

Modeling pelapisan *buffer* pada partikel terlapis perbandingan dengan hasil laboratoris pelapisan *buffer*

Sukarsono, Ariyani K. Dewi

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-BATAN,
Kawasan Puspipstek-Serpong, Tangerang Selatan 15314, Banten, Indonesia
e-mail : skarsono@batan.go.id
(Naskah diterima 01-06-2015 disetujui 08-07-2015)

Abstract

Buffer coating modeling on coating particles comparison with buffer coating laboratory result. A comparison between modeling results with some data buffer coating using either modeling or laboratory data has been performed. Modeling results obtained by assumptions simplifying the process of acetylene into mono cyclic aromatic C₆, continues to poly cyclic compound C₁₀ and of change the deposition of these compounds become pyrocarbon. Modeling is done by preparing the differential equations representing the process occurring in the fluidized reactor, and then solved the equations by using Matlab. Required data to solve the equations obtained from literatures. With the simulation method it was obtained coating speed 1.05 $\mu\text{m}/\text{min}$. The value is almost the same as research data obtained in the laboratory coating buffer with 30% acetylene diluted by argon at the temperature of 1300 °C that obtained coating speed of 1 $\mu\text{m} / \text{min}$. Another mentioned literature data buffer coating had a speed of 15-25 $\mu\text{m}/\text{min}$ at 1300-1450°C operation and the result of coating modeling was 45 $\mu\text{m}/\text{min}$. It can be concluded that the difference in modeling and experiment results due to difference in operating conditions or the use of modeling assumptions that have not represented the real system.

Keywords : *buffer coating modeling, coated partikel, HTR fuel, acetylene*

Abstrak

Modeling pelapisan *buffer* pada partikel terlapis perbandingan dengan hasil laboratoris pelapisan *buffer*. Telah dilakukan perbandingan hasil modeling pelapisan *buffer* dengan beberapa data pelapisan baik menggunakan modeling maupun data laboratorium. Hasil modeling diperoleh menggunakan asumsi penyederhanaan proses perubahan asetilen menjadi mono siklis aromatik dengan C₆, diteruskan poli siklik C_{≥10} dan deposisi senyawa-senyawa tersebut menjadi pirokarbon. Modeling dilakukan dengan menyusun persamaan diferensial mewakili proses yang terjadi dalam reaktor fluidisasi, kemudian menyelesaikan persamaan diferensial tersebut menggunakan Matlab. Data-data untuk menyelesaikan persamaan diperoleh dari pustaka. Hasil simulasi kecepatan pelapisan *buffer* diperoleh 1,05 μm/menit. Harga ini hampir sama dengan data penelitian yang diperoleh di laboratorium pelapisan *buffer* dengan pereaksi asetilen 30% dibawa oleh gas argon, pada suhu 1300°C diperoleh kecepatan pelapisan 1 μm/menit. Data pustaka lain menyebutkan pelapisan *buffer* pada suhu 1300-1450°C menyebutkan kecepatan pelapisan 15-25 μm/menit dan hasil modeling yang lain adalah 45 μm/menit. Dapat disimpulkan bahwa perbedaan nilai hasil modeling dan hasil pelapisan dapat disebabkan karena kondisi operasi yang berbeda maupun penggunaan asumsi penyusunan model yang masih jauh dari sistem nyata.

Kata kunci : modeling pelapisan *buffer*, partikel terlapis, bahan bakar RST, asetilen

1. Pendahuluan

Reaktor Suhu Tinggi (RST) atau Reaktor Suhu Sangat Tinggi (RSST) merupakan salah satu jenis reaktor yang mempunyai prospek bagus untuk dibangun di Indonesia. Reaktor tersebut disamping dapat menghasilkan listrik juga menghasilkan panas yang dapat dipakai untuk proses suhu tinggi seperti penyulingan air laut dan gasifikasi batu bara. Reaktor jenis RST dan RSTT juga merupakan reaktor yang aman, karena tidak akan terjadi pelelehan bahan bakar pada keadaan kecelakaan sekalipun^[1,2]. Reaktor ini bisa dibuat dalam bentuk reaktor modul, sehingga jumlah modul reaktor yang dibangun dapat menyesuaikan kebutuhan listrik ditempat reaktor dibangun. Reaktor suhu tinggi cocok untuk Indonesia yang wilayahnya terdiri dari pulau-pulau. Mengacu pada jenis RST yang telah dikembangkan, ada dua jenis yaitu reaktor

dengan jenis core berupa blok prisma yang dikembangkan di Inggris (*Dragon reactor, 21,5 MWt* dan *OECD Project*), di Amerika (*Peach Bottom 115MWt* dan *Fort St Vrain, 842 MWt*). Jenis kedua yaitu dengan bahan bakar bentuk bola (*pabble bed reactor*) yang dikembangkan di Jerman (*AVR, 46 MWt*), yang diikuti dengan THTR 300 yang menggunakan thorium, meskipun reaktor tersebut mendapatkan beberapa kesulitan^[1]. Di Jerman juga sudah dirancang PNP 500, 500MWt yang direncanakan menggunakan panas reaktor untuk produksi H₂ melalui sistem *methane reforming*. Selanjutnya banyak prototipe reaktor suhu tinggi yang dikembangkan seperti *200 MWth HTR Module* oleh Interatom Jerman yang menjadi dasar desain reaktor *HTR 10* dan *HRT-PM* di China.

