

---

# PERHITUNGAN PELAPISAN PADA KERNEL $UO_2$ PIROKARBON DARI PROPILEN DENGAN CARA PEMODELAN DAN PENYELESAIAN DENGAN MATLAB

**Sukarsono, Liliek Harmianto**

Pusat Teknologi Akselerator dan Proses Bahan – BATAN, Yogyakarta

*e-mail: karsono\_id@yahoo.com*

(Diterima 9-6-2011-2011, disetujui 21-6-2011)

## ABSTRAK

**PERHITUNGAN PELAPISAN PIROKARBON DARI PROPILEN PADA KERNEL  $UO_2$  DENGAN CARA MODELING DAN PENYELESAIAN DENGAN MATLAB.** Telah dilakukan modeling proses pelapisan pirokarbon densitas tinggi pada kernel bahan bakar nuklir dengan pereaksi propilen pada reaktor fluidisasi. Modeling dilakukan dengan penyusunan persamaan diferensial (PD) yang mewakili proses yang terjadi dalam proses pelapisan. Persamaan diferensial diselesaikan dengan program Matlab. Penyusunan PD dengan melihat reaksi yang terjadi pada dekomposisi propilen dan deposisi pirokarbon. Reaksi yang digunakan untuk pembuatan program adalah reaksi yang melibatkan banyak senyawa. Senyawa-senyawa hidrokarbon yang keberadaannya dalam jumlah kecil diabaikan. Sebagai masukan program disesuaikan dengan kondisi reaktor fluidisasi seperti kecepatan masuk gas lebih besar dari kecepatan fluidisasi minimum. Dengan menggunakan data koefisien reaksi yang ada di pustaka, PD dapat diselesaikan dan menghasilkan data hubungan kecepatan alir senyawa hidrokarbon pada setiap ketinggian reaktor dan kecepatan pelapisan pirokarbon. Pada kecepatan alir dalam reaktor 1,1134 m/dt dan fraksi propilen 0,4, reaksi dekomposisi hidrokarbon dan deposisi pirokarbon terjadi sampai pada ketinggian 0,4 cm dari pemasukan gas. Hasil deposisi diantaranya adalah metana dan asetilen sekitar 5,8 mmol/dt, benzene 0,78 mmol/dt dan hidrogen 0,25 mmol/dt. Deposisi pirokarbon mencapai ketebalan 40 mikron dapat dicapai dengan waktu pelapisan 33 menit.

**KATA KUNCI:** fluidisasi, kernel bahan bakar nuklir, modeling

## ABSTRACT

**CALCULATION OF PIROCARBON COATING OF PROPYLENE ON KERNEL  $UO_2$  WITH MODELING AND SETTLEMENT WITH MATLAB.** The modeling of high density pyrocarbon coating on a nuclear fuel kernel with a propylene reactant in the fluidization reactor had been done. The modeling was conducted by setting up differential equations which represented the reactions which occurred in the coating process. The equations were solved using MATLAB program. The differential equations were developed through observing the chemical reactions in the processes of propylene decomposition and pyrocarbon

*deposition. The presence of hydrocarbon which is of a small quantity was considered to be negligible. Input for this program was adjusted with the fluidization reactor conditions, such as the input velocity which was not smaller than the minimum velocity for fluidization. By using data from literature, differential equations were solved. The calculation resulted in the relationship between the flow rate of hydrocarbon at each distance from the gas input device and the speed of pyrocarbon deposition. Using a propylene fraction of 0.4 and a gas flow rate of 1.0069 m/s, it was found that the decomposition and the deposition of pyrocarbon occurred in the position of 0.4 cm from the input device. Decomposition products were methane and acetylene of about 5.8 mmol/s, benzene 0.78 mmol/s, and hydrogen 0.25 mmol/s. Pyrolytic carbon reached a 40  $\mu$ m thickness in 33 minutes of coating process.*

*FREE TERMS: Fluidization, kernel nuclear fuel, modeling, coating, pyrocarbon*

## I. PENDAHULUAN

Karakteristik reaktor suhu tinggi (RST) mempunyai reaktifitas negatif yang akan padam dengan sendirinya kalau terjadi kegagalan pendingin akibat bencana alam seperti gempa bumi. Karena itu, RST mempunyai prospek yang cerah untuk menggantikan *Pressurized Water Reactor* atau *Boiling Water Reactor* yang selama ini digunakan dalam Pusat Listrik Tenaga Nuklir (PLTN). Pelapisan kernel  $UO_2$  merupakan salah satu proses penting dalam pembuatan bahan bakar reaktor suhu tinggi (RST). Lapisan TRISO telah digunakan di Jerman pada reaktor AVR, 46 MWth (15 MWe) yang merupakan suatu prototip reaktor dengan bahan bakar bentuk bola dan *Thorium High Temperature Reactor* (THTR -300) dengan daya 750 MWth (300 MWe). Kedua reaktor tersebut adalah reaktor suhu tinggi berpendingin gas (HTGRs). China saat ini menggunakan bahan bakar TRISO pada prototip reaktor suhu tinggi (HTR-10) yang menggunakan bahan bakar bentuk bola (*pebble bed*) dan mempunyai daya 10 MWe. Di Jepang juga ada reaktor dengan bahan bakar TRISO yaitu *High Temperature Test Reactor* (HTTR) dengan daya 30 MWth menggunakan *core* bentuk prisma. Program bahan bakar TRISO sekarang juga sedang dikembangkan di Amerika, Inggris, Rusia dan Afrika Selatan<sup>[1]</sup>.

