika dan teknik. COMSOL Multiphysics juga menawarkan antarmuka yang luas untuk MATLAB dan peralatan untuk berbagai macam aplikasi pemrograman, pra proses dan pasca proses. Comsol bersifat cross-platform (apat digunakan di Windows, Mac, Linux, Unix). Selain antarmuka konvensional yang berbasis-fisika, COMSOL Multiphysics juga memungkinkan untuk memasuki persamaan system digabungkan dengan persamaan diferensial parsial (PDEs).

Comsol memiliki berbagai modul-modul yaitu

1. AC/DC Module

Modul ini dapat mensimulasikan sistem komponen dan peralatan elektrik yang bergantung pada proses elektrostatis, magnetostatis dan elektromagnetik kuasi-statik. Modul ini juga dapat dipasangkan dengan berbagai fenomena fisika lainnya. Modul ini juga memiliki *interface* untuk aplikasi sirkuit *SPICE*.

2. Acoustics Module

Modul ini memiliki modus aplikasi dan kondisi batas untuk memodelkan propagasi di zat padat atau fluida statis. Modul ini juga bisa memodelkan aplikasi aeroakustik pada fluida bergerak.

3. CAD Import Module

Modul ini berguna untuk pembacaan berbagai format *Computer Aided Design* standar industry pada umumnya. Modul ini memiliki *plugin* untuk membaca berbagai format geometri.

4. Chemical Engineering Module

Modul ini mampu menganalisis neraca massa dan energi yang dikolring dengan persamaan reaksi kimia. Modul ini mampi memodelkan berbagai fenomena transportasi fluida termasuk transport ionic dan difusi multikomponen.

5. Earth Science Module

Modul ini mampu memodelkan fenomena geologis dan lingkungan berdasarkan fenomena aliran *subsurface*. Modul ini ideal aliran pada media pori yang dikolring dengan fenomena fisik lainnya seperti poroelastik.

6. Heat Transfer Module

Modul ini memiliki mode aplikasi transfer massa melalui konduksi, konveksi dan radiasi. Modul ini juga dapat dapat menyelesaikan berbagai masalah transfer energi yang terintegrasi dengan fenomena fisika lainnya.

7. Material Library

Modul ini menyimpan berbagai data sifat fisik dan kimia dari berbagai zat dan material. Modul ini memudahkan prediksi sifat fisik dan kimia suatu material

8. Structural Mechanics Module

Modul ini mampu menganalisis tegangan regangan material dengan kopling persamaan fisika lainnya. Modul ini mampu memodelkan material non linear, yang terdeformasi secara besar dengan kopling persamaan fisika lainnya

Pada penelitian ini akan digunakan modul Chemical Engineering. Modul Chemical Engineering memiliki kemampuan analisis CFD dan neraca massa dan energi yang digabungkan dengan kinetika reaksi kimia. Modul ini juga mampu menggabungkan sejumlah besar model aplikasi untuk bidang fenomena transportasi massa termasuk transportasi ion dan difusi multikomponen.

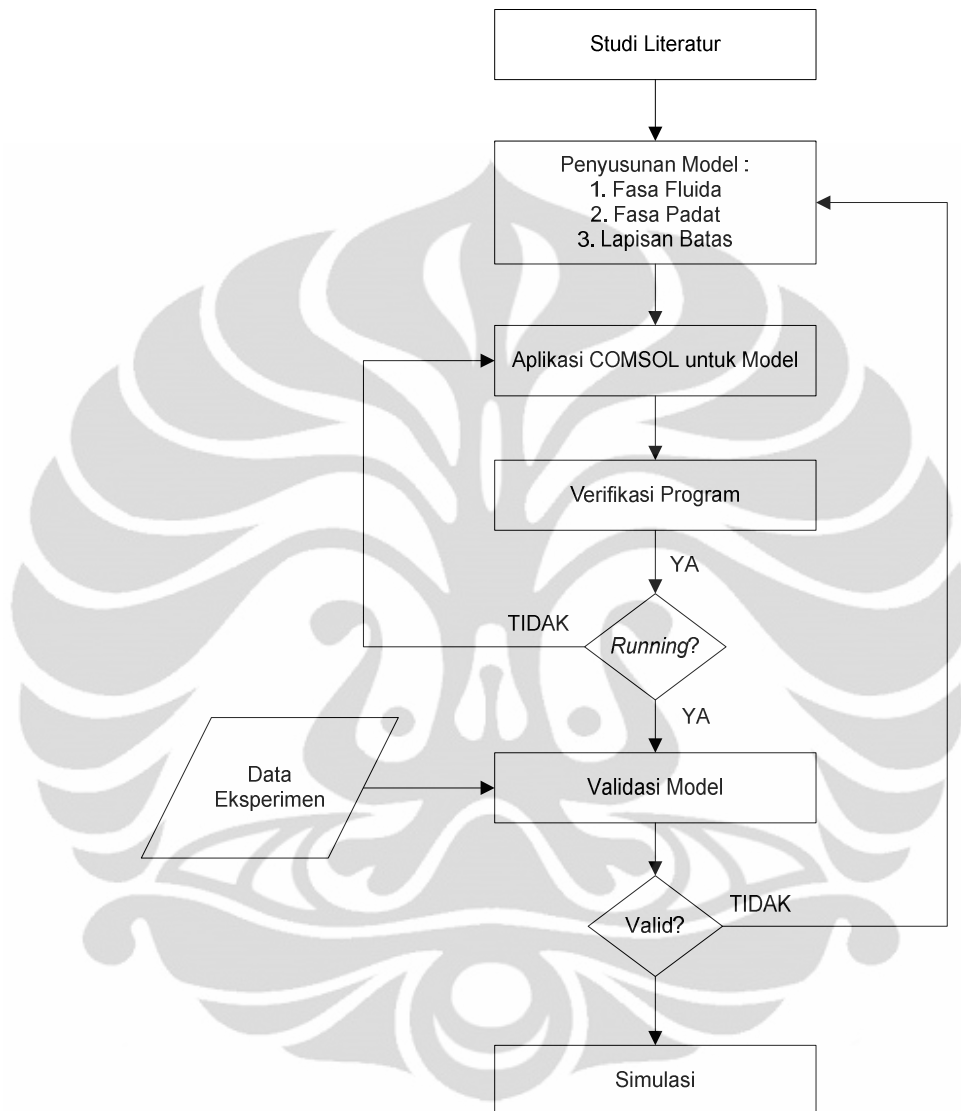
BAB III

METODOLOGI

Untuk mencapai tujuan yang diharapkan dalam penelitian ini maka pada bab ini akan dijelaskan mengenai langkah-langkah yang dilakukan. Dengan demikian diharapkan dapat mempermudah dalam menyelesaikan permasalahan yang dihadapi dan bisa digunakan sebagai acuan penelitian yang akan datang agar didapatkan hasil yang lebih baik. Langkah-langkah yang dilakukan dalam penelitian ini meliputi:

1. Studi literatur
2. Penyusunan model matematis reaktor unggun tetap
3. Aplikasi model pada COMSOL Multiphysics
4. Verifikasi program
5. Validasi model
6. Simulasi

Adapun diagram alir penelitian dapat dilihat pada gambar 3.1 berikut :



Gambar 3.1 Diagram Alir Penelitian

3.1 Studi Literatur

Dalam studi literatur dilakukan pengumpulan data-data dan parameter yang diperlukan dalam menyusun model diantaranya teori pendukung tentang proses reformasi metana secara autotermal, persamaan kinetika untuk reaksi oksidasi parsial dan reformasi kukus, teori reaktor unggun tetap, simulasi dengan COMSOL

Multiphysics dan data percobaan sebagai bahan untuk melakukan validasi model yang didapatkan.

3.2 Penyusunan Model Matematis Reaktor Unggun Tetap

Model yang akan digunakan adalah model reaktor ungun tetap heterogen dua dimensi. Model disusun dengan cara menurunkan kontrol volum diferensial dengan hukum konservasi dasar untuk massa dan energi untuk kondisi tunak dengan mempertimbangkan tahanan lapisan batas yang memperhitungkan faktor konveksi dan dispersi pada arah aksial dan radial sehingga didapatkan sistem persamaan diferensial yang akan diselesaikan secara simultan. Hasil penyusunan model matematis reaktor ungun tetap akan dijelaskan di bab IV.

3.3 Aplikasi Model pada COMSOL Multiphysics

Mengaplikasikan model neraca massa dan neraca energi yang didapat pada program COMSOL untuk menyelesaikan sistem persamaan diferensial yang dirumuskan dengan menyesuaikan persamaan model dengan persamaan yang terdapat dalam program COMSOL dengan memasukkan semua parameter model (konstanta, persamaan skalar dan kondisi batas) ke dalam persamaan-persamaan yang telah ditentukan. Prosedur pengaplikasian model pada COMSOL bisa dilihat pada lampiran A.

3.4 Verifikasi Program

Verifikasi program dilakukan untuk mengetahui adanya kesalahan pada aplikasi model ke dalam program COMSOL. Kesalahan ini bisa diketahui dengan melakukan eksekusi terhadap program setelah memasukan semua parameter yang diperlukan. Jika ada pesan kesalahan baik dari input konstanta, kondisi batas ataupun penulisan *script* program berarti program belum valid.

Jika verifikasi program belum berhasil maka dilakukan koreksi terhadap parameter-parameter model yang diaplikasikan pada program (persamaan skalar, konstanta, kondisi batas) ataupun penulisan *script* program hingga model yang

diaplikasikan dapat berjalan yang bisa diketahui dengan tidak munculnya pesan kesalahan ketika model yang telah diaplikasikan ke dalam program COMSOL dijalankan, sehingga dapat digunakan untuk langkah berikutnya.

3.5 Validasi Model

Validasi model dilakukan dengan membandingkan data-data yang didapat dari hasil simulasi dengan data-data percobaan yang dilakukan oleh Scognamiglio (2009) untuk mengetahui sejauh mana error atau kelayakan dari model. Jika data hasil simulasi memiliki $< 5\%$ deviasi dari data eksperimen maka model dinyatakan valid dan kemudian dilakukan simulasi uji kinerja reaktor.

Parameter operasi yang akan digunakan dapat dilihat pada tabel 3.1 berikut :

Tabel 3.1 Parameter Operasi untuk Validasi Model (Scognamiglio, 2009)

Kondisi Operasi	
Tekanan	3×10^5 Pa
Temperatur	973 K
Laju Alir	1,5 - 6 NL/min
Geometri Reaktor	
Diameter	21 mm
Panjang	14 mm
Data Fisik Katalis	
Diameter Katalis	1 mm
Berat Jenis	0,95 kg/L
Porositas	0,4

Sedangkan data-data parameter kinetika (sifat fisik katalis, konstanta laju reaksi konstanta kesetimbangan dan konstanta adsorpsi) bisa dilihat pada tabel 2.2 – 2.5 pada subbab 2.2.3.

Koefisien perpindahan massa dan panas yang akan digunakan dalam model adalah koefisien hasil estimasi korelasi parameter yang diperoleh dari berbagai literatur yang akan dilaporkan pada bab IV.

Data-data eksperimen yang akan divalidasi adalah data konversi CH_4 dan selektivitas produk keluaran reaktor. Model dinyatakan valid jika hasil simulasi

memiliki $< 5\%$ deviasi dari data eksperimen dengan estimasi korelasi yang disesuaikan.

3.6 Simulasi

Simulasi dilakukan dengan bantuan program COMSOL Multiphysics. Simulasi ini dilakukan untuk mengetahui pengaruh variabel bebas terhadap variabel-variabel terikat dalam sistem reaktor unggun tetap untuk reformasi metana secara autotermal.

Adapun variabel bebas termasuk dalam simulasi ini adalah :

- Laju alir umpan
- Tekanan umpan
- Rasio umpan

Dan variabel terikat yang akan dilihat perilakunya dalam simulasi ini adalah :

- Profil konsentrasi
- Profil temperatur
- Profil tekanan

BAB IV

PEMODELAN REAKTOR UNGGUN TETAP

Dalam bab ini akan dibahas mengenai pemodelan yang dilakukan untuk mensimulasikan reaktor unggun tetap proses reformasi metana secara autotermal. Pemodelan ini meliputi penurunan model-model dari persamaan umum neraca massa dan energi beserta asumsi yang digunakan, serta aplikasi model tersebut dalam COMSOL.

Dalam melakukan penurunan persamaan, tentunya harus diperhitungkan berbagai aspek yang terlibat di dalam sistem dan kemudian merepresentasikannya ke dalam persamaan matematis. Secara umum, untuk proses yang melibatkan proses perpindahan maka akan melibatkan prinsip tiga kesetimbangan yaitu neraca massa, neraca energi, dan neraca momentum. Ketiga aspek tersebut bersama-sama membentuk sebuah fenomena perpindahan yang secara simultan mempengaruhi profil sepanjang reaktor.

Model reaktor yang digunakan adalah model heterogen satu dimensi ke arah aksial reaktor dan arah radial katalis. Pemilihan model satu dimensi karena diasumsikan variasi konsentrasi ke arah radial reaktor sangat kecil karena aliran gas yang berviskositas rendah. Selain itu variasi suhu ke arah radial pun diasumsikan kecil untuk rasio panjang terhadap lebar reaktor yang besar. Model heterogen dipilih karena mampu merepresentasikan fenomena difusi lapisan film dan fenomena difusi intrakatalis yang memiliki efek yang cukup besar pada diameter katalis yang cukup besar. Selain itu kita hanya menganalisis kondisi tunak, yaitu kondisi operasi reaktor ketika tidak ada variasi kondisi terhadap waktu.

Penurunan persamaan model reaktor akan dibedakan antara fasa fluida (gas), dan fasa solid atau padatan (katalis), di mana reaksi hanya terjadi di permukaan pori-pori partikel katalis sesuai kinetika Xu dan Froment (1989) untuk reformasi metana dan Ma dkk. (1996) untuk oksidasi

metana. Oleh karena itu, pengaruh difusi pori-pori katalis dan transfer massa dari fasa gas ke padatan perlu diikutsertakan. Sistem akan dibagi menjadi 2 bagian, yaitu skala reaktor dan skala partikel katalis. Di dalam kedua sistem akan dimodelkan neraca massa dan energi sesuai dengan fenomena perpindahannya masing-masing.

4.1 Neraca Skala Reaktor

Pada skala reaktor ini persamaan dibagi menjadi tiga bagian, yaitu persamaan neraca massa, neraca energi dan neraca momentum. Persamaan ini bertujuan memodelkan fenomena-fenomena perpindahan yang terjadi pada skala reaktor dalam bentuk persamaan matematis.

4.1.1 Neraca Massa

Dalam persamaan neraca massa kondisi tunak berlaku persamaan umum :

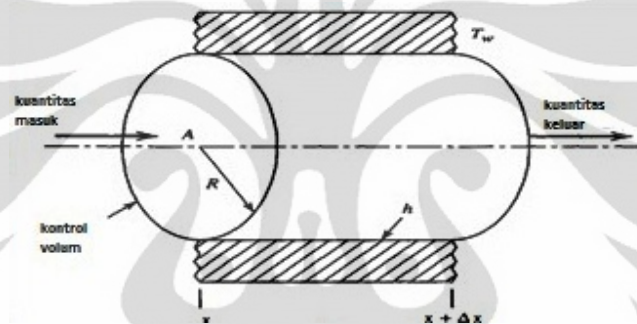
$$\begin{aligned} & \left[\begin{array}{c} \text{Laju Massa} \\ \text{Masuk} \end{array} \right] - \left[\begin{array}{c} \text{Laju Massa} \\ \text{Keluar} \end{array} \right] \\ & \quad - [\text{Laju Generasi massa}] = 0 \end{aligned} \quad (4.1)$$

Persamaan di atas diuraikan lagi berdasarkan efek atau fenomena-fenomena perpindahan massa yang ada di dalamnya. Fenomena yang terjadi di fluida ruang di reaktor adalah konveksi, dispersi dan difusi lapisan film. Sedangkan fenomena konveksi terjadi karena fluida ruang memiliki kecepatan. Fenomena difusi lapisan film terjadi karena adanya perbedaan konsentrasi spesi di fasa padat dan fasa gas. Dispersi adalah fenomena transfer massa makroskopik akibat aliran yang tidak merata akibat tumbukan dengan katalis maupun efek pencampuran. Fenomena ini berbeda dari difusi karena difusi terjadi akibat fenomena mikroskopik perpindahan molekular yang acak. Pada fenomena perpindahan dengan aliran, fenomena perpindahan secara dispersi jauh signifikan dibandingkan difusi.

Di dalam pemodelan ini hanya diperhitungkan efek dispersi dan konveksi dalam aliran fluida pada arah aksial, maka persamaan matematis dengan memperhitungkan arah aksial dapat dituliskan sebagai berikut :

$$\left[\text{Laju (Massa) Masuk} - \text{(Massa) Keluar} \right]_{\text{konvektif aksial}} + \left[\text{Laju (Massa) Masuk} - \text{(Massa) Keluar} \right]_{\text{dispersif aksial}} - \left[\text{Laju Generasi Massa} \right] = 0 \quad (4.2)$$

Supaya dapat dihitung dan ditentukan nilainya secara kuantitatif maka persamaan di atas harus diubah menjadi bentuk persamaan matematis dengan kontrol volum sebagai berikut ini :



Gambar 4.1 Kontrol Volume Skala Reaktor

Bentuk persamaan matematis dari persamaan di atas dapat dituliskan sebagai berikut :

Fluks Masuk x Area – Fluks Keluar x Area + Perpindahan Antar Fasa = 0

$$\left[\pi r^2 C_i u_x \right]_x + \left[\pi r^2 J_i \right]_x - \left[\pi r^2 C_i u_x \right]_{x+\Delta x} - \left[2\pi r^2 J_i \right]_{x+\Delta x} + \pi r^2 \Delta x k_g a_p (C_i - C_{i,s}) \quad (4.3)$$

dengan x adalah jarak untuk arah aksial. Masing-masing suku di atas mewakili fenomena konveksi aksial, difusi aksial dan generasi massa.

Dari persamaan di atas dapat dilihat bahwa neraca massa dievaluasi pada posisi x dengan interval sebesar Δx . Tinjauan dengan interval ini

dimaksudkan agar neraca massa dapat ditinjau pada kondisi tertentu yang dapat dihitung.

Selanjutnya persamaan di atas ditransformasikan ke dalam bentuk laju di mana dengan dibagi dengan $\pi r^2(\Delta x)$ dan dilimitkan dengan Δx mendekati 0 sebagai berikut :

$$\lim_{\Delta x \rightarrow 0} \left[\frac{\pi r^2 (C_{i,u_x}|_{x+\Delta x} - C_{i,u_x}|_x)}{\pi r^2 \Delta x} \right] + \left[\frac{\pi r^2 (J_{i,z}|_{x+\Delta x} - J_{i,z}|_x)}{\pi r^2 \Delta x} \right] + \left[\frac{\pi r^2 \Delta x k_g a_p \Delta C}{\pi r^2 \Delta x} \right] = 0 \quad (4.4)$$

Menghasilkan persamaan diferensial sebagai berikut :

$$\left(\frac{\partial C_{i,u_x}}{\partial x} \right) + \left(\frac{\partial J_{i,z}}{\partial x} \right) + k_g a_p (C_i - C_{i,s}) = 0 \quad (4.5)$$

Lalu substitusi nilai,

$$J_{i,z} = -D_e \frac{dC_i}{dx} \quad (4.6)$$

Maka persamaan menjadi :

$$\underbrace{\frac{\partial C_{i,u_x}}{\partial x}}_1 + \underbrace{D_e \left[\frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} \right]}_2 + \underbrace{k_g a_p (C_i - C_{i,s})}_3 = 0 \quad (4.7)$$

Dimana :

1. Aksial konvektif
2. Aksial dispersif
3. Transfer massa lapisan film

Selain itu kita perlu melakukan proses pentakdimensial variabel arah aksial. Pentakdimensial arah aksial memudahkan saat variasi panjang reaktor. Dengan menggunakan bilangan tak berdimensi, maka tidak diperlukan penggantian geometri reaktor secara terus menerus untuk setiap

variasi panjang reaktor. Jika digunakan faktor parameter pentakdimensian ω persamaan di atas menjadi

$$\omega \frac{\partial C_i u_s}{\partial x} - \omega D_e \left[\frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} \right] + k_g a_p (C_i - C_{i,s}) = 0 \quad (4.8)$$

dengan,

ω = panjang reaktor model/panjang reaktor sebenarnya

4.1.2 Neraca Energi

Untuk neraca energi reaktor pada arah aksial dapat dinyatakan dengan persamaan berikut:

$$\begin{aligned} & \left[\begin{array}{c} \text{(Laju Energi)} \\ \text{Masuk} \end{array} \right] \\ & - \left[\begin{array}{c} \text{(Laju Energi)} \\ \text{Keluar} \end{array} \right]_{\text{konvektif aksial}} + \left[\begin{array}{c} \text{(Laju Energi)} \\ \text{Masuk} \end{array} \right] \\ & - \left[\begin{array}{c} \text{(Laju Energi)} \\ \text{Keluar} \end{array} \right]_{\text{dispersif aksial}} - \left[\begin{array}{c} \text{Laju Generasi} \\ \text{Energi} \end{array} \right] \\ & = 0 \end{aligned} \quad (4.9)$$

Sesuai dengan kontrol volume pada neraca energi skala reaktor, bentuk persamaan matematis dari persamaan di atas dapat dituliskan sebagai berikut :

Fluks Masuk x Area – Fluks Keluar x Area + Perpindahan Antar Fasa = 0

$$\begin{aligned} & \left[\pi^2 (\rho c_p T) u_x \right]_x + \left[\pi^2 q_i \right]_x - \left[\pi^2 (\rho c_p T) u_x \right]_{x+\Delta x} - \left[2\pi^2 q_i \right]_{x+\Delta x} \\ & + \pi^2 \Delta x h_g a_p (T_f - T_s) \end{aligned} \quad (4.10)$$

dengan x adalah jarak untuk arah aksial. Masing-masing suku di atas mewakili fenomena konvektif aksial, dispersif aksial dan generasi energi

Dari persamaan di atas dapat dilihat bahwa neraca energi dievaluasi pada posisi x dengan interval sebesar Δx . Tinjauan dengan interval ini dimaksudkan agar neraca energi dapat ditinjau pada kondisi tertentu yang dapat dihitung.