Rusia dan *US enterprises*, *Tramatone* Perancis dan Fuji Elektrik Jepang juga mengembangkan GT-MTR 600MWth, yang menjadi konsep dibuatnya HTR300 oleh JAEA. Proyek baru di Afrika Selatan yaitu *Pebble Bed Modular Reactor* (PBMR) disain 400 MWt sudah mulai dibangun, tetapi tidak dilanjutkan oleh pemerintah Afrika Selatan^[1]. Dengan kesuksesan dari beberapa reaktor suhu tinggi tersebut dilakukan pengembangan *very high temperature reactor* (VHTR) di beberapa negara yang akan dapat digunakan untuk mengganti proses yang menggunakan uap air pada suhu tinggi^[1,2]. Indonesia sedang mempersiapkan reaktor daya yang pertama yaitu Reaktor Daya Eksperimental (RDE). Reaktor yang direncanakan di bangun di kawasan Serpong tersebut mempunyai kapasitas 10 MWt dan jenisnya adalah HTGR (*High Temperature Gas Reactor*) atau Reaktor Suhu Tinggi. Reaktor ini sudah mulai ditenderkan dan diharapkan dapat beroperasi tahun 2020^[3]. Reaktor RDE setelah 3 tahun beroperasi, pada tahun 2023 bahan bakar RDE harus sudah dapat dibuat sendiri. Reaktor HTR 10 China mempunyai daya sama dengan RDE yaitu 10 MWt, memerlukan sekitar 8.000 elemen bahan bakar bentuk bola per tahun^[4]. Karena itu RDE kalau diasumsikan sama dengan HTR 10, juga memerlukan 8.000 elemen bentuk bola per tahun yang ekuivalen dengan 96 juta partikel terlapis setiap elemen bentuk bola atau membutuhkan 12.000

partikel terlapis per tahun. Jumlah tersebut memerlukan uranium sekitar 22,2 kg per tahun. Kebutuhan elemen bahan bakar HTR 10 dipenuhi oleh *Institute of Nuclear and New Energy* (INET) Tsinghua University yang mengoperasikan *Total Gelation Process of Uranium* (TGU) untuk membuat kernel UO_2 kapasitas 500 g U/*batch* ^[4,5].

Pembuatan bahan bakar RST bentuk bola melibatkan banyak proses mulai dari pemurnian uranium dengan cara ekstraksi sampai sintering kernel UO_2 , pelapisan kernel UO_2 tersinter dan kompaksi partikel terlapis menjadi bahan bakar nuklir. Pemurnian uranium dilakukan dengan ekstraksi uranil nitrat hasil pelarutan konsentrat uranium menggunakan proses ekstraksi. Hasil larutan uranium murni kemudian digunakan untuk membuat larutan sol. Untuk pembuatan sol uranil nitrat harus berkualifikasi ADUN (*Acid Deficient Uranil Nitrate*). Salah satu cara untuk membuat larutan ADUN yaitu pelarutan UO_3 atau U_3O_8 dengan asam nitrat, kemudian larutan UNH yang terjadi direaksikan dengan NH_4OH sampai mencapai pH sedikit sebelum terjadi pengendapan. Larutan ADUN tersebut ditambahkan aditif larutan PVA dan THFA dan diaduk sampai homogen menjadi larutan sol. Larutan sol (*broth solution*) kemudian dilakukan proses gelasi menjadi gel ADU dengan penetesan pada medium gelasi ammonium hidroksida.

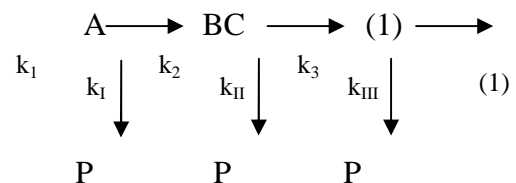
Untuk menghilangkan air dan ammonium nitrat yang terdapat di dalam gel dilakukan dengan cara pencucian dengan larutan isopropil alkohol [4,5,6]. Gel ADU kemudian dilakukan proses pengeringan, kalsinasi, reduksi dan sintering menjadi partikel UO_2 tersinter diameter 0,5 mm. Partikel UO_2 tersinter tersebut digunakan sebagai bahan untuk proses pelapisan menjadi partikel terlapis [4,6].

Proses pelapisan merupakan salah satu proses yang penting dalam pembuatan partikel terlapis yang digunakan dalam pembuatan reaktor suhu tinggi. Partikel UO_2 tersinter digunakan sebagai bahan yang akan dilapis. Proses pelapisan menjadi partikel terlapis, dilakukan menggunakan alat pelapisan partikel dengan mereaksikan partikel UO_2 tersinter dengan gas pereaksi hidrokarbon yaitu asetilen, propilen atau hidrogen metil tri kloro silan tergantung lapisan yang akan dibentuk. Proses pelapisan dilakukan dalam reaktor fluidisasi (*fluidized bed reactor*) menggunakan metode *chemical vapour desposition* (FBCVD). Pelapisan kernel tersinter dilakukan secara bertahap yaitu pelapisan *buffer*, *inner pyrocarbon* (IPyC), *silica carbide* (SiC) dan *outer pyrocarbon* (OPyC). Parameter pelapisan cukup kompleks yaitu mulai dari pengendalian gas pereaksi sekaligus media fluidanya, sampai dengan distribusi suhu dalam sistem, distribusi suhu dalam partikel dan ratio partikel dengan gas

fluidanya. Proses pelapisan menghasilkan kernel terlapis TRISO (*tri structural isotropic*), yaitu kernel yang sudah dilapis *buffer* dan 3 lapisan isotropik yang terdiri dari lapisan pirokarbon bagian dalam, silica karbida atau zirconium karbida dan pirokarbon bagian luar [1,6].