Partikel TRISO terdiri dari lima bagian yang berbeda yaitu pada pusatnya adalah inti bahan bakar kernel yang bisa berupa oksida (O), karbida (C) atau oksida karbida (CO) dari uranium, plutonium atau *transuranic element* (TRU). Proses pelapisan kernel tersinter untuk digunakan sebagai bahan bakar RST, melalui empat tahap pelapisan. Lapisan pertama adalah lapisan *buffer*

yang merupakan lapisan pirokarbon densitas rendah. Proses pelapisan *buffer* dilakukan pada suhu 1100 – 1400°C menggunakan bahan C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> yang diencerkan dengan gas argon. *Buffer* pirokarbon yang *porous* merupakan lapisan pertama dari kernel yang menahan dan menampung hasil fisi, serta menahan perubahan bentuk partikel. Lapisan kedua adalah pirokarbon bagian dalam yang merupakan pirokarbon densitas tinggi dan pori-porinya relatif kecil. Sebagai bahan penyedia karbon adalah propilen yang diencerkan dengan argon. Lapisan ketiga adalah silika karbida yang berfungsi untuk menahan gas hasil fisi yang masih lolos dari lapisan pirokarbon. Senyawa yang digunakan untuk pelapisan silika karbida adalah metil triklorosilan dicampur dengan hidrogen dan diencerkan dengan argon. Proses pelapisan silika karbida pada suhu 1500-1670°C. Ketahanan terhadap panas dan lingkungan SiC tidak terlalu tinggi, sehingga diperlukan pelindung yang merupakan pelapis ke 4 dari TRISO yaitu pirokarbon densitas tinggi bagian luar. Lapisan ini dibentuk dari deposisi propilen pada suhu 1350 – 1450 °C [2,3,4,5].

Ukuran kernel dan ketebalan lapisan sangat tergantung pada disain reaktor yang akan dioperasikan. Salah satu contoh bahan bakar TRISO Jerman mempunyai ukuran seperti pada Tabel 1<sup>[1]</sup>:

Tabel 1. Parameter Nominal Partikel TRISO Jerman<sup>[1]</sup>

Lapisan	Densitas (kg/m <sup>3</sup> )		Ketebalan (µm)	Radius (µm)
	Aktual	Teoritis		
Kernel	10,96	-		250
Bufer	1,1	2,2	95	345
PyC	1,7	2,2	40	385
SiC	3,2	3,2	35	420
PyC	1,7	2,2	40	460

Reaksi fisi yang terjadi pada kernel, menghasilkan hasil fisi bentuk padat dan gas. Hasil fisi yang jumlahnya relatif banyak adalah Xe dan Kr. Hasil fisi tersebut menyebabkan tekanan di dalam kernel dan mendesak lapisan pirokarbon dan silika karbida. Sebagian besar hasil fisi tersebut tertampung dalam pori-pori lapisan *buffer* dan sebagian kecil bermigrasi keluar kernel dan melepaskan diri dari lapisan pirokarbon dan silika karbida masuk ke dalam matrik dan pendingin reaktor. Disamping itu, oksigen yang lepas dari kernel dapat menyebabkan timbulnya CO dan CO<sub>2</sub> menurut reaksi





Gas O<sub>2</sub>, CO dan CO<sub>2</sub> terakumulasi dalam pori-pori *buffer*, dan kalau tidak cukup akan mendesak lapisan pirokarbon dan silika karbida. Kerusakan pirokarbon mula-mula terjadi pengkerutan (*shrink*) dan selanjutnya pengembangan (*swell*) setelah terkena iradiasi energi neutron cepat. Adanya pergerakan karena iradiasi dan beda ekspansi dari bagian-bagian kernel, dapat menyebabkan kerusakan kernel. Karena itu disamping disain bahan bakar yang sudah memperhitungkan fenomena di atas, juga pembuatan bahan bakar dituntut baik dan tidak menyimpang dari disain bahan bakar<sup>[1]</sup>.

Sebagai penahan hasil fisi supaya tetap terkungkung dalam kernel terlapis, maka proses pelapisan harus bisa menghasilkan lapisan pirokarbon yang baik, ketebalan lapisan seragam dan struktur lapisan yang baik. Salah satu proses pelapisan tersebut adalah pelapisan pirokarbon densitas tinggi bagian dalam dan luar. Lapisan ini dibuat melalui pirolisa pereaksi gas propilen secara CVD dalam reaktor fluidisasi pada suhu 1300-1450 °C. CVD (*Chemical Vapor Deposition*) adalah proses deposisi padatan yang berasal dari gas hidrokarbon yang terpirolisa yang kemudian terserap ke permukaan padatan dan akhirnya melapisi padatan tersebut.

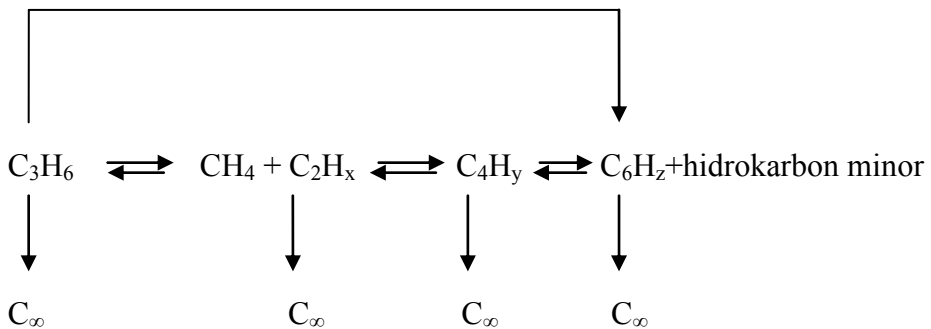
Penelitian ini memodelkan proses pelapisan menggunakan pereaksi propilen. Proses dekomposisi dan proses pelapisan didekati dengan penyusunan persamaan diferensial yang mewakili proses yang terjadi. Dengan modeling, dapat diprediksi apa yang akan terjadi pada reaktor pelapisan apabila terjadi perubahan kondisi operasi karena perubahan variabel yang berpengaruh, tanpa harus melakukannya di dalam reaktor pelapisan.

