

Karakteristik termofisika komposit nonwoven SiOC dengan penambahan serbuk SiC

Jan Setiawan, Pranjono, Sigit, Futichah, Ratih Langenati, Ridwan

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-BATAN,
Kawasan Puspiptek-Serpong, Tangerang Selatan 15314, Banten, Indonesia
e-mail : jansetiawan@batan.go.id
(Naskah diterima 05-01-2015 disetujui 26-01-2015)

Abstract

Themophysical properties of SiOC nonwoven composite with addition of SiC powder. Manufactured of polycarbosilane (PCS) based SiOC nonwoven composite by polymer infiltration process(PIP) has been done. Nonwoven fiber as a filler was made by solute 1,2 g/mL PCS in toluene/N,N-Dimethylformamide (DMF) with ratio 30/70. Solution of PCS was processed by electrospinning that varied its processing voltage at 10 kV, 12 kV and 14 kV. Matrix solution's was made by solute 1,2 g/mL PCS in toluene and the composite was done by PIP technique. Composites were varied by addition second phase SiC powder with additions of volume fraction ranged at 13 – 21%. Characterizations of composites was done such as density measurements, morphology observations, heat capacity measurements and thermal conductivity measurements. The results, showed the value of density measurements were lower than theoretical density of SiC where the highest value at 1,33 g/cm³ was achieved by composite with added by SiC powder and the highest value of open porosity at 39,22%. The cross sections morphology of composites show the different surface contour level and showed different phases by different greytone gradations. The brightest colour showed the phases that dominated by silicon element. The darken colours showed the phases that dominated by carbon element and porosity showed by black colour. The value of composites heat capacity trends showed similarity to the SiC crystal heat capacities., but there were phonons excitation that showed existence the amorphous phases and porosity in the composites. The value of heat capacity of composites ranged at 400 – 1300 J/kg.K for measurement temperature ranged at 300 – 700 K. The value of thermal conductivity of composites without addition of SiC powder ranged at 4 – 6 W/m.K, and ranged at 8 – 14 W/m.K for the composites with addition of SiC powder.

Keywords : composites, nonwoven, PIP, thermophysics

Abstrak

Karakteristik termofisika komposit nonwoven SiOC dengan penambahan serbuk SiC. Telah dilakukan pembuatan komposit nonwoven SiOC dengan teknik pirolisis infiltrasi polimer berbasis *polycarbosilane* (PCS). Pembuatan komposit diawali dengan pembuatan serat nonwoven sebagai bahan pengisi yang menggunakan 1,2 g/mL PCS yang dilarutkan dengan toluena/N,N-Dimethylformamide (DMF) dengan rasio 30/70. Serat nonwoven dibuat dengan teknik pemintalan listrik yang tegangan prosesnya divariasikan pada 10 kV, 12 kV dan 14 kV. Pembuatan komposit dilakukan dengan teknik pirolisis infiltrasi polimer, dimana larutan matriks dibuat dari 1,2 g/mL PCS yang dilarutkan dalam toluena. Komposit divariasikan dengan menambahkan fasa kedua berupa serbuk SiC dengan fraksi volume penambahan berkisar antara 13 – 21%. Karakterisasi yang dilakukan pada komposit antara lain: pengukuran densitas, pengamatan morfologi, pengukuran kapasitas panas dan pengukuran konduktivitas panas. Hasil yang diperoleh, pengukuran densitas komposit menunjukkan nilai yang lebih rendah dari densitas teoritis SiC, nilai tertinggi densitas komposit dengan penambahan serbuk SiC sebesar 1,33 g/cm³ dengan porositas terbuka tertinggi mencapai 39,22%. Morfologi penampang lintang komposit menggambarkan kontur permukaan dengan ketinggian yang berbeda dan menunjukkan fasa berbeda yang ditunjukkan gradasi warna abu-abu yang berbeda. Gradasi warna abu terang menunjukkan fasa yang didominasi unsur silikon dan gradasi warna abu gelap menunjukkan fasa yang didominasi unsur karbon dan porositas ditunjukkan dengan warna hitam. Kapasitas panas komposit memiliki trend seperti kapasitas panas kristal SiC, namun menunjukkan adanya eksitasi fonon yang menunjukkan kemungkinan fasa amorf atau adanya porositas pada komposit. Pada rentang temperatur 300 – 700 K nilai kapasitas panas berkisar antara 400 hingga 1300 J/Kg.K. Konduktivitas panas komposit berkisar antara 4 hingga 6 W/m.K untuk komposit tanpa serbuk SiC dan berkisar antara 8 hingga 14 W/m.K untuk komposit yang ditambahkan dengan serbuk SiC.