Pelapisan lapisan pertama *buffer* dilakukan dengan mengalirkan asetilen yang diencerkan dengan argon dimasukkan ke dalam reaktor fluidisasi dan memfluidisasi kernel tersinter. Dalam reaktor terjadi dekomposisi asetilen menjadi senyawa-senyawa hidrokarbon lain dan terdeposisi sebagai pirokarbon yang menempel pada permukaan partikel.

Menurut Zhang [7] reaksi dekomposisi dan deposisi yang terjadi dalam proses CVD apabila menggunakan metana sebagai pereaksi dapat disederhanakan menjadi:



Huruf A menyatakan metana, B adalah hidrokarbon dengan C_2 sedangkan C dan D adalah hidrokarbon mono siklik aromatis dengan C_6 dan poli siklik aromatis dengan C 10. Masing-masing nilai konstanta kecepatan reaksi (k) di atas menurut Zhang [7] nilainya seperti dalam Tabel 1.

Tabel 1. Konstanta Kecepatan reaksi (dt^{-1}) pada $1100^{\circ}C$ sesuai persamaan 1^[7].

Reaksi fase gas		Nilai k_1	Nilai k_2	Nilai k_3
		0,4 ^a	5	5 ^a
Reaksi permukaan		Nilai k_I	Nilai k_{II}	Nilai k_{III}
1.	$[A/V] = 1 \text{ mm}^{-1}$ ^b	0,04	0,09	0,14
2.	$[A/V] = 4 \text{ mm}^{-1}$ ^c	0,08	0,19	0,3
3.	$[A/V] = 40 \text{ mm}^{-1}$ ^d	0,71	1,69	2,67
4.	$[A/V] = 400 \text{ mm}^{-1}$ ^e	7,11	16,9	26,7

^a Diperoleh dari CVD

^b Dianggap ruang diluar kapiler

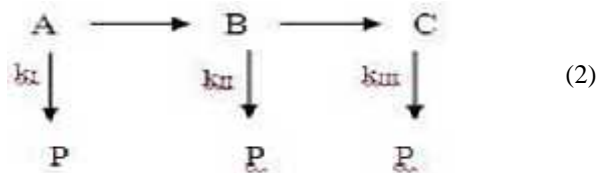
^c Berhubungan dengan kapiler 1 mm

^d Berhubungan dengan kapiler 0,1 mm

^e Berhubungan dengan kapiler 0,01 mm

Gas asetilen terdekomposisi menjadi senyawa hidrokarbon yang banyak sekali dan melibatkan mekanisme reaksi yang banyak pula. Menurut Li^[9] dekomposisi dan deposisi hidrokarbon bisa melibatkan 827 reaksi dan

227 senyawa. Dengan logika yang sama dengan persamaan 1^[7], kalau sebagai pereaksi adalah asetilen maka persamaan 1 dapat diubah menjadi persamaan 3.



Tabel 2. Konstanta Kecepatan reaksi (dt^{-1}) pada $1100^{\circ}C$ sesuai persamaan 2

Reaksi fase gas		Nilai k_1	Nilai k_2	
		5	5 ^a	
Reaksi permukaan		Nilai k_I	Nilai k_{II}	Nilai k_{III}
1.	$[A/V] = 1 \text{ mm}^{-1}$ ^b	0,04	0,09	0,14

^a Diperoleh dari CVD

Dengan A menyatakan hidrokarbon C_2 , B dan C adalah hidrokarbon mono siklik aromatis dengan C_6 dan poli siklik aromatis dengan C 10.

Harga konstanta kecepatan reaksi kimia dapat ditulis seperti dalam Tabel 2^[7].

Penyederhanaan reaksi dekomposisi dan deposisi yang terjadi pada proses CVD dengan pereaksi asetilen tersebut dapat dimodelingkan dengan persamaan differensial orde 1 dan nilai-nilai koefisien reaksi dapat menggunakan data dari Zhan pada Tabel 2.

Sukarsono ^[8] telah melakukan modeling dengan menggunakan data-data yang ada dalam pustaka dari Li ^[9]. Persamaan yang digunakan untuk perhitungan ini dasarnya adalah dekomposisi dan deposisi yang dapat dilihat dalam persamaan 2. Menggunakan persamaan 2 dan data-data dari tetapan koefisien kecepatan reaksi k_1, k_2, k_3, k_4, k_5 dan reaksi deposisi C_2H_2 dan C_6H_6 , yang diperoleh dari pustaka ^[9], setelah dilakukan perhitungan modeling diperoleh hasil hitungan pelapisan *buffer* sbb: Untuk mendapatkan lapisan tebal 90 μm diperlukan waktu 2 menit atau kecepatan pelapisan adalah sekitar 45 μm /menit.

Data pelapisan partikel terlapis menurut Kania ^[10], dapat dilihat dalam Tabel 3. Data tersebut meliputi jenis pereaksi, suhu deposisi, reaksi pelapisan yang terjadi dan waktu deposisi lapisan untuk lapisan *buffer*, iPyC, SiC, dan OPyC. Dalam Tabel 3 terlihat bahwa untuk pelapisan *buffer* dengan pereaksi asetilen, kecepatan deposisi nya adalah 15-25 μm /menit, sehingga untuk mendapatkan ketebalan *buffer* 90 μm diperlukan 3,6-6 menit.

