

LITBANG PENGUASAAN MATERIAL DAN MODELING FABRIKASI GEL ADU

Ariyani Kusuma Dewi, R. Sukarsono, Meniek Rachmawati, Kristanti
Nurwidyaningrum, Sri Rinanti S., Dedy Husnurrofiq, Sarjono, Sugeng Riyanto
Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir - BATAN

ABSTRAK

Penelitian bahan bakar reaktor suhu tinggi mendukung Rencana strategis BATAN di bidang energi pada sistem pemasok energi nuklir kogenerasi HTGR. Fasilitas reaktor yang direncanakan dibangun sebagai langkah awal adalah Reaktor Daya Eksperimental (RDE). Salah satu tugas PTBBN adalah melaksanakan litbang bahan bakar reaktor daya, diharapkan dapat berkontribusi pada penyediaan bahan bakar yang sustainable/berkelanjutan untuk pengoperasian RDE. Untuk maksud tersebut, penguasaan teknologi fabrikasi bahan bakar RDE menjadi sangat penting. Penguasaan teknologi fabrikasi gel ADU meliputi pemahaman material proses, proses fabrikasi dan peralatan fabrikasi gel ADU. Penguasaan teknologi fabrikasi gel ADU perlu didukung dengan modeling sebagai simulasi untuk mempresentasikan proses fabrikasi gel ADU sehingga diperoleh data-data yang diperlukan dalam merancang proses. Kegiatan penelitian dan pengembangan dalam penguasaan material dan modeling fabrikasi gel ADU meliputi tinjauan literatur mengenai persyaratan material fabrikasi gel ADU yang memenuhi spesifikasi bahan bakar HTR dan penyusunan model matematika fabrikasi gel ADU. Dari penelitian yang telah dilakukan diperoleh kesimpulan bahwa sebagian besar material yang telah digunakan sudah memenuhi spesifikasi. Sedangkan untuk material PVA, dipilih spesifikasi *fully-hydrolyzed*, derajat polimerisasi dan berat molekul yang tinggi. Pemodelan telah disusun untuk sistem pelarutan U_3O_8 dan gelas eksternal. Dari hasil simulasi dengan komputer diperoleh hasil pemodelan mendekati hasil percobaan di lapangan.

Kata Kunci : Material, Modeling, Fabrikasi, Gel ADU

PENDAHULUAN

Kebijakan litbang BATAN di bidang energi mengikuti dan mempertimbangkan *trend* kegiatan pengembangan teknologi reaktor daya dunia, yang mengarah kepada litbang sistem pemasok energi nuklir serba guna dengan siklus kogenerasi yang lebih efisien dan ramah lingkungan, aman, ekonomis, dan berkelanjutan, serta dapat memasok energi untuk berbagai kebutuhan, baik untuk pembangkitan listrik maupun energi panas proses industri (meliputi produksi hidrogen, pencairan dan gasifikasi batubara, EOR dan desalinasi), yang disebut reaktor daya generasi IV^[1]. Di antara reaktor Generasi IV, reaktor suhu tinggi berpendingin gas (HTGR) adalah reaktor yang kinerja dan ketersediaan teknologinya memungkinkan untuk diimplementasikan di Indonesia dalam waktu sepuluh tahun ke depan^[2]. Dalam rangka mendukung kebijakan BATAN, PTBBN merencanakan kegiatan litbang teknologi bahan bakar untuk memasok Reaktor Daya Eksperimental (RDE). Dalam pengoperasiannya, RDE haruslah *sustainable/berkelanjutan*. Oleh karena itu, tujuan strategis kegiatan bangtek bahan bakar RDE adalah penyediaan bahan bakar RDE yang *sustainable/berkelanjutan* untuk pengoperasian RDE. Salah satu strategi penyediaan bahan bakar nuklir yang berkelanjutan adalah domestifikasi industri bahan bakar nuklir. Untuk maksud tersebut, penguasaan teknologi bahan bakar RDE

menjadi sangat penting. Penguasaan teknologi fabrikasi bahan bakar mensyaratkan antara lain pemahaman material proses, proses fabrikasi bahan bakar, dan peralatan fabrikasi bahan bakar. Penguasaan material, proses dan peralatan fabrikasi hanya bisa diperoleh melalui eksperimen.

Penguasaan teknologi fabrikasi gel ADU perlu didukung dengan modeling sebagai simulasi untuk mempresentasikan proses fabrikasi gel ADU sehingga diperoleh data-data yang diperlukan dalam merancang proses.

TEORI

1. MATERIAL PROSES

Penguasaan material dalam fabrikasi gel ADU sangat penting dalam memperoleh hasil proses yang memenuhi persyaratan spesifikasi bahan bakar HTR. Berikut ini beberapa material dan persyaratan yang diperlukan dalam fabrikasi gel ADU.

A. U_3O_8

U_3O_8 merupakan bahan baku dalam fabrikasi bahan bakar RDE. Material ini diperoleh melalui proses pembakaran dari uranium oksida dan garam uranium dalam udara (kalsinasi) pada suhu di atas 800 – 900 °C. U_3O_8 berbentuk serbuk dengan warna *olive green*, hijau kehitaman atau hitam tergantung pada kondisi pengolahannya. U_3O_8 memiliki struktur *rhombic*, densitas berdasarkan hasil difraksi sinar-X sebesar 8,39 g/cm³, sedangkan berdasarkan hasil eksperimen bervariasi antara 6,97 – 8,34 g/cm³ [3]. Persyaratan material U_3O_8 yang memenuhi spesifikasi pembuatan bahan bakar HTR dapat dilihat pada Tabel 1 berikut ini.

Tabel 1. Persyaratan material U_3O_8

| U_3O_8 – Sifat umum | |
|-----------------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Sinonim | |
| Boron Equivalent | ≤ 10 ppm |
| Kandungan Uranium | ≥ 84% berat |
| Komposisi isotopik | 19,8% ± 0,05% U-235 |
| Kandungan Kelembaban | ≤ 0,5% berat, basis kering |
| Kelarutan | Minimal 99% dari material dapat larut setelah 4 jam pada 85° sampai 95° C dalam pelarut asam nitrat dengan rasio mol NO ₃ /U dalam larutan akhir sebesar ≤ 1,8 |
| Luas Muka | Luas muka serbuk yang diukur dengan uji adsorpsi standar harus ≥ 2,0 m ² /g |
| <i>Workmanship</i> | Kualitas material harus <i>uniform</i> dan sesuai dengan uji makroskopik, tidak mengandung material <i>tramp</i> ataupun partikel asing melebihi 30 partikel per gram material. |

B. Amonium Hidroksida (NH₄OH)^[4]

Amonium Hidroksida 7M diperlukan untuk pre-netralisasi Uranium Nitrat dan 12,5 M Amonium Hidroksida digunakan untuk proses penetasan. Amonium Hidroksida harus murni, konsentrasi amonia tidak kurang dari 25% berat.