Kata Kunci : komposit, nonwoven, PIP, termofisika

1. Pendahuluan

Silikon karbida (SiC) merupakan keramik dengan ikatan kovakan Si-C yang memiliki karakteristik tahan korosi, memiliki kekuatan, kekerasan dan konduktivitas panas yang tinggi serta ketahanan kejut termal yang baik sehingga berpotensi untuk digunakan sebagai bahan struktur di industri nuklir^[1]. Dalam pembuatan bahan bakar nuklir untuk reaktor berpendingin gas, sistem pelapisan *tristructural isotropic* (TRISO) kernel sebagai salah satu teknik yang umum digunakan. Senyawa SiC merupakan salah satu bahan pelapis yang digunakan sebagai struktur penopang untuk menahan tekanan dan tegangan tinggi di dalam kernel selama

iradiasi yang dapat menyebabkan perubahan dimensi^[2]. Masalah yang sangat penting dalam pembangkitan listrik dengan tenaga nuklir adalah mengenai keselamatan dan manajemen pembangkitan tenaga listrik^[3]. Bahan keramik seperti SiC dan zirkonium karbida (ZrC) merupakan bahan yang berpotensi untuk digunakan sebagai bahan kelongsong. Untuk mengatasi masalah *brittle* pada SiC monolit pembentukan kelongsong berupa komposit akan memberikan kekuatan dan fleksibilitas untuk struktur SiC^[3].

SiC monolit memiliki ketahanan iradiasi yang baik^[4-5]. Saat ini pengembangan komposit yang diperkuat serat SiC telah dilakukan untuk mengatasi masalah *brittle* pada SiC monolit. Pembuatan serat SiC yang terkini untuk memperoleh serat dalam ukuran mikro atau nano menggunakan metode pemintalan listrik^[6]. Teknik pemintalan listrik telah digunakan untuk membuat serat nano menggunakan berbagai bahan seperti polimer, komposit dan keramik^[6]. Keramik nanofiber dibuat dari pemintalan listrik larutan sol-gel dan dipirolisis pada temperatur tertentu. Studi pembuatan serat SiC dari *polycarbosilane* (PCS) menggunakan metoda pemintalan listrik telah dilakukan^[6-8]. Temperatur pirolisis yang telah dilakukan pada rentang temperatur 1000 °C – 1400 °C^[6-8]. Dari studi sebelumnya serat yang dipirolisis pada temperatur 1000°C menunjukkan karakteristik amorf dan pada serat terdapat kandungan oksigen^[7-8]. Pembuatan komposit dapat dilakukan dengan berbagai teknik seperti *forced chemical vapour infiltration* (F-CVI), *reaction sintering* (RS), *liquid phase sintering* (LPS) dan *polymer impregnation and pyrolysis* (PIP)^[9]. Pembuatan komposit dengan teknik pirolisis infiltrasi polimer (PIP) telah dilakukan^[8-10]. Studi pembuatan komposit yang telah dilakukan dengan metode PIP menunjukkan permasalahan rendahnya densitas komposit

yang diperoleh. Teknik yang disarankan adalah melakukan siklus pirolisis beberapa kali^[9-10].

Dalam penelitian ini dilakukan pembuatan serat *nonwoven* SiC hasil pemintalan listrik yang digunakan sebagai bahan pengisi komposit dengan matriks dari PCS. Teknik pembuatan komposit yang digunakan adalah PIP. Penambahan serbuk SiC sebagai bahan pengisi kedua dengan bertujuan untuk meningkatkan densitas komposit yang terbentuk. Dari komposit yang terbentuk dilakukan pengukuran densitas, pengamatan morfologi, pengukuran kapasitas panas dan pengukuran konduktivitas panas.