Selanjutnya persamaan di atas ditransformasikan dengan cara dibagi dengan $\pi r^2(\Delta x)$ dan dilimitkan untuk Δx mendekati nol sebagai berikut

$$\lim_{\Delta x \rightarrow 0} \left[\frac{\pi r^2 \left((\rho c_p T)_{x+\Delta x} - (\rho c_p T)_{x} \right)}{\pi r^2 \Delta x} \right] + \left[\frac{\pi r^2 \left(q_{i,x} \Big|_{x+\Delta x} - q_{i,x} \Big|_{x} \right)}{\pi r^2 \Delta x} \right] + \left[\frac{\pi r^2 \Delta x h_g a_p \Delta T}{\pi r^2 \Delta x} \right] = 0 \quad (4.11)$$

Menghasilkan persamaan diferensial sebagai berikut :

$$\frac{\partial (\rho c_p T)_{x}}{\partial x} + \frac{\partial x q_{i,x}}{\partial x} + h_g a_p \Delta T = 0 \quad (4.12)$$

Lalu substitusi nilai,

$$q_{i,z} = -k_{dis} \frac{dT_f}{dx} \quad (4.13)$$

Maka persamaan menjadi :

$$\underbrace{\frac{\partial T_f u_{int}}{\partial x}}_1 + k_{dis} \underbrace{\left(\frac{\partial^2 T_f}{\partial x^2} \right)}_2 + h_g a_p \underbrace{(T_f - T_s)}_3 = 0 \quad (4.14)$$

Di mana :

1. Aksial konvektif
2. Aksial dispersif
3. Transfer energi lapisan film

Selain itu kita perlu melakukan proses pentakdimensial variabel arah aksial. Pentakdimensial arah aksial memudahkan saat variasi panjang reaktor. Dengan menggunakan bilangan pentakdimensial, maka tidak diperlukan penggantian geometri reaktor secara terus menerus untuk setiap variasi panjang reaktor. Jika digunakan faktor parameter pentakdimensial ω persamaan di atas menjadi

$$\underbrace{\omega \frac{\partial T_f u_{int}}{\partial x}}_1 + \underbrace{k_{dis} \left(\frac{\partial^2 T_f}{\partial x^2} \right)}_2 \omega + \underbrace{h_s a_p (T_f - T_s)}_3 = 0 \quad (4.15)$$

dengan

ω = panjang reaktor model/panjang reaktor sebenarnya

4.1.3 Neraca Momentum

Neraca momentum didekatkan dengan persamaan Ergun yang dapat memodelkan penurunan tekanan sepanjang reaktor. Pada pemodelan ini tidak digunakan neraca momentum *Navier Stokes* karena jumlah katalis yang banyak akan menyulitkan penyelesaian jika digunakan neraca momentum untuk tiap katalis. Selain itu penggunaan neraca momentum memerlukan penggambaran geometri tiap katalis yang kurang efisien. Persamaan Ergun untuk menghitung penurunan tekanan adalah

$$\frac{dP}{dx} = \left(-\frac{\rho u}{\rho g_c D_p} \right) \frac{(1 - \varepsilon)}{\varepsilon^3} \left[\frac{150(1 - \varepsilon)\mu}{D_p} + 1,75\rho\mu \right] \quad (4.16)$$

Persamaan ini setelah dimasukkan bilangan pentakdimensial menjadi

$$\frac{dP}{dx} = \left(-\frac{\rho u}{\rho g_c D_p} \right) \frac{(1 - \varepsilon)}{\varepsilon^3} \left[\frac{150(1 - \varepsilon)\mu}{D_p} + 1,75\rho\mu \right] \frac{1}{\omega} \quad (4.17)$$

4.2 Neraca Lapisan Batas (Perpindahan Antar Fasa)

Interaksi antara skala reaktor dan skala partikel katalis terjadi melalui sebuah lapisan film yang merupakan media perpindahan massa antara fasa gas di skala reaktor dengan fasa padatan di partikel katalis. Melalui lapisan film inilah terjadi kesetimbangan antara suku perpindahan antar fasa di skala reaktor dengan fluks difusif yang berada di permukaan katalis (skala partikel). Selain itu juga terjadi perpindahan energi antara fasa gas dan padatan. Pada lapisan film ini juga terjadi suatu tahanan yang disebut sebagai tahanan film. Tahanan inilah yang menyebabkan terjadinya gradien konsentrasi dan temperatur di lapisan film.

4.2.1 Neraca Massa

Neraca massa di lapisan film mewakili transfer massa antar massa antara skala reaktor dan skala partikel katalis. Persamaan inilah yang menyebabkan profil di skala reaktor juga dipengaruhi oleh perubahan profil di skala katalis.

Transfer massa antar fasa skala reaktor = Fluks difusif di permukaan katalis

Persamaan ini diuraikan lebih lanjut menjadi persamaan sebagai berikut :

$$\underbrace{k_g a (C_i - C_{i,s})}_1 = \underbrace{-D_{eff} \frac{dC_{i,s}}{dr}}_2 \quad (4.18)$$

Keterangan :

1. Transfer massa antar fasa
2. Fluks difusif

4.2.2 Neraca Energi

Pada lapisan film ini terjadi pertukaran panas antara fasa gas melewati lapisan film menuju fasa padatan partikel katalis. Reaksi yang bersifat autotermal tetap membutuhkan transfer panas dari luar untuk mengaktivasi reaksi eksotermis yang terjadi pada zona pertama reaktor.

Bentuk persamaan matematis neraca energi pada lapisan film adalah sebagai berikut :

Transfer energi antar fasa skala reaktor = fluks difusif di permukaan katalis

Persamaan diuraikan lebih lanjut menjadi persamaan sebagai berikut :

$$\underbrace{ha(T - T_s)}_1 = \underbrace{-K_e a \frac{dT_s}{dr}}_2 \quad (4.19)$$

keterangan :

- | | |
|-------------------------------|--------------------|
| 1. Transfer energi antar fasa | 2. Fluks konduktif |
|-------------------------------|--------------------|

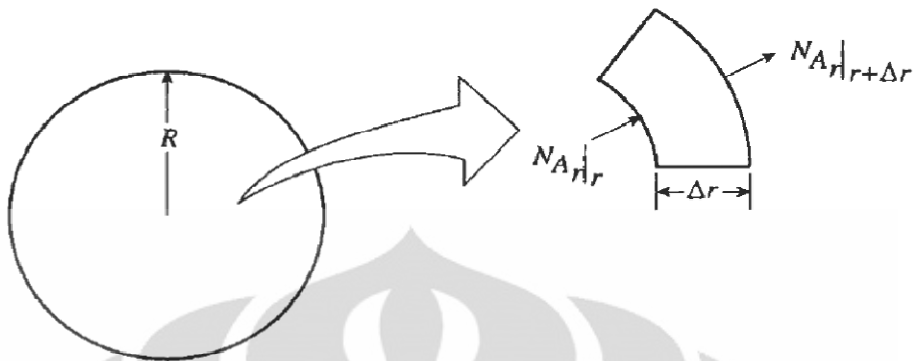
4.3 Neraca Skala Partikel

Setelah reaktan melalui lapisan film terjadi reaksi di permukaan pori-pori katalis. Di skala partikel ini terjadi konsumsi atau generasi massa akibat adanya reaksi dan terdapat pengaruh difusi yang menyebabkan profil konsentrasi berubah-ubah sepanjang jari-jari partikel katalis.

4.3.1 Neraca Massa

Partikel katalis berbentuk bola dengan jari-jari r_p . Persamaan umum neraca massa skala partikel katalis adalah sebagai berikut :

$$\left[\begin{array}{c} \text{(Massa)} \\ \text{(Masuk)} \end{array} \right] - \left[\begin{array}{c} \text{(Massa)} \\ \text{(Keluar)} \end{array} \right]_{\text{difusi radial}} - \left[\begin{array}{c} \text{Generasi} \\ \text{Massa} \end{array} \right] = 0 \quad (4.20)$$



Gambar 4.2 Kontrol Volume Skala Katalis

Supaya persamaan tersebut dapat diselesaikan maka perlu dibuat kontrol volume sesuai gambar diatas. Bentuk persamaan matematisnya menjadi :

Fluks Masuk x Area – Fluks Keluar x Area + Laju Reaksi Kimia = 0

$$\left[4\pi r^2 J_{i,p} \right]_r - \left[4\pi (r + \Delta r)^2 J_{i,p} \right]_{r+\Delta r} + 4\pi r^2 \Delta r \Sigma R_j \quad (4.21)$$

Persamaan di atas kemudian dibagi dengan $4\pi \Delta r$ dengan limit Δr mendekati nol.

Persamaan di atas menjadi

$$\lim_{\Delta r \rightarrow 0} \frac{\left[r^2 J_{i,p} \right]_r - \left[r^2 J_{i,p} \right]_{r+\Delta r}}{\Delta r} + r^2 \Sigma R_j \quad (4.22)$$

$$\frac{d(r^2 J_{i,p})}{dr} + r^2 \Sigma R_j \quad (4.23)$$

Setelah itu substitusi,

$$J_{i,p} = - D_{eff} \frac{dC_{i,p}}{dr} \quad (4.24)$$

persamaan menjadi :

$$\frac{1}{r^2} D_{eff} \left(\frac{d}{dr} \left(r^2 \frac{dC_{i,p}}{dr} \right) \right) + \Sigma R_i = 0 \quad (4.25)$$

4.3.2 Neraca Energi

Persamaan umum neraca massa skala partikel katalis adalah sebagai berikut :

$$\left[\begin{array}{c} \text{(Energi)} \\ \text{(Masuk)} \end{array} \right] - \left[\begin{array}{c} \text{(Energi)} \\ \text{(Keluar)} \end{array} \right]_{\text{difusi radial}} - \left[\begin{array}{c} \text{Generasi} \\ \text{Energi} \end{array} \right] = 0 \quad (4.26)$$

Supaya persamaan tersebut dapat diselesaikan maka perlu dibuat kontrol volume sesuai neraca massa di katalis sebelumnya. Bentuk persamaan matematisnya menjadi :

Fluks Masuk x Area – Fluks Keluar x Area + [Panas reaksi x Laju reaksi] = 0

$$\left[4\pi r^2 q_{i,p} \right]_r - \left[4\pi (r + \Delta r)^2 q_{i,p} \right]_{r+\Delta r} + 4\pi r^2 \Delta r \Sigma \Delta H_j R_j \quad (4.27)$$

Persamaan di atas kemudian dibagi dengan $4\pi\Delta r$ dengan limit Δr mendekati nol.

Persamaan di atas menjadi

$$\lim_{\Delta r \rightarrow 0} \frac{\left[r^2 q_{i,p} \right]_r - \left[r^2 q_{i,p} \right]_{r+\Delta r}}{\Delta r} + r^2 \Sigma \Delta H_j R_j \quad (4.28)$$

$$\frac{d(r^2 q_{i,p})}{dr} + r^2 \Sigma \Delta H_j R_j \quad (4.29)$$

Setelah itu substitusi,

$$q_{i,p} = -k_{eff} \frac{\partial T}{\partial r} \quad (4.30)$$

persamaan menjadi :

$$\frac{1}{r^2} k_{eff} \left(\frac{d}{dr} \left(r^2 \frac{dT_p}{dr} \right) \right) + \sum \Delta H_j R_j = 0 \quad (4.31)$$

4.4 Kondisi Batas

Persamaan pada kondisi batas merupakan persamaan di titik di mana persamaan yang akan diselesaikan memiliki rentang minimal dan rentang maksimal di sepanjang intervalnya. Persamaan neraca dan energi yang telah diturunkan di atas merupakan persamaan diferensial parsial di mana terdapat masing-masing dua kondisi batas untuk masing-masing arah aksial dan radial. Batasan-batasan yang ditentukan berdasarkan spesifikasi kasus ini baik pada skala reaktor maupun skala partikel katalis, meliputi hal-hal berikut ini :

4.4.1 Kondisi Batas Skala Reaktor

Pada arah aksial kondisi umpan masuk adalah tetap. Posisi umpan masuk berada pada $x = 0$ dan temperatur masuk adalah konstan, sehingga berlaku hubungan :

pada $x = 0$

$$\begin{aligned} C_A &= C_{A,in} \\ T_A &= T_{in} \end{aligned} \quad (4.32)$$

Kondisi batas untuk neraca energi dan massa pada skala reaktor analog satu sama lain.

Untuk kondisi batas di posisi lainnya berlaku hubungan bahwa turunan pertama di posisi tersebut adalah nol. Hubungan ini berarti bahwa pada posisi tersebut diasumsikan sudah tidak ada gradien konsentrasi dan temperatur.

Pada $x = L$:

$$\begin{aligned} dC_A/dx &= 0 \\ dT/dx &= 0 \end{aligned} \quad (4.33)$$

4.4.2 Kondisi Batas Skala Partikel

Kondisi batas pada skala ini terdapat pada pusat dan permukaan katalis. Pada posisi pusat katalis diasumsikan tidak terjadi lagi perubahan konsentrasi dengan kata lain gradien konsentrasi adalah nol, begitu juga yang terjadi pada neraca energi. Persamaan kondisi batasnya adalah sebagai berikut :

Pada $r_p = 0$:

$$\begin{aligned} dC_{A,s}/dr &= 0 \\ dT/dr &= 0 \end{aligned} \quad (4.34)$$

pada $r_p = R_p$

$$\begin{aligned} D_{\text{eff}}(dC/dr) &= ka(C_s - C) \\ k_{\text{eff}}(dT/dr) &= ha(T_s - T) \end{aligned} \quad (4.35)$$

4.5 Estimasi dan Korelasi Parameter

Supaya berbagai persamaan di atas bisa diselesaikan maka perlu dihitung pula parameter sifat fisik dan transportasi fluida. Parameter tersebut diantaranya adalah koefisien dispersi aksial unggun tetap, koefisien difusivitas molekuler campuran, kecepatan interstisi, koefisien transfer massa di lapisan film, konduktivitas fluida, kecepatan ruah fluida serta koefisien transfer panas di lapisan batas. Konduktivitas gas dihitung dengan persamaan Eucken. Sedangkan untuk koefisien transfer energi digunakan bilangan Nusselt, Reynold dan Prandtl.

- Difusifitas Efektif Fluida di Katalis

Parameter ini dihitung dengan persamaan korelasi yang diajukan oleh Spechia dkk (1980) berikut

$$D_{eff} = \frac{u_{int} d_p}{8,65 \left[1 + 19,4 \left(\frac{d_p}{d_r} \right)^2 \right]} \quad (4.36)$$

untuk $20 < Re < 400$.

- Konduktifitas Efektif Fluida di Katalis

Parameter ini dihitung dengan persamaan korelasi yang diajukan oleh Yagi dan Wakao (1959) berikut

$$k_{eff} = k(13 + 0,11 Pr Re) \quad (4.37)$$

untuk padatan logam berbentuk bola dengan $0,021 < d_p/d_t < 0,072$.

- Koefisien Dispersi Aksial Unggun Tetap (Wen dan Fan, 1975)

Koefisien ini bertujuan menghitung fluks dispersi pada fluida ruah di reaktor ungunn tetap. Koefisien ini dihitung dengan persamaan berikut

$$D_e = \left(\frac{0,5}{1 + 9,5 \frac{\varepsilon_{bed}}{Re Sc}} + \frac{0,75 \varepsilon_{bed}}{Re Sc} \right) u d_p \quad (4.38)$$

untuk $0,0008 < Re < 400$ dan $0,28 < Sc < 2,2$.

Dimana,

D_e = koefisien dispersi

ε_{bed} = porositas ungunn

ν = viskositas kinematik

d_p = diameter katalis

$Re Sc$ = perkalian bilangan reynold dan schmidt fluida

- Koefisien difusi molekular campuran (Wilke)

Difusivitas atau koefisien difusi merupakan konstanta proporsional antara fluks molar karena difusi molekul dan gradien konsentrasi dari suatu campuran. Umumnya koefisien difusi berpasangan, dimana semakin tinggi difusivitasnya (dari suatu bahan terhadap bahan lain), semakin cepat bahan tersebut berdifusi satu sama lain. Namun karena molekul suatu spesi berdifusi ke campuran maka diperlukan penentuan koefisien difusi campuran berikut

$$D_{i,m} = \frac{1 - y_i}{\sum_j D_{i,j}} \quad (4.39)$$

dimana,

$D_{i,j}$ = koefisien difusivitas biner i dan j

y_i = fraksi mol i di fluida ruah

- Kecepatan Interstisial

Fluida ruah memiliki kecepatan awal yaitu kecepatan umpan. Kecepatan umpan ini adalah kecepatan superfisial. Kecepatan ini merupakan kecepatan superfisial karena diukur pada saat belum ada unggun. Ketika ada unggun kita perlu melakukan koreksi terhadap kecepatan superfisial dengan membagi dengan porositas unggun untuk selanjutnya menjadi kecepatan interstisial. Selanjutnya kecepatan interstisial ini perlu dikoreksi sesuai persamaan gas ideal.

$$u_{\text{intfeed}} = u_{\text{supfeed}} / \varepsilon_{\text{bed}} \quad (4.40)$$

$$u = u_{\text{intfeed}} \frac{C}{C_{\text{feed}}} \frac{P_{\text{feed}}}{P} \quad (4.41)$$

dimana,

u = kecepatan fluida interstisi

u_{intfeed} = kecepatan intersiti umpan

- Koefisien difusi molekular biner (Fuller)

Difusivitas atau koefisien difusi merupakan konstanta proporsional antara fluks molar karena difusi molekul dan gradien konsentrasi dari suatu campuran. Koefisien ini berguna untuk menghitung koefisien difusivitas campuran dengan persamaan Wilke di atas. Berikut ini adalah korelasi difusivitas untuk campuran biner hidrokarbon atau non-hidrokarbon pada tekanan rendah.

$$D_{i,j} = \frac{0,0103T^{1,75} \left(\frac{1}{M_i} + \frac{1}{M_j} \right)^{0,5}}{P \left(V_i^{\frac{1}{3}} + V_j^{\frac{1}{3}} \right)^2} \quad (4.42)$$

Dimana,

P = tekanan

$D_{i,j}$ = koefisien difusivitas

M_i = massa molekul relatif

T = suhu

V_i = volume yang dipakai spesi i

- Koefisien transfer massa lapisan film

Koefisien transfer massa di lapisan film bertujuan untuk menentukan besarnya difusi massa pada lapisan film. Semakin besar koefisien transfer massa lapisan film maka semakin besar pula fluks massa yang berdifusi dari katalis ke fluida ruang reaktor maupun sebaliknya. Untuk menghitung nilai ini diperlukan bilangan Reynold, Sherwood dan Nusselt. Bilangan Reynold

menyatakan rasio gaya inersia akibat kecepatan terhadap gas viskos. Sedangkan bilangan Schmidt menyatakan rasio difusifitas momentum dan difusifitas massa. Lalu kita memerlukan bilangan Sherwood empiris untuk menghitung koefisien transfer massa lapisan film berikut

$$Sh = \frac{k_c d_p}{D_{im}} = 2 + 0,6Re^{1/2}Sc^{1/3} \quad (4.43)$$

untuk aliran yang melewati unggun.

Dimana,

$$Re = \frac{\rho d_p u}{\mu} \quad (4.44)$$

$$Sc = \frac{\mu}{\rho D_{im}} \quad (4.45)$$

- Viskositas (Coulson, 2005)

Viskositas adalah pengukuran dari ketahanan fluida yang dapat dideformasi oleh tegangan geser dan tegangan tensil. Semakin besar viskositasnya, suatu bahan akan lebih sulit mengalir dibandingkan dengan bahan yang memiliki viskositas rendah. Berikut ini adalah persamaan untuk viskositas campuran untuk gas pada tekanan rendah.

$$\mu_m = \frac{\sum \mu_i y_i \sqrt{M_i}}{\sum y_i \sqrt{M_i}} \quad (4.46)$$

dimana,

μ_m = viskositas campuran

μ_i = viskositas komponen i

y_i = fraksi mol komponen i

M_i = massa molekul relatif komponen

- Densitas (Persamaan Gas Ideal)

Densitas bahan didefinisikan sebagai massa dari bahan tersebut dibagi dengan volumenya. Secara umum, densitas dapat berubah seiring dengan perubahan tekanan dan temperatur. Ketika tekanannya dinaikkan maka densitas suatu bahan akan naik. Ketika temperatur dinaikkan, pada umumnya densitas akan turun kecuali pada kasus tertentu. Perubahan densitas yang dipengaruhi oleh tekanan dan temperatur cukup kecil pada liquid dan solid, tetapi pada wujud gas, densitasnya sangat dipengaruhi oleh tekanan. Berikut adalah persamaan untuk densitas dari hukum gas ideal.

$$\rho_b = \frac{pM}{RT} \quad (4.75)$$

dimana,

ρ_b = densitas

M = massa molekul relatif

R = konstanta ksetimbangan gas

- Koefisien Dispersi Energi Aksial Unggun Tetap (Dixon dan Cresswell, 1979)

Koefisien ini bertujuan menghitung fluks dispersi pada fluida ruah di reaktor unggun tetap. Koefisien ini dihitung dengan persamaan berikut

$$k_{dis} = \left(\frac{k_f}{u\rho_f c_{pf} d_p} + \frac{\frac{k_{as}}{k_f}}{Re Pr} + \frac{u\rho_f c_{pf}}{ah_g d_p} \right) u\rho_f c_{pf} d_p \quad (4.48)$$

untuk $0,1 < Re < 1000$ dan $0,23 < d_p < 6,5$ mm.

