

Reaksi Absorpsi Gas CO₂ dengan Suspensi Ca(OH)₂ Menjadi CaCO₃ dalam Reaktor Slurry Tangki Berpengaduk

Zahrul Mufrodi^{1,*}, Rochmadi², dan Hary Sulisty²

¹Program Studi Teknik Kimia, FTI Universitas Ahmad Dahlan
Kampus III: Jl. Prof. Dr. Soepomo, Janturan, Yogyakarta 55164
²Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Gadjah Mada
Jl. Gafika 2 Kampus UGM Yogyakarta 55281

Abstract

Solid, liquid, and gas reaction systems are widely used in chemical industries. Manufacture of CaCO₃ is an example, where CaCO₃ is commonly used in many industries such as in cosmetics, a pigment in acrylic, pulp and rubber industries. This experiment studies the reaction of CaCO₃ manufacturing from absorption of gaseous CO₂ in Ca(OH)₂ suspension. This reaction is carried out in a slurry reactor with agitation. Firstly, the reactor is heated until desired reaction temperature has been reached. After that calcium carbonate solid is suspended in the reactor. Gaseous CO₂ (at the same temperature) is flown into the reactor at certain volumetric velocity using gas spurge. Samples are withdrawn every 1 minute until all of Ca(OH)₂ is reacted. Variables studied in this research are rotation speed of agitator (5.667 – 11.067 rps and, volumetric rate of CO₂ gas (34.0127– 60.5503 cm/s). Mass transfer coefficient and reaction rate coefficient are calculated using minimum SSE. Based on two-film theory at gas-liquid mass transfer and single-film theory at solubility of Ca(OH)₂, the proposed mathematical model fits well with the data. In addition, based on the Reynolds index at the various speed of agitator rotation and volumetric rate of gaseous CO₂, it is finally concluded that dynamic regime influences this experiment.

Keywords: slurry reactor, calcium carbonate, absorption

Pendahuluan

Kalsium karbonat (CaCO₃) yang banyak digunakan dalam industri, misalnya sebagai bahan pembuat bedak dalam industri kosmetik, sebagai pigmen dalam industri cat dan sebagai bahan pengisi dalam industri kertas dan karet (Doraiswamy dan Sharma, 1984).

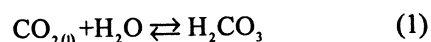
Kalsium karbonat (CaCO₃) banyak terdapat di alam yang terkandung dalam batu kapur, namun kalsium karbonat tersebut mempunyai kemurnian yang rendah dan tingkat kehalusannya kurang memenuhi syarat untuk digunakan di dalam industri-industri diatas.

Peristiwa pembuatan kalsium karbonat dapat didekati dengan reaksi tiga fase. Reaksi tiga fase biasanya terjadi pada reaktor *slurry* tangki berpengaduk dimana padatan tersuspensi dalam cairan (Ramachandran dan Chaudhari, 1980).

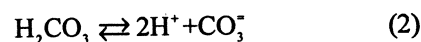
Penelitian ini bertujuan mempelajari proses reaksi pembentukan endapan kalsium karbonat (CaCO₃) dari proses absorpsi gas CO₂ dengan suspensi Ca(OH)₂. Nilai koefisien transfer massa gas-cair (k_{1g}), dan koefisien transfer massa padat-cair (k_s) akan dihitung berdasar model matematis yang diajukan.

Tinjauan Pustaka

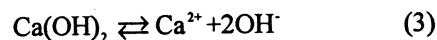
Menurut Khalil (Tomcej dan Otto, 1989) bahwa peristiwa absorpsi gas CO₂ digelembungkan dalam media air akan terdifusi ke dalam air. Gas CO₂ dalam air akan bereaksi seperti berikut:



selanjutnya asam karbonat akan terurai mengikuti reaksi berikut (Soejardi, 1985) :



Adapun kalsium hidroksid padat akan larut dalam air kemudian akan terjadi reaksi (Soejardi, 1985):



Persamaan koefisien perpindahan massa gas-liquid (k_1) dalam reaktor *slurry* tangki berpengaduk diajukan oleh Ramachandran (1980), yaitu:

$$k_1 = 0,42 \left[\frac{(\rho_1 - \rho_g) \mu_g}{(\rho_1)^2} \right]^{1/3} \left[\frac{D \rho_1}{\mu_1} \right]^{1/2} \quad (5)$$