2. Metodologi

Bahan yang digunakan adalah *polycarbosilane* (PCS), toluene N,N-Dimethylformamide (DMF) dan serbuk SiC. Serat *nonwoven* SiOC dibuat dengan teknik pemintalan listrik dari larutan antara PCS, toluena dan DMF. Konsentrasi PCS sebesar 1,2 g/mL dilarutkan dalam campuran toluena/DMF yang rasionya 30/70 v/v. Pengadukan PCS dalam campuran toluena/DMF dilakukan selama 36 jam dengan laju putaran lambat. Pembuatan serat *nonwoven* dilakukan dengan mengumpankan larutan ke peralatan pemintal listrik dengan parameter laju umpan larutan sebesar 3 mL/jam.

Tegangan pemintalan di variasikan dari 10 kV, 12 kV dan 14 kV dengan jarak antara ujung jarum ke pelat kolektor sejauh 12 cm. Serat hasil pemintalan listrik dilanjutkan dengan proses pemanasan *curing* pada temperatur 200 °C (laju pemanasan 2°C/min) selama 1 jam dalam suasana udara, yang kemudian dilanjutkan dengan pemanasan pirolisis pada temperatur 1000 °C (laju pemanasan 2°C/min) selama 1 jam dalam suasana inert (gas Ar). Pembuatan komposit *nonwoven* SiOC digunakan teknik pirolisis infiltrasi polimer (*polymer infiltration process* – PIP), dimana larutan matriks dibuat dari larutan PCS 1,2 g/mL dalam toluena yang

diaduk dengan laju putaran lambat selama 8 jam. Pembuatan komposit menggunakan serat *nonwoven* yang telah dibuat dan divariasikan dengan menambahkan bahan pengisi kedua berupa serbuk SiC dengan distribusi partikel rerata sebesar $\pm 0,5 \mu\text{m}$ yang penambahan fraksi volumenya sebesar 13 – 21 %. Pemanasan komposit dilakukan dengan proses *curing* pada temperatur 200 °C (laju pemanasan 2°C/min) selama 1 jam dalam suasana udara, yang kemudian dilanjutkan dengan pemanasan pirolisis pada temperatur 1000 °C (laju pemanasan 2°C/min) selama 1 jam dalam suasana inert (gas Ar). Penamaan komposit disajikan pada Tabel 1.

Tabel 1. Pengkodean sampel komposit

Kode		Kode		Kode	
10N	Serat <i>nonwoven</i> 10kV tanpa serbuk SiC	12N	Serat <i>nonwoven</i> 12 kV tanpa serbuk SiC	14N	Serat <i>nonwoven</i> 14 kV tanpa serbuk SiC
10SiC	Serat <i>nonwoven</i> 10kV dengan serbuk SiC	12SiC	Serat <i>nonwoven</i> 12 kV dengan serbuk SiC	14SiC	Serat <i>nonwoven</i> 14 kV dengan serbuk SiC

Pengukuran densitas komposit dilakukan mengikuti ASTM C373 yaitu menggunakan teknik Archimedes. Pengamatan morfologi komposit dilakukan menggunakan SEM Hitachi SU3500 yang dilengkapi dengan EDS dengan tegangan 20 kV. Pengukuran kapasitas panas komposit dilakukan menggunakan *differential scanning calorimeter* (DSC) SETARAM-92 dilakukan pada rentang temperatur 300 hingga 700 K dan pengukuran

konduktivitas panas melalui ketebalan komposit sesuai dengan metode pengukuran yang dilakukan pada temperatur 373K^[8].