Tabel 2. Sifat-sifat fisis larutan Amonium Hidroksida

| Larutan Amonium Hidroksida – Sifat umum | |
|-----------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Sinonim | <i>Ammonia aqueous, Ammonia water</i> |
| CAS number | 1336-21-6 |
| Rumus linear | NH ₄ OH |
| Berat Molekul | 35,05 |
| Nomor register <i>Beilstein</i> | 3587154 |
| MDL number | MFCD00066650 |
| <i>PubChem Sub stance</i> | ID 24853221 |
| Kategori terkait | <i>ACS Grade Acids & Bases, Acids & Bases, Analytical Reagents for General Use, Analytical/ Chromatography, Bases, Chemical Synthesis, Inorganic Bases, Synthetic Reagents</i> |
| Tingkat mutu | PREMIUM |
| <i>Grade</i> | Murni |
| Assay | 28,0-30,0% NH ₃ |
| Batas ledak | 27% |
| Densitas | 0.9 g/mL at 25°C |
| Suhu penyimpanan | 2-8°C |

C. Anhydrous Ammonia^[4]

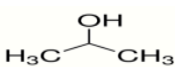
Amonia diperlukan untuk mengeraskan permukaan kernel yang baru saja terbentuk di ujung kolom *casting*/penetasan. Volume molar STP adalah 22,078 dm³/mol (17g) dan densitas STP ammonia adalah 0,7714kg/m³. Kandungan ammonia harus paling sedikit 99,9% volume.

Tabel 3. Sifat-sifat fisis Amonia

| Larutan Amonium Hidroksida – Sifat umum | |
|-----------------------------------------|---------------------------|
| Sinonim | - |
| CAS number | 7664-41-7 |
| Rumus linear | NH ₃ |
| UN Number | UN 1005 |
| ECCN Number | 1C980 |
| DOT <i>Proper Shipping Name</i> | <i>Ammonia, Anhydrous</i> |
| DOT <i>Classification</i> | 2,2 (Nonflammable Gas) |

| | |
|------------------|-----------------------------------------------|
| DOT Label | NON-FLAMMABLE GAS |
| TC Shipping Name | <i>Ammonia, Anhydrous, Liquefied</i> |
| Klasifikasi TC | 2.4, 9.2 |
| TC Label | CORROSIVE GAS |
| Berat Molekul | 17,03 |
| Packing | Tabung gas, Botol gas |
| LFL dalam udara | 16% |
| UFL dalam udara | 25% |
| | Paparan yang diperbolehkan |
| Batas (TLV) | 25 ppm |
| Tingkat Mutu | Kualitas Industri |
| Grade | Murni |
| Densitas | 0.709 kg/m ³ (21.1°C, 101.325 kPa) |
| Volum spesifik | 1.41 m ³ /kg (21.1°C, 101.325 kPa) |

D. Isopropyl Alcohol (IPA)^[4]

IPA  digunakan untuk mencuci kernel yang bebas dari air setelah proses aging dan pencucian dengan air.

Tabel 4. Sifat-sifat fisis IPA

| IPA – Sifat umum | |
|---------------------------------|----------------------------------------------------------------------------|
| Sinonim | <i>2-Propanol, sec-Propyl alcohol, IPA, Isopropanol, Isopropyl alcohol</i> |
| CAS number | 67-63-0 |
| Rumus linear | (CH ₃) ₂ CHOH |
| Berat Molekul | 60,10 |
| Nomor register <i>Beilstein</i> | 635639 |
| EC number | 200-661-7 |
| FEMA number | 2929 |
| Flavis number | 2.079 |
| MDL number | MFCD00011674 |
| PubChem Sub stance | ID 24901402 |
| Kategori terkait | <i>2-Propanol (Isopropanol), Flavors and Fragrances, Solvents</i> |
| Sumber hayati | Sintesis |
| Grade | Murni, kandungan air kurang dari 1 g/l |
| Densitas uap | 2,1 (vs udara) |
| Tekanan uap | 33 mmHg (20 °C) 44 mmHg (25 °C) |
| Assay | ≥ 99,7% |

| | |
|-------------------|--------------------------------|
| Batas ledak | 2% |
| Indeks refraktif | n _{20/D} 1.377 (lit.) |
| Titik didih | 82° C (lit.) |
| Titik Leleh | -89.5 C (lit.) |
| Densitas | 0.785 g/mL at 25°C (lit.) |
| Suplier potensial | Sigma-Aldrich Co. LLC |

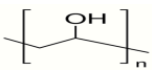
E. Asam Nitrat (HNO₃)^[4]

Asam nitrat digunakan dalam pelarutan U₃O₈ menjadi larutan Uranil nitrat yang merupakan salah satu bahan penyiapan larutan umpan gelas.

Tabel 5. Sifat-sifat fisis Asam Nitrat

| HNO ₃ – Sifat umum | |
|-------------------------------|--------------------------|
| Sinonim | <i>Nitric acid conc.</i> |
| CAS Number | 7697-37-2 |
| Berat Molekul | 63.01 |
| Kategori Terkait | Asam |
| Tingkat Mutu | MURNI |
| Grade | Untuk sintesis |
| Assay | ≥65% |
| Titik Didih | 120,5° C |
| Densitas | 1,413 g/ml pada 20° C |

F. Polyvinylalcohol (PVA)^[4]

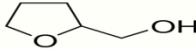
Polyvinyl alcohol (PVA) dari jenis Mowiol 56-98 , diperlukan sebagai aditif untuk larutan *casting*. Densitas *bulk* dari butiran PVA berkisar 0,4-0,6kg/l.

Tabel 6. Sifat-sifat fisis PVA

| PVA – Sifat umum | |
|------------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Sinonim | Poly (vinyl alcohol) |
| CAS Number | 9002-89-5 |
| Rumus linear | $[-CH_2CHOH-]_n$ |
| EC Number | 209-183-3 |
| MDL Number | MFCD00081922 |
| Kategori terkait | <i>Hydrophilic Polymers, Materials Science, Poly (vinyl alcohol) (PVA), (vinyl alcohol) (PVA) and Copolymer Science</i> |
| Berat Molekul | BM ~195,000 |

| | |
|---------------------|------------------------------------------------------------------|
| | 98.0-98.8 mol% <i>hydrolysis</i> ~4,300 <i>polymerization</i> |
| <i>Impurities</i> | 1.1-1.9% kandungan residu <i>acetyl</i> |
| <i>Ign. Residu</i> | ≤ 1% |
| Viskositas | 52-60 mPa.s, 4% in H ₂ O (20°C) |
| <i>Ester number</i> | 15 25 |
| Supplier potensial | Sigma-Aldrich Co. LLC |

G. THFA^[4]

THFA  diperlukan untuk mempersiapkan larutan *casting*. Densitas dari THFA adalah 1,054 kg/l, titik didih 178°C pada 101,3 kPa, suhu *auto ignition* 282°C, titik nyala 72°C, dan tekanan uap pada 20°C adalah 30 Pa. Batas atas ledakan diudara 9,7% vol. dan batas atas ledakan 1,5% vol. Penampakan fisik: cairan tidak berwarna.