2. Metodologi

Proses pelapisan pada reaktor fluidisasi dimodelkan dengan membuat neraca massa pada reaktor pada elemen volume dengan ketinggian Z . Dengan membuat Z

mendekati nol maka dapat disusun beberapa persamaan diferensial orde satu.

Reaksi kimia proses pelapisan yang terjadi dianggap seperti pada persamaan 2 yaitu asetilen terdekomposisi menjadi hidrokarbon mono siklik aromatis dengan C_6 seterusnya menjadi poli siklik aromatis dengan C_{10} . Semua reaksi dianggap merupakan reaksi orde 1. Disamping senyawa berubah menjadi senyawa lain juga terdekomposisi menjadi pirokarbon dan menempel pada permukaan kernel membentuk padatan. Untuk masing-masing komponen disusun persamaan differensial yang mewakili proses yang terjadi pada reaktor fluidisasi. Nilai tetapan koefisien reaksi diperoleh dari data pustaka ^[7]. Dengan menyelesaikan persamaan diferensial secara simultan dan memasukkan nilai batas (*boundary condition*) dapat diperoleh konsentrasi gas pada setiap titik sepanjang reaktor fluidisasi. Demikian juga dapat dihitung kecepatan penambahan lapisan *buffer*. Penyelesaian persamaan diferensial dilakukan dengan membuat program dengan menggunakan perangkat lunak *Matlab* yang menyelesaikan persamaan-persamaan tersebut secara simultan. Hasil perhitungan menggunakan program *Matlab* kemudian dibandingkan dengan hasil perhitungan lain, data dari pembuatan partikel terlapis dari Jerman dan juga hasil pelapisan laboratorium menggunakan alat pelapisan yang ada di BATAN Yogyakarta.

Proses pelapisan di laboratorium dilakukan dengan mengalirkan gas asetilen bersama gas inert argon ke dalam reaktor fluidisasi berbentuk kerucut terbalik (*cone*) terbuat dari grafit yang bagian luarnya dipasang *coil* berpendingin air. Reaktor dipanaskan menggunakan sisten induksi. Arus

RF tegangan rendah dan arus kuat mengalir melalui *coil* sehingga timbul medan magnet disekitar *coil*. Medan magnet memanaskan reaktor yang terbuat dari grafit dan menyebabkan reaktor bisa mencapai suhu 1500 °C.

Tabel 3. Parameter untuk proses CVD deposisi lapisan pada UO₂ untuk membuat partikel terlapis TRISO[10].

Lapisan	Sumber gas/ gas pembawa	Suhu deposisi (°C)	Reaksi pelapisan	Kecepatan Deposisi (µm/menit)
Buffer	C ₂ H ₂ /Ar	1300-1450	C ₂ H ₂ → 2C + H ₂	15-25
iPyC	C ₃ H ₆ +C ₂ H ₂ /Ar	1250-1400	C ₃ H ₆ → 3C+3H ₂ , C ₂ H ₂ → 2C + H ₂	3-7
SiC	CH ₃ SiCl ₃ /H ₂	1500-1600	CH ₃ SiCl ₃ + H ₂ → SiC+ 2HCl + 3H ₂	0,2
oPyC	C ₃ H ₆ +C ₂ H ₂ /Ar	1250-1400	C ₃ H ₆ → 3C+3H ₂ , C ₂ H ₂ → 2C + H ₂	3-7

Gas argon dan gas asetilen memfluidisasi kernel tersinter yang ada dalam reaktor dan gas asetilen terdekomposisi serta terdeposisi menjadi lapisan *buffer* pada permukaan kernel tersinter. Setelah terbentuk lapisan dengan ketebalan tertentu pelapisan dihentikan.

3. Hasil Dan Pembahasan

Pelapisan *buffer* dengan pereaksi asetilen, dilakukan dengan memasukkan gas asetilen 30% yang diencerkan dengan gas argon. Proses pelapisan yang terjadi dalam reaktor fluidisasi dinyatakan dalam persamaan *differensial* yang bisa mewakili proses pelapisan. Reaksi yang terjadi dalam reaktor

diasumsikan seperti yang ditulis dalam persamaan 2. Karena yang digunakan adalah proses CVD data tetapan reaksi kimia yang dipakai adalah seperti dalam Tabel 2. Data tetapan tersebut $k_1 = 5 \text{ dt}^{-1}$, $k_2 = 5\text{dt}^{-1}$, $k_3 = 0,04 \text{ dt}^{-1}$, $k_{II} = 0,09 \text{ dt}^{-1}$ dan $k_3 = 0,14 \text{ dt}^{-1}$.

Persamaan diferensial yang disusun berdasar persamaan 2 dapat dituliskan sbb:

$$\frac{d[A]}{dt} = -(k_1 + k_3)[A] \tag{3}$$

$$\frac{d[B]}{dt} = k_1[A] - (k_2 + k_{III})[B] \tag{4}$$

$$\frac{d[C]}{dt} = k_2[B] - k_{III}[C] \tag{5}$$

A adalah unsur C2 yaitu C₂H₂, B sebagai unsur C6 yaitu C₆H₆ dan C sebagai unsur poli siklik yaitu C₁₀H₁₀.