Dimana,

k_f = konduktivitas fluida

k_{as} = konduktivitas katalis

$Re Pr$ = perkalian bilangan reynold dan prandtl fluida

- Konduktivitas Termal (Coulson, 2005)

Konduktivitas termal suatu bahan menentukan kemampuan bahan tersebut untuk mengalirkan panas. Konduktivitas panas dapat menentukan daya yang hilang yang melewati suatu bahan.

$$k = \mu_m \left(C_p + \frac{5R}{4M} \right) \quad (4.49)$$

dimana,

k = konduktivitas termal

μ_m = viskositas campuran

C_p = kapasitas panas

R = konstanta gas

M = massa molekul relatif

- Kapasitas Panas (Coulson, 2005)

Kapasitas panas adalah pengukuran dari suatu energi panas yang dibutuhkan untuk menaikkan temperatur. Semakin besar kapasitas panas suatu bahan, semakin tinggi energi yang dibutuhkan untuk meningkatkan temperatur. Berikut ini persamaan untuk kapasitas panas campuran yang berlaku umum.

$$Cp_{mix} = \frac{Cp_i x_i + Cp_j x_j}{Mr_{mix}} \quad (4.50)$$

Dimana,

Cp_{mix} = kapasitas panas campuran

$Cp_{i,j}$ = kapasitas panas komponen

$x_{i,j}$ = fraksi mol komponen

Mr_{mix} = massa molekul relatif campuran

- Koefisien Transfer Energi Lapisan Film

Koefisien transfer energi di lapisan film bertujuan untuk menentukan besarnya difusi energi pada lapisan film. Semakin besar koefisien transfer energi lapisan film maka semakin besar pula fluks energi yang berdifusi dari katalis ke fluida ruang reaktor maupun sebaliknya. Untuk menghitung nilai ini diperlukan bilangan Reynold, Prandtl dan Nusselt. Bilangan Reynold menyatakan rasio gaya inersia akibat kecepatan terhadap gas viskos. Sedangkan bilangan Prandtl menyatakan rasio difusifitas momentum dan difusifitas termal. Lalu kita memerlukan bilangan Nusselt untuk menghitung koefisien transfer energi lapisan film. Berikut ini bilangan Nusselt untuk aliran yang melewati unggun

$$Nu = \frac{h_g d_p}{k} = 2 + 0.6Re^{1/2} Pr^{1/3} \quad (4.51)$$

Dengan,

$$Pr = \frac{\mu C_p}{k} \quad (4.52)$$

- Faktor Tunda Kinetik

Pada model ini digunakan faktor tunda kinetik, yaitu suatu parameter agar reaksi reformasi yang endotermis bisa terjadi pada suhu tinggi yang diberikan oleh reaksi oksidasi yang eksotermis dengan cara mengalikan faktor ini pada suku laju reaksi di neraca massa skala katalis. Parameter ini

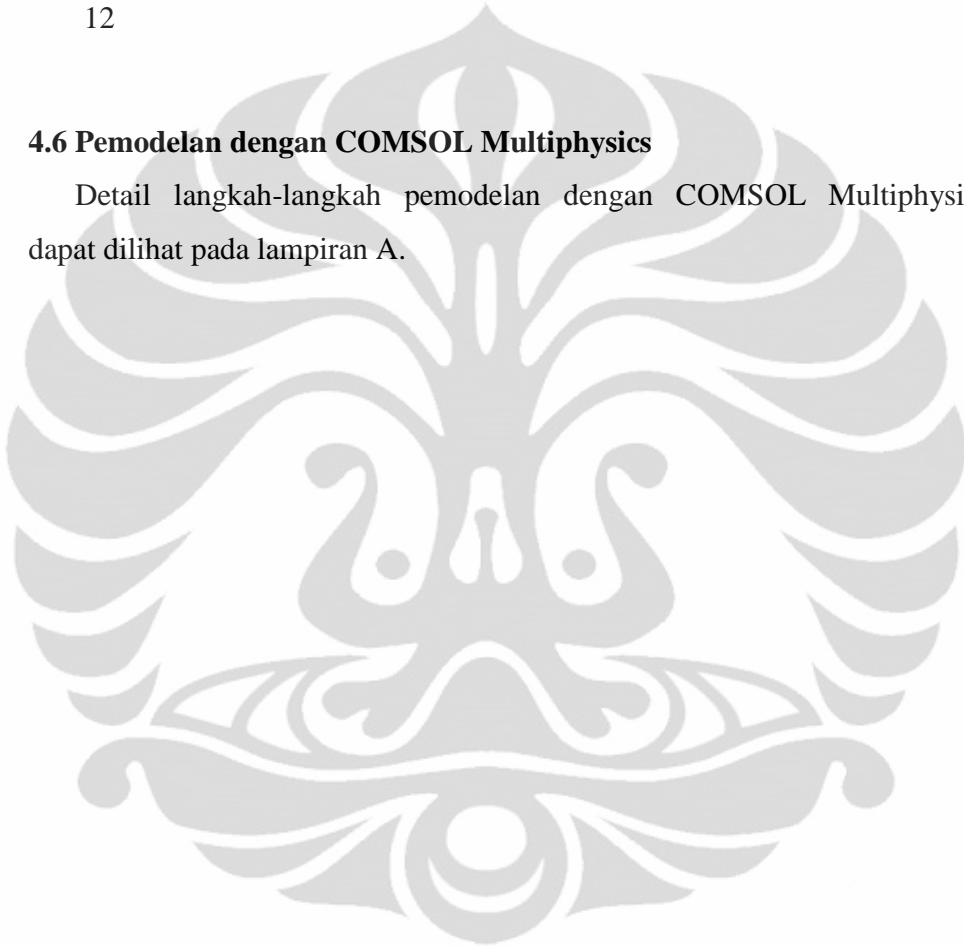
merupakan fungsi eksponensial dari banyaknya oksigen yang terkonversi pada reaksi oksidasi sebagai berikut :

$$f = X_{O_2}^n \quad (4.53)$$

Dimana harga n akan disesuaikan pada validasi model untuk rentang 2 – 12

4.6 Pemodelan dengan COMSOL Multiphysics

Detail langkah-langkah pemodelan dengan COMSOL Multiphysics dapat dilihat pada lampiran A.



BAB V

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada bab ini dibahas mengenai validasi model, analisa mengenai hasil perhitungan dari model yang telah disusun dan hasil simulasi untuk mengetahui interaksi beberapa parameter yang mempengaruhi kinerja sistem.

5.1 Validasi Model

Untuk mengetahui suatu model bisa digunakan untuk memprediksi kinerja suatu reaktor perlu dilakukan validasi model dengan data hasil eksperimen. Validasi dilakukan pada kondisi eksperimen seperti pada tabel 5.1.

Tabel 5.1 Kondisi Validasi Model Reaktor

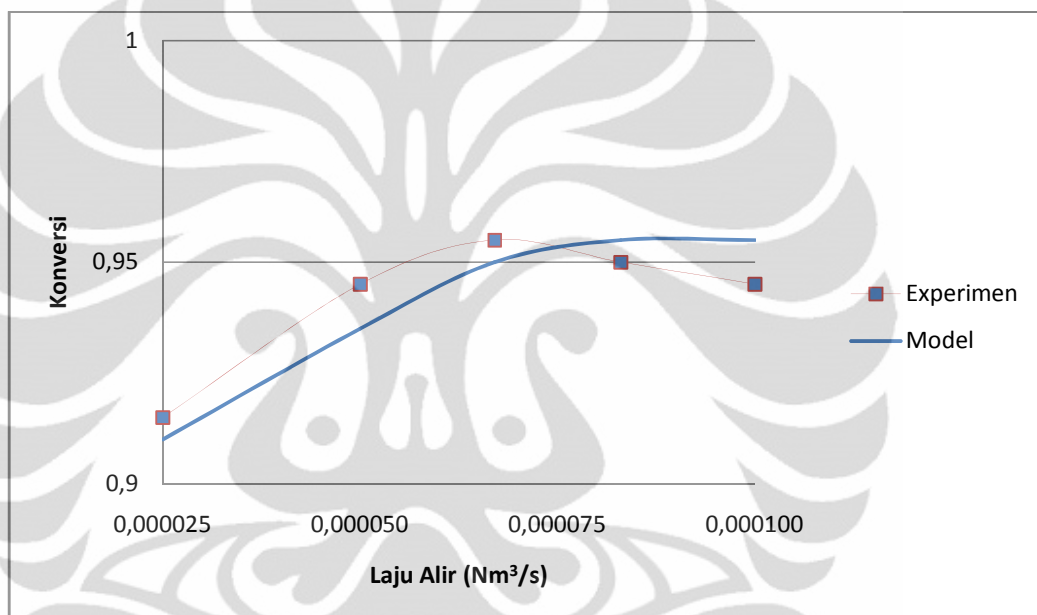
Kondisi Operasi	
Tekanan	2×10^5 Pa
Temperatur	973 K
Laju Alir	1,5 - 6 NL/min
Geometri Reaktor	
Diameter	21 mm
Panjang	14 mm
Data Fisik Katalis	
Diameter Katalis	1 mm
Berat Jenis	0,95 kg/L
Porositas	0,4

(Scognamiglio dkk, 2009)

Dari perhitungan dengan model pada berbagai kondisi yang sesuai dengan eksperimen yang telah dilakukan oleh Scognamiglio dkk (2009) diperoleh hasil konversi yang tidak terlalu jauh berbeda. Penyimpangan antara model dengan eksperimen terbesar (1,06%) terjadi pada laju alir 5×10^{-5} dan 1×10^{-4} sedangkan penyimpangan terkecil 0,53% terjadi pada laju alir $6,7 \times 10^5$ sebagaimana dapat dilihat pada tabel 5.2 dan gambar 5.1. Dengan penyimpangan yang kecil, rata-rata sebesar 0,74%, maka model layak digunakan untuk memperkirakan kinerja reaktor.

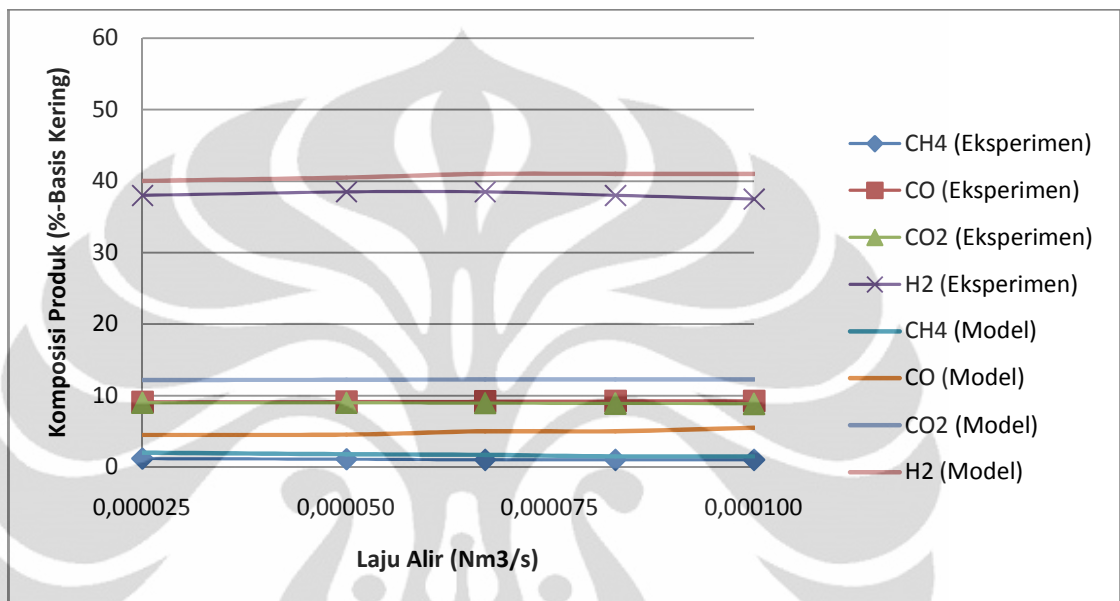
Tabel 5.2 Hasil Validasi Model

Laju Alir (Nm ³ /s)	Konversi (Model)	Konversi (Eksperimen)	%Deviasi
0.000025	0.91	0.915	0.55
0.000050	0.935	0.945	1.06
0.000067	0.95	0.955	0.52
0.000083	0.955	0.95	0.53
0.000100	0.955	0.945	1.06

**Gambar 5.1** Perbandingan Konversi CH₄ Model dan Eksperimen

Validasi juga dilakukan untuk selektivitas produk keluaran reaktor, seperti ditampilkan pada gambar 5.2. Dapat dilihat pada gambar bahwa selektivitas produk dari hasil perhitungan model reaksi reformasi metana secara autotermal menunjukkan perbedaan yang tidak terlalu jauh dari hasil eksperimen Scognamiglio dkk (2009), meskipun %komposisi keluaran CO₂ dari model menunjukkan deviasi yang cukup besar dibandingkan dengan hasil eksperimen. Hal tersebut disebabkan oleh *overlapping* yang masih terjadi dari reaksi oksidasi pada proses yang dimodelkan. Maksud *overlapping* disini adalah proses oksidasi yang dimaksudkan untuk menyuplai kebutuhan panas reaksi reformasi masih sedikit mendominasi proses

secara keseluruhan. Dalam hal ini, faktor tunda memegang peranan penting untuk mencegah overlapping. Dengan faktor tunda sebesar 12 ternyata reaksi oksidasi yang menghasilkan CO₂ masih sedikit mendominasi.



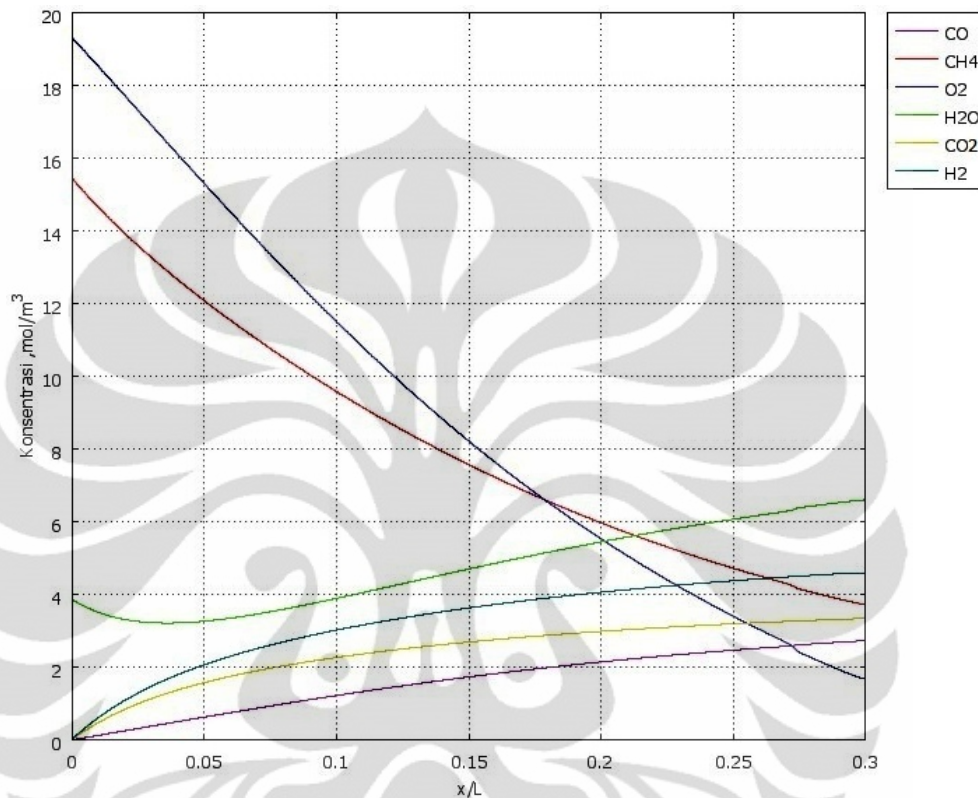
Gambar 5.2 Perbandingan Selektivitas Produk Model dan Eksperimen

5.2 Profil Konsentrasi

5.2.1 Profil Konsentrasi di Reaktor

Pada gambar 5.2 dapat dilihat profil konsentrasi setiap spesi pada sistem reaktor unggun tetap untuk proses reformasi metana secara autotermaal. Profil spesi reaktan, yaitu CH₄ dan O₂ menurun sepanjang reaktor dikarenakan perpindahan massa reaktan dari fasa ruwah di reaktor menuju katalis untuk selanjutnya dikonsumsi oleh reaksi kimia, mengakibatkan massa reaktan berpindah dari katalis kembali ke fasa ruwah dalam jumlah yang lebih kecil. Sedangkan profil spesi produk yaitu H₂, CO, CO₂ meningkat sepanjang reaktor dikarenakan perpindahan massa produk yang terbentuk di katalis ke fasa ruwah di reaktor. Konsumsi reaktan dan generasi produk di katalis terjadi akibat aktivitas katalis yang mengarahkan

terjadinya serangkaian reaksi kimia di dalam sistem, yaitu reaksi oksidasi, reformasi dan reaksi pergeseran (*water gas shift*).



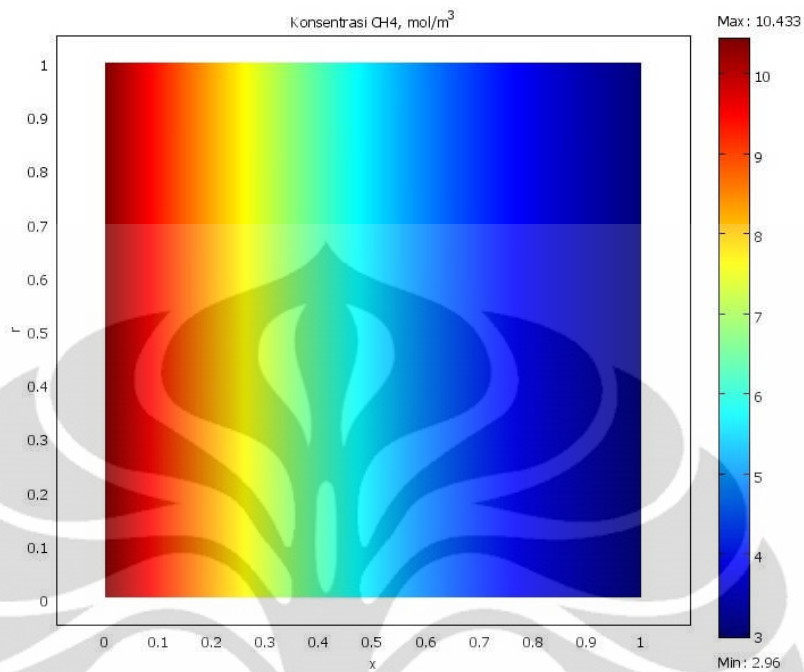
Gambar 5.3 Profil Konsentrasi Spesi di Reaktor

CH_4 , selain dikonsumsi untuk reaksi reformasi, juga dikonsumsi untuk reaksi oksidasi yang memberikan suplai panas untuk kebutuhan reaksi reformasi. H_2 , yang terbentuk dari reaksi reformasi menunjukkan peningkatan yang cukup signifikan sepanjang reaktor, selain itu pembentukan H_2 juga dikontribusikan oleh reaksi *water gas shift* meskipun dengan laju yang relatif kecil. Namun, CO menunjukkan peningkatan yang kurang signifikan sepanjang reaktor, hal ini ditentukan oleh kesetimbangan reaksi *water gas shift* (WGS), yang pada kondisi endotermis cenderung akan bergeser ke arah kanan pada suhu tinggi, sehingga CO yang terbentuk di reaksi reformasi akan bereaksi kembali dengan H_2O yang berasal dari baik hasil oksidasi maupun umpan, membentuk CO_2 dan H_2 . Analisis tadi diperkuat oleh profil konsentrasi CO_2 , yang meningkat sepanjang reaktor. Profil CO_2

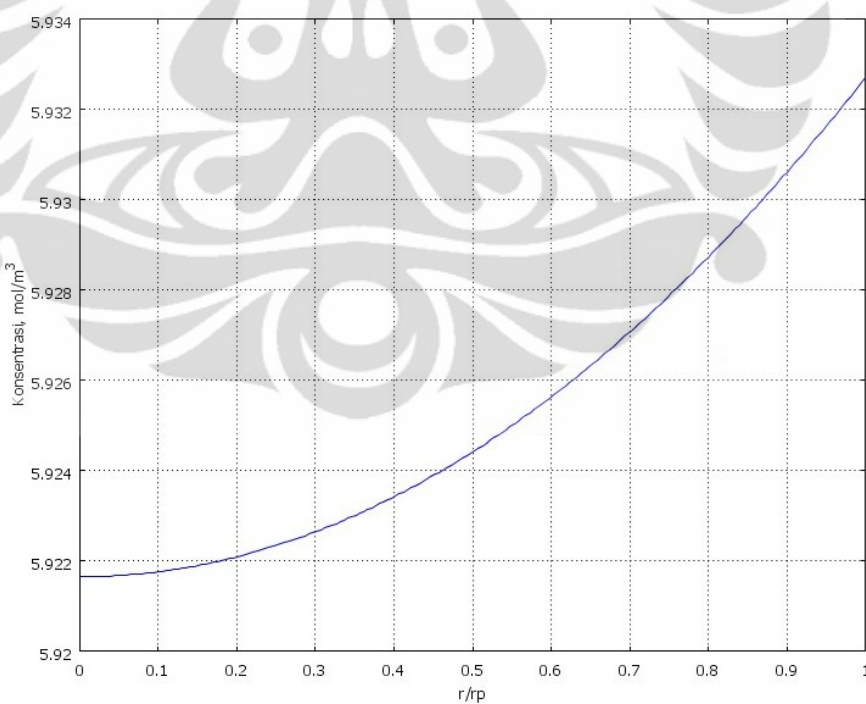
ini menunjukkan bahwa selain terbentuk dari reaksi oksidasi, CO_2 juga terbentuk dari reaksi WGS yang lebih bergeser ke kanan pada suhu tinggi. Profil H_2O menunjukkan tren seperti pada gambar 5.3 dikarenakan H_2O dari umpan langsung dikonsumsi di posisi awal reaktor. Kemudian mulai posisi aksial $x = 0,05$ hingga ujung reaktor, H_2O menunjukkan tren meningkat karena jumlah H_2O yang dikonsumsi di katalis untuk reaksi reformasi lebih sedikit dibandingkan dengan jumlah H_2O yang dihasilkan oleh reaksi oksidasi yang terus terjadi sepanjang reaktor meskipun dengan laju yang relatif kecil. Profil konsentrasi spesi-spesi di ujung reaktor ini sangat dipengaruhi oleh profil konsentrasi di katalis dan fenomena yang terjadi di dalamnya, mengingat tahanan-tahanan yang dipertimbangkan dalam model reaktor ini, berupa tahanan di lapisan film dan tahanan di dalam katalis, yang dijelaskan pada subbab 5.2.2.

5.2.2 Profil Konsentrasi di Katalis

Pada gambar 5.4 – 5.15 dapat dilihat profil konsentrasi tiap spesi pada partikel katalis $\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ menunjukkan kecenderungan yang sama dengan profil konsentrasi pada ujung reaktor. Namun jika diperhatikan perubahan konsentrasi ke arah aksial pada katalis tidak terlalu signifikan jika dibandingkan dengan perubahan konsentrasi pada ujung reaktor. Hal ini disebabkan oleh tahanan lapisan batas yang mengakibatkan transfer massa dari katalis ke aliran ruwah menjadi lambat. Selain itu, pada katalis perubahan konsentrasi ke arah radial relatif kecil, hal ini disebabkan oleh hambatan transfer massa di katalis lebih besar daripada difusivitas di dalam katalis itu sendiri, sehingga mengakibatkan difusi ke arah radial katalis menjadi sangat kecil.