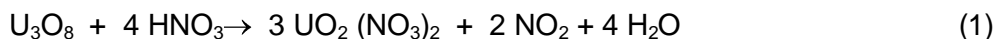
Tabel 7. Sifat-sifat fisis THFA

| THFA – Sifat umum | |
|---------------------------|-----------------------------------------------|
| Sinonim | NSC 15434, Tetrahydro-2-furanmethanol |
| <i>CAS Number</i> | 97-99-4 |
| Rumus empiris | C ₅ H ₁₀ O ₂ |
| Berat Molekul | 102.13 |
| Nomor register Beilstein | 102723 |
| <i>EC number</i> | 202-625-6 |
| <i>FEMA number</i> | 3056 |
| <i>Flavis number</i> | 13.020 |
| <i>MDL number</i> | MFCD00005372 |
| <i>PubChem Sub stance</i> | ID 24901453 |
| Kategori terkait | <i>Flavors and Fragrances</i> |
| Sumber hayati | Sintesis |
| <i>Grade</i> | Murni |
| Densitas uap | 3.52 (vs udara) |
| Tekanan uap | 2.3 mmHg (39 °C) |
| <i>Assay</i> | ≥ 98% |
| Batas ledak | 9,7% |
| Indeks refraktif | n ₂₀ / D 1.452(lit.) |
| Titik didih | 178° C (lit.) |
| Titik leleh | -80° C (lit.) |
| Densitas | 1.054 g/mL at 25°C (lit.) |
| Suplier potensial | Sigma-Aldrich Co. LLC |

MODELING FABRIKASI GEL ADU

A. Modeling Pelarutan U₃O₈^[5]

Pelarutan uranium menggunakan asam nitrat (HNO₃) pada suhu tertentu, diperoleh larutan uranil nitrat dengan kadar uranium, ion nitrat, dan keasaman tertentu. Larutan uranil nitrat merupakan bahan utama pembuatan larutan sol untuk umpan proses gelasi. Serbuk U₃O₈ dilarutkan dengan asam nitrat dengan konsentrasi antara 5-7 N dan dipanaskan pada suhu tertentu. dan menghasilkan Uranil Nitrat. Reaksi antara U₃O₈ dan HNO₃ bersifat eksotermis sambil mengeluarkan gas NO₂ berwarna merah kecoklatan sebagai berikut :



Pemodelan proses pelarutan dimaksudkan untuk mendapatkan model matematis yang dapat mendiskripsikan secara kuantitatif proses pelarutan. Oleh karena itu diperlukan penyusunan neraca massa pada proses yang ditinjau. Untuk proses pelarutan, serbuk padatan A diasumsikan berupa bola jari-jari R, berjumlah Nb butir, dimasukkan ke dalam tangki berpengaduk yang berisi solven murni dengan massa m. Laju pelarutan A mengikuti persamaan:

$$N_A = k_x (X_s - X) \tag{2}$$

Dengan N_A dalam (kg_A)/(waktu x luas) dan X adalah kadar A dalam larutan (kg_A)/(kg_{solven}), sedangkan X_s adalah kelarutan jenuh A dalam solven. Rapat massa padatan A adalah ρ_s. Jika suhu sistem dapat dianggap tetap, ingin disusun persamaan-persamaan matematis yang bisa dipakai untuk mencari jari-jari butir (r) dan kadar A dalam larutan (X) pada berbagai waktu (t).

Pada proses pelarutan U₃O₈ dapat disusun neraca massa sebagai berikut:

Neraca massa A dipadatan :

Rate of Input – Rate of Output = Rate of Accumulation

$$0 - k_x \cdot (X_s - X) \cdot 4\pi r^2 \cdot Nb = \frac{d}{dt} \left(\frac{4}{3} \pi r^3 \cdot \rho_s \cdot Nb \right) \tag{3}$$

$$-k_x (X_s - X) \cdot 4\pi r^2 = 4\pi \cdot \rho_s \cdot r^2 \cdot \frac{dr}{dt} \tag{4}$$

$$\frac{dr}{dt} = -\frac{k_x}{\rho_s} (X_s - X) \tag{5}$$

Persamaan differensial (5) mengandung 3 variabel yaitu x, r dan t, jadi belum dapat diselesaikan, masih diperlukan satu persamaan lagi. Ada 2 cara untuk mencari persamaan pelengkap tersebut.

- Perhitungan Neraca komponen A di larutan :

$$R. In - R. Out = R. Acc$$

$$k_x \cdot (X_s - X) \cdot 4\pi r^2 \cdot Nb - 0 = m \cdot \frac{dx}{dt} \quad (6)$$

$$\frac{dx}{dt} = k_x \cdot (X_s - X) \cdot 4\pi r^2 \cdot Nb / m \quad (7)$$

- Perhitungan neraca komponen A dalam tangki :

$$(A \text{ padatan} + A \text{ larutan}) \text{ saat } t = (A \text{ padatan} + A \text{ larutan}) \text{ awal} \quad (8)$$

$$\frac{4}{3}\pi r^3 \cdot \rho_s \cdot Nb + m \cdot x = \frac{4}{3}\pi R^3 \cdot \rho_s \cdot Nb + m \cdot 0 \quad (9)$$

$$X = \frac{4\pi \cdot \rho_s \cdot Nb}{3m} (R^3 - r^3) \quad (10)$$

Keadaan Batas (*Boundary Conditions*):

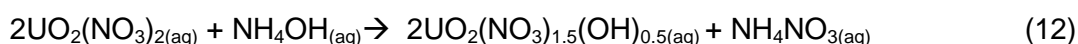
$$t = 0; X = 0; r = R \quad (11)$$

B. Modeling Pembuatan Gel ADU (Gelasi Eksternal)^[6]

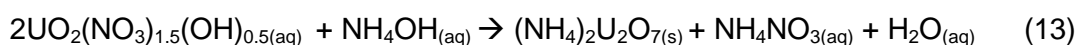
Proses gelasi eksternal adalah proses pembentukan sol menjadi gel dimana donor amoniak disediakan dari luar butiran sol. Pada proses pembuatan sol atau umpan proses gelasi, larutan ADUN (*Acid Deficient Uranyl Nitrate*) ditambah dengan zat aditif seperti PVA (*polyvinyl alcohol*) dan THFA (*tetrahydrofurfuryl alcohol*). PVA berfungsi untuk mengatur viskositas sol dan menstabilkan bentuk bulat pada tetesan sedangkan penambahan THFA dimaksudkan untuk menghindari kerusakan gel yang disebabkan oleh penyusutan dalam komponen ADU (*ammonium diuranate*) selama proses gelasi dalam medium amoniak. Proses gelasi eksternal dilakukan dalam suatu kolom gelas berisi medium amoniak pada suhu kamar.