Diffusivitas gas-cair (D) dihitung menggunakan persamaan Wilke dan Chang (Behkish dkk., 2002):

*Alamat korespondensi: Tel.: +62-274-3794 18, Fax: +62-274-381523, E-mail: zahrul_mufrodi@yahoo.com.sg

$$D = \frac{1,173 \times 10^{-16} (\lambda BM)^{0,5} (T + 273)}{\mu_1 V_m^{0,6}} \quad (6)$$

Luas *gas-liquid interfacial* dihitung menggunakan persamaan (Behkish dkk., 2002):

$$a_g = 1,44 \frac{\left(\frac{P}{V}\right)^{0,4} (\rho_1)^{0,2} \left(\frac{u_g}{u_l}\right)^{0,5}}{S_T^{0,6}} \quad (7)$$

Di dalam reaktor butir-butir padatan akan terdistribusi dengan baik di dalam cairan dengan adanya pengadukan. Keadaan ini menyebabkan kecepatan relatif antara partikel dan cairan sangat rendah, sehingga dapat dianggap kondisi cairan *pseudo-stagnant*, maka bilangan Sherwood (Sh) dianggap sama dengan 2 (Syah dkk., 1994).

Menurut Fernianti (2000) yang meneliti tentang reaksi gas CO₂ dan CaCO₃ padat dalam reaktor *slurry* tangki berpengaduk menyimpulkan bahwa diameter partikel pada percobaan kisaran suhu 20 - 45 °C tidak mempengaruhi nilai tetapan kecepatan reaksi baik ke kanan (*k_{r1}*) maupun ke kiri (*k_{r2}*), yaitu *k_{r1}* = 1,47 × 10⁶ e^{-2290/T} cm³/mgmol/s dan *k_{r2}* = 1767,75 e^{-2021,35/T} s⁻¹.

Reaksi suspensi Ca(OH)₂ dengan gas CO₂ dijalankan dalam reaktor *slurry* tangki berpengaduk. Pengadukan bertujuan untuk menjaga supaya kenaikan gelembung gas yang merata dan butir-butir padatan tidak mengendap ke dasar tangki serta terdistribusi sempurna di dalam reaktor.

Menurut konsep antar fasa satu film dan antar fasa dua film dapat diuraikan sebagai berikut:

a. Kecepatan perpindahan massa CO₂ dari fasa gas ke cairan mengikuti persamaan:

$$N_A = k_1 a_g (C_A^* - C_A) \quad (8)$$

Hubungan kesetimbangan uap-cair mengikuti persamaan:

$$C_A^* = P_A / H \quad (9)$$

b. Kecepatan perpindahan massa Ca(OH)₂ dari padat ke cair didekati dengan persamaan:

$$r_B = k_s a_s (C_B^* - C_B) \quad (10)$$

c. Kecepatan reaksi CO₂ terlarut dan Ca(OH)₂ terlarut di fasa cair didekati dengan persamaan (Doraiswamy, 1984):

$$r_C = k_r C_A C_B \quad (11)$$

Model Matematis yang diajukan adalah sebagai berikut:

Neraca massa CO₂ fase cair:

$$\frac{dC_A}{dt} = k_1 a_g (P_A / H - C_A) - k_r C_A C_B \quad (12)$$

Neraca massa Ca(OH)₂ pada fase cair:

$$\frac{dC_B}{dt} = -k_r C_A C_B + k_s \frac{4\pi r^2 n}{V} (C_B^* - C_B) \quad (13)$$

Neraca massa Ca(OH)₂ padat yang belum melarut:

$$\frac{dr}{dt} = -\frac{k_s BM}{\rho_s} (C_B^* - C_B) \quad (14)$$

Neraca massa CaCO₃ dalam larutan:

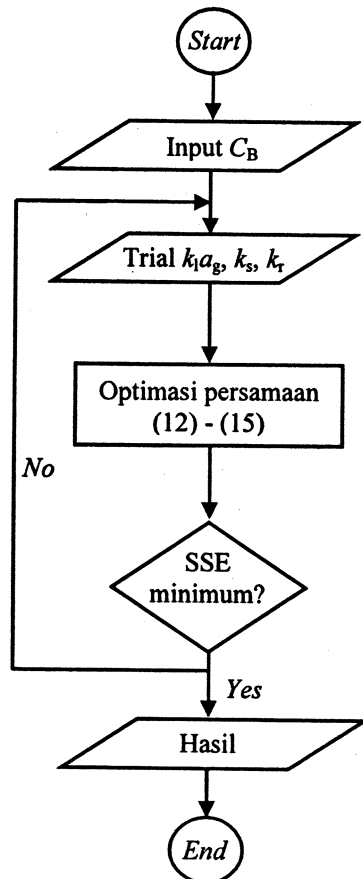
$$\frac{dC_C}{dt} = k_r C_A C_B \quad (15)$$