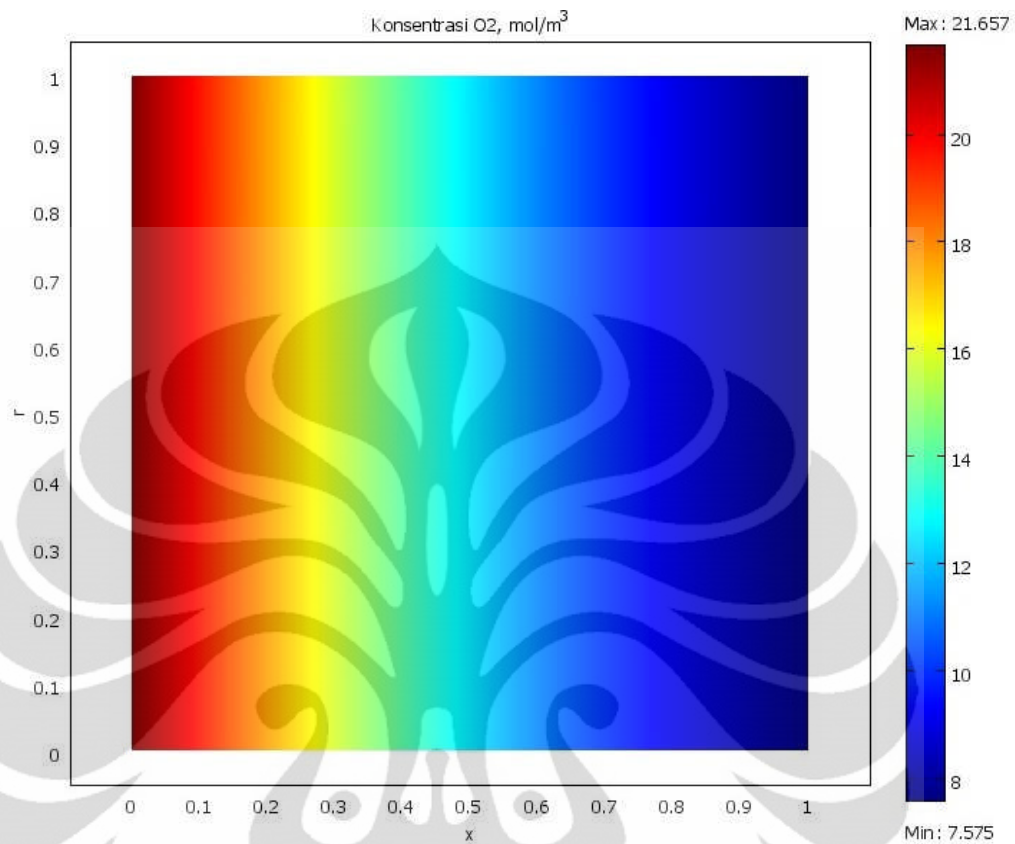


Gambar 5.4 Profil Konsentrasi CH_4 di Katalis

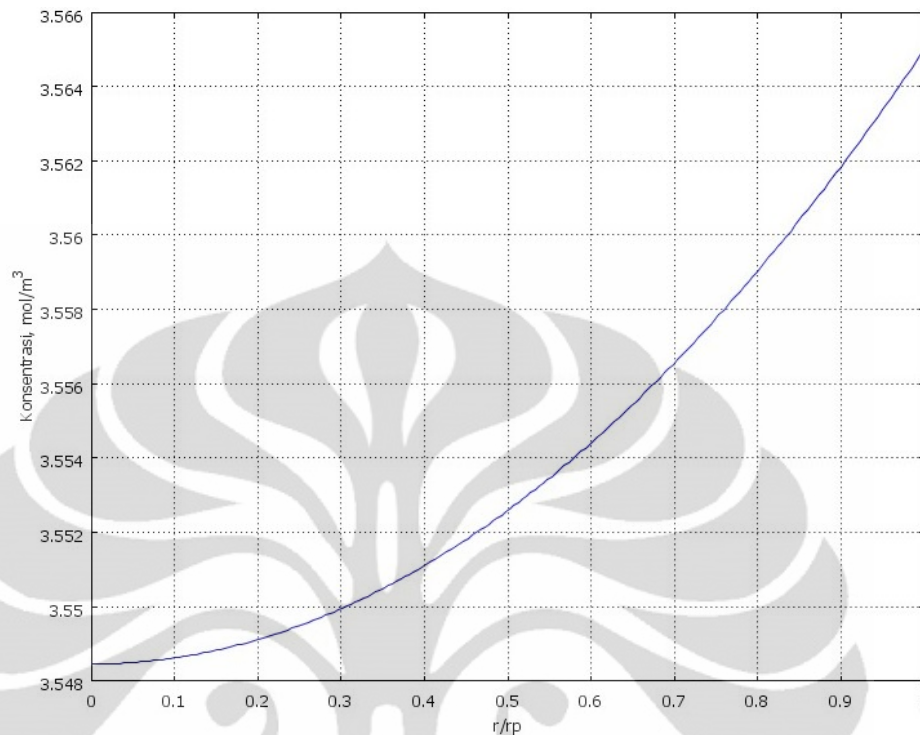


Gambar 5.5 Profil Konsentrasi CH_4 di Katalis ke Arah Radial pada $x = 0,2$

Profil konsentrasi CH_4 di atas menurun, dipengaruhi oleh reaksi oksidasi dan reformasi, dimana pada kedua reaksi tersebut CH_4 dikonsumsi untuk masing-masing reaksi menghasilkan produk H_2O , CO_2 , H_2 dan CO . Seperti bagaimana telah disinggung di atas, bahwa terdapat perbedaan besarnya konsentrasi di unggun dan di katalis yang disebabkan oleh lapisan batas/film. Tahanan lapisan film antar fasa ruwah dan fasa padat untuk profil konsentrasi CH_4 ditunjukkan oleh besaran konsentrasi di koordinat $x = 0$, $r = 1$ atau pada $r = r_p$, dimana $x = 0$ menunjukkan posisi awal unggun dan $r = 1$ menunjukkan permukaan luar katalis. Pada koordinat tersebut dapat dilihat perbedaan konsentrasi CH_4 antara fasa ruwah dan fasa katalis sebesar $6,12 \text{ mol/m}^3$, karena konsentrasi awal di permukaan katalis adalah fluks massa dari unggun, sehingga transfer massa dari unggun mengalami hambatan berupa tahanan lapisan batas antar fasa. Pada gambar 5.5 dapat dilihat profil konsentrasi CH_4 di katalis ke arah radial pada posisi aksial tertentu ($x = 0,2$). Posisi aksial tersebut dipilih secara sembarang karena semua posisi memiliki kecenderungan gradien yang relatif sama untuk setiap posisi aksial sehingga posisi manapun dianggap mampu merepresentasikan profil konsentrasi senyawa ke arah radial. Profil menunjukkan bahwa konsentrasi CH_4 meningkat dengan gradien sebesar $0,01 \text{ mol/m}^3$ sepanjang arah radial mulai dari $r = 0$ hingga $r = 1$. Hal ini dikarenakan CH_4 adalah reaktan pada sistem reaksi, pada $r = 1$, massa CH_4 berpindah dari fasa ruwah ke dalam katalis melewati lapisan batas antar fasa. Kemudian massa CH_4 yang berada di posisi $r = 1$ berdifusi ke dalam pori katalis untuk mencapai posisi $r = 0$ dimana reaksi kimia terjadi. Fenomena tersebut digambarkan oleh gambar 5.5 seakan-akan konsentrasi CH_4 meningkat sepanjang arah radial katalis, padahal CH_4 datang dari fasa ruwah dari posisi $r = 1$ menuju $r = 0$ dan mengalami hambatan berupa difusi intrakatalis sehingga menyebabkan gradien sebesar $0,01 \text{ mol/m}^3$



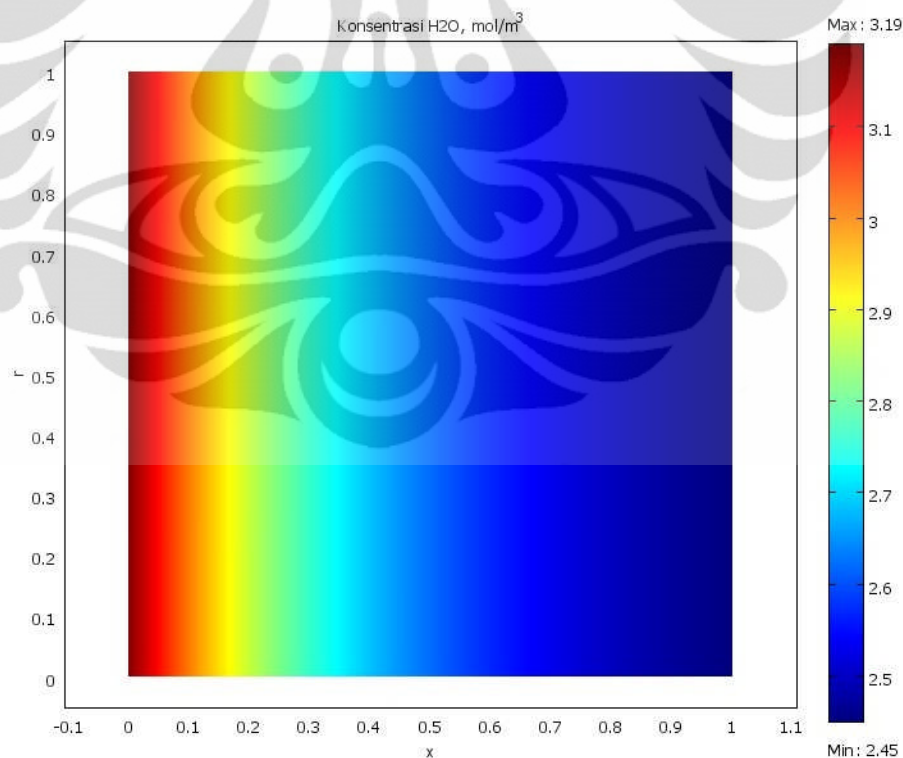
Gambar 5.6 Profil Konsentrasi O₂ di Katalis



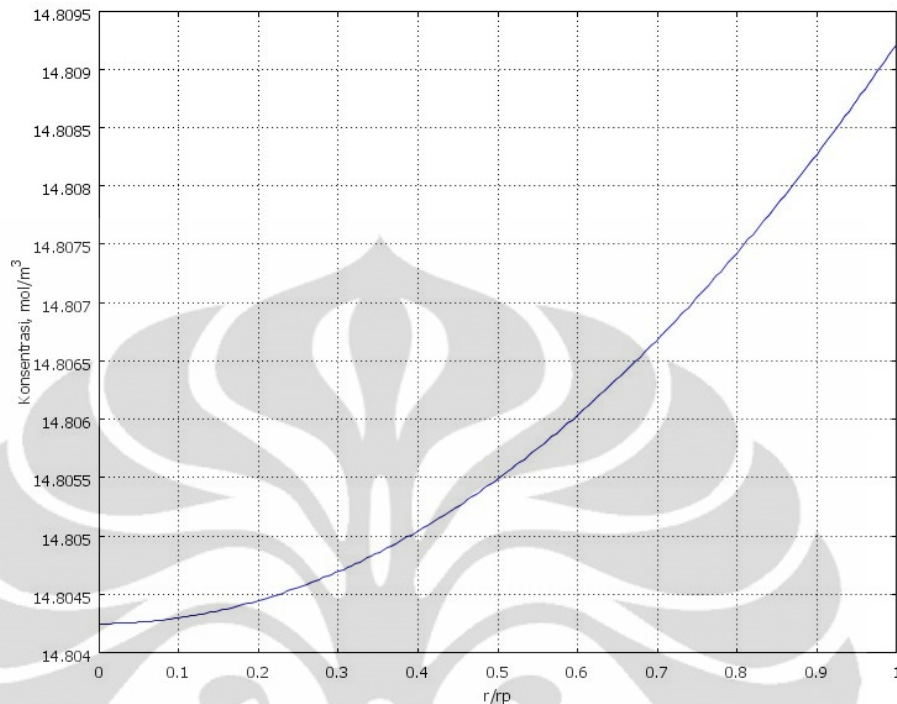
Gambar 5.7 Profil Konsentrasi O_2 di Katalis ke Arah Radial pada $x = 0,2$

Profil konsentrasi O_2 di atas menurun, dipengaruhi oleh reaksi oksidasi dimana O_2 dikonsumsi untuk menghasilkan panas yang dibutuhkan oleh reaksi reformasi CH_4 , dengan produk H_2O dan CO_2 . Namun jika diperhatikan perubahan konsentrasi sangat kecil di katalis dikarenakan model kinetika oksidasi yang digunakan adalah kinetika oksidasi dengan katalis Pt, namun disesuaikan untuk katalis Ni, sehingga diasumsikan reaksi oksidasi pada sistem reaktor lebih banyak terjadi secara non katalitik di skala reaktor sehingga konsentrasi O_2 di katalis sangat kecil. Selain hal tersebut, kecilnya konsentrasi O_2 di katalis juga dipengaruhi hambatan transfer massa pada lapisan batas. Tahanan lapisan film antara fasa ruwah dan fasa padat untuk profil konsentrasi O_2 ditunjukkan oleh besaran konsentrasi di koordinat $x = 0$, $r = 1$ atau pada $r = r_p$, dimana $x = 0$ menunjukkan posisi awal unggun dan $r = 1$ menunjukkan permukaan luar katalis. Pada koordinat tersebut dapat dilihat perbedaan konsentrasi O_2 antara fasa ruwah dan fasa katalis sebesar $2,89 \text{ mol/m}^3$, karena konsentrasi awal di permukaan katalis adalah fluks massa dari

unggun, sehingga transfer massa dari unggun mengalami hambatan berupa tahanan lapisan batas antar fasa. Pada gambar 5.7 dapat dilihat profil konsentrasi O_2 di katalis ke arah radial pada posisi aksial tertentu ($x = 0,2$). Sama halnya dengan CH_4 , profil menunjukkan bahwa konsentrasi O_2 meningkat dengan gradien sebesar $0,016 \text{ mol/m}^3$ sepanjang arah radial mulai dari $r = 0$ hingga $r = 1$. Hal ini dikarenakan O_2 adalah reaktan pada sistem reaksi, pada $r = 1$, massa O_2 berpindah dari fasa ruwah ke dalam katalis melewati lapisan batas antar fasa. Kemudian massa O_2 yang berada di posisi $r = 1$ berdifusi ke dalam pori katalis untuk mencapai posisi $r = 0$ dimana reaksi kimia terjadi. Fenomena tersebut digambarkan oleh gambar 5.7 seakan-akan konsentrasi O_2 meningkat sepanjang arah radial katalis, padahal O_2 datang dari fasa ruwah dari posisi $r = 1$ menuju $r = 0$ dan mengalami hambatan berupa difusi intrakatalis sehingga menyebabkan gradien sebesar $0,016 \text{ mol/m}^3$



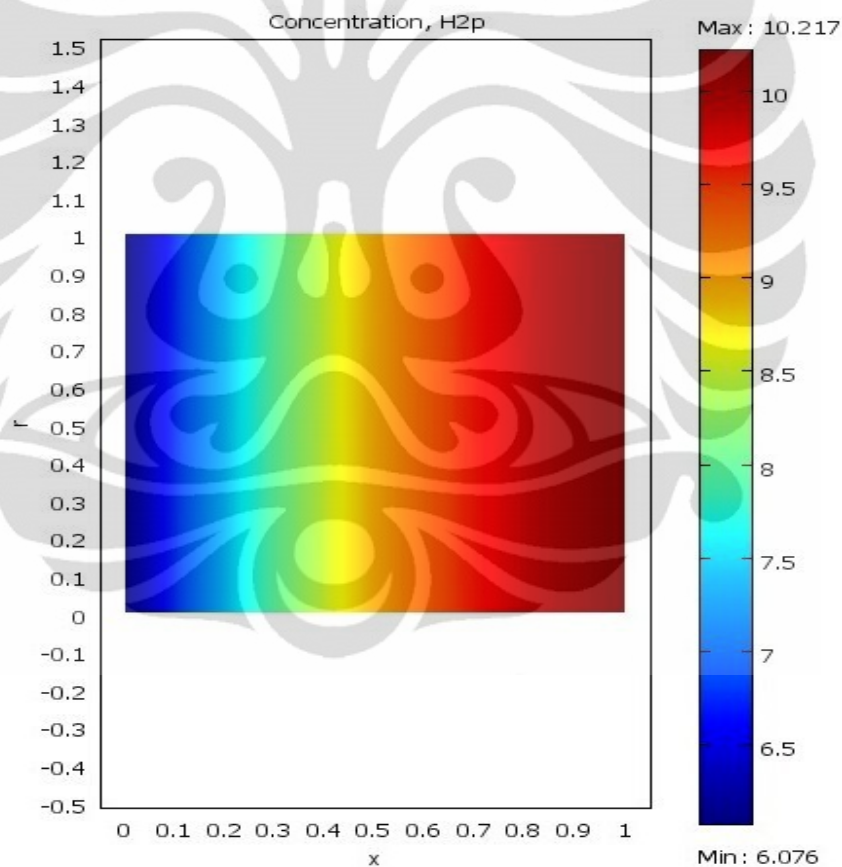
Gambar 5.8 Profil Konsentrasi H₂O di Katalis



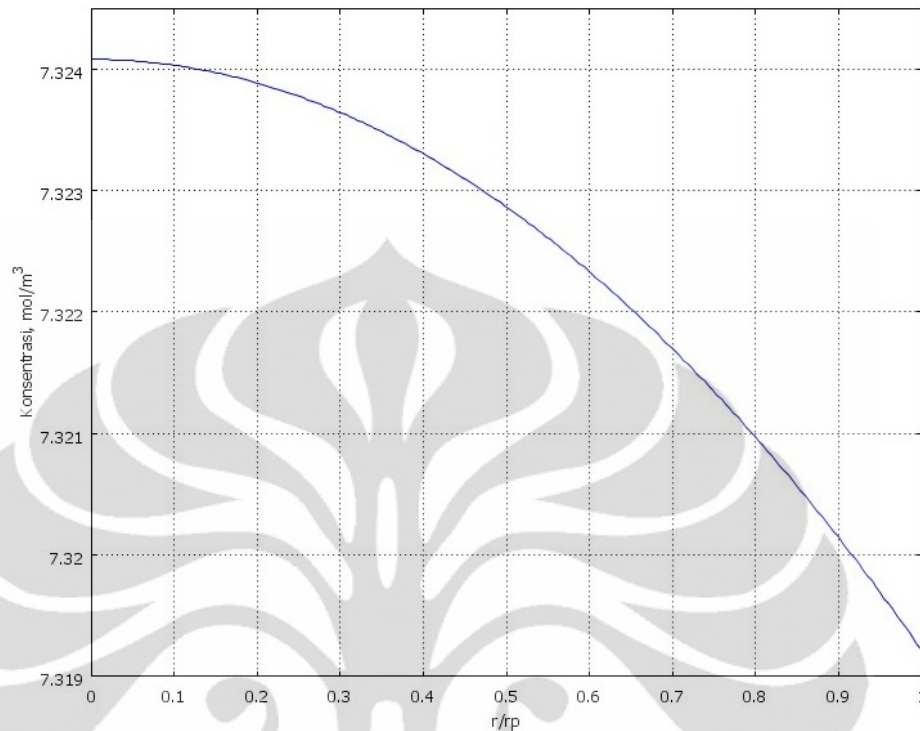
Gambar 5.9 Profil Konsentrasi H₂O di Katalis ke Arah Radial pada $x = 0,2$

Profil konsentrasi H₂O di atas meningkat, meskipun H₂O terkonsumsi pada reaksi reformasi. Hal ini dikarenakan jumlah H₂O yang sangat banyak di dalam reaktor, yaitu merupakan produk dari reaksi oksidasi dan penambahan dari umpan. Sehingga jumlah H₂O di partikel meningkat jika dibandingkan dengan jumlah H₂O yang dibutuhkan untuk reformasi CH₄. Tahanan lapisan film antara fasa ruwah dan fasa padat untuk profil konsentrasi H₂O ditunjukkan oleh besaran konsentrasi di koordinat $x = 0$, $r = 1$ atau pada $r = r_p$, dimana $x = 0$ menunjukkan posisi awal unggun dan $r = 1$ menunjukkan permukaan luar katalis. Pada koordinat tersebut dapat dilihat perbedaan konsentrasi H₂O antara fasa ruwah dan fasa katalis sebesar 2,68 mol/m³, karena konsentrasi awal di permukaan katalis adalah fluks massa dari unggun, sehingga transfer massa dari unggun mengalami hambatan berupa tahanan lapisan batas antar fasa. Pada gambar 5.9 dapat dilihat profil konsentrasi H₂O di katalis ke arah radial pada posisi aksial tertentu ($x = 0,2$). Sama halnya dengan O₂ dan CH₄, profil menunjukkan bahwa konsentrasi H₂O meningkat dengan gradien sebesar

$0,005 \text{ mol/m}^3$ sepanjang arah radial mulai dari $r = 0$ hingga $r = 1$. Hal ini dikarenakan H_2O adalah reaktan pada sistem reaksi, pada $r = 1$, massa H_2O berpindah dari fasa ruwah ke dalam katalis melewati lapisan batas antar fasa. Kemudian massa H_2O yang berada di posisi $r = 1$ berdifusi ke dalam pori katalis untuk mencapai posisi $r = 0$ dimana reaksi kimia terjadi. Fenomena tersebut digambarkan oleh gambar 5.9 seakan-akan konsentrasi H_2O meningkat sepanjang arah radial katalis, padahal H_2O datang dari fasa ruwah dari posisi $r = 1$ menuju $r = 0$ dan mengalami hambatan berupa difusi intrakatalis sehingga menyebabkan gradien sebesar $0,005 \text{ mol/m}^3$



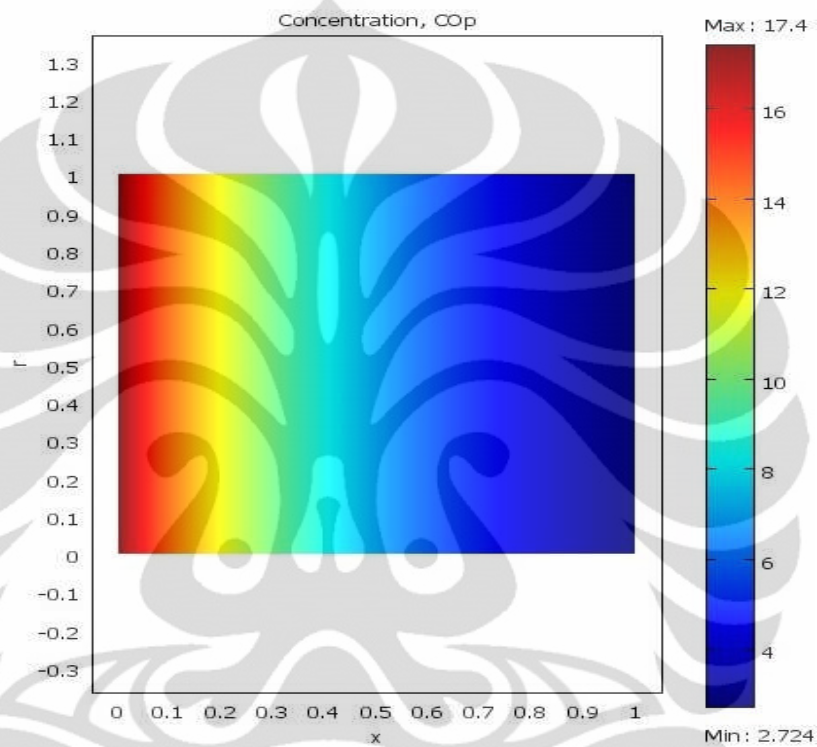
Gambar 5.10 Profil Konsentrasi H_2 di Katalis



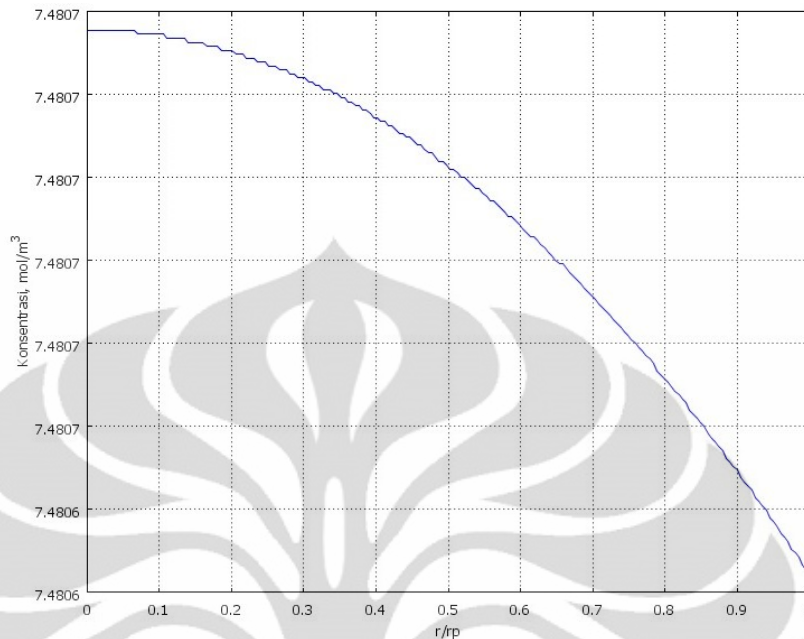
Gambar 5.11 Profil Konsentrasi H₂ di Katalis ke Arah Radial pada $x = 0,2$