3. Hasil dan Pembahasan

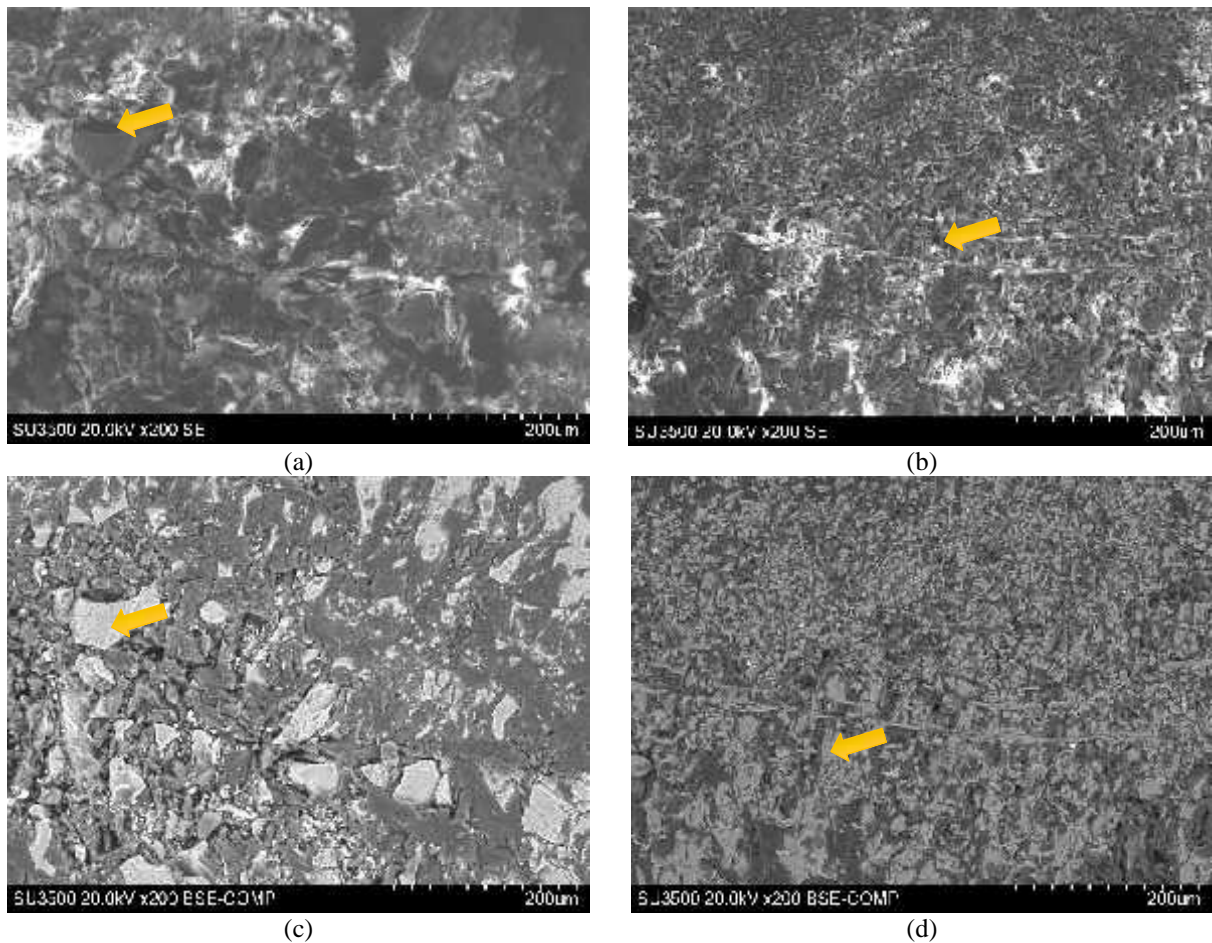
Proses pembuatan komposit dengan teknik pirolisis infiltrasi polimer diperoleh komposit dengan densitas yang disajikan pada Tabel 2.