Kecepatan reaksi di permukaan kernel dapat ditulis

$$R_v = k_f[A] + k_{rf}[B] + k_{irr}[C] \dots \text{mol m}^{-3}\text{dt}^{-1} \quad (6)$$

Kecepatan deposisi permukaan menjadi:

$$R_d = (k_f[A] + k_{rf}[B] + k_{irr}[C]) / [A/V] \dots \text{mol m}^{-2}\text{dt}^{-1} \quad (7)$$

$$R_d = (k_f[A] + k_{rf}[B] + k_{irr}[C]) \cdot [V/A] \dots \text{mol m}^{-2}\text{dt}^{-1} \quad (8)$$

$$= [(k_f[A] + k_{rf}[B] + k_{irr}[C]) \cdot \left(\frac{V}{A}\right)] \text{mol m}^{-2}\text{dt}^{-1} \times 12 \text{g/mol} \times (4\pi R^2 Nd / 10000) \text{m}^2 \quad (9)$$

$$= [(k_f[A] + k_{rf}[B] + k_{irr}[C]) \cdot \left(\frac{V}{A}\right)] \times 12(4\pi R^2 Nd / 10000) \dots \text{g/dt} \quad (10)$$

Disamping itu R_s dapat dinyatakan dari pertumbuhan lapisan:

$$R_s = (4\pi R^2 Nd) \text{cm}^2 \times \rho \text{g/cm}^3 (\text{dr/dt}) \dots \text{cm/dt} \quad (11)$$

Maka :

$$\text{dr/dt} = [(k_f[A] + k_{rf}[B] + k_{irr}[C]) \cdot \left(\frac{V}{A}\right)] \times 12 / \rho / 10000 \dots \text{cm/dt} \quad (12)$$

Dari persamaan diferensial di atas kemudian dengan menggunakan volume satu butir partikel UO_2 dengan jari-jari (r) = 0,25mm = 0,025 cm

$$\begin{aligned} V_{\text{butir}} &= 4\pi r^3 \\ &= 4(3,14)(0,025)^3 \\ &= 1,9625 \cdot 10^{-4} \text{cm}^3 \end{aligned}$$

Rapat goyang (tap density) = 2,13 g/cm³

Berat sampel partikel UO_2 sebelum pelapisan sebesar 0,5 g. sehingga volume sampel sebesar

$$V_{\text{sampel}} = \frac{0,5 \text{ g}}{2,13 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}} = 0,2347 \text{ cm}^3$$

Jumlah partikel dalam sampel 0,5 g

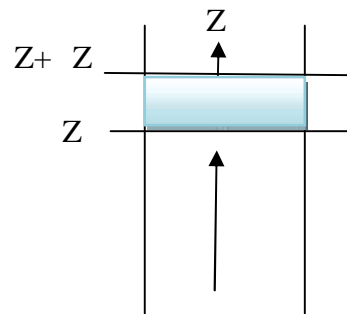
$$Nd = \frac{0,2347}{1,9625 \cdot 10^{-4}} = 1196 \text{ butir}$$

Partikel UO_2 setelah dilapisi *buffer* memiliki jari-jari sebesar 0,35 mm = 0,035 cm. Diketahui densitas lapisan *buffer* = 1,1 g/cm³, jumlah kernel per batch 1196 butir dan $[V/A] = 1$ karena CVD.

Dengan memasukkan nilai-nilai tersebut maka persamaan 12 menjadi :

$$\text{dr/dt} = 5,633 \cdot 10^{-4} (k_f[A] + k_{rf}[B] + k_{irr}[C]) \dots \text{cm/dt} \quad (13)$$

Penyusunan persamaan diferensial yang mewakili proses dekomposisi, polimerisasi dan deposisi padatan pada kernel dapat disusun dengan mengenakan neraca massa pada elemen volume silinder pada Gambar 1.



Aliran Gas

Gambar 1. Elemen volum reaktor fluidisasi

Asumsi yang diambil untuk aliran gas adalah *plugflow* dan kernel adalah *mixed flow*. Harga adalah perbandingan volume gas dan volume silinder ditentukan berdasar data literatur. Pada elemen volume $S \times Z$ berlaku neraca massa untuk semua komponen (asetilen, monosiklis benzene dan polisiklis), yang dapat disusun sbb:

Neraca massa untuk gas C_2H_2 yang dinyatakan dengan A: Gas C_2H_2 masuk – gas C_2H_2 keluar – gas C_2H_2 akumulasi = 0

$$A|_Z - A|_{Z+\Delta Z} - v_1 \epsilon S \Delta Z - v_1 \epsilon S \Delta Z = 0 \quad (14)$$

$$\frac{A|_Z - A|_{Z+\Delta Z}}{\Delta Z} = -S \epsilon k_1 \left(\frac{A}{V}\right) - S \epsilon k_2 \left(\frac{A}{V}\right) \quad (15)$$

Dengan diambil Z mendekati 0 maka diperoleh persamaan diferensial:

$$\frac{dA}{dz} = -S_{ek_1}A - S_{ek_7} \quad (16)$$

Proses dekomposisi dan polimerisasi untuk senyawa lain yaitu monosiklis ($C=6$) dinyatakan sebagai B dan polisiklis $C \geq 10$ yang dinyatakan sebagai C maka dapat disusun persamaan diferensial sbb:

$$\frac{dB}{dz} = S_{ek_1}A - S_{ek_2}B - S_{ek_{11}}B \quad (17)$$

$$\frac{dC}{dz} = S_{ek_2}B - S_{ek_{11}}C \quad (18)$$

cepatan total dapat ditulis sbb:

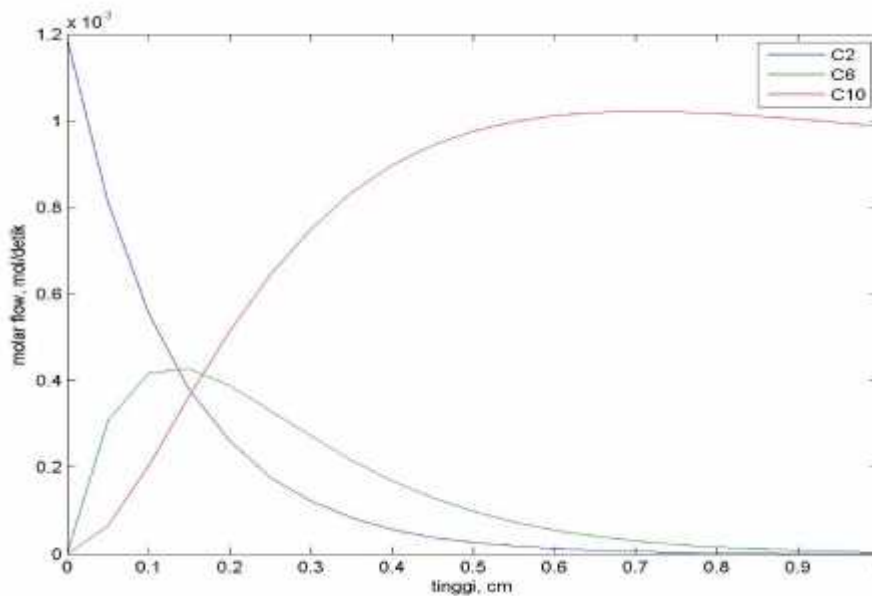
$$F_{total} = A + B + C \quad (19)$$

Untuk gas yang terdeposisi menjadi padatan adalah C_2 , C_6 dan C_{10}

Boundary Condition

$$Z = 0 : F_A = F_{A(0)}; F_B = F_{B(0)} = 0; F_C = F_{C(0)} = 0 \quad (21)$$

Persamaan-persamaan di atas dibuat program dengan menggunakan Matlab dan tetapan yang diperlukan diambil dari pustaka. Penyelesaian dari persamaan diatas dapat dilihat dalam Gambar 2 dan 3.



Gambar 2. Pengurangan dan penambahan konsentrasi gas dalam reaktor.

Gambar 2 menunjukkan kurve pengurangan mol/detik gas asetilen (C_2) selama proses pelapisan, peningkatan dan pengurangan konsentrasi hidrokarbon dengan C_6 dan peningkatan kadar $C \geq 10$. Kecepatan reaksi gas asetilen ternyata cukup besar sehingga pada ketinggian 0,5 cm dalam reaktor, gas

asetilen sudah habis. Gas dengan $C=6$ yang pada awal reaksi terbentuk juga sudah habis pada ketinggian 0,8 cm. Sedang gas dengan $C \geq 10$ terbentuk pada ketinggian 0,7 cm secara pelan-pelan berkurang karena terdeposisi menjadi pirokarbon.

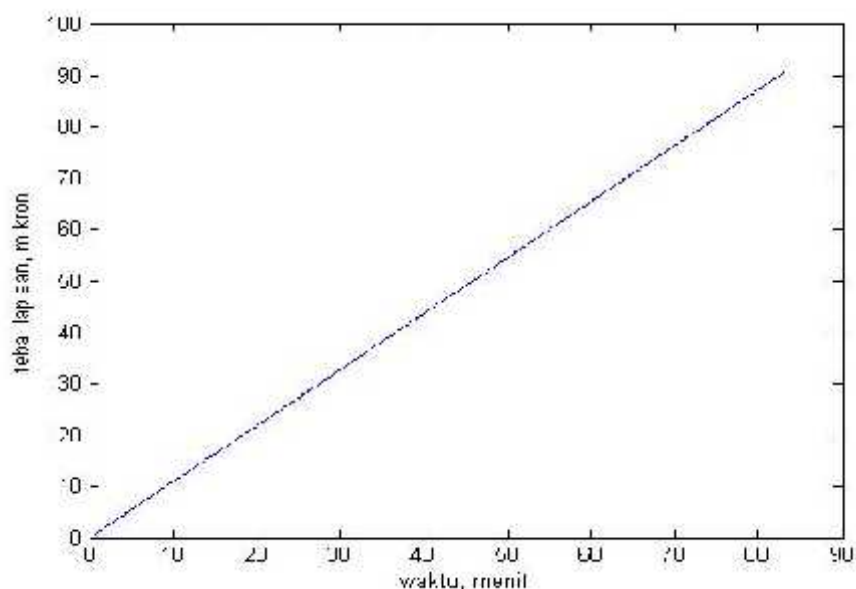
Waktu tinggal gas pereaksi asetilen dan argon masuk reaktor juga sangat singkat, yang dapat dihitung sbb: Luas penampang reaktor dengan $D = 2 \text{ cm}$ adalah $2\pi R^2 = 2 \times 3,14 \times 1 \text{ cm}^2$ atau $6,28 \text{ cm}^2$ dan tinggi fluidisasi 4 cm maka volume reaktor adalah $25,12 \text{ cm}^3$, dan kecepatan alir 4 lt/men atau $66 \text{ cm}^3/\text{dt}$, sehingga waktu tinggal gas dalam reaktor adalah $0,38 \text{ dt}$.