Profil konsentrasi H₂ di atas menunjukkan tren meningkat, karena H₂ merupakan produk yang dihasilkan dari 3 reaksi, yaitu reformasi primer, reformasi sekunder dan reaksi WGS. Tahanan lapisan film antara fasa ruwah dan fasa padat untuk profil konsentrasi H₂ ditunjukkan oleh besaran konsentrasi di koordinat $x = 0$, $r = 1$ atau pada $r = r_p$, dimana $x = 0$ menunjukkan posisi awal unggun dan $r = 1$ menunjukkan permukaan luar katalis. Pada koordinat tersebut dapat dilihat perbedaan konsentrasi H₂ antara fasa ruwah dan fasa katalis sebesar $6,07 \text{ mol/m}^3$, karena konsentrasi awal di permukaan katalis adalah fluks massa dari unggun, sehingga transfer massa dari unggun mengalami hambatan berupa tahanan lapisan batas antar fasa. Pada gambar 5.11 dapat dilihat profil konsentrasi H₂ di katalis ke arah radial pada posisi aksial tertentu ($x = 0,2$). Profil menunjukkan bahwa konsentrasi H₂ menurun dengan gradien sebesar $0,0045 \text{ mol/m}^3$ sepanjang arah radial mulai dari $r = 0$ hingga $r = 1$. Hal ini dikarenakan H₂ adalah produk pada sistem reaksi. Massa H₂ berpindah dari inti aktif katalis, dimana reaksi kimia terjadi, pada posisi $r = 0$ menuju

fasa ruwah melewati lapisan batas antar fasa pada $r = 1$. H_2 datang dari inti aktif katalis dari posisi $r = 0$ menuju $r = 1$ dan mengalami hambatan berupa difusi intrakatalis sehingga menyebabkan gradien sebesar $0,0045 \text{ mol/m}^3$



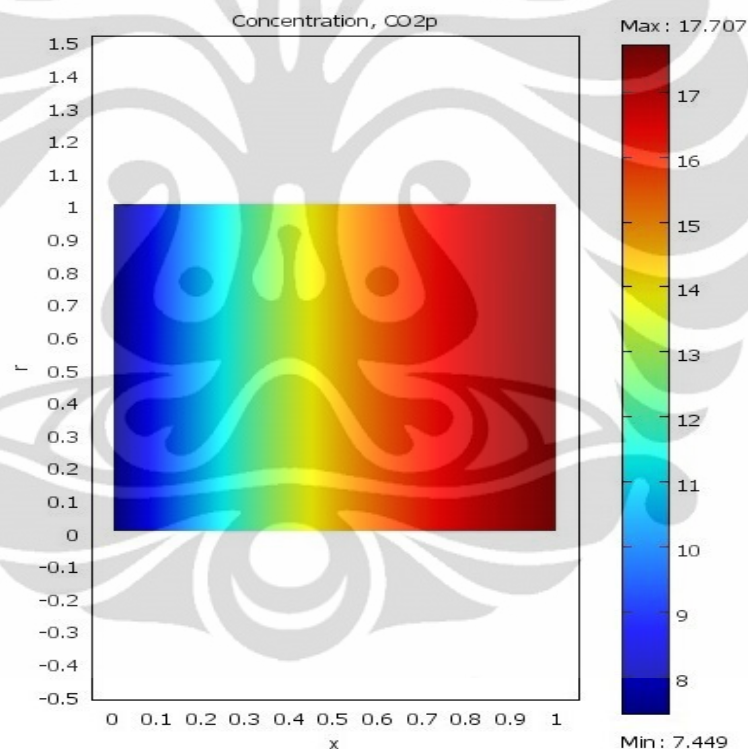
Gambar 5.12 Profil Konsentrasi CO di Katalis



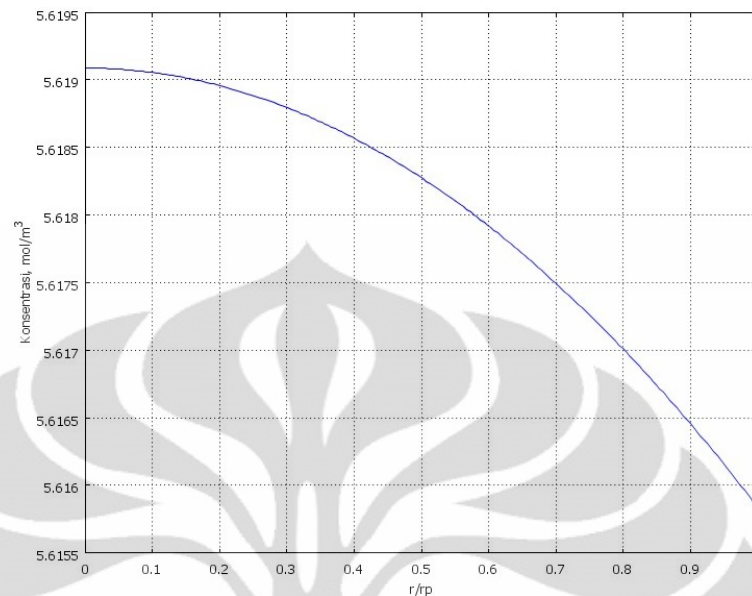
Gambar 5.13 Profil Konsentrasi CO di Katalis ke Arah Radial pada $x = 0,2$

Profil konsentrasi CO pada gambar menurun ke arah aksial, meskipun CO merupakan produk dari reaksi reformasi primer. Hal ini disebabkan oleh reaksi WGS yang bergeser ke kanan, karena katalis berada pada temperatur tinggi, yang secara termodinamika akan menggeser reaksi WGS yang reversible ke kanan. Tahanan lapisan film antara fasa ruwah dan fasa padat untuk profil konsentrasi CO ditunjukkan oleh besaran konsentrasi di koordinat $x = 0$, $r = 1$ atau pada $r = r_p$, dimana $x = 0$ menunjukkan posisi awal unggun dan $r = 1$ menunjukkan permukaan luar katalis. Pada koordinat tersebut dapat dilihat perbedaan konsentrasi CO antara fasa ruwah dan fasa katalis sebesar $2,74 \text{ mol/m}^3$, karena konsentrasi awal di permukaan katalis adalah fluks massa dari unggun, sehingga transfer massa dari unggun mengalami hambatan berupa tahanan lapisan batas antar fasa. Selain itu gradien konsentrasi CO di katalis dan di unggun reaktor juga menunjukkan perbedaan yang cukup signifikan, yaitu $15,67 \text{ mol/m}^3$ di katalis dan $0,5 \text{ mol/m}^3$ di reaktor. Hal ini disebabkan oleh tahanan pada lapisan batas antar fasa yang menghambat laju CO yang terbentuk keluar dari fasa partikel menuju fasa ruwah sehingga mengurangi yield produk syngas. Pada gambar 5.13 dapat dilihat profil

konsentrasi CO di katalis ke arah radial pada posisi aksial tertentu ($x = 0,2$) . Profil menunjukkan bahwa konsentrasi CO menurun dengan gradien sebesar $0,0001 \text{ mol/m}^3$ sepanjang arah radial mulai dari $r = 0$ hingga $r = 1$. Hal ini dikarenakan CO adalah produk pada sistem reaksi. Massa CO berpindah dari inti aktif katalis, dimana reaksi kimia terjadi, pada posisi $r = 0$ menuju fasa ruwah melewati lapisan batas antar fasa pada $r = 1$. CO datang dari inti aktif katalis dari posisi $r = 0$ menuju $r = 1$ dan mengalami hambatan berupa difusi intrakatalis sehingga menyebabkan gradien sebesar $0,0001 \text{ mol/m}^3$



Gambar 5.14 Profil Konsentrasi CO₂ di Katalis



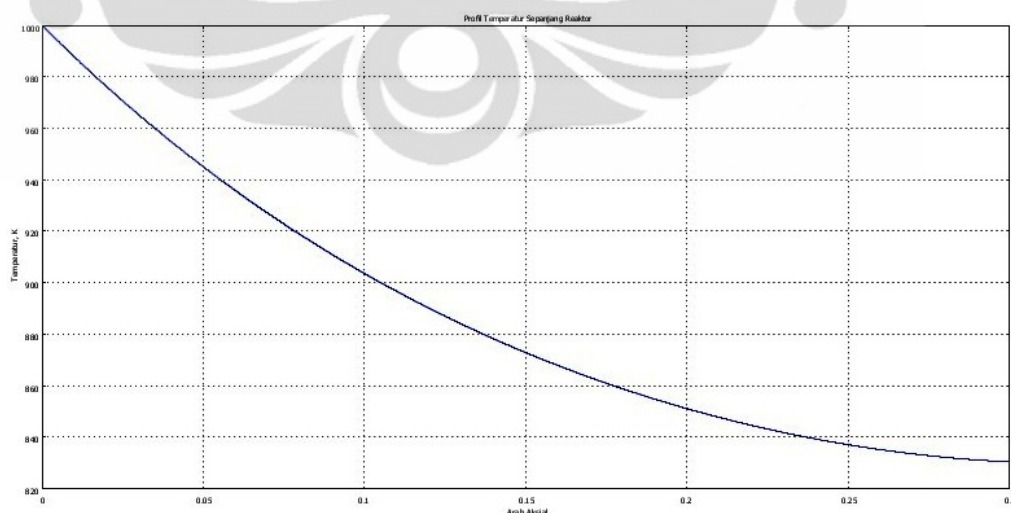
Gambar 5.15 Profil Konsentrasi CO₂ di Katalis ke Arah Radial pada $x = 0,2$

Profil konsentrasi CO₂ pada gambar di atas meningkat, karena CO₂ adalah produk dari reaksi oksidasi, ditambah dari hasil reaksi WGS yang bergeser ke kanan. Tahanan lapisan film antara fasa ruwah dan fasa padat untuk profil konsentrasi CO₂ ditunjukkan oleh besaran konsentrasi di koordinat $x = 0$, $r = 1$ atau pada $r = r_p$, dimana $x = 0$ menunjukkan posisi awal unggun dan $r = 1$ menunjukkan permukaan luar katalis. Pada koordinat tersebut dapat dilihat perbedaan konsentrasi CO₂ antara fasa ruwah dan fasa katalis sebesar $7,45 \text{ mol/m}^3$, karena konsentrasi awal di permukaan katalis adalah fluks massa dari unggun, sehingga transfer massa dari unggun mengalami hambatan berupa tahanan lapisan batas antar fasa. Pada gambar 5.15 dapat dilihat profil konsentrasi CO₂ di katalis ke arah radial pada posisi aksial tertentu ($x = 0,2$). Profil menunjukkan bahwa konsentrasi CO₂ menurun dengan gradien sebesar $0,0001 \text{ mol/m}^3$ sepanjang arah radial mulai dari $r = 0$ hingga $r = 1$. Hal ini dikarenakan CO₂ adalah produk pada sistem reaksi. Massa CO₂ berpindah dari inti aktif katalis, dimana reaksi kimia terjadi, pada posisi $r = 0$ menuju fasa ruwah melewati lapisan batas antar fasa pada $r = 1$. CO₂ datang dari inti aktif katalis dari posisi $r = 0$ menuju $r = 1$ dan mengalami hambatan berupa difusi intrakatalis sehingga menyebabkan gradien sebesar $0,0001 \text{ mol/m}^3$.

5.3 Profil Temperatur

5.3.1 Profil Temperatur di Reaktor

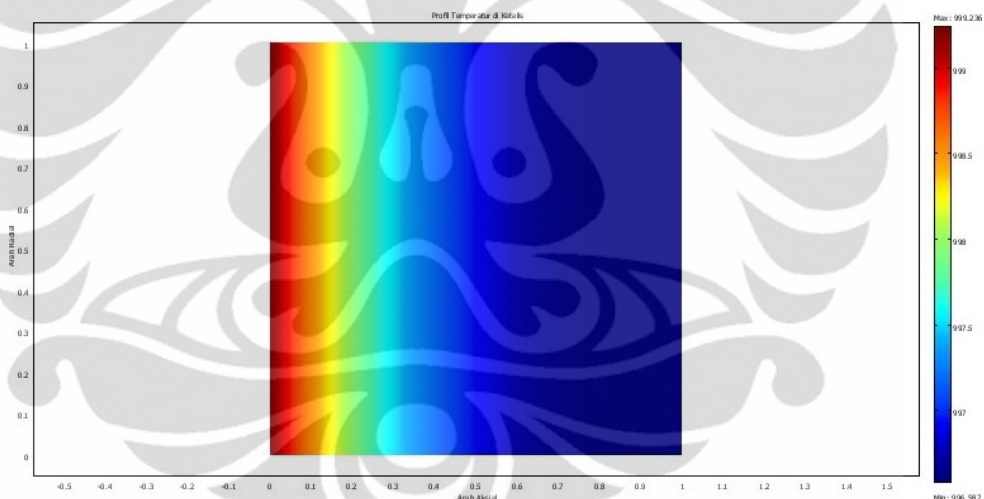
Pada gambar 5.17 dapat dilihat bahwa profil temperatur menurun sepanjang reaktor, menunjukkan tren yang sama dengan profil temperatur di katalis. Penurunan temperatur ini dipengaruhi oleh proses reformasi metana yang berlangsung secara endotermis pada bagian akhir reaktor. Proses oksidasi metana yang juga terlibat dalam sistem diasumsikan hanya terjadi pada bagian awal reaktor, dan panas yang dihasilkan langsung dikonsumsi oleh proses reformasi metana sehingga tidak ada peningkatan temperatur pada reaktor. Sama seperti profil konsentrasi, profil temperatur di katalis dan di unggun reaktor juga menunjukkan perbedaan yang disebabkan oleh tahanan lapisan batas/film, meskipun perbedaan yang terjadi tidak terlalu besar jika dibandingkan dengan perbedaan yang terdapat pada profil konsentrasi. Tahanan lapisan film antara fasa ruwah dan fasa padat untuk profil temperatur ditunjukkan oleh besaran temperatur di koordinat $x = 0$, $r = 1$ atau pada $r = r_p$, dimana $x = 0$ menunjukkan posisi awal unggun dan $r = 1$ menunjukkan permukaan luar katalis. Pada koordinat tersebut dapat dilihat perbedaan temperatur antara fasa ruwah dan fasa katalis sebesar 0,77 K, karena temperatur awal di permukaan katalis adalah fluks panas dari unggun, sehingga transfer panas dari unggun mengalami hambatan berupa tahanan lapisan batas antar fasa.



Gambar 5.16 Profil Temperatur Sepanjang Reaktor

5.3.2 Profil Temperatur di Katalis

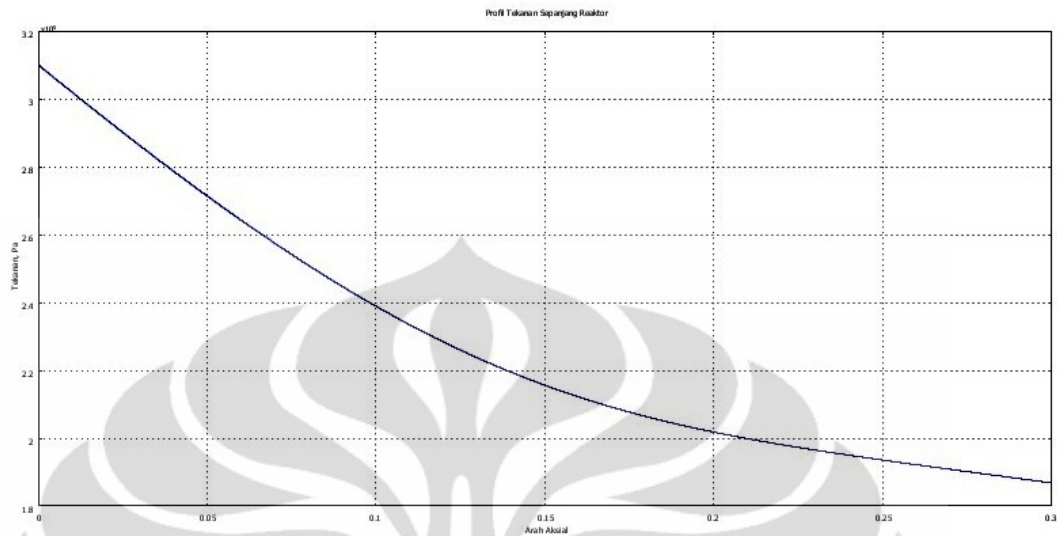
Pada gambar 5.9, dapat dilihat bahwa profil temperatur menurun sepanjang arah aksial katalis, hal ini disebabkan oleh proses reformasi yang terjadi secara endotermis pada akhir proses. Meskipun pada sistem keseluruhan terdapat reaksi oksidasi yang terjadi secara eksotermis, namun panas yang dihasilkan oleh reaksi oksidasi ini dikonsumsi oleh reaksi reformasi metana yang ditunda oleh reaksi oksidasi, sehingga menghasilkan profil temperatur seperti pada gambar 5.9. Selain dipengaruhi oleh aspek kinetika seperti yang telah disebutkan, faktor perpindahan panas konduktif juga menjadi penjelasan untuk profil temperatur di katalis. Seperti ditunjukkan pada gambar 5.9, tidak ada perubahan temperatur ke arah radial, hal ini diakibatkan oleh tahanan transfer panas konduktif yang cukup besar di dalam katalis itu sendiri sehingga perubahan temperatur hanya terjadi pada arah aksial.



Gambar 5.17 Profil Temperatur di Katalis

5.4 Profil Tekanan Sepanjang Reaktor

Pada sistem reaksi fasa gas, penting untuk mengetahui profil tekanan di dalam reaktor, karena konsentrasi dari spesi yang bereaksi proporsional dengan tekanan total dalam sistem. Oleh karena itu perhitungan *pressure drop* secara umum dapat membantu dalam menganalisa model reaktor.



Gambar 5.18 Profil Tekanan Sepanjang Reaktor

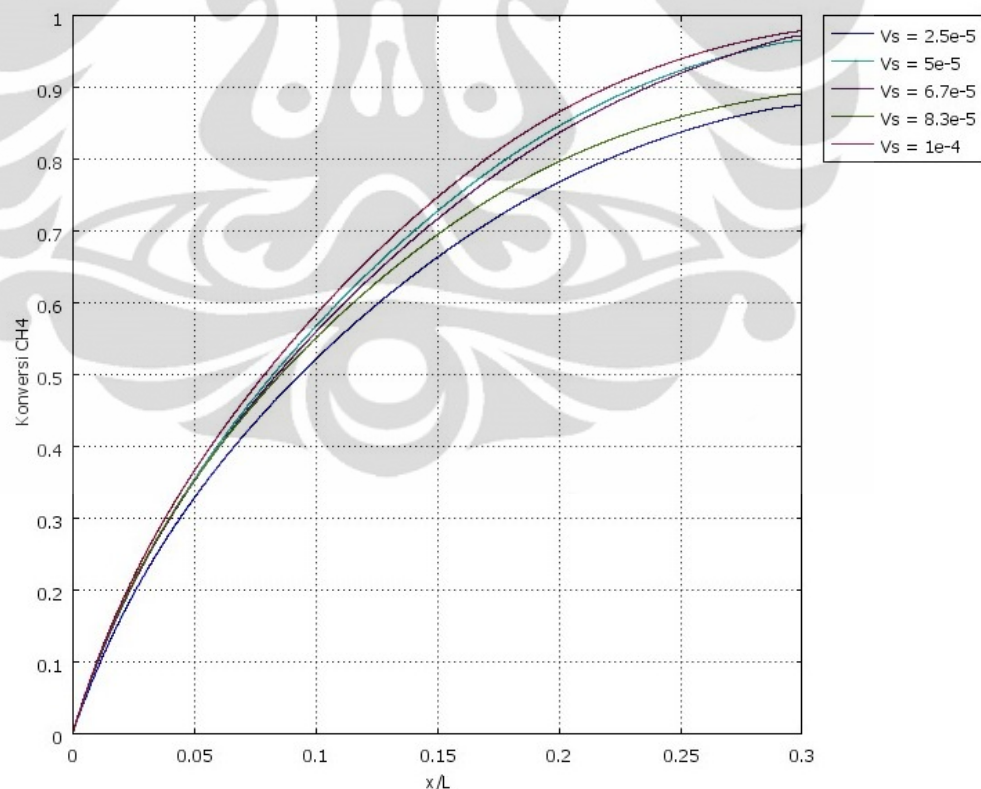
Pada gambar 5.18 dapat dilihat bahwa terjadi penurunan tekanan sepanjang reaktor yang dihitung dengan persamaan Ergun. Hal ini disebabkan oleh keberadaan katalis dengan diameter pelet 1 mm yang menghambat laju alir gas sehingga terjadi *pressure drop*. Meskipun pada gambar 5.11 menunjukkan penurunan tekanan yang kurang signifikan pada kondisi aliran yang dimodelkan sehingga diasumsikan *pressure drop* tidak akan mengganggu sistem reaksi secara keseluruhan, karena jika *pressure drop* cukup besar maka laju reaksi menjadi kecil dan mengurangi efektivitas reaktor.

5.5 Simulasi

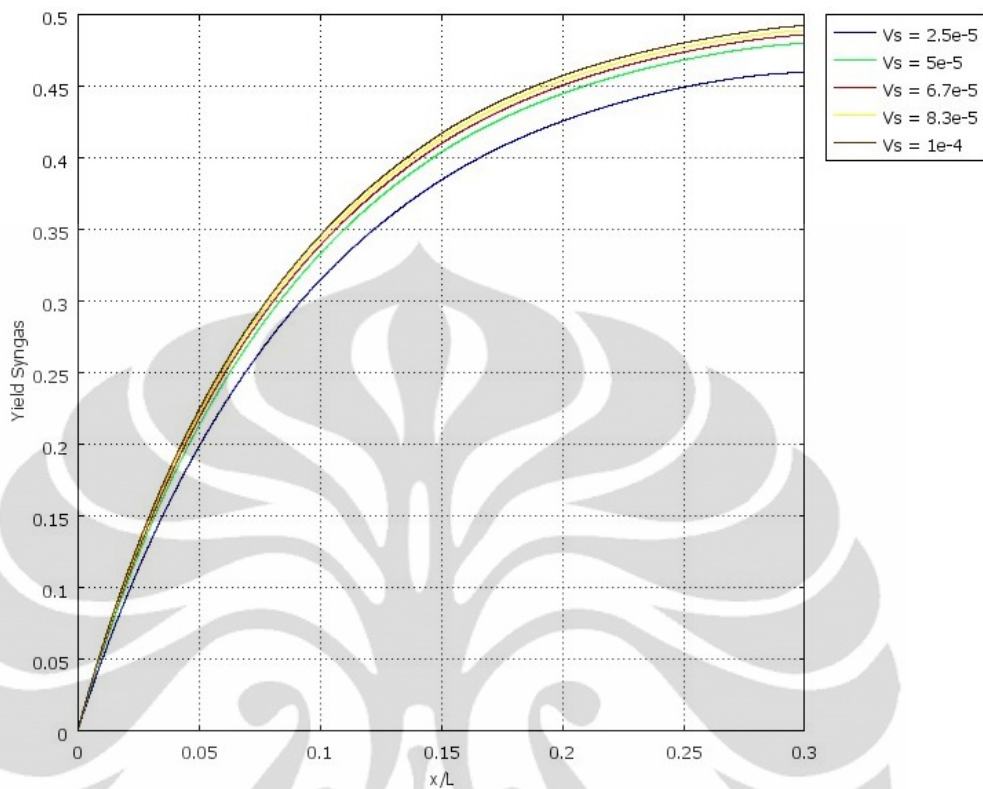
Dari model yang telah divalidasi kemudian dilakukan simulasi untuk mengetahui pengaruh beberapa variabel terhadap kinerja reaktor. Parameter yang divariasikan yaitu tekanan dan rasio umpan.