Tabel 2. Densitas komposit

Komposit	Densitas (g/cm ³)	Porositas terbuka (%)	%TD
10N	1,18	38,31	36,76
10SiC	1,19	39,22	37,09
12N	1,23	33,41	38,32
12SiC	1,29	36,29	40,50
14N	1,24	33,60	38,63
14SiC	1,33	36,38	41,74

Pada Tabel 2 terlihat bahwa nilai densitas komposit lebih rendah dari nilai densitas teoritis SiC, dan densitas komposit yang diperoleh berada kurang dari 50% nilai densitas teoritis sesuai dengan karakteristik SiC hasil proses sinter^[1]. Dari pengukuran densitas menggunakan teknik Archimedes dengan ASTM C373 dapat diketahui porositas terbuka dari sampel. Nilai yang diperoleh untuk komposit tersebut menunjukkan bahwa porositas terbuka relatif tinggi dan memiliki kecenderungan penambahan serbuk SiC sebagai bahan pengisi kedua meningkatkan nilai densitas dan porositas terbuka. Dalam hal ini, distribusi dan *percolation* serat *nonwoven* maupun serbuk SiC memberikan kontribusi terhadap nilai densitas dan porositas terbuka.

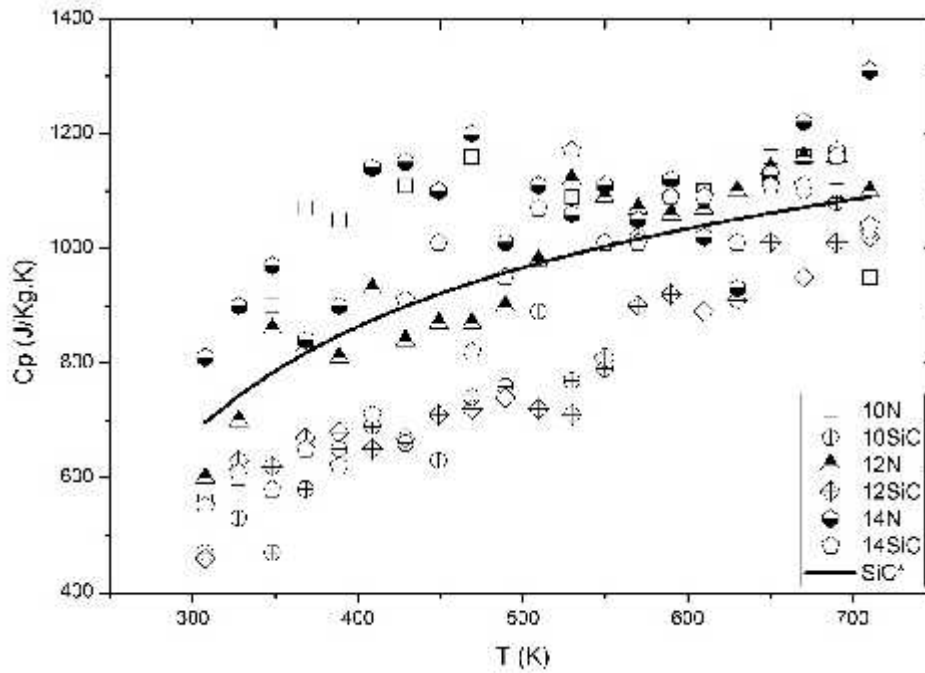
Pada Gambar 1 yang ditampilkan dibawah, terlihat citra SEM *secondary electron* pada (a) dan (b) mengalami *charging* pada permukaannya. Kontur pada permukaan kedua sampel terlihat tidak rata yang menunjukkan ada kemungkinan bagian yang lebih rendah dapat berasal dari porositas seperti yang ditunjukkan oleh tanda panah atau partikel yang bersifat rapuh dan patah saat proses amplas dan poles, sedangkan bagian yang lebih tinggi dimungkinkan berasal dari partikel yang kontinu. Citra SEM *backscattered electron* pada (c) dan (d) terlihat sebaran fasa yang relatif lebih merata pada komposit dengan penambahan serbuk SiC (Gambar 1.d) dibandingkan pada komposit tanpa penambahan serbuk SiC (Gambar 1.c).



Gambar 1. Citra SEM *secondary electron* penampang lintang komposit (a) 12N dan (b) 12SiC, dan *backscattered electron* penampang lintang komposit (c) 12N dan (d) 12SiC.