Keadaan batas untuk menyelesaikan persamaan (12), (13), (14), dan (15) adalah:

$$t = 0; C_A = 0; C_B = C_{B0}; r = r_0; \text{ dan } C_C = 0.$$

Persamaan (12), (13), (14) dan (15) adalah persamaan diferensial simultan orde satu yang bisa diselesaikan secara numeris. Nilai C_B^{*} ditentukan dari literatur kelarutan Ca(OH)₂ dalam air (Perry dan Ceci, 1984). Nilai *k₁a_g*, *k_s*, dan *k_r* ditentukan dengan minimasi SEE, dengan nilai C_B dihitung pada berbagai waktu.

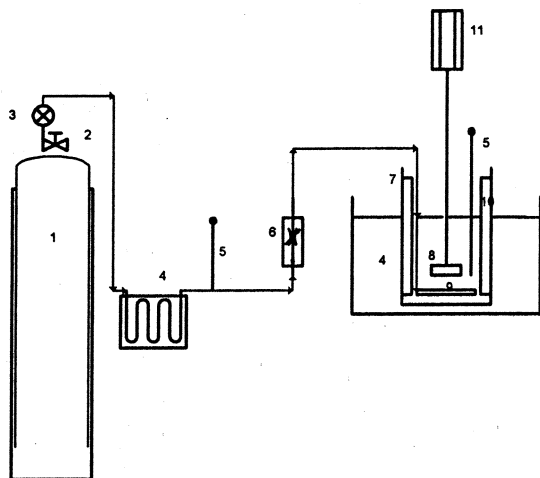
Flow chart dari optimasi penyelesaian persamaan dapat dilihat pada gambar berikut ini.



Gambar 1. Flow chart optimasi penyelesaian perhitungan.

Metodologi

Penelitian menggunakan gas CO₂ dengan kemurnian 99,98% dan kalsium hidroksida, Ca(OH)₂ dengan ukuran butir 0,0005 cm. Penelitian dilakukan dengan rangkaian alat sebagai mana ditunjukkan pada Gambar 2.



Gambar 2. Rangkaian alat proses dengan reaktor tangki berpengaduk: 1, tabung gas CO₂; 2, kran pengatur debit gas; 3, manometer; 4, water bath; 5, termometer; 6, flow meter; 7, gelas beker; 8, pengaduk; 9, distributor gas; 10, baffle; 11, termometer; 12, motor pengaduk.

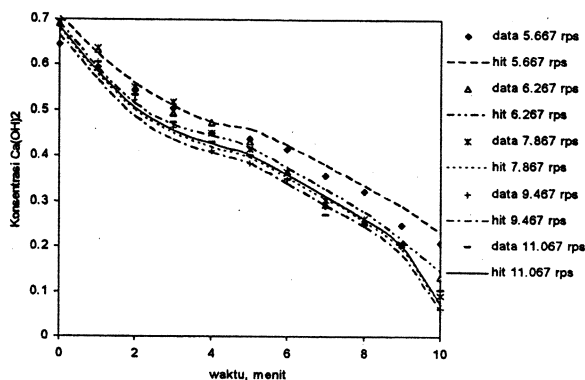
Penelitian yang diawali dengan memanaskan tangki reaktor yang berisi aquades 2 L sesuai suhu yang diinginkan. Water bath yang dilalui pipa gas CO₂ juga dipanaskan sehingga mendapatkan suhu aliran gas sesuai dengan suhu reaktor. Ca(OH)₂ dengan berat 10 g dimasukkan ke dalam reaktor, kemudian diaduk dengan kecepatan putaran tertentu sehingga didapat larutan Ca(OH)₂ jenuh. Kran gas dibuka pada kecepatan alir tertentu dan digelembungkan di dalam reaktor dengan bantuan distributor gas.