Menurut Jeong, et al^[7] reaksi yang terjadi pada proses gelasi eksternal berturut-turut adalah:

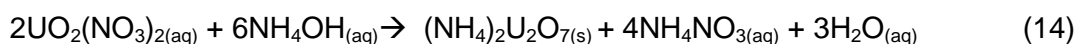
1. Reaksi yang terjadi pada proses prenetralisasi umpan uranil nitrat



2. Reaksi yang terjadi pada umpan sol di kolom gelasi

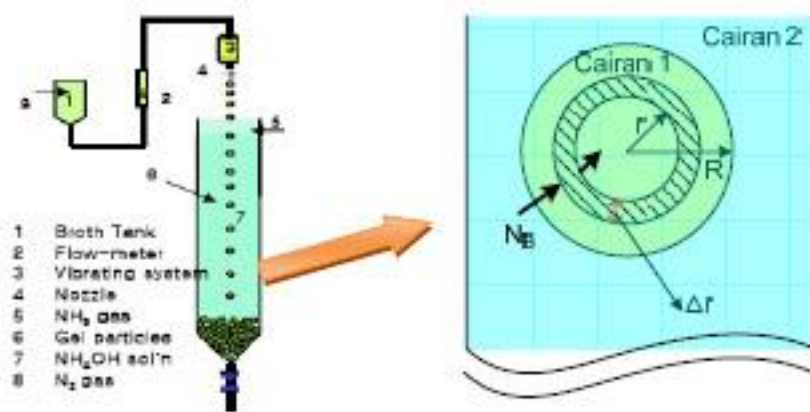


Reaksi keseluruhannya adalah:



Reaksi (14) lebih diusulkan sebagai dasar penyusun model matematisnya karena hasil antara yang terbentuk dari sederetan reaksi (12) dan (13) tidak dapat diamati atau diukur, sehingga yang teramati hanya zat pereaksi awal dan hasil akhir sehingga nampak seperti reaksi tunggal^[8].

Proses gelasi eksternal dapat diilustrasikan pada Gambar 1.



Gambar 1. Proses gelasi eksternal

Jika dimisalkan uranil nitrat adalah cairan I, sedangkan amoniak adalah cairan II maka mekanisme reaksi pada proses gelasi dapat digambarkan sebagai berikut:

- Solute A berada dalam cairan I dengan konsentrasi C_{A0} , dan solute B berada di cairan II dengan konsentrasi C_{B2} . Solut B berpindah dari cairan II ke cairan I dengan laju

$$N_{B_i} = K_c(C_{B_2} - C_{B_2}^*) \tag{15}$$

$$C_{B_2}^* = HC_B \tag{16}$$

Dengan N_{B_i} dalam *molB/(waktu x luas)*, C_B adalah konsentrasi B di cairan I dekat permukaan, $C_{B_2}^*$ adalah konsentrasi B di cairan II yang setimbang dengan konsentrasi B di cairan I dekat permukaan.

- Di cairan I, B mendifusi ke dalam dengan laju

$$N_B = -D_B \cdot \frac{dC_B}{dr} \tag{17}$$

Dengan N_B dalam *molB/(waktuxluas)* dan r adalah jarak dari pusat butir cairan I

- Di cairan I terjadi reaksi antara



Dengan laju (*mol/(waktuxvolume)*):

$$r_A = r_B = kC_A C_B \tag{19}$$

Untuk memperoleh persamaan-persamaan matematis yang dapat dipakai untuk menghitung C_A , C_B , dan C_G (*gel*) pada berbagai posisi dalam butir cairan I (r) dan waktu (t) maka disusun neraca massa:

Neraca massa B dalam elemen volume tebal Δr :

Rate of input – Rate of output – Rate of reaction = Rate of accumulation

$$\left(4\pi(r+\Delta r)^2 D_B \frac{\partial C_B}{\partial r} \Big|_{r+\Delta r}\right) - \left(4\pi r^2 D_B \frac{\partial C_B}{\partial r} \Big|_r\right) - (k C_A C_B \cdot 4\pi r^2 \cdot \Delta r) = 4\pi r^2 \cdot \Delta r \cdot \frac{\partial C_B}{\partial t} \quad (20)$$

$$\frac{(r+\Delta r)^2 \frac{\partial C_B}{\partial r} - r^2 \frac{\partial C_B}{\partial r}}{\Delta r} - \frac{k}{D_B} r^2 C_A C_B = \frac{1}{D_B} \cdot r^2 \frac{\partial C_B}{\partial t} \quad (21)$$

$\Delta r \rightarrow 0$:

$$\frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial C_B}{\partial r} \right) - \frac{k}{D_B} r^2 C_A C_B = \frac{1}{D_B} \cdot r^2 \frac{\partial C_B}{\partial t} \quad (22)$$

$$\frac{\partial^2 C_B}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial C_B}{\partial r} - \frac{k}{D_B} C_A C_B = \frac{1}{D_B} \frac{\partial C_B}{\partial t} \quad (23)$$

Persamaan (23) di atas belum bisa diselesaikan karena mengandung 2 independent variable (C_A, C_B), sehingga diperlukan satu persamaan lagi.

Neraca massa A dalam elemen volume tebal Δr :

Rate of input – Rate of output – Rate of reaction = Rate of accumulation

$$0 - 0 - k C_A C_B \cdot 4\pi r^2 \cdot \Delta r = 4\pi r^2 \cdot \Delta r \cdot \frac{\partial C_A}{\partial t} \quad (24)$$

$$\frac{\partial C_A}{\partial t} = -k C_A C_B \quad (25)$$

Keadaan batas pada kasus ini adalah:

$$t = 0; r = r; C_A = C_{A0}; C_B = 0 \quad (26)$$

$$t = t; r = R; \frac{\partial C_B}{\partial r} = \frac{K_c}{D_B} (C_{B2} - H C_B) \quad (27)$$

$$t = t; r = 0; \frac{\partial C_B}{\partial r} = 0 \quad (28)$$

METODOLOGI, PERALATAN DAN BAHAN

Bahan Penelitian

1. U_3O_8
2. Polyvinyl Alcohol (PVA)
3. Tetra Hydro Furfuryl Alcohol (THFA)
4. Isopropyl Alcohol (IPA)
5. Asam Nitrat (HNO_3)
6. Ammonium Hidroxyde (NH_4OH)
7. Air Bebas Mineral (ABM)