Warna abu terang yang ditunjukkan panah merupakan fasa yang didominasi oleh unsur silikon, sedangkan warna abu gelap lebih cenderung didominasi oleh unsur karbon. Sebaran unsur silikon pada komposit yang ditambahkan dengan serbuk SiC terlihat lebih rapat dan tersebar relatif homogen di dalam sampel. Porositas pada komposit tanpa penambahan serbuk SiC terlihat relatif lebih besar namun jumlahnya relatif lebih sedikit dibandingkan dengan komposit yang ditambahkan dengan serbuk SiC. Dengan demikian, penambahan serbuk SiC

memberikan pengaruh yang besar terhadap meningkatnya densitas komposit. Serbuk SiC terdistribusi merata dan akibat *percolation* serbuk SiC di dalam komposit, dimungkinkan terjadi koneksi antar pori yang tinggi sehingga dari pengukuran densitas dengan teknik Archimedes diperoleh nilai porositas terbuka yang tinggi dimana terjadi koneksi antar pori yang berada dekat dengan permukaan komposit. Pengukuran nilai kapasitas panas komposit yang dilakukan pada rentang temperatur 300 - 700 K disajikan pada Gambar 2.



Gambar 2 Nilai kapasitas panas komposit *nonwoven* SiOC^[8]

Pada Gambar 2 disajikan kurva kapasitas panas komposit beserta dengan kurva kapasitas panas dari kristal SiC^[1] yang diberikan oleh kurva pendekatan dari Persamaan 1 yang baik didekati pada rentang temperatur 200 – 2400 K^[2]. Terlihat nilai kapasitas panas komposit berada disekitar nilai kapasitas panas kristal SiC. Pada rentang temperatur ini, SiC memiliki karakteristik kapasitas panas yang meningkat relatif lambat seiring meningkatnya temperatur.

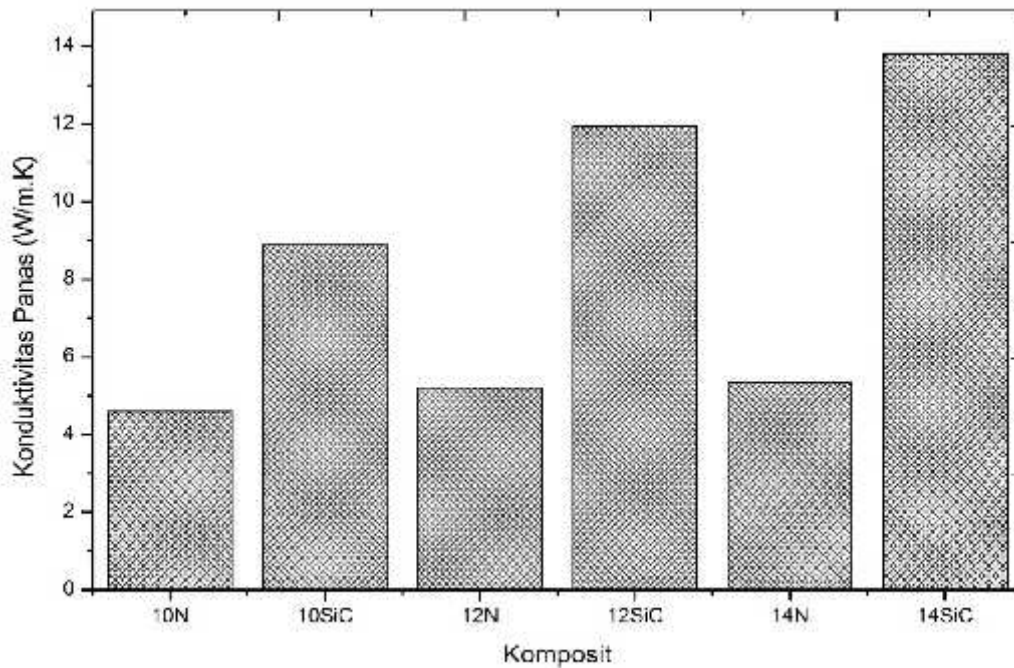
$$C_p = 925,65 + 0,3772T - 7,9259 \times 10^{-5}T^2 - \frac{3,1946 \times 10^7}{T^2} \quad (1)$$