5.5.1 Pengaruh Laju Alir Umpan

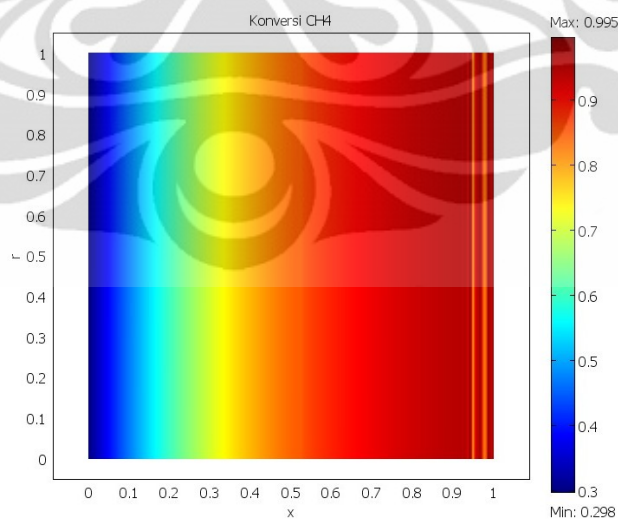
Pada saat melakukan validasi, model sudah disimulasikan untuk rentang laju alir tertentu. Namun pada subbab ini, akan kembali ditinjau konversi CH_4 dan yield syngas sepanjang reaktor pengaruh dari variasi laju alir. Model disimulasikan dengan cara memvariasikan laju alir umpan pada rentang $2,5 \times 10^{-5} - 1 \times 10^{-4} \text{ Nm}^3/\text{s}$, pada suhu 1000 K dan rasio steam per metana = 1. Setelah itu diplot data konversi CH_4 dan yield syngas untuk masing-masing laju alir umpan seperti dapat dilihat pada gambar 5.19 dan 5.20.



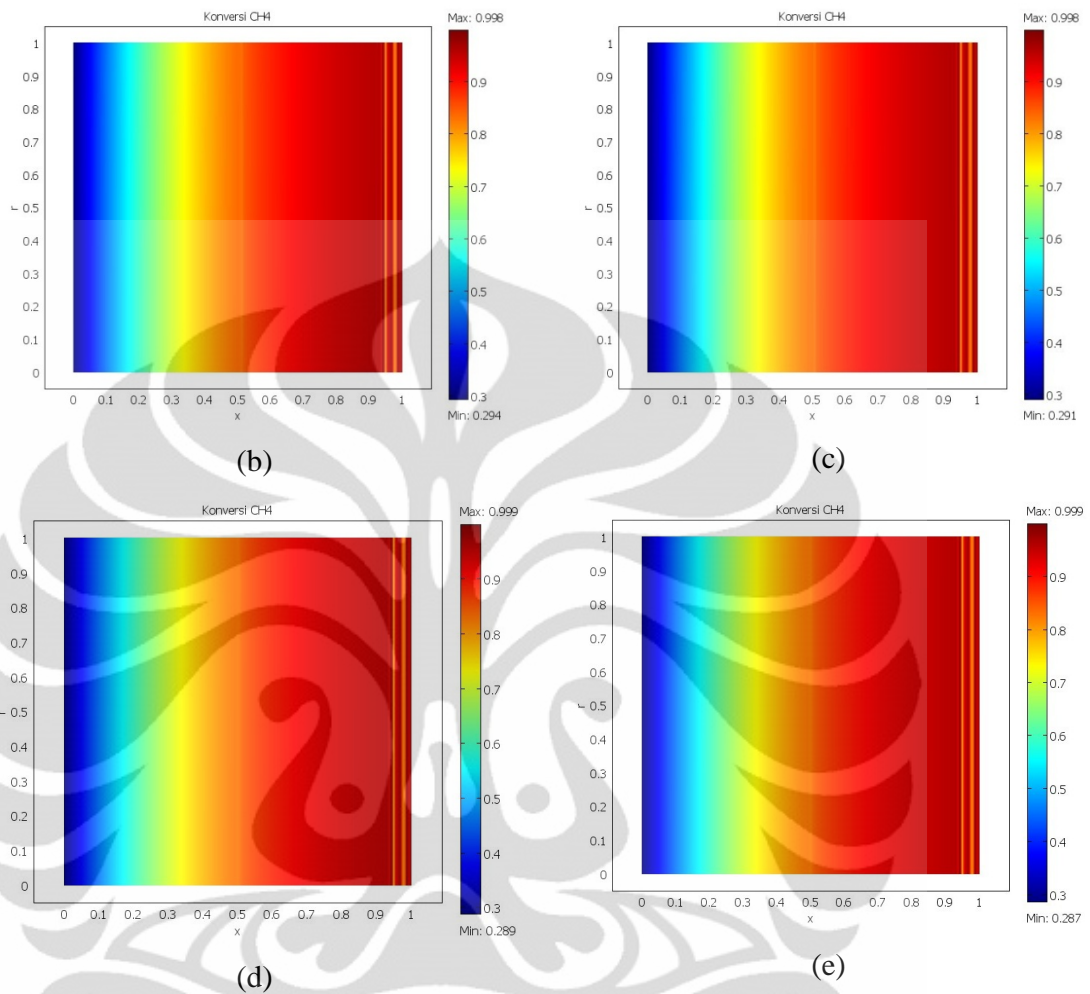
Gambar 5.19 Konversi CH_4 pada Laju Alir Umpan Berbeda



Gambar 5.20 Yield Syngas pada Laju Alir Umpan Berbeda



(a)



Gambar 5.21 Konversi CH_4 di Katalis pada Laju Alir Umpan Berbeda : (a) $2,5 \times 10^{-5} \text{ Nm}^3/\text{s}$; (b) $5 \times 10^{-5} \text{ Nm}^3/\text{s}$; (c) $6,7 \times 10^{-5} \text{ Nm}^3/\text{s}$; (d) $8,3 \times 10^{-5} \text{ Nm}^3/\text{s}$; (e) $1 \times 10^{-4} \text{ Nm}^3/\text{s}$

Pada gambar 5.19 dan 5.20 kita dapat melihat peningkatan konversi dan yield syngas meningkat seiring dengan peningkatan laju alir umpan. Hal ini mengindikasikan bahwa peningkatan laju alir mengakibatkan peningkatan perpindahan massa dari fasa ruwah di skala reaktor ke dalam katalis melalui lapisan batas antarfasa. Sehingga, makin banyak reaktan mencapai permukaan katalis, makin banyak panas yang digenerasi oleh reaksi oksidasi, yang menguntungkan proses reformasi. Fenomena ini mengakibatkan peningkatan konversi CH_4 secara

keseluruhan. Begitu pula dengan peningkatan yield syngas, makin besar laju reaksi reformasi yang diakibatkan oleh generasi panas yang lebih banyak dan massa CH_4 dan H_2O yang mencapai permukaan katalis, maka jumlah H_2 dan CO yang terbentuk pun akan semakin banyak seiring dengan peningkatan laju alir umpan.

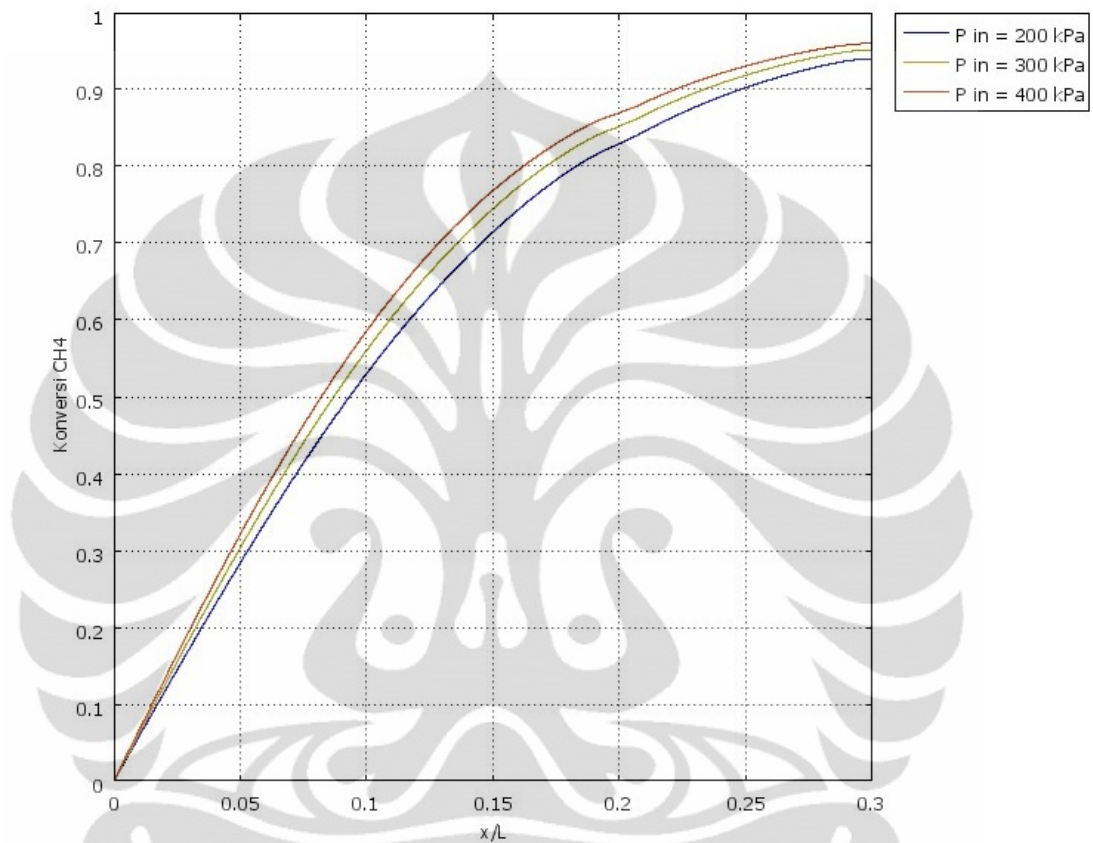
Pada gambar 5.21 dapat dilihat konversi CH_4 di katalis untuk laju alir umpan yang berbeda. Gambar menunjukkan bahwa peningkatan konversi tidak dimulai dari angka nol, seperti pada reaktor, hal ini disebabkan oleh tahanan lapisan batas antar fasa yang mengakibatkan konsentrasi mula-mula di katalis tidak sama dengan konsentrasi mula-mula di katalis, sehingga perhitungan untuk konversi di katalis menunjukkan angka yang berbeda.

5.5.2 Pengaruh Tekanan Umpan

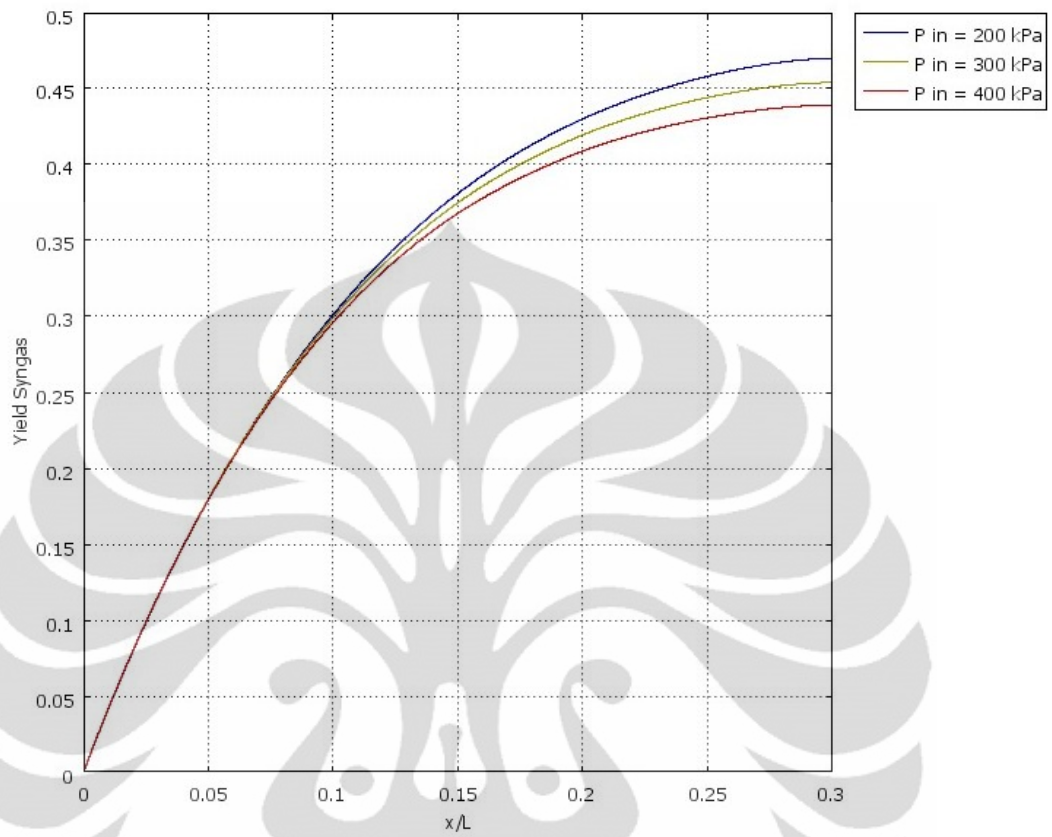
Model disimulasikan dengan cara memvariasikan tekanan umpan pada harga 200 kPa – 400 kPa, pada suhu 1000 K dan rasio steam per metana = 1. Setelah itu diplot data konversi CH_4 dan yield perolehan syngas untuk masing-masing tekanan umpan seperti dapat dilihat pada gambar 5.22 dan gambar 5.23.

Gambar 5.22 dan 5.23 menunjukkan bahwa konversi CH_4 meningkat sedangkan yield syngas seiring dengan peningkatan tekanan umpan. Hal ini dapat dijelaskan dengan prinsip Le Chatelier, dimana pada reaksi reversible, jika tekanan dinaikkan maka reaksi akan bergeser ke arah dimana jumlah koefisien reaksi lebih kecil. Konversi CH_4 meningkat karena CH_4 tidak hanya dikonsumsi untuk reaksi reformasi, tapi juga reaksi oksidasi. Sesuai dengan jumlah koefisien reaksi reforming, dimana koefisien reaksi produk lebih kecil koefisien reaksi pada reaktan. Hal ini menunjukkan bahwa, pada tekanan yang meningkat, reaksi reformasi lebih bergeser ke kiri sehingga yield syngas menjadi berkurang. Sedangkan konversi CH_4 yang meningkat karena peningkatan tekanan, karena pada reaksi fasa gas, peningkatan tekanan umpan mengindikasikan peningkatan konsentrasi umpan yang masuk ke sistem reaktor, sesuai dengan pendekatan hukum Gay Lussac, dimana harga tekanan sebanding dengan konsentrasi untuk gas ideal. Sehingga konsentrasi reaktan yang

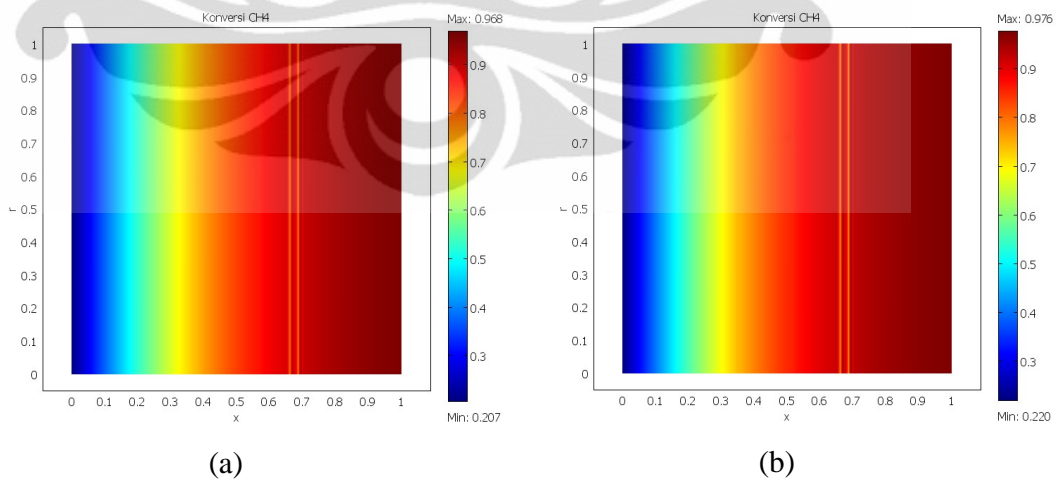
masuk ke katalis semakin besar mengakibatkan laju reaksi oksidasi pun bertambah, dan jumlah CH_4 yang terkonversi juga bertambah.

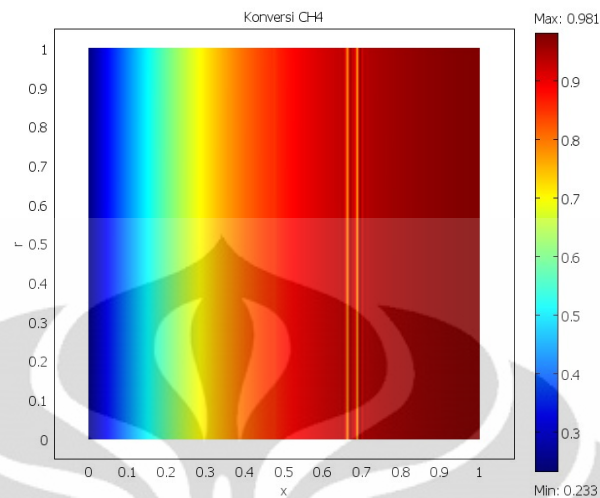


Gambar 5.22 Konversi CH_4 pada Tekanan Umpan Berbeda



Gambar 5.23 Yield Syngas pada Tekanan Umpan Berbeda





(c)

Gambar 5.24 Konversi Syngas di Katalis pada Tekanan Umpan Berbeda : (a) 200 kPa; (b) 300 kPa; (c) 400 kPa;

Namun jika diperhatikan, gambar 5.22 dan gambar 5.23 memiliki perbedaan pada signifikansi pengaruh tekanan. Pada grafik konversi, perbedaan sudah bisa dilihat pada posisi awal reaktor ($x = 0,015$) sedangkan pada grafik yield, perbedaan baru terlihat pada posisi $x = 0,1$. Hal ini dikarenakan bahwa CH_4 tidak hanya dikonsumsi oleh reaksi reforming tetapi juga oleh reaksi oksidasi, sehingga pada posisi awal reaktor pengaruh tekanan umpan terhadap konversi metana sudah menunjukkan perbedaan yang cukup signifikan. Sedangkan untuk yield syngas, pada posisi awal reaktor ($x = 0$ sampai $x = 0,1$), perbedaan yield syngas belum terlalu signifikan karena pada posisi tersebut sistem masih sedikit didominasi oleh reaksi oksidasi. Sehingga meskipun konversi CH_4 sudah menunjukkan peningkatan tetapi belum ada penambahan yield syngas dikarenakan CH_4 masih banyak dikonsumsi untuk reaksi oksidasi.

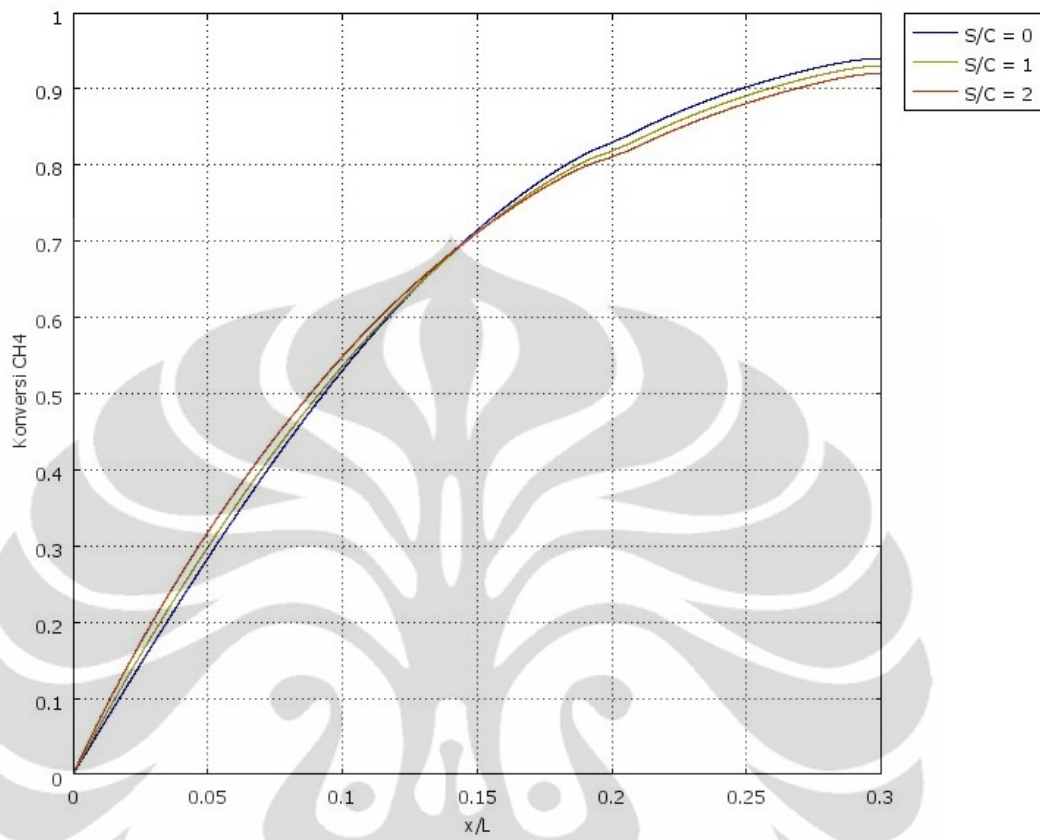
Pada gambar 5.24 dapat dilihat konversi CH_4 di katalis untuk tekanan umpan yang berbeda. Gambar menunjukkan bahwa peningkatan konversi tidak dimulai dari angka nol, seperti pada reaktor, hal ini disebabkan oleh tahanan lapisan batas antar fasa yang mengakibatkan konsentrasi mula-mula di katalis tidak sama dengan

konsentrasi mula-mula di katalis, sehingga perhitungan untuk konversi di katalis menunjukkan angka yang berbeda.