Alat Penelitian

1. Unit Pelarutan U_3O_8
2. Unit Gelasi Eksternal
3. Komputer (Software Matlab)

Prosedur Penelitian

1. Pelarutan U_3O_8

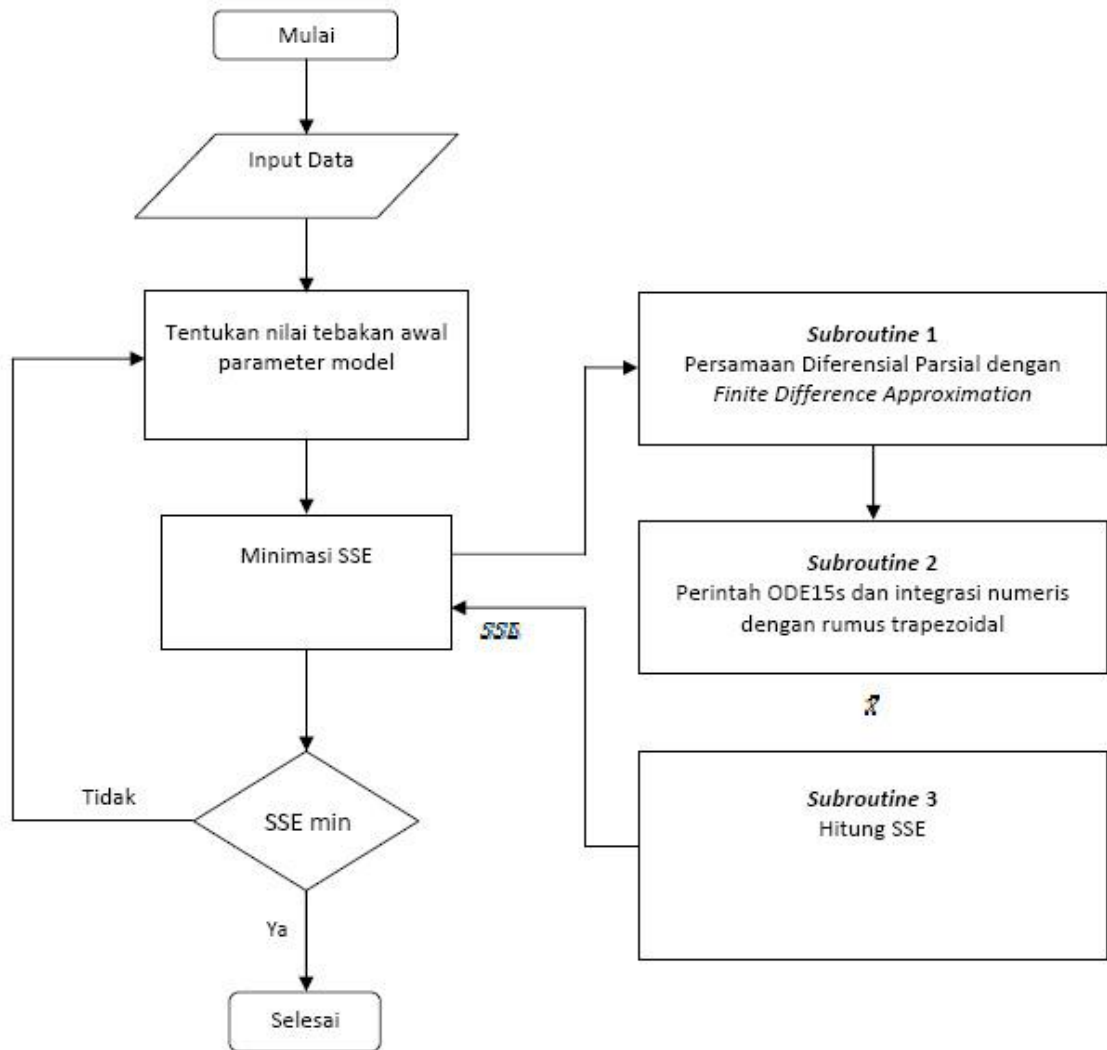
- Ditambahkan 2,5 g serbuk U_3O_8 ke dalam 3,5 mL solven HNO_3 5 N
- Suspensi tersebut diaduk dengan magnetik stirer dengan variasi lama pengadukan 24 menit,
- Langkah yang sama pada a dan b dilakukan dengan variasi lama pengadukan 24 menit, 48 menit, 72 menit, 96 menit, dan 120 menit.
- Suspensi didiamkan selama 15 menit dan dilakukan analisis kadar uranium.
- Untuk percobaan yang kedua pengadukan disertai dengan pemanasan pada suhu 60 °C.

2. Gelasi Eksternal

- Sol dan larutan medium NH_4OH yang akan digunakan disiapkan.
- Sol dimasukkan pada tempat penampung sol atas dan kran dibuka agar mengalir ke bawah pada tempat penampung sol bawah.
- Larutan NH_4OH dimasukkan ke dalam kolom gelas dengan bantuan corong yang berada pada dekat vibrator. Ketinggian larutan NH_4OH dan kolom gelas diatur. (Untuk variasi diameter orifice penetes (*nozzle*), dilakukan penggantian orifice sebelum melakukan proses penetes sol)
- Pompa peristaltik dan vibrator dinyalakan, dan diatur kecepatan aliran pompanya. Kran pada penampung sol bawah di buka hingga semua sol habis diteteskan.
- Waktu penetes seluruh sol dicatat.
- Gel hasil proses gelasi eksternal dicuci dengan isopropil alkohol dan NH_4OH 2,5% dan di keringkan selama 24 jam dalam suhu kamar

3. Analisis Data

Analisis data dilakukan dengan mencocokkan data hasil eksperimen terhadap data hasil perhitungan, untuk memperoleh nilai-nilai tetapan pada model. Proses pencocokan dilakukan dengan menggunakan metode minimasi jumlah kuadrat terhadap kesalahan (*sum of square of errors*, SSE). Algoritma perhitungan untuk memperoleh nilai parameter tersebut ditampilkan pada Gambar 2 berikut ini:



Gambar 2. Urutan proses penyelesaian model matematika dengan simulasi komputer

HASIL DAN PEMBAHASAN

1. Material Fabrikasi Gel ADU

Penggunaan beberapa material fabrikasi gel ADU sampai pada tahun 2015 sudah memenuhi persyaratan material, antara lain adalah Amonium hidroksida (NH_4OH), Amonia, *Isopropyl Alcohol* (IPA), Asam Nitrat, dan THFA. Masing-masing material tersebut sudah tersedia di pasaran dengan rentang nilai spesifikasi yang hampir sama, sehingga dalam memperoleh produk yang sesuai persyaratan tidak ditemukan adanya kendala. Sedangkan untuk material U_3O_8 dan PVA memiliki spesifikasi yang beragam, sehingga ditemukan beberapa perbedaan dari persyaratan yang telah ditentukan.