Keterangan:

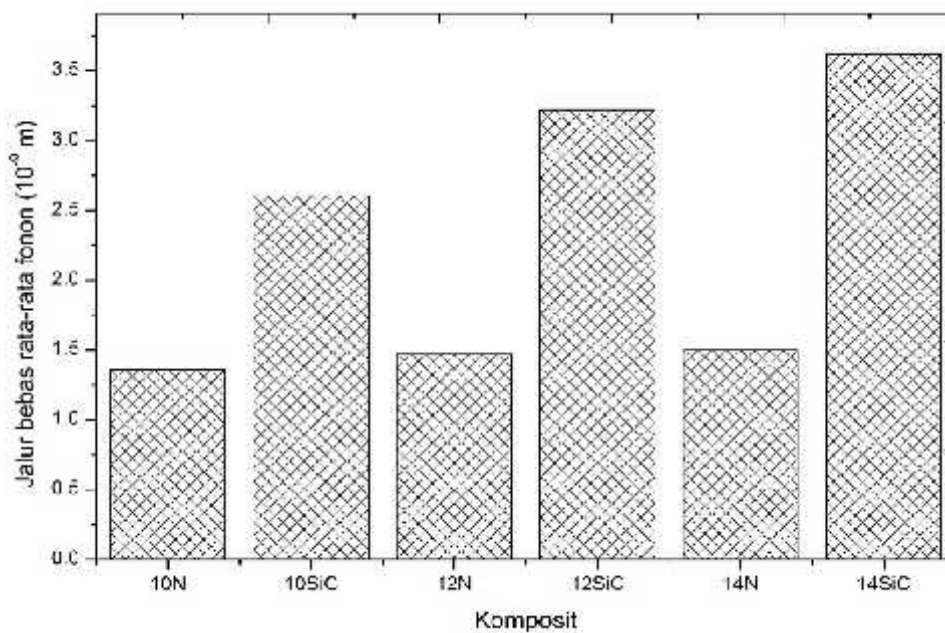
C_p : kapasitas panas (J/Kg.K)

T : temperatur (K)

Temperatur Debye dari SiC berada pada rentang 860 – 1200 K^[2] dan secara umum kontribusi konduksi panas elektronik relatif rendah untuk SiC yang memiliki ikatan kovalen dan dapat diabaikan. Adapun nilai kapasitas panas yang lebih tinggi dari nilai kapasitas panas untuk SiC dimungkinkan terjadi dikarenakan karakteristik amorf serat ataupun matriks komposit dan adanya porositas pada komposit^[8]. Pada Gambar 3 disajikan hasil pengukuran konduktivitas panas komposit pada temperatur 373 K.



Gambar 3. Konduktivitas panas komposit pada temperatur 373 K.



Gambar 4. Jalur bebas rata-rata fonon komposit pada temperatur 373 K.

Nilai jalur bebas rata-rata fonon komposit yang disajikan pada Gambar 4 lebih rendah dibandingkan dari nilai teoritisnya. Jalur bebas rata-rata fonon komposit ini menunjukkan perpindahan panas komposit yang terjadi pada konduksi kisi, dimana panas akan terhambur oleh adanya cacat dan porositas.

Perlu diketahui bahwa pada bahan padat yang bebas dari cacat, bahwa jalur bebas rata-rata fononnya akan menurun seiring dengan meningkatnya temperatur yang disebabkan adanya peningkatan eksitasi fonon sehingga meningkatkan jumlah tumbukan diantara fonon^[1].