Proses pelapisan menggunakan reaktor fluidisasi dengan cara fluidisasi kernel dalam reaktor fluidisasi. Gas pereaksi dalam hal ini propilen, dimasukkan bersama gas pembawa yang inert seperti gas argon, ke dalam reaktor dari bagian bawah reaktor sehingga terjadi fluidisasi kernel yang ada di dalam reaktor. Reaktor fluidisasi dipanaskan sampai 1300-1450 °C sehingga gas pereaksi propilen terdekomposisi menjadi banyak senyawa hidrokarbon lain. Beberapa jenis gas hidrokarbon tersebut bisa terdifusi pada permukaan kernel dan kemudian terdeposisi sebagai lapisan pirokarbon. Proses pelapisan pada bahan bakar TRISO dilakukan dengan cara fluidisasi kernel tersinter menggunakan gas pelapis dan pengencer gas inert seperti argon. Pirokarbon terdekomposisi menjadi senyawa-senyawa lain dan sebagian terdeposisi pada permukaan kernel menjadi pirokarbon (*pyrolytic carbon*). Proses yang terjadi

adalah proses pirolisa senyawa hidrokarbon dan difusi sebagian dari senyawa hidrokarbon tersebut ke permukaan partikel kernel  $UO_2$ . Senyawa hidrokarbon terdifusi kemudian mengendap sebagai lapisan pirokarbon.

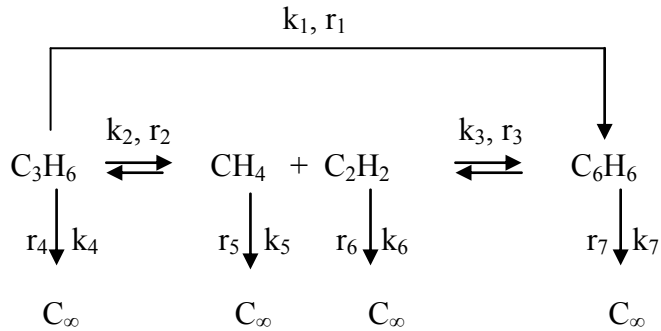
Pirolisa propilen menghasilkan lebih dari 53 macam hidrokarbon dan melibatkan persamaan reaksi lebih dari 250 persamaan. Hidrokarbon hasil pirolisa propilen yang jumlahnya relative banyak (*mayor*) adalah hidrogen, metana, asetilen, etilen, benzena dan hidrokarbon dalam jumlah yang relative kecil (*minor*) adalah toluena, ethilbenzena, stirena, dietilbenzena, naftalen, bifenil dan antrasine. Untuk memudahkan perhitungan dilakukan penyederhanaan dengan mengabaikan hidrokarbon yang jumlahnya kecil.

Mekanisme reaksi dekomposisi propilen melibatkan puluhan reaksi-reaksi kimia dengan pembentukan senyawa radikal seperti  $H^0$ ,  $CH_3^0$  dll. Karena banyaknya reaksi yang terjadi, maka dilakukan pengelompokan reaksi yang tujuannya untuk penyederhanaan reaksi. Skema perurainan propilen dapat dilihat dalam Gambar 1<sup>[6,7]</sup>.



Gambar 1. Skema penyederhanaan reaksi deposisi pirokarbon dari propilen

Menurut Becker dan Huttinger<sup>[7]</sup>, senyawa  $C_4H_y$  yang terjadi jumlahnya tidak banyak dibandingkan dengan senyawa  $C_2H_x$  dan  $C_6H_z$ . Untuk memudahkan persoalan proses deposisi pirokarbon dapat disederhanakan seperti dalam Gambar 2 dengan menganggap senyawa  $C_2H_x$  diwakili oleh  $C_2H_2$  dan senyawa  $C_6H_z$  diwakili oleh senyawa  $C_6H_6$ <sup>[7]</sup>. Skema penyederhanaan untuk perhitungan dapat dilihat dalam Gambar 2.



Gambar 2. Model reaksi untuk simulasi deposisi pirokarbon propilen

## II. METODOLOGI

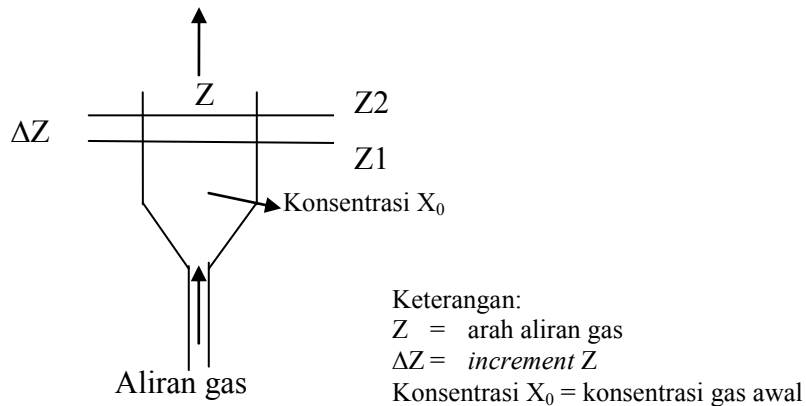
Perhitungan pelapisan kernel menggunakan MATLAB dilakukan dengan membuat persamaan diferensial (PD) proses pelapisan menggunakan pereaksi propilen yang mewakili proses yang ada dalam reactor fluidisasi. Persamaan diferensial yang tersusun kemudian diselesaikan dengan program MATLAB. Reaktor fluidisasi yang digunakan adalah reaktor diameter 2 cm. Gas untuk fluidisasi kernel adalah campuran gas argon dan gas propilen Untuk mempermudah persoalan, gas yang dialirkan untuk fluidisasi dianggap argon saja dengan pengabaian gas hidrokarbon. Densitas argon adalah  $1,6228 \text{ kg/m}^3$ , densitas pirokarbon adalah densitas kernel yang diambil rata-rata dari densitas sebelum dan sesudah dilapis. Densitas pirokarbon diambil  $4,415 \text{ g/cm}^3$ . Viskositas gas =  $0,000212 \text{ kg/m/dt}$ , diameter diambil rata-rata dari pelapisan pirokarbon densitas tinggi bagian dalam yaitu  $0,00073 \text{ m}$ . Penyelesaian PD-PD yang dibentuk dari proses pelapisan, menghasilkan perkiraan komposisi gas pada setiap posisi dengan jarak tertentu dari pemasukan gas dan tebal deposisi pirokarbon fungsi waktu.