A. U_3O_8

Pada persyaratan minimal material yang dapat digunakan sebagai bahan bakar HTR, salah satunya adalah komposisi isotopik atau pengayaan sebesar $19,8\% \pm 0,05\%$ U-

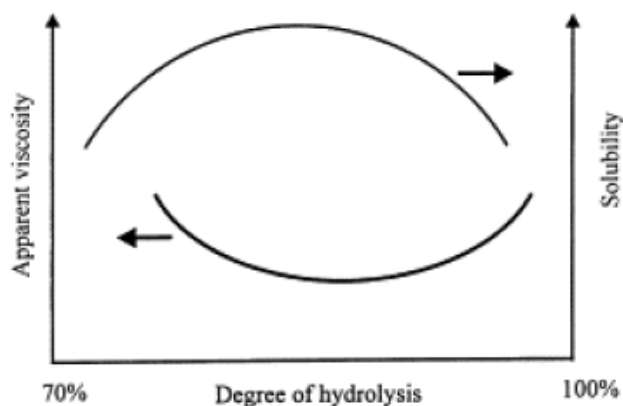
235. Nilai tersebut tidak dapat terpenuhi, karena material yang digunakan adalah uranium proses yang mengandung U-235 sebesar 0,723% saja. Namun hal ini tidak mempengaruhi teknologi fabrikasi bahan bakar yang dipakai, sedang U-235 berkaitan pada reaksi fisi dalam reaktor.

B. PVA

Beberapa jenis PVA dibedakan antara lain:

1. Berdasarkan derajat hidrolisis

PVA berdasarkan derajat hidrolisis dibedakan menjadi *fully-hydrolyzed*, *medium-hydrolyzed*, dan *partially-hydrolyzed*. Derajat hidrolisis berpengaruh pada sifat PVA dalam larutan. Dalam larutan encer PVA, sebagian dari ikatan *inter-chain* hidrogen tersisa, selain ikatan hidrogen antara rantai PVA dan molekul air yang terbentuk karena adanya pelarutan^[9]. Panjangnya ikatan baik *inter-chain* maupun *intra-chain* rantai hidrogen dan ikatan hidrogen solute-solvent sangat ditentukan oleh derajat hidrolisis dalam rantai PVA. Jadi viskositas, tegangan permukaan dan sifat larutan lainnya dapat berhubungan dengan derajat hidrolisis. Pengaruh derajat hidrolisis pada viskositas larutan dan kelarutan (*solubility*) dapat digambarkan secara skematis pada Gambar 3.



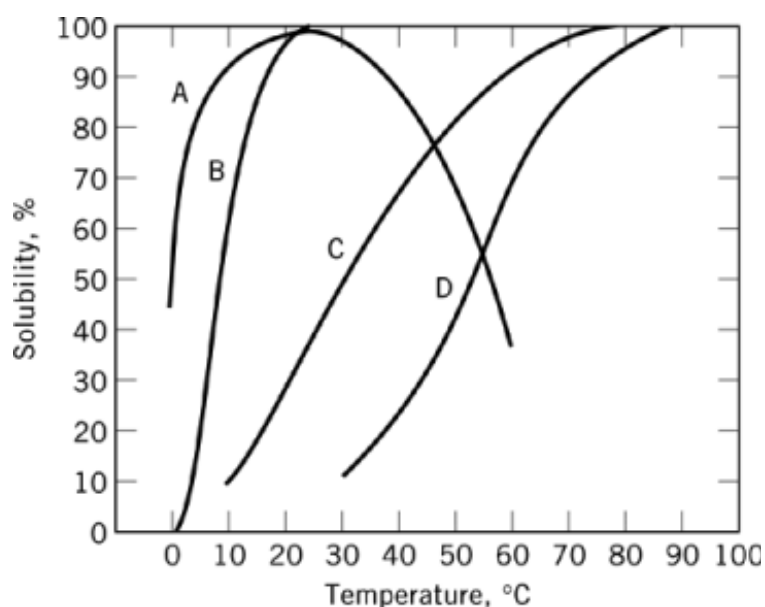
Gambar 3. diagram skematik keterkaitan antara viskositas dan derajat hidrolisis, dan antara kelarutan dan derajat hidrolisis untuk larutan encer PVA^[9].

2. Berdasarkan berat molekul (BM)/Derajat Polimerisasi (DP)

Jenis PVA berdasarkan BM dapat diklasifikasikan menjadi: *high*, *medium*, *low*, dan *super low*. Kelarutan, viskositas, dan tegangan permukaan PVA dipengaruhi pada suhu, konsentrasi, % hidrolisis dan berat molekul bahan. PVA larut dalam pelarut yang sangat polar dan hidrofilik, seperti air, dimetil sulfoksida (DMSO), Ethylene Glycol (EG), dan N-metilpirolidon (NMP). Air adalah pelarut yang paling penting bagi PVA.

Kelarutan PVA dalam air tergantung pada derajat polimerisasi (DP), hidrolisis, dan suhu larutan^[10]. Setiap perubahan dalam tiga faktor ini mempengaruhi tingkat dan karakter ikatan hidrogen dalam larutan encer, demikian juga kelarutan PVA dan sifat larutan lainnya.

Pengaruh suhu pada kelarutan PVA ditunjukkan pada Gambar 4^[11] untuk berbagai nilai DP. Pada DP rendah dan derajat hidrolisis yang rendah, kelarutan sempurna dapat dicapai bahkan pada suhu rendah (B)^[11]. Sedangkan DP meningkat pada derajat hidrolisis tinggi, suhu perlu ditingkatkan untuk meningkatkan kelarutan (C dan D). Suhu setinggi 80 sampai 90°C mungkin diperlukan untuk mendapatkan kelarutan lengkap. Pada DP rendah dan derajat hidrolisis yang sangat tinggi, polimer mulai menjadi gel pada suhu kamar dan kelarutan berkurang dengan cepat (A).



Gambar 4. Kelarutan PVA dalam air sebagai fungsi temperatur. Data untuk berbagai nilai PVA ditampilkan. A, 78-81 mol% dihidrolisis, DP = 2000-2100; B, 87-89 mol% dihidrolisis, DP = 500-600; C, 98-99 mol% dihidrolisis, DP = 500-600; D, 98-99 mol% dihidrolisis, DP = 1700-1800^[11].

Material PVA yang digunakan untuk komisioning peralatan sol-gel Nukem memiliki karakteristik derajat hidrolisis yang tinggi (*fully hydrolized*), DP tinggi, dan BM tinggi. PVA jenis ini memerlukan pemanasan untuk mendapatkan kelarutan yang lengkap dan viskositas yang tinggi. Sehingga dalam pembuatan sol/umpan gelas dengan viskositas tertentu hanya memerlukan lebih sedikit material PVA ini jika dibandingkan dengan PVA jenis lain.