4. Kesimpulan

Telah dibuat komposit SiOC berbasis *polycarbosilane* dengan bahan pengisi serat *nonwoven* SiOC dan dilakukan penambahan serbuk SiC sebagai bahan pengisi kedua dengan teknik pirolisis infiltrasi polimer. Komposit yang terbentuk memiliki densitas yang lebih rendah dari densitas teoritis dengan porositas terbuka mencapai 40%. Morfologi komposit yang ditunjukkan oleh citra SEM terlihat adanya butiran yang didominasi unsur silikon, karbon dan porositas. Kapasitas panas komposit meningkat seiring dengan meningkatnya temperatur pengukuran dan menunjukkan bahwa karakter bahan amorf. Konduktivitas panas komposit meningkat seiring dengan penggunaan serat yang diproses dengan tegangan pemintalan yang lebih tinggi. Penambahan serbuk SiC sebagai bahan pengisi kedua mampu meningkatkan

densitas dan konduktivitas panas komposit. Karakteristik amorf pada komposit ditunjukkan oleh rendahnya jalur bebas rata-rata fonon.

5. Ucapan Terima Kasih

Penulis mengucapkan terima kasih atas bantuan Sutri Indaryati dan Yanlinastuti dalam pengukuran kapasitas panas di pusat teknologi bahan bakar nuklir – BATAN, serta bimbingan oleh Dr. Suhardjo Poertadji dari Universitas Indonesia.

6. Daftar Pustaka

1. Byung-Koog Jang & Yoshio Sakka. (2007). Thermophysical properties of porous SiC ceramics fabricated by pressureless sintering. *Science and Technology of Advanced Materials* 8.
2. Snead, L. L., Takashi N., Yutai, K., Thak-Sang Byun, Sosuke, K., & David, A. P. (2007). Handbook of SiC properties for fuel performance modelling. *Journal of Nuclear Materials*.
3. Azevedo, C.R.F. (2011). Selectin of fuel cladding material for nuclear fission reactors. *Engineering Failure Analysis*, 18.

4. Deck, C.P., H.E. Khalifa, B. Sammuli, T., Hilsabeck, & C.A., Back. (2012). Fabrication of SiC-SiC composites for fuel cladding in advanced reactor designs. *Progress in Nuclear Energy* 57.
5. Ken Yueh, & Kurt A.T. (2014). Silicon carbide composite for light water reactor fuel assembly applications. *Journal of Nuclear Materials* 448.
6. Dong-Geun Shin, Doh-Hyung Rin, & Hyoun-Ee Kim. (2008). Web-type silicon carbide fibers prepared by the electrospinning of polycarbosilanes. *Journal of Ceramic Processing Research* 9(2).
7. Setiawan, J., S. Fatimah, S.poertadji, Sigit,& U., Sudjadi. (2014) Characterization of electrospinning polycarbosilane fiber with the concentration of N,N-Dimethylformamide 22%, 24%, 26%, 28% and 30%. *Applied Mechanics and Materials*, 621.
8. Setiawan, J., Sigit, Pranjono, Slamet P., Ratih, L., Ridwan, & S. Poertadji. (2015). Study on nonwoven composites from polycarbosilane with addition of SiC powder. *International Journal of Basic & Applied Sciences* 15 (2).
9. Dong-Geun Shin .(2014). Fabrication of dense carbon fiber reinforced SiC composites by controlling the rheology of polycarbosilane solution. *Asian Journal of Chemistry* 26 (5).
10. Lee, S.G., J. Fourcade, R. Latta, &A.A. Solomon, (2008). Polymer impregnation and pyrolysis process development for improving thermal conductivity of SiCp/SiC-PIP matrix fabrication. *Fusion Engineering and Design* 83.
11. Bamford, M., Marcio, F., Gerard, L., V., Jean-Cristophe, B., Carlos, A.A.C.,& L., Maille. (2009) Global and local characterization of the thermal diffusivity of SiC_f/SiC composites with infrared thermography and flash method, *Composites Science and Technology* 69.
12. Xiuwen, W., Hongwen, M., Xiaochao, C., Zhanngbing, L., & Jie, Li. (2013). Thermal conductivity and microstructure properties of porous SiC ceramic derived from silicon carbide powder. *New Journal of Glass and Ceramics*, 3.
13. Setiawan, J., (2015), Sintesis Komposit Matriks Keramik Silikon Karbida Berbasis *polycarbosilane* dan Karakteristik Panasnya Sebagai Bahan Penukar Kalor, Disertasi.