Pada kurun waktu tertentu (setiap 1 menit) sampel diambil untuk dianalisa kadar Ca(OH)₂ sisa. Percobaan dihentikan setelah kandungan Ca(OH)₂ habis bereaksi ditandai dengan sampel yang diambil sudah tidak lagi berwarna pink jika ditetesi indikator pp. Percobaan ini bervariasi pengadukan antara 5,667 – 11,067 rps, kecepatan alir gas antara 34,0127 – 60,5503 cm/s

Hasil dan Pembahasan

Pengaruh kecepatan putaran pengaduk divariasikan dari 5,667 – 11,067 rps, sedangkan variabel lain dibuat tetap. Pada proses ini semakin besar pengadukan akan memperkecil hambatan transfer massa Ca(OH)₂ ke air sehingga semakin banyak Ca(OH)₂ yang bereaksi. Selain itu, kenaikan kecepatan pengadukan akan meningkatkan interfacial area sehingga dispersi Ca(OH)₂ dalam air semakin sempurna. Feno-

mena tersebut sejalan dengan apa yang dikemukakan oleh Johnstone dan Thring (1957) bahwa secara umum efek dari pengadukan adalah meningkatkan derajat turbulensi dalam media fluida, mengurangi ketebalan streamline boundary films, sehingga meminimalkan hambatan untuk transfer massa secara konveksi.



Gambar 3. Hubungan konsentrasi Ca(OH)₂ dengan waktu pada berbagai kecepatan pengaduk.

Nilai $k_1 a_g$ dan k_s pada variasi kecepatan pengadukan dihitung dengan metode Hooke Jeeves. Hubungan antara kecepatan pengadukan dengan variabel $k_1 a_g$ dan k_s dengan kecepatan putaran pengaduk dapat didekati dengan persamaan berikut.

$$k_1 a_g = 3,3198 N^{0,456} \tag{16}$$

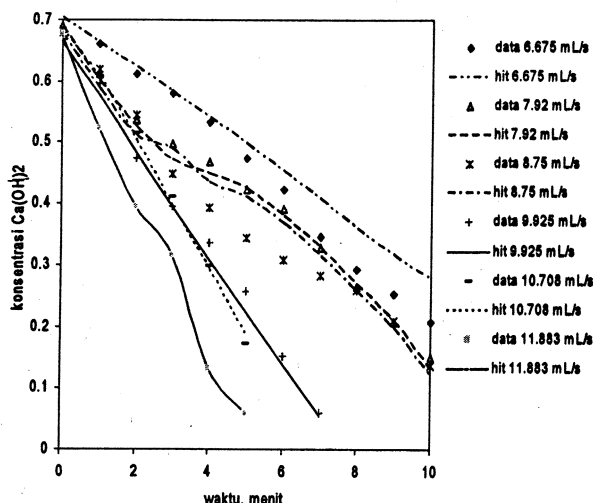
$$k_s = 2,7988 N^{0,4972} \tag{17}$$

Kesalahan pendekatan dari persamaan di atas berturut-turut adalah 3,41% dan 4,39%.

Pangkat dari persamaan di atas dapat digunakan untuk mengindikasikan regim yang berperan. Hal ini dinyatakan sebagai indeks Reynolds. Jika nilai indeks Reynolds mendekati nol, maka termasuk regim kimia atau dinamis viscous. Jika nilainya berkisar antara 0,5 dan 0,8 dinamakan regim dinamik turbulen untuk fixed interface. Apabila indeksnya antara 3 dan 5 karakteristiknya regim dinamik untuk free interface (Johnstone dan Thring, 1957). Apabila mengikuti batasan tersebut, maka proses ini dengan indeks Reynolds mendekati 0,5 termasuk dalam kategori regim dinamik untuk free interface.

Pengaruh kecepatan alir gas CO₂ divariasikan dari kecepatan 34,0127 – 60,5503 cm/s sedangkan variabel lain dibuat tetap. Pada gambar di bawah menunjukkan semakin besar kecepatan gas mengakibatkan semakin cepat penurunan konsentrasi Ca(OH)₂, hal ini berarti dengan bertambahnya kecepatan gas maka semakin banyak gelembung gas CO₂ akan terdifusi dalam air membentuk asam karbonat H₂CO₃ yang kemudian terurai menjadi H⁺ dan CO₃⁼ yang kemudian akan bereaksi dengan Ca(OH)₂ terlarut.