## III. HASIL DAN PEMBAHASAN

### 3.1. Modeling Proses Pelapisan Pirokarbon densitas tinggi

Proses pelapisan pirokarbon pada kernel  $UO_2$  untuk bahan bakar reaktor suhu tinggi, disimulasikan dengan membuat persamaan diferensial yang menggambarkan reaksi yang terjadi selama proses pirolisa. Pirokarbon pada suhu tinggi dan tekanan tertentu akan terdekomposisi menjadi senyawa-senyawa hidrokarbon lain yang banyak dan sebagian lainnya terdekomposisi menjadi pirokarbon dan menempel sebagai pirokarbon pada permukaan kernel.

Proses pelapisan kernel  $UO_2$  semi kontinyu untuk membuat kernel terlapis yang merupakan bahan inti untuk bahan bakar reaktor suhu tinggi dapat digambarkan pada Gambar 3.

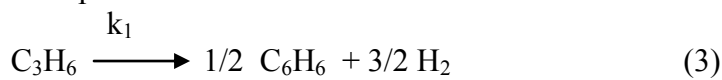


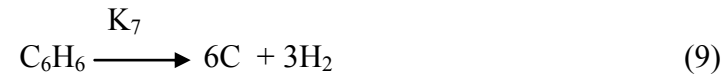
Gambar 3. Skema Reaktor Pelapisan

Pada daerah berbentuk kerucut, ketinggian tidak terlalu besar, sehingga proses pada lokasi tersebut dapat diabaikan. Gas masuk melalui saluran gas dibawah reaktor. Aliran pada zona 1 mengalami perlambatan kecepatan dengan bertambahnya diameter reaktor. Pada zona 2 agar fluidisasi dapat berjalan, kecepatan aliran gas diatur lebih besar dari kecepatan minimum fluidisasi dan diatur lebih besar dari kecepatan maksimum fluidisasi. Menurut Becker<sup>[7]</sup>, pirolisa yang terjadi pada gas propilen pada suhu tinggi komponen hidrokarbon yang mayor ada 5 komponen yaitu: asetilen, hidrogen, benzena, metana dan propilen. Dari senyawa yang terbentuk dalam pirolisa terdapat, beberapa senyawa mempunyai sifat mudah teradsorpsi secara kimia maupun fisika pada permukaan padatan. Senyawa teradsorpsi tersebut segera berubah menjadi pirokarbon karbon dan membentuk lapisan pirokarbon.

### 3.2. Reaksi yang terjadi

Dengan penyederhanaan reaksi yang terjadi dalam pirolisa propilen, maka dapat disusun persamaan reaksi sbb<sup>[7]</sup>:





Persamaan kecepatan reaksi kimia dari persamaan reaksi diatas dapat ditulis sbb:

$$r_1 = k_1 P_{C_3H_6} \quad (10)$$

$$r_2 = k_2 P_{C_3H_6} \quad (11)$$

$$r_3 = k_3 P_{C_2H_2} \quad (12)$$

$$n_4 = k_4 (P_{C_3H_6} - P_{C_3H_6}^*) \quad (13)$$

$$n_5 = k_5 (P_{CH_4} - P_{CH_4}^*) \quad (14)$$

$$n_6 = k_6 (P_{C_2H_2} - P_{C_2H_2}^*) \quad (15)$$

$$n_7 = k_7 (P_{C_6H_6} - P_{C_6H_6}^*) \quad (16)$$

Persamaan 13, 14, 15 dan 16 membutuhkan data pada tekanan kesetimbangan pada permukaan zat padat  $P_{C_3H_6}^*$ ,  $P_{CH_4}^*$ ,  $P_{C_2H_2}^*$  dan  $P_{C_6H_6}^*$ . Nilai dari tekanan kesetimbangan tersebut sama dengan  $H_4\theta_{C_3H_6}$ ,  $H_5\theta_{CH_4}$ ,  $H_6\theta_{C_2H_2}$ ,  $H_7\theta_{C_6H_6}$ . Nilai  $H_4$ ,  $H_5$ ,  $H_6$ ,  $H_7$  adalah tetapan Henry dan  $\theta_{C_3H_6}$ ,  $\theta_{CH_4}$ ,  $\theta_{C_2H_2}$ ,  $\theta_{C_6H_6}$  adalah fraksi komponen  $C_3H_6$ ,  $CH_4$ ,  $C_2H_2$  dan  $C_6H_6$ . Karena gas yang terdifusi segera berubah menjadi padatan, pada maka fraksi gas  $C_3H_6$ ,  $C_2H_2$  dan  $C_6H_6$  sangat kecil sehingga dapat diabaikan. Karena itu nilai  $P_{C_3H_6}^*$ ,  $P_{CH_4}^*$ ,  $P_{C_2H_2}^*$  dan  $P_{C_6H_6}^*$  dapat dianggap = 0. Persamaan 13, 14, 15 dan 16 dapat berubah menjadi

$$n_4 = k_4 P_{C_3H_6} \quad (17)$$



$$n_5 = k_5 P_{C_3H_6} \quad (18)$$

$$n_6 = k_6 P_{C_2H_2} \quad (19)$$

$$n_7 = k_7 P_{C_6H_6} \quad (20)$$

Dari persamaan di atas satuan dari  $k_1$ ,  $k_2$  dan  $k_3$  adalah [mol / (jam ml atm)]. Kalau data  $k$  yang diketahui adalah dalam satuan [1/dt] maka hubungan  $k$  dalam persamaan diatas adalah  $k/RT$ .