Dari perhitungan di atas dapat disimpulkan bahwa reaksi peruraian maupun deposisi hidrokarbon berjalan sangat singkat. Kemungkinan gas yang masih keluar dari reaktor fluidisasi adalah gas argon sebagai gas *inert* dan hidrokarbon multi siklis, sedang senyawa asetilen (C_2) dan monosiklis C_6 sudah habis terdekomposisi dan terdeposisi sebagaimana persamaan 3 s/d 6. Perhitungan

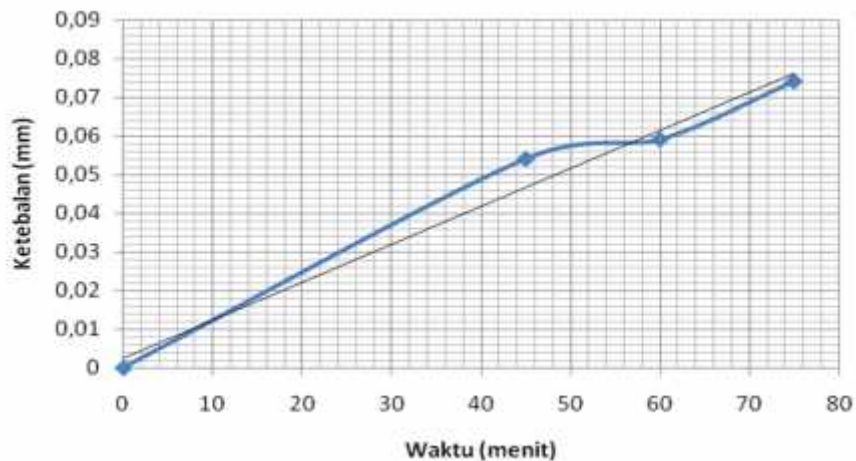
kecepatan pertambahan tebal lapisan menghasilkan grafik di Gambar 3.

Terlihat di dalam Gambar 3 bahwa untuk mencapai ketebalan $90 \text{ }\mu\text{m}$ diperlukan 85 menit atau kecepatan pelapisannya adalah $1,05 \text{ }\mu\text{m}/\text{dt}$.

Proses pelapisan menggunakan alat pelapisan di Bidang Teknologi Proses PSTA BATAN Yogyakarta telah dilakukan[11]. Proses pelapisan dilakukan dengan pereaksi asetilen 30% yang diencerkan dengan argon. Pelapisan dilakukan dengan menggunakan reaktor pelapisan *fluidized bed reactor* terbuat dari grafit yang dipanaskan dengan *furnace* induksi yang dilengkapi dengan sistem pemasukan/pengeluaran gas dan pemasukan dan pengeluaran kernel UO_2 .



Gambar 3. Kecepatan deposisi lapisan buffer pada pelapisan



Gambar 4. Hubungan ketebalan *buffer* (mm) versus waktu (menit) pada pelapisan *buffer* dengan pereaksi asetilen 30% suhu 1300°C

Proses pelapisan dilakukan pada reaktor ber diameter 2 cm, berat kernel dimasukkan 0,5 gram, suhu pelapisan 1300°C dan waktu proses pelapisan divariasi. Kernel dimasukan pada aliran fluidisasi gas argon pada awal proses, kemudian furnace dipanaskan sampai mencapai suhu yang dikehendaki. Setelah suhu dicapai aliran gas argon diubah menjadi aliran gas argon dan asetilen. Gas asetilen terdekomposisi dan terdeposisi sebagai lapisan

buffer pada kernel UO₂ tersinter. Setelah waktu pelapisan tertentu, aliran gas asetilen dihentikan dan pemanas dimatikan sehingga suhu reaktor turun. Setelah suhu dingin kernel terlapis dikeluarkan dengan mematikan aliran argon. Setelah diadakan koreksi terhadap hasil pelapisan diperoleh data pelapisan yang dapat digambarkan dalam Gambar 5^[11].

Tabel 3 Perbandingan kecepatan pelapisan dari bebarapa data penelitian dan modeling

Nomor	Proses	Kecepatan deposisi <i>buffer</i>
1	Simulasi pelapisan penyederhanaan asetilen menjadi monosiklis C6-poli siklis C≥10	1,05µm/menit
2	Simulasi asetilen menjadi C ₄ H ₄ dan C ₄ H ₂ ^[8]	45µm/menit
3	Data dari Kania ^[10]	15-25 µm/menit
4	Data pelapisan di laboratorium ^[11]	1 µm/menit



Gambar 5. Contoh lapisan *buffer* hasil proses laboratorium di PSTA BATAN^[11]

Data kecepatan pelapisan kalau kita bandingkan dengan dua data lain yaitu simulasi menggunakan reaksi peruraian asetilen lain dan data pelapisan hasil percobaan pelapisan *buffer* di laboratorium dapat dilihat dalam Tabel 3. Pelapisan *buffer* yang diberi nomor 1 pada Tabel 3, dilakukan dengan memodelkan dengan asumsi penyederhanaan asetilen terdekomposisi menjadi C₆ monosiklis kemudian menjadi C_{≥10} polisiklis. Dengan perhitungan menggunakan asetilen 30% diencerkan oleh argon dan koefisien kecepatan reaksi pada suhu 1100 °C diambil dari Zhang ^[7] diperoleh hasil hitungan kecepatan pelapisan *buffer* 1,05 μm/menit. Hal ini hampir sama dengan hasil pelapisan menggunakan alat pelapisan di laboratorium BATAN Yogyakarta yang dilakukan pada suhu 1300°C, kadar asetilen 30%, dan hasilnya kecepatan pelapisan adalah 1 μm/menit. Kecepatan ini kecil dikarenakan pelapisan hanya menggunakan kernel yang sedikit dibandingkan dengan volume reaktornya. Ada kemungkinan karena kernel yang terfluidisasi sedikit maka kontak antara kernel dan gas tidak bagus dan menyebabkan pelapisan tidak optimal. Disamping itu kadar yang kecil berarti jumlah pereaksi yang sedikit menyebabkan pirokarbon yang terdeposisi juga sedikit. Nomor 2 adalah data dari hitungan modeling menggunakan asumsi asetilen berubah C₄H₄ dan C₄H₂ ^[8] diperoleh