2. Modeling

Persamaan matematika yang telah disusun dapat diselesaikan menggunakan simulasi komputer dengan membandingkan data-data yang diperoleh dari hasil eksperimen.

2.1. Modeling Pelarutan U_3O_8

Persamaan 5 dan 7 atau 5 dan 10 dengan keadaan batas persamaan 11 dapat diselesaikan. Lebih sederhana tentunya memakai persamaan 5 dan 10. Serbuk U_3O_8 sangat halus, sehingga jumlah butiran (N_b) ditentukan dengan pendekatan massa dan densitas U_3O_8 .

Dengan asumsi porositas =0 maka dapat dituliskan persamaan volume serbuk :

$$V = N_b \cdot \frac{4}{3} \cdot \pi R^3 \tag{29}$$

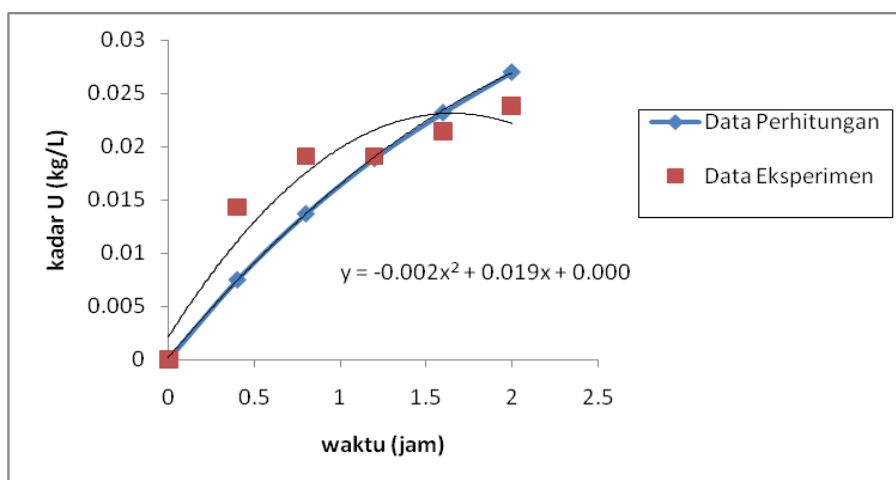
$$\frac{m(U_3O_8)}{\rho(U_3O_8)} \cdot \frac{3}{4\pi} = R^3 \cdot N_b \tag{30}$$

Nilai densitas (ρ) dan massa (m) dari U_3O_8 diketahui, sehingga nilai N_b dapat dihitung. Koefisien perpindahan massa (k_x) ditentukan dengan simulasi, sampai didapat data perhitungan (simulasi) yang paling mendekati dengan data eksperimen.

Berdasarkan penelitian yang telah dilakukan, didapat $\rho U_3O_8 = 4,598 \text{ kg/L}$ dan $m U_3O_8 = 2,5 \cdot 10^{-3} \text{ kg}$ sehingga didapat $R^3 \cdot N_b = 0,129868 \cdot 10^{-3} \text{ L} = 0,129868 \cdot 10^{-3} \text{ dm}^3$ Jika asumsi $N_b=1$ maka $R = 0,0506408 \text{ dm}$.

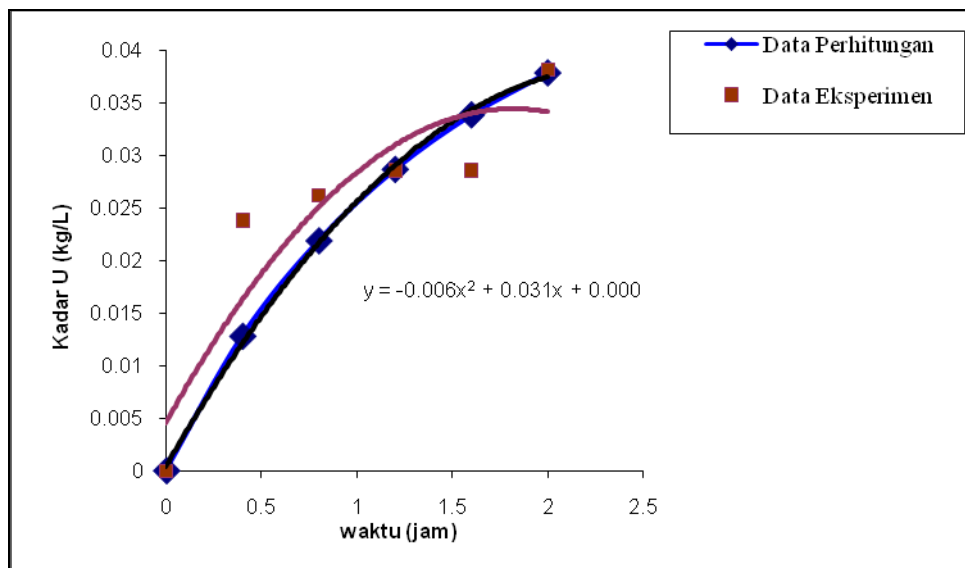
Koefisien perpindahan massa (k_x) ditentukan dengan simulasi, sampai didapat data yang paling mendekati dengan data eksperimen. Kadar kelarutan U_3O_8 jenuh (X_s) = $0,062 \text{ kg/L}$, sedangkan massa solven $HNO_3 \text{ 5 N(M)} = (\text{Volume} \times \rho) HNO_3 \text{ 5 N} = 0,025 \text{ L} \times 1,4 \text{ kg/L} = 0,035 \text{ kg}$.

Hasil pemodelan proses pelarutan variasi waktu:



Gambar 5. Grafik perbandingan hasil hitungan dengan data pelarutan pada suhu 30°C

Dari hasil perhitungan diperoleh ralat rerata sebesar 19,65 %. Hal ini menunjukkan bahwa pada suhu kamar, proses pelarutan yang terjadi kurang optimal, dimana U_3O_8 banyak yang belum larut dalam HNO_3 . Disamping harus memperhatikan faktor suhu, reaksi kimia yang terjadi pada proses pelarutan juga perlu diperhitungkan sehingga ralat kesalahan antara hasil perhitungan dan hasil eksperimen bisa seminimal mungkin.