Konsentrasi Ca(OH)₂ hasil simulasi mendekati data percobaan dengan ralat rata-rata antara 0,12 –



Gambar 4. Hubungan konsentrasi Ca(OH)_2 mgmol/cm³ dengan waktu pada berbagai kecepatan gas.

8,84%. Hal ini berarti proses yang terjadi dapat didekati dengan model matematis yang ada. Hubungan nilai $k_1 a_g$ dan k_s terhadap perubahan kecepatan alir gas CO_2 dapat diwakili dengan persamaan berikut.

$$k_1 a_g = 0,9616 v^{0,6028} \quad (18)$$

$$k_s = 0,8744 v^{0,6244} \quad (19)$$

dengan kesalahan pendekatan persamaan di atas berturut-turut adalah 2,22% dan 7,79%.

Dari perhitungan diperoleh indeks Reynolds sebesar 0,6. Nilai tersebut berada di antara 0,5 dan 0,8. Maka proses ini memiliki karakteristik regim dinamik untuk *fixed interface*. Hal ini sejalan dengan tinjauan koefisien transfer massa gas-cair yang mengategorikan proses ini sebagai regim dinamik untuk *fixed interface*.

Kesimpulan

1. Model matematis yang diajukan persamaan (12), (13), (14), dan (15) dapat menjelaskan proses reaksi pembentukan CaCO_3 , karena hasil simulasi mendekati data percobaan, dengan kesalahan rata-rata antara 0,12 – 8,53%
2. Ditinjau dari nilai indeks (pangkat) Reynolds baik pada perubahan kecepatan pengadukan dan kecepatan alir gas dalam proses dapat disimpulkan bahwa regim dinamik mengontrol kecepatan reaksi keseluruhan.

3. Hubungan antara kecepatan pengadukan dengan variabel $k_1 a_g$ dan k_s dengan kecepatan putaran pengaduk dapat didekati dengan persamaan $k_1 a_g = 3,3198 N^{0,456}$ dan $k_s = 2,7988 N^{0,4972}$ dengan kesalahan pendekatan 3,41% dan 4,39%. Untuk perubahan kecepatan alir gas CO_2 dapat didekati dengan persamaan $k_1 a_g = 0,9616 v^{0,6028}$ dan $k_s = 0,8744 v^{0,6244}$ dengan kesalahan pendekatan persamaan 2,22% dan 7,79%.

Daftar Pustaka

- Behkish, A., Men, Z., Inga, J. R. dan Morsi, B. I., 2002, Mass Transfer Characteristics in a Large-Scale Slurry Bubble Column Reactor with Organic Liquid Mixtures, *Chem. Eng. Sci.*, 57, 3307-3324.
- Dorainwamy, L. K., and Sharma, M. M., 1984, *Heterogeneous Reactions*, vol 2, John Wiley & Sons, New York.
- Fernianti, D., 2000, Analisis Reaksi Gas CO_2 dan CaCO_3 Padat dalam Reaktor Slurry Tangki Berpengaduk, *Master Thesis*, Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta, Indonesia.
- Jonstone, R. E. and Thring, M. W., 1957, *Pilot Plants, Models, and Scale-up Methods in Chemical Engineering*, Mc. Graw Hill Book Company, New York.
- Perry, R. H. and Ceci, C. H., 1984, *Chemical Engineering Hand Book*, 6th, Mc. Graw Hill Book Company, New York.
- Ramachandran, P. A., and Chaudari, R. V., 1980, Three Phase Slurry Reactor, *AIChE J.*, 26, 177-201.
- Soejardi, 1985, *Dasar-dasar Teknologi Gula*, Lembaga Pendidikan Perkebunan, Yogyakarta.
- Syah, Y. T., Upadhyay, S. N., Kumar, V., and Rai, B. N., 1994, Particle Suspension and Liquid-solid Mass Transfer in Mechanically Agitated Vessel, *Rev. Chem. Eng.*, 10, 93-94.
- Tomcej, R.A. and Otto F. D., 1989, Absorption of CO_2 and N_2O into Aqueous Solution of Methyl-diethanolamine, *AIChE J.*, 35, 861-864.
- Treadwell, F. T., 1948, *Quantitative Analysis*, vol 2, 9th ed., John Wiley and Sons, New York.

Naskah diterima 6 Maret 2007

Dinilai 9 Maret 2007

Disetujui 5 April 2007

jrp070301