kecepatan pelapisan *buffer* 45 μm/menit. Nilai ini berbeda cukup jauh dari data dari Kania ^[10] yang menyebutkan kecepatan pelapisan *buffer* 15-25 μm/menit. Data Kania ini berasal dari data pembuatan bahan bakar AVR Jerman, sehingga data ini patut untuk dijadikan acuan. Kemungkinan perhitungan yang menghasilkan data nomor 2 masih banyak asumsi yang jauh dari sistem nyatanya.

4. Kesimpulan

Dari data di atas dapat disimpulkan bahwa hasil simulasi pelapisan penyederhanaan asetilen menjadi monosiklis C₆ polisiklis C_{≥10} yang diambil dari Zhang ^[7] (1,05 μm/menit) mendekati hasil percobaan di laboratorium ^[11] yang dilakukan pada suhu 1300°C dan kadar asetilen 30% 1 μm/menit. Kecepatan pelapisan yang rendah tersebut dikarenakan jumlah kernel yang digunakan sedikit dibandingkan dengan volume reaktornya, sehingga saat proses fluidisasi kontak antara kernel dan gas pereaksi kurang bagus yang mengakibatkan kurang optimalnya proses pelapisan. Kadar pereaksi (kernel UO₂) yang sedikit juga menyebabkan pirokarbon yang terdeposisi sedikit. Hasil dari simulasi asetilen menjadi C₄H₄ dan C₄H₂ ^[8] (45 μm/menit) masih jauh berbeda dengan data dari Kania ^[10] (15-25 μm/menit) dikarenakan asumsi yang digunakan dalam simulasi masih jauh dari sistem nyatanya.

5. Ucapan Terimakasih

Penulis mengucapkan terima kasih kepada segenap tim pelapisan di laboratorium PTBBN Yogyakarta yang telah membantu dalam pelaksanaan penelitian ini.

6. Daftar Pustaka

1. M.A.Futterer, L. Fu, C. Sink, S. Groot, M. Pouchon, Y.W. Kim, F. Carre, Y. (2014) Tachabana, Status of Very High Temperatur Reactor System, Progress in Nuclear Energy, 77.
2. M.K. Rowinski, T. John, White, J. Zhao, (2015). Small and Medium sized Reactors (SMR): A review of technology, Renewable and Sustainable Energy Review, 44.
3. PKSEN BATAN, BATAN - Konsorsium RENUKO. (2015). Teken Kontrak Penyusunan Dokumen Desain Awal RDE, Badan Tenaga Nuklir Nasional.
4. Z. Xiangwen, L. Zhenming. Z. Jie, L. Bing, Z. Yanwen, T. Chunhe, T. Yaping. (2013). Preparation of Spherical Fuel Elements for HTR-PM in INET, Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University, Beijing 100084, China, Nuclear Engineering and Design, 263.
5. Z. Xiangwen, M. Jingtao, H. Shaochang, Z. Xingyu, W. Yang, D. Changsheng, L. Tongxiang, G. Wenli, T. Yaping, T. Chunhe. (2012). Preparation of Ammonium Diuranate Particles by External Gelation Process of Uranium in INET, Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University, Beijing 100084, China, Nuclear Engineering and Design, 250.
6. Sukarsono. (2010). Review Teknologi Pelapisan Partikel Terlapis untuk Bahan Bakar Reaktor Suhu Tinggi, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah IPTEK Nuklir, PTAPB-BATAN, Yogyakarta.
7. W. Zhang, K. J. Huttinger. (2002). Simulation Studies on Chemical Vapor Infiltration of Carbon, Institute for Chemistry Technik, University Karlsruhe German, Composites Science and Technology 62.
8. Sukarsono, S. Simbolon, L. Harmianto. (2010). Modeling Pelapisan Pirokarbon sebagai Buffer pada Kernel UO₂ untuk Reaktor Suhu Tinggi, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah IPTEK Nuklir, PTAPB-BATAN, Yogyakarta.
9. A. Li, K. Norinaga, W. Zhang, O. Deutchmann. (2008). Modeling and Simulation of Materials Synthesis: Chemical Vapor Deposition and Infiltration of Pyrolytic Carbon, Composites Science and Technology, 68.

- 10 M. J. Kania, H. Nabielek, K. Verfondern, H. J. Allelein. (2013). Testing of HTR UO₂ TRISO Fuels in AVR and in Material Test Reactors , Journal of Nuclear Materials 44.
11. Sukarsono, Damunir, A. K. Dewi, K. Nurwidyaningrum, Triyono, Darmanto. (2014). Hubungan Waktu dengan Tebal Lapisan Buffer Pembuatan Partikel Terlapis Bahan Bakar RST, Proseding Seminar Nasional Teknologi Energi Nuklir, Pusat Teknologi dan Keselamatan Reaktor Nuklir Pusat Kajian Sistem Energi Nuklir.