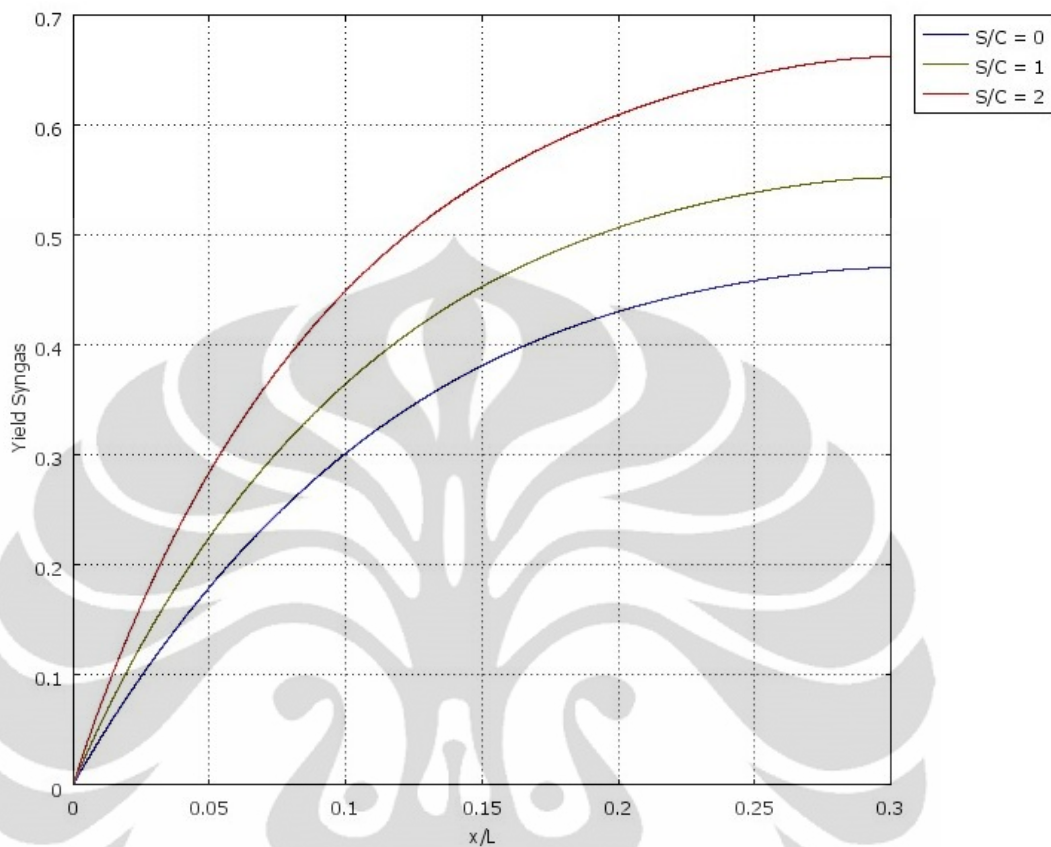
5.5.3 Pengaruh Rasio Umpan

Model disimulasikan dengan cara memvariasikan rasio steam terhadap metana (S/C) pada rentang 0 – 2, pada suhu 1000 K dan tekanan 200 kPa. Setelah itu diplot data konversi CH_4 dan yield perolehan syngas untuk masing-masing tekanan umpan seperti dapat dilihat pada gambar 5.25 dan gambar 5.26.

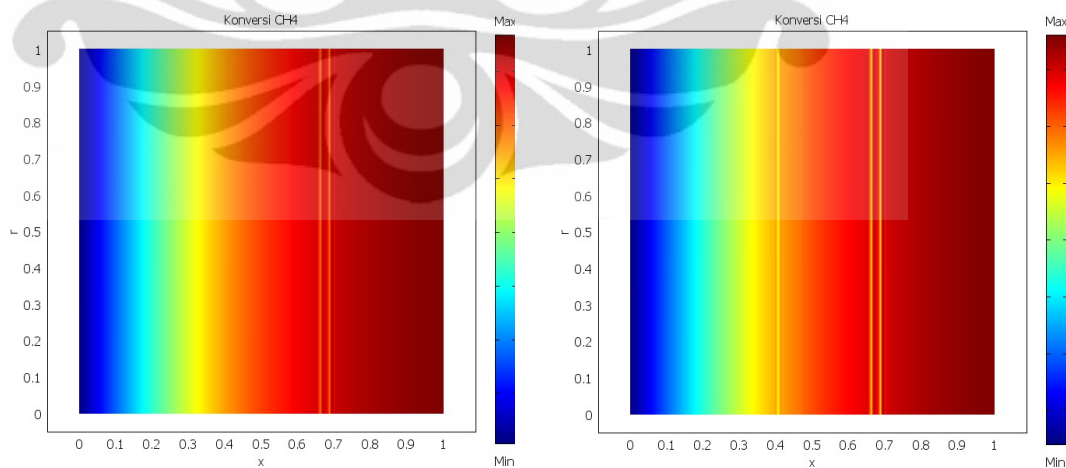
Gambar 5.25 menunjukkan seiring dengan peningkatan rasio steam terhadap metana, konversi CH_4 meningkat hingga posisi aksial tertentu ($x = 0$ sampai $x = 0,14$) kemudian menurun hingga ujung reaktor. Hal ini disebabkan oleh penambahan steam mengakibatkan meningkatnya tekanan parsial H_2O , tetapi menurunkan tekanan parsial O_2 dan CH_4 pada bagian awal reaktor. Hal tersebut membuat laju reaksi oksidasi dan reformasi pada bagian posisi aksial yang telah disebutkan menurun. Konversi CH_4 yang meningkat pada rasio S/C yang meningkat di $x = 0$ sampai $x = 0,14$ dikarenakan pada wilayah tersebut sistem reaktor masih sedikit didominasi oleh reaksi oksidasi. Jumlah CH_4 yang makin sedikit membuat konversi CH_4 terlihat meningkat. Namun konversi yang meningkat belum tentu menguntungkan sistem proses karena laju reaksi oksidasi yang berlangsung lebih lambat membuat wilayah reaktor yang didominasi oleh oksidasi menjadi lebih panjang. Jika kita bandingkan dengan gambar 5.22, posisi aksial dimana reaksi oksidasi masih sedikit mendominasi hanya sampai $x = 0,1$ untuk beberapa tekanan umpan yang berbeda.



Gambar 5.25 Konversi CH₄ pada Rasio Umpan Berbeda

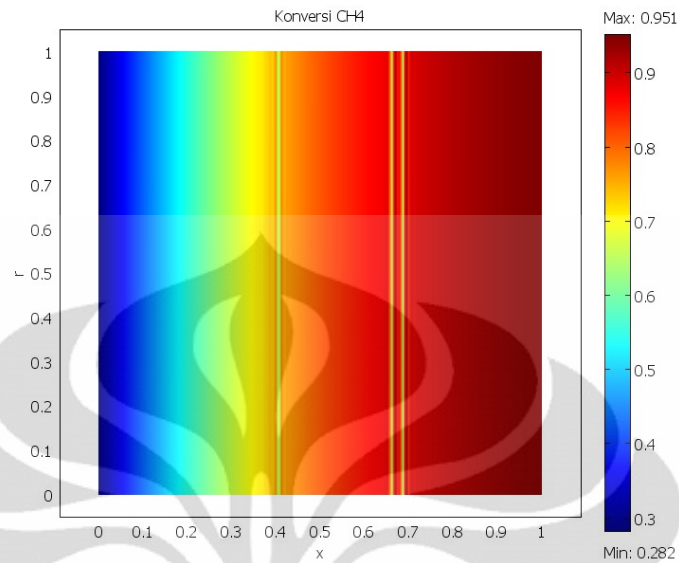


Gambar 5.26 Yield Syngas pada Rasio Umpan Berbeda



(a)

(b)



(c)

Gambar 5.27 Konversi CH_4 di Katalis pada Rasio Umpan Berbeda : (a) $\text{S/C} = 0$;
(b) $\text{S/C} = 1$; (S/C) = 2

Pada gambar 5.26, terlihat peningkatan yield syngas seiring dengan peningkatan rasio S/C. Hal ini disebabkan oleh jumlah H_2O yang bertambah pada sistem reaktor menguntungkan proses reformasi karena makin banyak H_2O dalam sistem, maka produk H_2 dan CO yang dikontribusikan oleh reaksi reformasi akan bertambah banyak. Selain itu jumlah H_2 yang dikontribusikan oleh reaksi water gas shift juga akan bertambah sehingga meningkatkan yield syngas secara keseluruhan.

Pada gambar 5.27 dapat dilihat konversi CH_4 di katalis untuk rasio umpan yang berbeda. Gambar menunjukkan bahwa peningkatan konversi tidak dimulai dari angka nol, seperti pada reaktor, hal ini disebabkan oleh tahanan lapisan batas antar fasa yang mengakibatkan konsentrasi mula-mula di katalis tidak sama dengan konsentrasi mula-mula di katalis, sehingga perhitungan untuk konversi di katalis menunjukkan angka yang berbeda.

BAB VI KESIMPULAN DAN SARAN

6.1 Kesimpulan

Dari hasil penelitian disimpulkan bahwa,

1. Model reaktor unggun tetap heterogen 1D dengan mempertimbangkan tahanan difusi di katalis dan dispersi di reaktor dan lapisan batas memiliki kesesuaian konversi CH_4 yang bagus dibandingkan dengan data eksperimen skala laboratorium dengan deviasi rata-rata sebesar 0,74%
2. Model reaktor unggun tetap heterogen 1D dengan mempertimbangkan tahanan difusi di katalis dan dispersi di reaktor dan lapisan batas memiliki kesesuaian selektivitas produk yang bagus dengan data eksperimen skala laboratorium
3. Gradien konsentrasi akibat tahanan lapisan film paling besar $2,74 \text{ mol/m}^3$ untuk perpindahan spesi CO pada koordinat katalis $x = 0, r = 1$
4. Gradien konsentrasi akibat tahanan intrakatalis paling besar adalah 0,016 untuk perpindahan O_2 pada $x = 0,2, r = 0$ sampai $r = 1$.
5. Laju alir optimum dari hasil simulasi adalah $1 \times 10^{-4} \text{ Nm}^3/\text{s}$ dengan pencapaian konversi CH_4 0,955 dan yield syngas 0,49
6. Tekanan optimum dari hasil simulasi adalah 400 kPa dengan pencapaian konversi CH_4 0,96 dan yield syngas 0,44
7. Rasio umpan optimum dari hasil simulasi adalah $\text{H}_2\text{O per CH}_4 = 0$ dengan pencapaian konversi CH_4 0,94 dan yield syngas 0,66

6.2 Saran

Disarankan untuk penelitian mengenai pemodelan reaktor untuk proses reformasi autotermal berikutnya untuk,

1. Melakukan studi kinetika oksidasi katalitik metana secara lebih mendalam untuk mengetahui kebutuhan panas proses reformasi secara efisien
2. Mencari metode lain pencegahan *overlapping* antara oksidasi dan reformasi disamping penggunaan faktor tunda kinetik (penundaan laju reaksi)

LAMPIRAN A

PEMODELAN DENGAN COMSOL

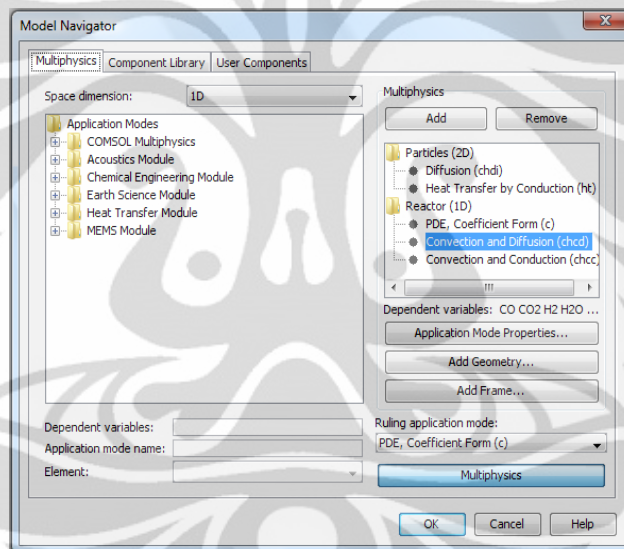
Pada bagian ini dijelaskan bagaimana cara mengimplementasikan persamaan-persamaan model matematik yang sebelumnya telah diuraikan ke dalam Comsol.

A.1 Inisialisasi Comsol

Pada tahap ini kita menginisialisasi model kita dengan menentukan dimensi geometri sistem, menentukan variabel dependen serta memilih fenomena fisika yang terjadi. Geometri untuk reaktor adalah satu dimensi untuk menggambarkan arah aksial saja sedangkan untuk katalis berupa dua dimensi karena katalis menggambarkan fenomena fisika ke arah radial katalis sepanjang aksial reaktor. Langkah-langkah inisialisasi model Comsol adalah

1. Membuka **Comsol Multiphysics**
2. Membuat Geometri dan memilih **2D** di daftar **Space dimension**
3. Mengisi nama *particles* pada kolom **Geometry Name**
4. Mengisi independen variabel x r z pada kolom isian
5. Memilih mode aplikasi **COMSOL Multiphysics>Chemical Engineering Module>Mass Transport>Diffusion**
6. Mengisi CH_4p O_2p H_2Op H_2p COp CO_2p pada kolom **dependent variable**
7. Memilih mode aplikasi **COMSOL Multiphysics>Chemical Engineering Module>Energy Transport>Conduction**
8. Mengisi Tp pada kolom **dependent variable**
9. Membuat Geometri dan memilih **1D** di daftar **Space dimension**
10. Mengisi nama *Reactor* pada kolom **Geometry Name**
11. Mengisi independen variabel x y z pada kolom isian
12. Memilih mode aplikasi **COMSOL Multiphysics>Chemical Engineering Module>Mass Transport>Diffusion and Convection**

13. Mengisi CH_4 O_2 H_2O H_2 CO CO_2 pada kolom **dependent variable**
 14. Memilih mode aplikasi **COMSOL Multiphysics>Chemical Engineering Module>Energy Transport>Convection and Conduction**
 15. Mengisi T pada kolom **dependent variable**
 16. Mengklik tombol **Add**
 17. Memilih mode aplikasi **COMSOL Multiphysics>PDE Modes>PDE Coefficient Form.**
 18. Mengisi P pada kolom **Dependent Variable**
- Hasil dari langkah ini terlihat di gambar di bawah

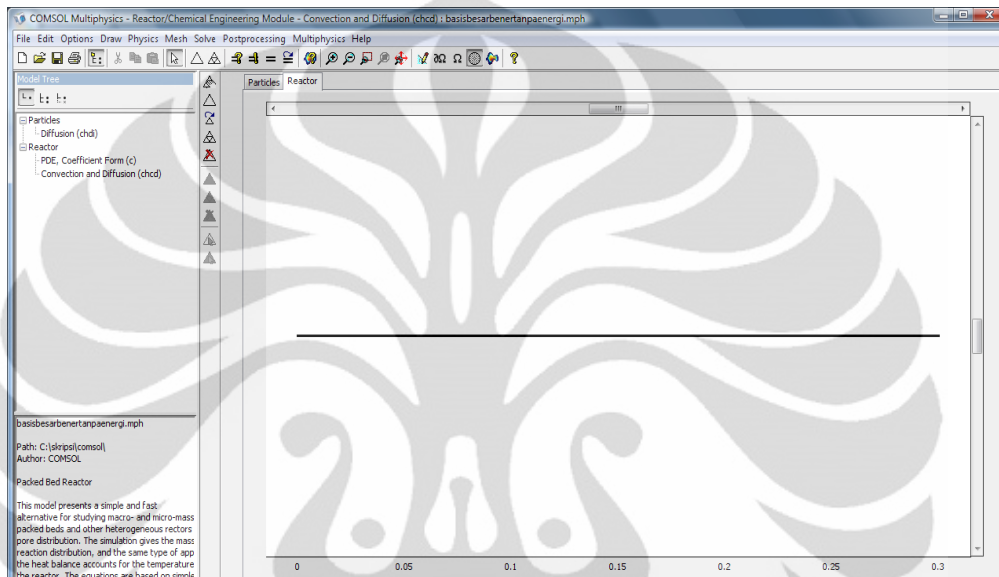


Gambar A.1 Halaman *Model Navigator*

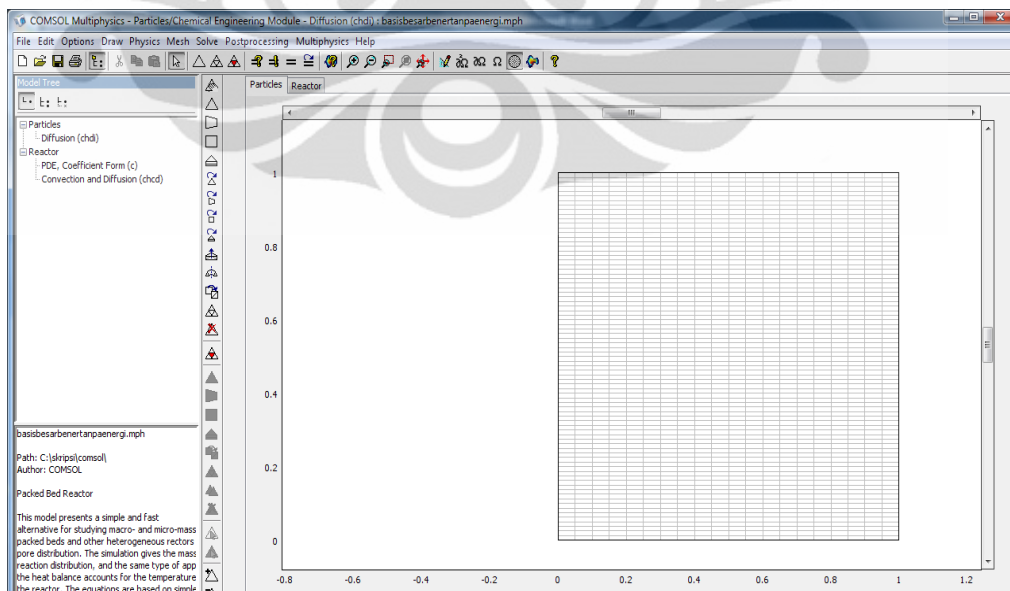
A.2 Pemodelan Geometri

Pada tahap ini kita menggambarkan geometri untuk reaktor dan katalis. Reaktor memiliki geometri garis lurus sepanjang 0.3 m. Panjang ini merupakan panjang reaktor awal sebelum divariasikan. Geometri katalis berupa persegi dengan panjang 1x1m. Dimensi geometri katalis karena dilakukan proses pentakdimensian seperti yang dijelaskan di bab 4.1 di atas. Langkah-langkah memodelkan geometri adalah :

1. Memilih geometri reaktor dari menu **multiphysics**
2. Membuat garis dengan **line tools** sepanjang 0.3 m dari titik 0
3. Memilih geometri katalis dari menu **multiphysics**
4. Membuat persegi dengan **square tools** seukuran 1m x 1m



Gambar A.2 Geometri Reaktor di Comsol

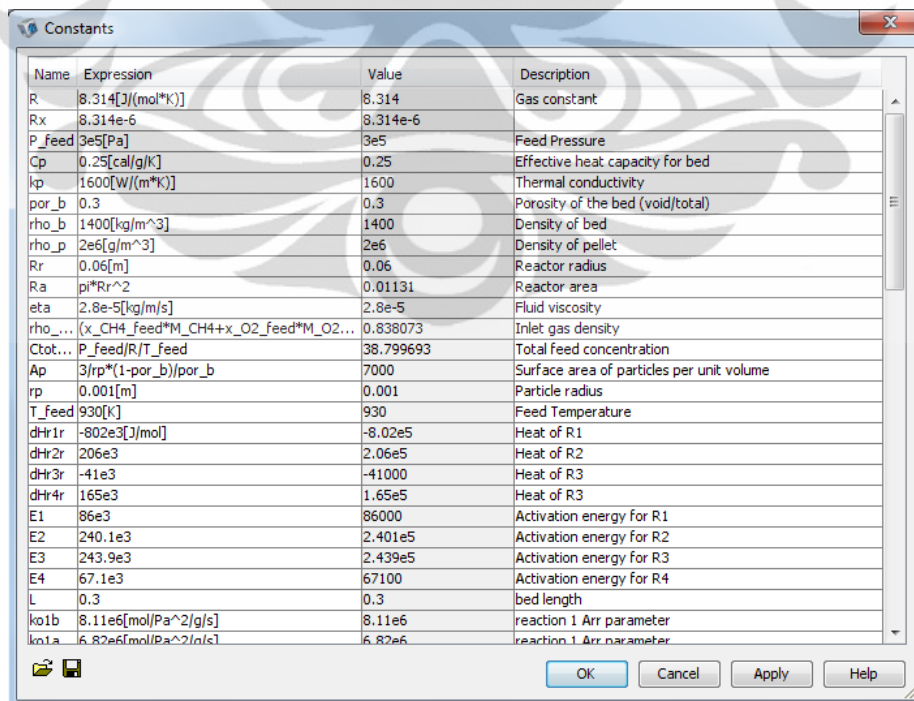


Gambar A.3 Geometri Katalis dalam Comsol

A.3 Input Parameter dan Persamaan

Pada tahap ini dimodelkan berbagai konstanta dan persamaan untuk model reaktor unggun tetap. Konstanta berisi nilai-nilai yang besarnya tidak berubah. Konstanta ini berisi parameter reaktor, kondisi operasi reaktor dan konstanta dari persamaan lain yang menjelaskan persamaan reaktor. Sedangkan kolom ekspresi berupa persamaan yang nilainya berubah terus menerus sepanjang reaktor. Langkah-langkah memodelkan persamaan di Comsol adalah

1. Memilih menu **options>Constants**
2. Memasukan nama konstanta di kolom **Name**, ekspresi di kolom **expression** dan deksripsi di kolom **description**
3. Memilih menu **options>Expressions>Global Expressions**
4. Memasukan nama konstanta di kolom **Name**, ekspresi di kolom **expression** dan deksripsi di kolom **description**



Name	Expression	Value	Description
R	8.314[J/(mol*K)]	8.314	Gas constant
Rx	8.314e-6	8.314e-6	
P_feed	3e5[Pa]	3e5	Feed Pressure
Cp	0.25[cal/g/K]	0.25	Effective heat capacity for bed
kp	1600[W/(m*K)]	1600	Thermal conductivity
por_b	0.3	0.3	Porosity of the bed (void/total)
rho_b	1400[kg/m^3]	1400	Density of bed
rho_p	2e6[g/m^3]	2e6	Density of pellet
Rr	0.06[m]	0.06	Reactor radius
Ra	pi*Rr^2	0.01131	Reactor area
eta	2.8e-5[kg/m/s]	2.8e-5	Fluid viscosity
rho_...	(x_CH4_feed*M_CH4+x_O2_feed*M_O2...	0.838073	Inlet gas density
Ctot...	P_feed/R/T_feed	38.799693	Total feed concentration
Ap	3/rp*(1-por_b)/por_b	7000	Surface area of particles per unit volume
rp	0.001[m]	0.001	Particle radius
T_feed	930[K]	930	Feed Temperature
dHr1r	-802e3[J/mol]	-8.02e5	Heat of R1
dHr2r	206e3	2.06e5	Heat of R2
dHr3r	-41e3	-41000	Heat of R3
dHr4r	165e3	1.65e5	Heat of R3
E1	86e3	86000	Activation energy for R1
E2	240.1e3	2.401e5	Activation energy for R2
E3	243.9e3	2.439e5	Activation energy for R3
E4	67.1e3	67100	Activation energy for R4
L	0.3	0.3	bed length
ko1b	8.11e6[mol/Pa^2/g/s]	8.11e6	reaction 1 Arr parameter
kn1a	6.82e6[mol/Pa^2/s]	6.82e6	reaction 1 Arr parameter