$$k = k'(1/RT) \quad (21)$$

Dengan harga  $R = 82,05 \text{ cm}^3 \text{ atm}/(\text{mol } ^\circ\text{K})$

Li, H. [8], telah menghitung harga  $k$  untuk  $k_1$ ,  $k_2$ ,  $k_3$ ,  $k_4$ ,  $k_5$ ,  $k_6$  dan  $k_7$  dalam satuan 1/ dt dari penelitiannya yang didasarkan pada data yang diperoleh dari Becker [6] dengan persamaan sbb:

$$\ln(k_1) = 20,486 - \frac{201.481}{R} \cdot \frac{1}{T} \quad (22)$$

$$\ln(k_2) = 27,943 - \frac{275.675}{R} \cdot \frac{1}{T} \quad (23)$$

$$\ln(k_3) = 7,807 - \frac{79925.0}{R} \cdot \frac{1}{T} \quad (24)$$

$$\ln(k_4) = -3,11 - \frac{88,343}{R} \cdot \frac{1}{T} \quad (25)$$

$$k_5 = k_4/8 \quad (26)$$

$$k_6 = k_4/2 \quad (27)$$

$$k_7 = 4 \times k_4 \quad (28)$$

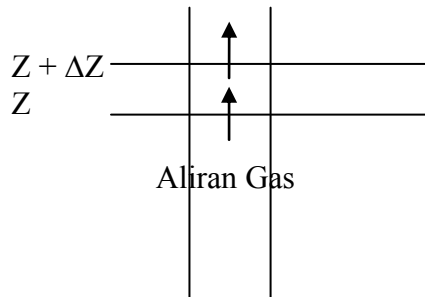
Data untuk suhu 1773 K dari persamaan di atas akan menghasikan harga  $k$  seperti pada Tabel 2 [8]:

Tabel 2. Data koefisien reaksi pada suhu 1773 K

Koefisien reaksi	$k' [1/dt]^{[7]}$	$k [mmol/dt cm^3 atm]$
k1	913,856	0,008749
k2	10315,53	0,098761
k3	10,7902	1,0331E-04
k4	1,11E-04	1,06575E-09
k5	1,3915E-05	1,3321E-10
k6	5,5658E-05	5,3287E-10
k7	4,4452E-4	4,263E-09

### 3.3. Penyusunan Persamaan Diferensial

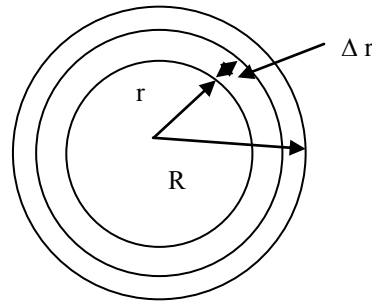
Penyusunan PD yang mewakili proses dekomposisi, polimerisasi dan deposisi padatan pada kernel dapat disusun dengan mengenakan neraca massa pada elemen volume pada Gambar 4.



Gambar 4. Elemen volume reaktor fluidisasi

Asumsi aliran gas adalah *flugflow* dan kernel adalah *mixed flow*. Harga  $\epsilon$  adalah perbandingan volume gas dan volume silinder.  $S$  adalah luas permukaan reaktor dan  $N_b$  adalah jumlah butir yang akan dilapisi. Pada elemen volume  $S \times \Delta Z$  berlaku neraca massa untuk semua komponen : propilen, metana, asetilen, hidrogen, dan benzena yang dapat disusun sebagai berikut<sup>[13]</sup>:

Perhitungan neraca massa propilen dan gas-gas lain didasarkan pada elemen volume pada kolom fluidisasi yang berbentuk silender, dan pada reaksi deposisi pirokarbon menggunakan increment radius  $\Delta r$ , seperti digambarkan pada Gambar 5.



Gambar 5. Elemen volume deposisi pirokarbon

Neraca massa untuk gas  $C_3H_6$ :

Gas  $C_3H_6$  masuk – gas  $C_3H_6$  keluar – gas  $C_3H_6$  akumulasi = 0

$$F_{C_3H_6} \Big|_Z - F_{C_3H_6} \Big|_{Z+\Delta Z} - r_1 \in S \Delta S - r_2 \in S \Delta S - n_5 S \Delta S Nb 4\pi r^2 = 0$$

$$\frac{F_{C_3H_6} \Big|_Z - F_{C_3H_6} \Big|_{Z+\Delta Z}}{\Delta Z} = -S \in k_1 P_{C_3H_6} - S \in k_2 P_{C_3H_6} - S Nb 4\pi r^2 k_4 P_{C_3H_6} \quad (28)$$

Dengan diambil  $\Delta Z$  mendekati 0 maka diperoleh persamaan diferensial :

$$\frac{dFC_3H_6}{dz} = -S \in k_1 P_{C_3H_6} - S \in k_2 P_{C_3H_6} - 4\pi SN_b r^2 k_4 P_{C_3H_6} \quad (29)$$