Gambar 6. Grafik perbandingan hasil hitungan dengan data pelarutan pada suhu 60°C

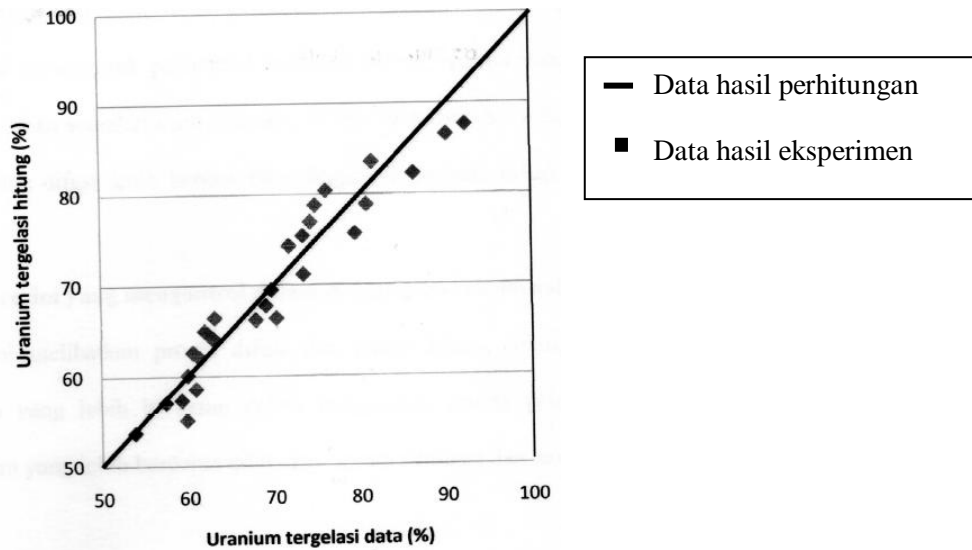
Dari Gambar 6. di atas dapat diketahui bahwa perbandingan antara data perhitungan dengan data eksperimen tidak terlalu jauh, dengan menghasilkan ralat rerata sebesar 16,32 % dan lebih kecil nilainya dari ralat rerata pada pelarutan U_3O_8 suhu 30°C sebesar 19,65%. Hal ini dikarenakan semakin tinggi suhu pelarutan maka semakin besar laju kelarutan yang berakibat pada semakin besarnya kadar yang dihasilkan.

2.2. Modeling Gelasi

Pemodelan proses gelasi ditujukan untuk menentukan nilai parameter laju proses yaitu nilai difusivitas NH_4OH dalam butiran gel (D_B) dan konstanta kecepatan reaksi (k). Nilai D_B dan k ditentukan dengan menggunakan model matematis yang sesuai untuk mensimulasikan sistem yang ditinjau berdasarkan data percobaan.

Gambar 7. menunjukkan hubungan antara uranium tergelasi hasil percobaan dengan perhitungan model yang menunjukkan besarnya kesalahan relatif rata-rata sebesar 3,2290%. Dari kecilnya nilai kesalahan relatif rata-rata yang diperoleh menunjukkan

bahwa hasil data perhitungan dari pemodelan matematis yang digunakan mendekati data percobaan. Hal ini menunjukkan bahwa pemodelan yang digunakan cocok atau sesuai.



Gambar 7. Hubungan uranium tergelasi hasil percobaan dengan uranium tergelasi hasil perhitungan

Hasil perhitungan dengan komputer (*software* Matlab) memberikan nilai SSE (*Sum of Square of Errors*) sebesar $2,9146E-5$ diperoleh nilai konstanta kecepatan reaksi (k) sebesar $8,8023E-06$ m³/mol.detik dan koefisien difusi amonium dalam sol (D_B) sebesar $6,3574E-11$ m²/detik. Nilai D_B yang diperoleh lebih kecil apabila dibandingkan dengan umumnya nilai koefisien difusi di dalam cairan pada suhu 20-30°C sebesar 10^{-9} - 10^{-10} m²/detik. Hal ini terjadi karena viskositas solven berpengaruh pada nilai koefisien difusi, apabila viskositasnya besar maka nilai difusi semakin kecil^[12].

KESIMPULAN

Kesimpulan yang dapat diambil dari kegiatan penelitian material dan modeling proses fabrikasi gel ADU tahun 2015 adalah:

1. Material Fabrikasi Gel ADU

Material yang digunakan dalam penelitian fabrikasi gel ADU telah memenuhi spesifikasi fabrikasi gel ADU, namun untuk U₃O₈ yang dipakai adalah dari uranium alam dan PVA jenis *fully-hydrolyzed*, dengan derajat polimerisasi (DP) dan berat molekul (BM) yang tinggi.

2. Modeling Fabrikasi Gel ADU

Telah disusun pemodelan matematis untuk sistem pelarutan U₃O₈ dan sistem gelasi eksternal yang memiliki ralat rerata kecil jika dibandingkan dengan hasil

percobaan laboratorium. Sehingga pemodelan matematis dapat dikatakan sesuai untuk proses yang ditinjau tersebut.

DAFTAR PUSTAKA

1. Stephen M. Goldberg and Robert Rosner.(2011).“Nuclear Reactors: Generation to Generation”. American Academy of Arts and Sciences, ISBN 0-87724-090-6.
2. Mohammad Dhandhang Purwadi. (2012). “Disain Konseptual Sistem Reaktor Daya Maju Kogenerasi Berbasis RGTT”. Prosiding Seminar Nasional ke-16 Teknologi dan Keselamatan PLTN Serta Fasilitas Nuklir, Hal. 14- 22, ISSN : 0854 – 2910.
3. Galkin and Sudarikov.(1966). “*Technology of Uranium*”. Atomizdat Moskva, Israel Program for Scientific Translation, Jerussalem.
4. *Design and Supply of Lab scale SOL-GEL precipitation equipment for the purpose of R&D in HTGR fuel fabrication technology* – BATAN.(2015).NUKEM Technologies.
5. Ariyani Kusuma Dewi dan Moch. Setyadi.(2010). “Model Pelarutan U3O8 Untuk Penyiapan Umpan Proses Gelasi”. Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, PTAPB-BATAN, Yogyakarta, halaman 170 s.d. 178.
6. Pradhipta, A.W.(2011). “Proses Gelasi Eksternal pada Pembuatan Kernel UO₂”. Tesis, Magister Teknik Pengendalian Pencemaran Lingkungan, Program Studi Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta.
7. Jeong, K. C., Oh, S.C., Kim, Y.K., Lee, Y.W.(2007). “ADU Compound Particle Preparation for HTGR Nuclear Fuel in Korea”. J. Ind. Eng. Chem. 13, 744-750.
8. Levenspiel, O.(1999). “*Chemical Reaction Engineering*”. 3rd ed., John Willey and Sons, New York.
9. Briscoe, B., P. Luckham, Zhu, S.(2000). *Polymer 41*”, 3851-3860
10. *Vinyl Alcohol Polymers*.(1971). “*Encyclopedia of Polymer Science and Technology*”. John Wiley & Sons, New York, NY, 14 149-207
11. F. L. Marten(2002). “*Vinyl Alcohol Polymers*.Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology”. Wiley, New York, NY Online.
12. Cussler, E.L.(1976). “*Diffusion Mass Transfer in Fluid System*”. Cambridge University Press, USA.