Gambar A.4 Tabulasi Konstanta di Comsol

Name	Expression	Description
Ctot	$\text{CH4} + \text{O2} + \text{H2O} + \text{H2} + \text{CO} + \text{CO2}$	Total concentration
u	$u_{\text{feed}} * (\text{Ctot} / \text{Ctot}_{\text{feed}}) * (P_{\text{feed}} / (P))$	Linear velocity
beta	$G * (1 - \text{por}_b) / ((\rho_{\text{now}} * 2 * r_p * \text{por}_b^3) * (150 * (1 - \text{por}_b) * \text{mix_miu} / (2 * r_p) + 1.75 * G))$	Ergun equation constant
G	$u_{\text{feed}} * \rho_{\text{now}}$	superficial mass velocity
F0	$\text{Ctot}_{\text{feed}} * u_{\text{feed}} * R_a$	Inlet molar flow
F	$\text{Ctot} * u * R_a$	Molar flow [mol/s]
rho_nowa	$(\text{CH4} * M_{\text{CH4}} + \text{O2} * M_{\text{O2}} + \text{H2O} * M_{\text{H2O}} + \text{H2} * M_{\text{H2}} + \text{CO} * M_{\text{CO}} + \text{CO2} * M_{\text{CO2}}) / 1000$	
rho_now	$P / (R * T)$	
ki_g	$0.91 * (\text{Rep}^{0.49}) * \text{Sci}^{(1/3)} * \text{psi} * \text{Di}_{\text{mix}} * (\text{dp}^{-1})$	Interphase mass transfer coefficient
hf	$0.91 * (\text{Rep}^{0.49}) * \text{Pr}^{(1/3)} * \text{psi} * k_{\text{mix}} * (\text{dp}^{-1})$	Interphase heat transfer coefficient
k1b	$k_{01b} * \exp(-E1 / (R * T_p))$	rate constant1
k1a	$k_{01a} * \exp(-E1 / (R * T_p))$	rate constant1
k2	$k_{02} * \exp(-E2 / (R * T_p))$	rate constant2
k3	$k_{03} * \exp(-E3 / (R * T_p))$	rate constant3
k4	$k_{04} * \exp(-E4 / (R * T_p))$	rate constant4
KcCH4	$k_{04} * \exp(-d_{\text{Hr_cCH4}} / (R * T_p))$	adsorption constant
KcO2	$k_{04} * \exp(-d_{\text{Hr_cO2}} / (R * T_p))$	adsorption constant
KCH4	$k_{04} * \exp(-d_{\text{Hr_CH4}} / (R * T_p))$	adsorption constant
KCO	$k_{04} * \exp(-d_{\text{Hr_CO}} / (R * T_p))$	adsorption constant
KH2	$k_{04} * \exp(-d_{\text{Hr_H2}} / (R * T_p))$	adsorption constant
KH2O	$k_{04} * \exp(-d_{\text{Hr_H2O}} / (R * T_p))$	adsorption constant
x_CH4	$\text{CH4} / \text{Ctot}$	mole fraction

Gambar A.5 Tabulasi Persamaan di Comsol

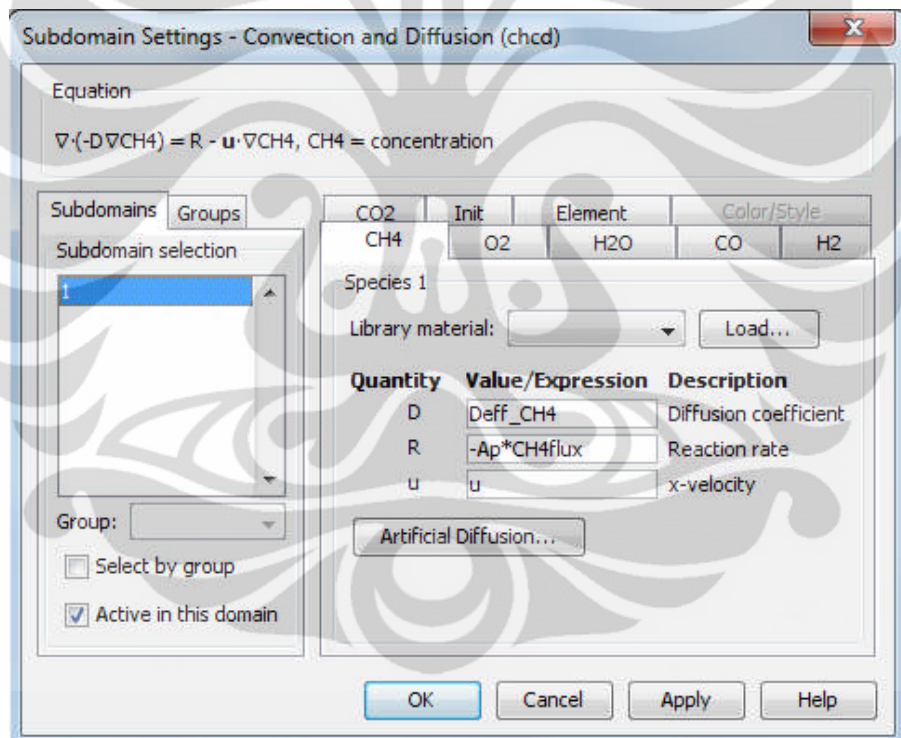
A.4 Pemodelan Fenomena Reaktor Unggun Tetap

Pada tahap ini dimodelkan berbagai persamaan model reaktor dan katalis. Dalam memodelkan kita perlu mengeset *subdomain* dan *boundary condtions*. *Subdomain* berisi parameter berbagai macam persamaan fisika yang dipakai. Sedangkan *boundary conditions* berisi kondisi pada batas-batas fenomena fisika pada geometri yang diatur. Langkah-langkah memodelkan persamaan fisika di Comsol adalah

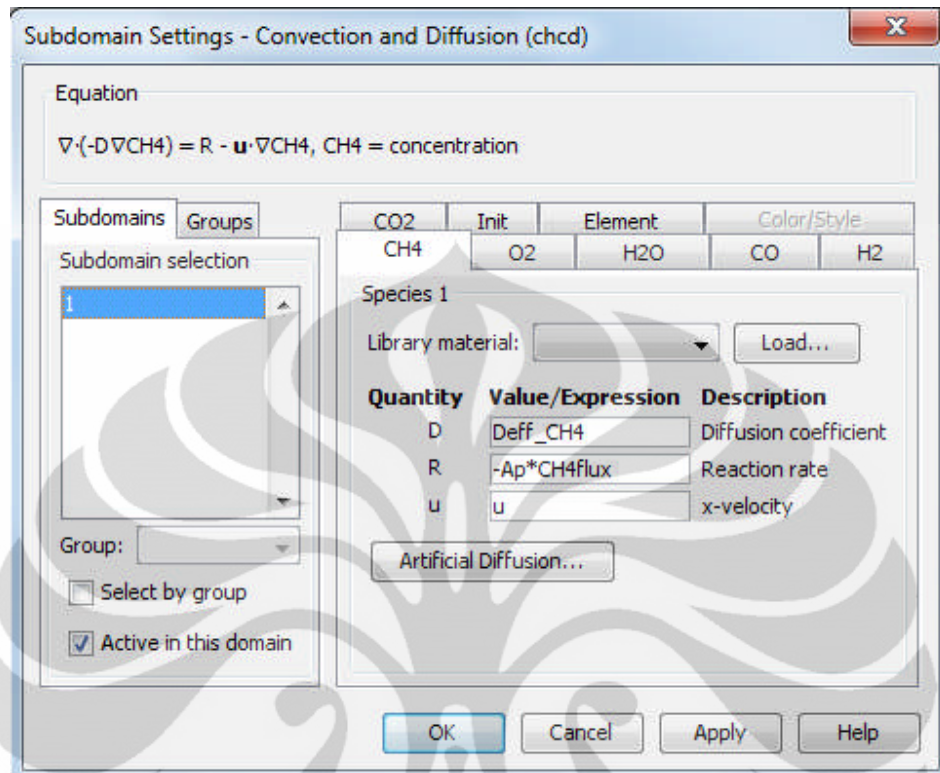
A.4.1 Memodelkan *Subdomain*

1. Memilih fenomena **Reactor : Convection and Diffusion**
2. Masuk ke menu **Physics>Subdomain Settings**
3. Mengisi kolom sesuai gambar di bawah
4. Memilih fenomena **Reactor : Convection and Conduction**
5. Masuk ke menu **Physics>Subdomain Settings**
6. Mengisi kolom sesuai gambar di bawah

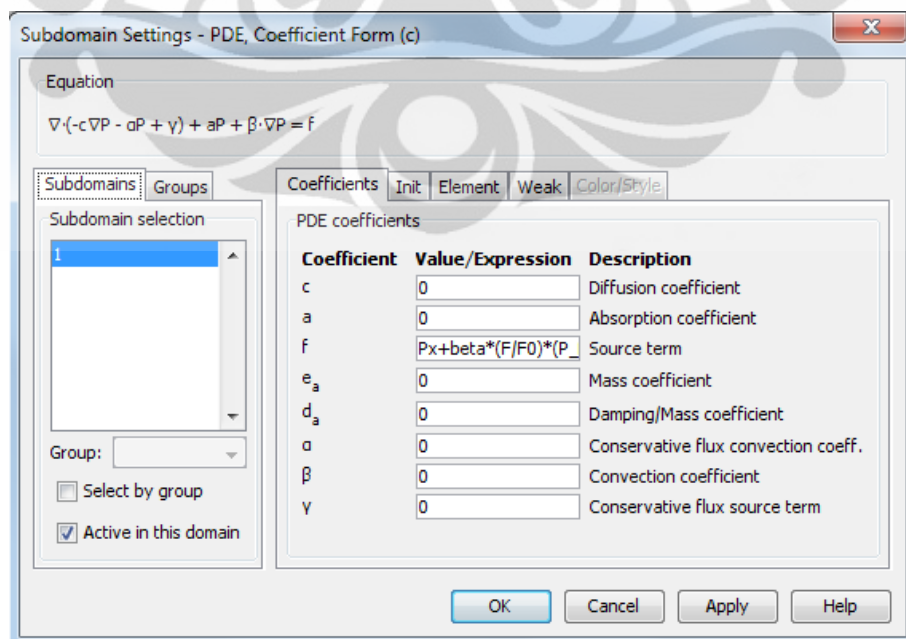
7. Memilih fenomena **Reactor : PDE Coefficient Form**
8. Masuk ke menu **Physics>Subdomain Settings**
9. Mengisi kolom sesuai gambar di bawah
10. Memilih fenomena **Particles : Diffusion**
11. Masuk ke menu **Physics>Subdomain Settings**
12. Mengisi kolom sesuai gambar di bawah
13. Memilih fenomena **Particles : Conduction**
14. Masuk ke menu **Physics>Subdomain Settings**
15. Mengisi kolom sesuai gambar di bawah



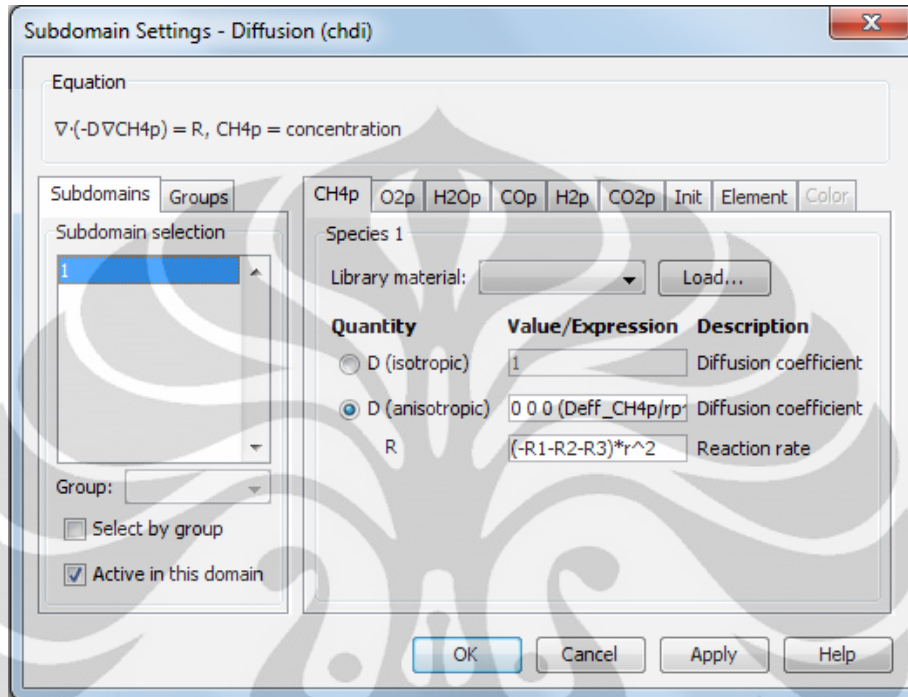
Gambar A.6 Jendela *Subdomain Convection and Diffusion*



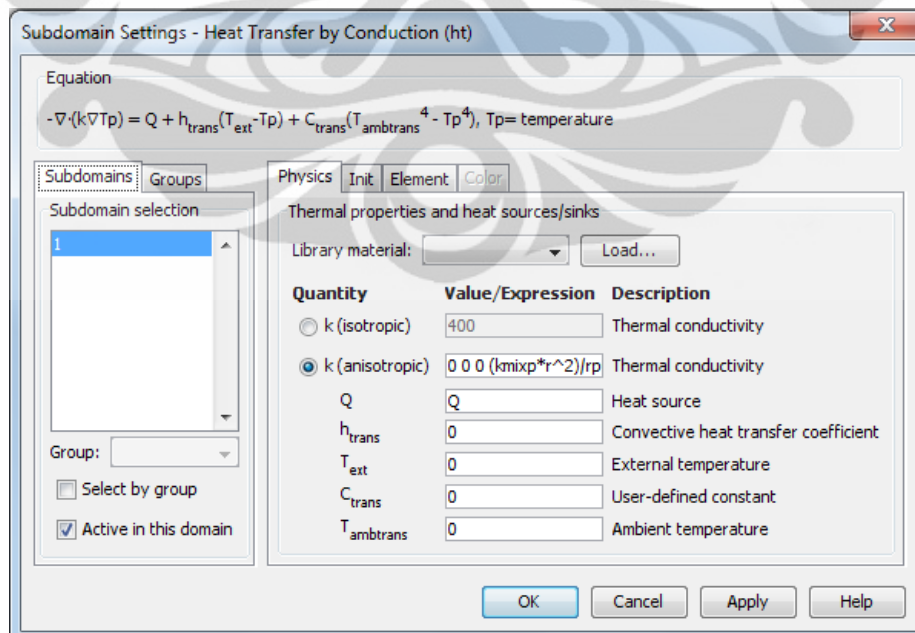
Gambar A.7 Jendela Subdomain Convection and Conduction



Gambar A.8 Jendela *Subdomain PDE Coefficient Form*



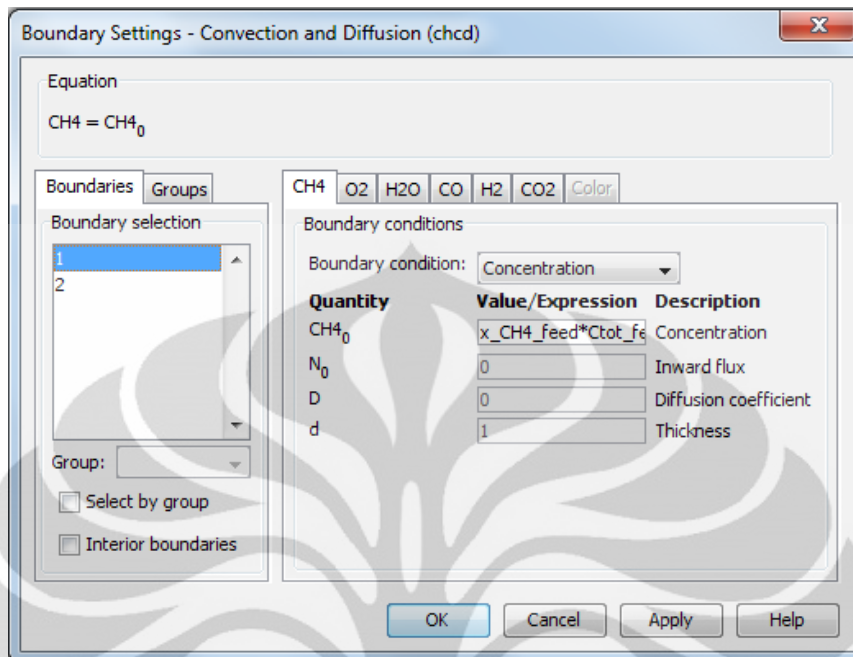
Gambar A.9 Jendela *Subdomain Diffusion*



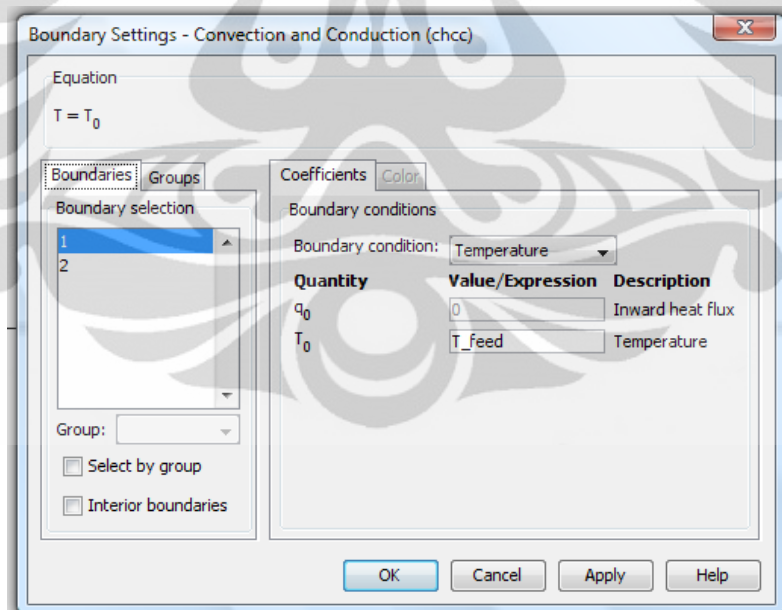
Gambar A.10 Jendela *Subdomain Heat Transfer by Conduction*

A.4.2 Memodelkan *Boundary Conditions*

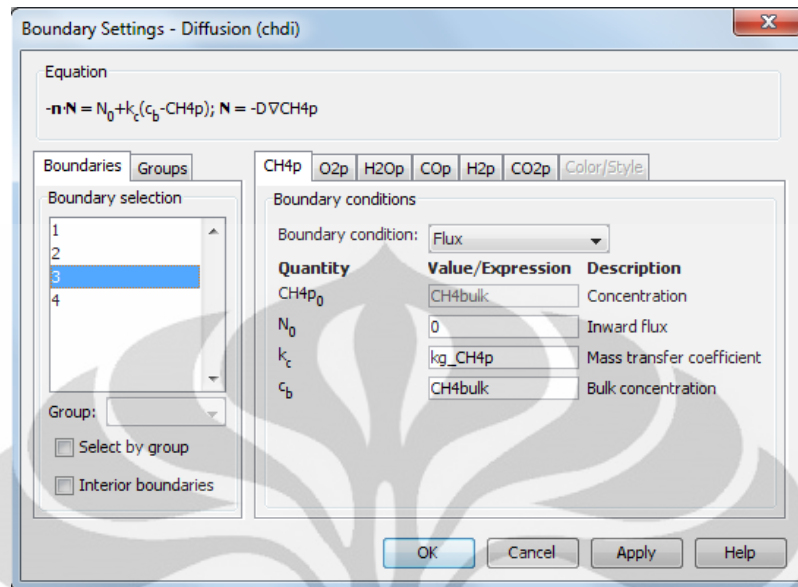
1. Memilih fenomena **Reactor : Convection and Diffusion**
2. Masuk ke menu **Physics>Boundary Settings**
3. Mengisi kolom sesuai gambar di bawah
4. Memilih fenomena **Reactor : Convection and Conduction**
5. Masuk ke menu **Physics>Boundary Settings**
6. Mengisi kolom sesuai gambar di bawah
7. Memilih fenomena **Reactor : PDE, coefficient Form**
8. Masuk ke menu **Physics>Boundary Settings**
9. Mengisi kolom sesuai gambar di bawah
10. Memilih fenomena **Particles : Diffusion**
11. Masuk ke menu **Physics>Boundary Settings**
12. Mengisi kolom sesuai gambar di bawah
13. Memilih fenomena **Particles : Conduction**
14. Masuk ke menu **Physics>Boundary Settings**
15. Mengisi kolom sesuai gambar di bawah



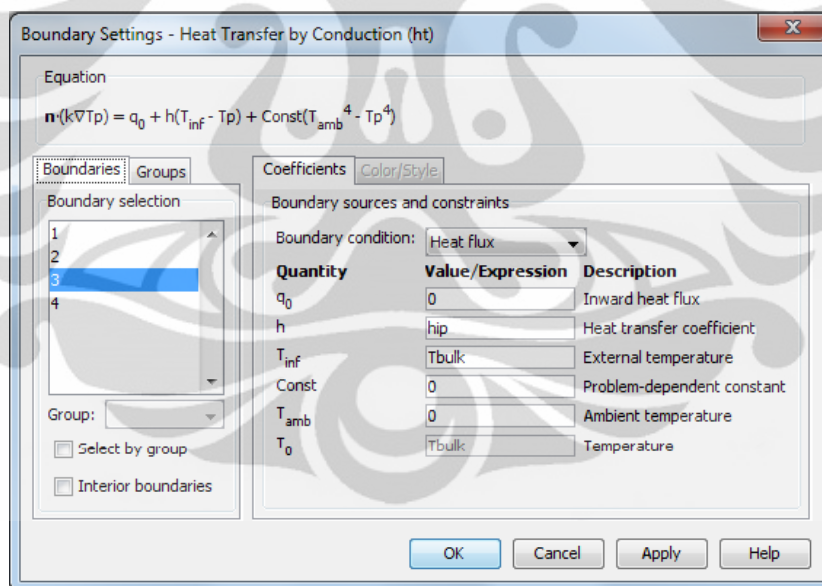
Gambar A.11 *Jendela Boundary Condition 1 Convection and Diffusion*



Gambar A.12 *Jendela Boundary Condition 1 Convection and Conduction*



Gambar A.13 Jendela *Boundary Condition 3 Diffusion*



Gambar A.14 Jendela *Boundary Condition 3 Conduction*

A.5 Kalkulasi Solusi Persamaan

Tahap setelah membuat model dan menuliskan persamaan adalah kalkulasi persamaan. Kalkulasi persamaan ini menggunakan jenis *solver* yang disediakan Comsol. Jenis *solver* dipilih adalah *Parametric Stationary Segregated*. Jenis *parametric* dipilih karena kita bisa memvariasikan

parameter reaksi lalu Comsol menghitung solusinya sekaligus. Hal ini bermanfaat ketika kita ingin mengetahui pengaruh suatu kondisi reaktor terhadap hasil reaksi. Jenis *stationary* karena model yang digunakan merupakan model tunak yang tidak bergantung terhadap waktu. Jenis *segregated* karena jenis solver ini mampu menyelesaikan persamaan fisika secara tersegregasi, hal ini berarti bisa membuat solver bisa berpindah-pindah menyelesaikan persamaan fisika. Metode ini lebih lama dibandingkan yang tidak tersegregasi, tetapi metode segregasi menggunakan memori komputer yang jauh lebih sedikit.

A.6 Post-Processing

Pada tahap ini kita mengolah data hasil simulasi ke dalam bentuk yang diinginkan. Dari data hasil simulasi didapatkan profil konsentrasi untuk setiap spesi baik di reaktor maupun di katalis. Kita bisa mengolah data tersebut menjadi data yang lebih mudah dianalisis yaitu konversi metana dan *yield* syngas. Konversi metana menyatakan banyaknya metana yang bereaksi. Namun, data konversi belum cukup karena metana yang bereaksi dapat bereaksi juga membentuk karbondioksida dari reaksi oksidasi. Oleh karena itu kita memerlukan variabel lain yaitu *yield* syngas. Data *yield* menyatakan banyaknya metana yang terkonversi menjadi syngas.