Proses dekomposisi dan polimerisasi untuk senyawa propilen, dapat disusun persamaan diferensial untuk gas-gas yang lain dan diperoleh persamaan-persamaan diferensial sbb:

$$\frac{dFC_2H_4}{dz} = S \in k_2 P_{C_3H_6} - 4\pi SN_b r^2 k_5 P_{C_2H_2} \quad (30)$$

$$\frac{dFC_2H_2}{dz} = S \in k_2 P_{C_3H_6} - S \in k_3 P_{C_2H_2} - 4\pi SN_b r^2 k_5 P_{C_2H_2} \quad (31)$$

$$\frac{dFC_6H_6}{dz} = \frac{1}{2} S \in k_1 P_{C_3H_6} - \frac{1}{3} S \in k_3 P_{C_2H_2} - 4\pi SN_b r^2 k_6 P_{C_6H_6} \quad (32)$$

$$\frac{dFH_2}{dz} = \frac{3}{2} S \in k_1 P_{C_3H_6} + 4\pi S N_b r^2 . \quad (33)$$

$$(3 k_4 P_{C_3H_8} + 2k_5 P_{C_2H_2} + 4k_6 P_{CH_4} + 3k_7 P_{C_6H_6})$$

Kecepatan alir komponen total dapat ditulis sbb:

$$F_{total} = F_{C_3H_6} + F_{CH_4} + F_{C_2H_2} + F_{C_6H_6} + F_{H_2} + F_{argon} \quad (34)$$

Gas yang terdeposisi menjadi padatan adalah  $C_3H_6$ ,  $CH_4$ ,  $C_2H_2$  dan  $C_6H_6$ , dapat dinyatakan dengan persamaan 35.

$$\frac{dr}{dt} = \frac{M_g}{\rho_g} (3k_4 P_{C_3H_6} + k_5 P_{CH_4} + 2k_6 P_{C_2H_2} + 6k_7 P_{C_6H_6}) \quad (35)$$

Boundary Condition (Kondisi batas)

$$Z = 0 : F_{C_3H_6} = F_{C_3H_6(0)}; F_{C_2H_2} = F_{C_2H_2(0)}; F_{H_2} = F_{H_2(0)};$$

$$F_{C_6H_6} = F_{C_6H_6(0)} \quad t=0 \quad r = R \quad (36)$$

### 3.4. Penyelesaian Persamaan Differensial

Persamaan diferensial dari persamaan 29 s/d 33 dan dengan syarat batas persamaan 36, diselesaikan dengan Program Matlab secara simultan. Pada program ini digunakan data input untuk propilen yang dicampur dengan gas argon sebagai gas pembawa. Terjadinya fluidisasi pada reaktor fluidisasi memerlukan kecepatan alir gas dalam reaktor fluidisasi harus lebih besar dari kecepatan minimum fluidisasi. Kecepatan minimum fluidisasi dihitung dari persamaan

$$U_{mf} = \frac{(\Psi dp)^2}{150 \mu} [g(\rho_c - \rho_g)] \frac{\epsilon_{mf}^3}{1 - \epsilon_f} \quad (37)$$

$$\epsilon_{mf} = \left( \frac{0,071}{\Psi} \right)^{1/3} \quad (38)$$

Keterangan :

- $\Psi$  = sperisitas
- $\mu$  = viskositas gas
- $g$  = kecepatan gravitasi
- $dp$  = diameter partikel kernel

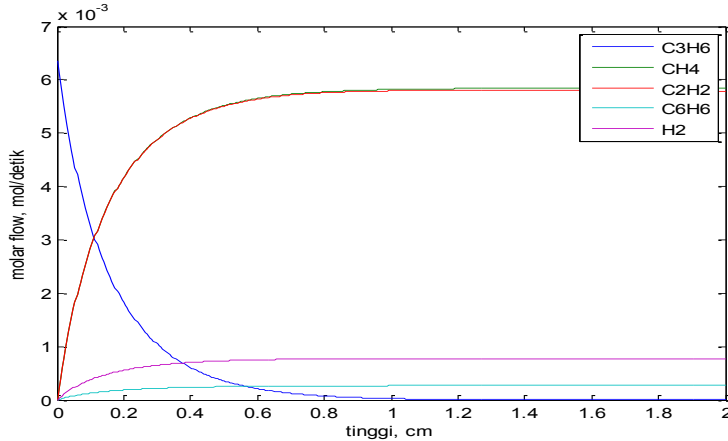
- $\rho_c$  = densitas kernel  
 $\rho_g$  = densitas gas  
 $\epsilon_{mf}$  = Fraksi *void* pada minimum fluidisasi  
 $U_{mf}$  = kecepatan minimum fluidisasi

Harga  $\Psi$  adalah ukuran kebulatan partikel yang diukur dari luas permukaan kalau semua partikel berbentuk bola dan luas permukaan sebenarnya. Harga  $\epsilon_{mf}$  dihitung dari persamaan (38) diperoleh = 0,52889. Diameter  $d_p$  diambil = 0,00073 m dari rata-rata diameter partikel pada pelapisan pirokarbon densitas tinggi yang diameter dari 0,00069 m pada awal pelapisan sampai diameter = 0,00077 cm pada ketebalan lapisan 40  $\mu\text{m}$ . Densitas kernel juga diambil sebesar 4,415  $\text{kg/m}^3$  dari rata-rata sebelum pelapisan 7,909  $\text{kg/m}^3$  menjadi 3,972  $\text{kg/m}^3$  setelah pelapisan. Densitas gas dianggap densitas argon = 1,6228  $\text{kg/m}^3$  dan viskositas argon = 0,000212  $\text{kg/m}\cdot\text{dt}$ . Dengan menggunakan persamaan (37) untuk sistem fluidisasi kernel dengan argon diperoleh kecepatan minimum fluidisasi = 1,5129  $\text{m/dt}$  sehingga kecepatan gas pada reaktor fluidisasi yang diambil = 1,2 kecepatan fluidisasi menjadi 1,8155  $\text{m/dt}$ . Untuk diameter = 2 cm maka dapat dihitung debit gas fluidisasi sebesar 356,29  $\text{cm}^3/\text{dt}$ . Dari data debit gas masuk tersebut dapat dihitung kecepatan mol gas masuk adalah 15,90  $\text{mmol/dt}$ . Misalnya fraksi propilen dalam gas = 40%, maka kecepatan masuk gas  $\text{C}_3\text{H}_6 = F_{\text{C}_3\text{H}_6} = 6,36$   $\text{mmol/dt}$  dan argon = 9,54  $\text{mmol/dt}$ . Nilai ini dimasukkan dalam perhitungan Matlab.

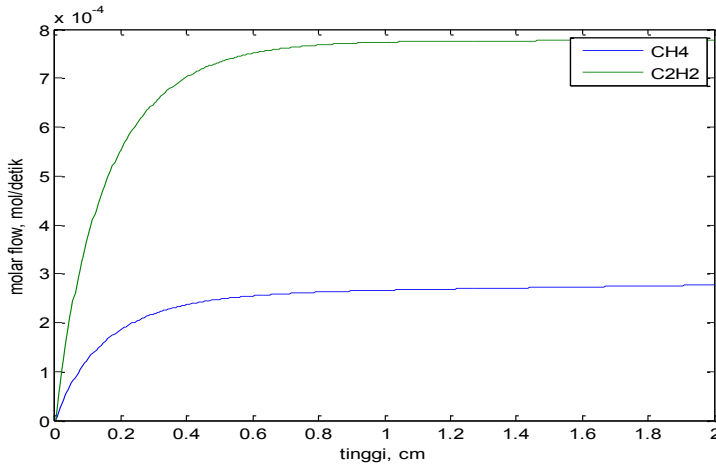
Tinggi fluidisasi dalam reaktor fluidisasi tidak begitu besar, karena kecepatan alir yang masuk juga tidak begitu besar. Diasumsikan bahwa ketinggian fluidisasi hanya 2 cm, selepas itu gas hidrokarbon sudah tidak kontak dengan kernel lagi sehingga sudah tidak terjadi pelapisan lagi dari gas ke kernel. Karena itu tinggi terjadinya fluidisasi hanya dihitung sampai 2 cm.

Untuk pengisian data dari  $N_b$  yaitu jumlah butir kernel yang terdapat dalam reaktor fluidisasi didekati dengan pendekatan fraksi padatan pada waktu diam dari kernel. Volume ruang yang terisi kernel pada awal dihitung terlebih dahulu. Untuk reaktor diameter 2 cm dan tinggi bagian kerucut = 2 cm maka volume kernel yang terisi sampai dibagian kerucut saja diperoleh 2,09  $\text{cm}^3$ . Menggunakan fraksi volume padatan = 0,52 dengan diameter butir 0,00073 m (dianggap seragam dan semuanya bentuk butiran bola), maka volume padat dapat dihitung sebesar 1,088  $\text{cm}^3$ . Volume padat juga sama dengan volume kernel di kalikan jumlah butir. Dengan menggunakan persamaan volume tersebut dapat diperoleh jumlah  $N_b = 5347$  butir untuk volume 2,09  $\text{cm}^3$ .

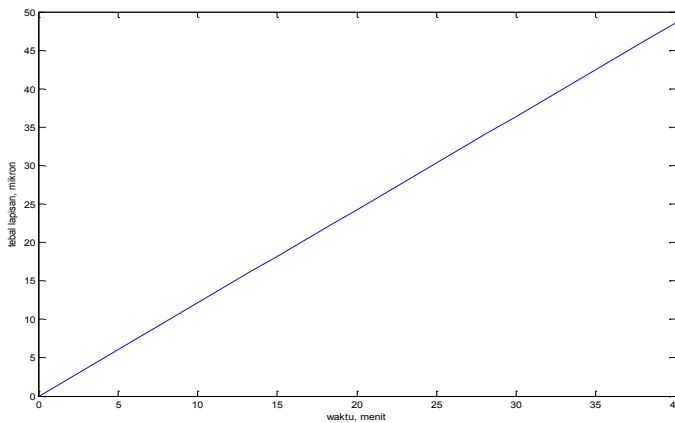
Dengan menggunakan data-data tersebut dan model pelapisan propilen dan dapat diperoleh hubungan kecepatan alir setiap fraksi pada posisi reaktor atau waktu operasi. Gambar 6 menunjukkan aliran gas propilen, metana, asetilen, benzene dan gas  $H_2$  pada setiap posisi ketinggian reaktor fluidisasi. Propilen terurai menjadi metana, etilen, benzene dan hydrogen. Peruraian propilen berlangsung cepat sehingga pada ketinggian kurang dari 1 cm sudah selesai. Gambar 7 menunjukkan hasil peruraian yang kadarnya relative kecil yaitu benzene dan hidrogen. Proses deposisi hidrokarbon digambarkan pada Gambar 8. Pada Gambar 8 terlihat grafik hubungan antara ketebalan pirokarbon (micron) fungsi waktu. Untuk mencapai ketebalan pirokarbon 40 mikron yaitu ketebalan pirokarbon densitas tinggi bagian dalam dan luar, diperlukan waktu deposisi 30 menit.



Gambar 6. Gas hasil dekomposisi propilen pada reaktor fluidisasi



Gambar 7. Gas konsentrasi rendah hasil dekomposisi propilen pada reaktor fluidisasi



Gambar 8. Hubungan tebal pirokarbon dengan waktu pelapisan

Dari perhitungan diatas ternyata bahwa gas propilen mudah terdekomposisi hanya dalam waktu singkat atau sampai ketinggian reaktor 0,4 cm dari pemasukan gas, gas sudah terdekomposisi semua. Hasil dekomposisi adalah asetilen, hidrogen, benzena dan metana. Sebagian gas juga terdeposisi sebagai pirokarbon. Senyawa hasil dekomposisi propilen, terdekomposisi lagi menjadi benzena dan sebagian terdeposisi menjadi pirokarbon. Benzena dan metana juga terdeposisi menjadi pirokarbon. Dari hasil perhitungan tersebut maka proses pelapisan harus dilakukan tepat pada kernel terfluidisasi, sehingga pemanasan sampai suhu fluidisasi hanya pada saat gas mencapai kernel yang terfluidisasi. Bila pemanasan gas sudah sejak

awal sebelum gas mencapai kernel, maka dimungkinkan terjadi pelapisan pada saluran pemasukan gas masuk, sebelum mencapai kernel yang akan dilapisi. Sebagai hasil dekomposisi adalah gas  $H_2$ , metana, asetilen, bensena dan gas hidrokarbon lain dalam jumlah kecil. Komposisi gas keluar adalah metana dan etilen sekitar 4,8 mmol/det, benzena 0,6 mmol/det dan hidrogen 0,2 mmol/dt. Sebagian gas dalam reactor yaitu propilen, metana, asetilen, benzena terdeposit menjadi pirokarbon. Tebal deposisi pirokarbon setebal 40 mikron tercapai dalam waktu 35 menit proses pelapisan. Hasil modeling proses pelapisan pirokarbon ini, dapat digunakan untuk memperkirakan fenomena yang akan terjadi pada proses pelapisan sehingga segala sesuatunya dapat diantisipasi.

#### IV. KESIMPULAN

Proses pelapisan dengan pereaksi propilen akan menghasilkan banyak senyawa hidrokarbon. Hasil dekomposisi gas propilen yang jumlahnya banyak adalah metana, etilen, bensena dan hidrogen. Sedangkan senyawa hidrokarbon yang jumlahnya sedikit diabaikan. Etilen hasil dekomposisi akan segera berubah menjadi bensena dan sebagian terdeposit menjadi pirokarbon. Bensena yang terbentuk juga langsung terdekomposisi dan terdeposit menjadi pirokarbon. Proses dekomposisi dan deposisi hanya terjadi pada jarak 2 cm dari pemasukan gas. Oleh karena itu pemanasan gas diusahakan hanya pada bagian fluidisasi kernel. Dari hasil perhitungan menggunakan MATLAB dengan kecepatan alir gas masuk 1,1134 m/dt dan fraksi propilen dalam argon 0,4; terjadi reaksi dekomposisi hidrokarbon dan deposisi pirokarbon terjadi sampai pada ketinggian 0,4 cm dari pemasukan gas. Hasil dekomposisi hidrokarbon yang paling banyak adalah metana dan etilen sekitar 5,8 mmol/det, bensena 0,78 mmol/det dan hidrogen 0,25 mmol/dt. Sedangkan proses deposisi pirokarbon untuk mencapai ketebalan lapisan 40 mikron diperlukan waktu pelapisan 33 menit.

#### V. DAFTAR PUSTAKA

1. Power, J. J. and Wirth, B.D. (2010). A Review of Triso Fuel Performance Models. *Journal of Nuclear Materials*, Department of Nuclear Engineering, University of California, Berkeley. 405.
2. PETTY, D., BELL, G., AND AGR TEAM. (2005). The DOE Advanced Gas Reaktor (AGR) Fuel Development and Qualification Program, International Congress On Advanced In Nuclear Power Plant, INEEL/CON 04-02418, USA.



3. Feltus, M. (2003). Advanced Gas Reaktor Fuel Development and Qualification Program. Overview and Planning FY04, FY05, Advanced Gas Reaktor-VHTR Fuel Development. US-DOE.
4. Verfondern, K., Nabielek, H., Kendall, J.M. (2007). Coated Particle Fuel For High Temperature Gas Cooled Reaktors. Julich: Research Center Julich (FZJ).
5. KUSNANTO, BUSRON MASDUKI, SUKARSONO. (1996). Pembuatan Lapisan pada *Coated Particle* untuk Bahan Bakar Reaktor Temperatur Tinggi. Prosiding Seminar Lokakarya ke 3 Teknologi dan Aplikasi Reaktor Temperatur Tinggi, Jakarta.
6. BECKER, A., AND HUNTTINGER, K. J. (1998). Chemistry and Kinetic of Chemical Vapor Deposition of Pyrocarbon-II Pyrocarbonm Deposition from Ethylene, Acetylene and 1,3 – Butadiene in the low Temperature Regime, Carbon, 36, 3. Karlsruhe: Institute fur Chemische Technik, Universitat Karlsruhe.
7. BECKER, A., AND HUNTTINGER, K. J. (1998). Chemistry and Kinetic of Chemical Vapor Deposition of Pyrocarbon-III Pyrocarbonm Deposition from Propylene and Benzene in the Temperature Regime, Carbon, 36, 3. Karlsruhe: Institute fur Chemische Technik, Universitat Karlsruhe.
8. Li, H., Li, A., Bai, R. and Li, K. (2005). Numerical Simulation of Chemical Vapor Infiltration of Propylene into C/C Composites with Reduced Multi-step Kinetic Models, Carbon, 43. Xi'an China: Northwestern Polytechnical University.
9. Delhaes, P. (2002). Chemical Vapor Deposition and Infiltration Processes of Carbon Materia, Carbon, 40. Pessax Cedex: Centre de Recherche Paul Pascal, University of Bordeaux.
10. Dong, D.L., AND Huttinger, K.J. (2002). Consideration of Reaction Mechanisms Leading to Pyrolytic Carbon of Different Textures Carbon, 40. Karlsruhe: Institute fur Chemische Technik, Universitat Karlsruhe.