

PENGARUH UKURAN BUTIR PASIR DAN JUMLAH KOKAS PADA KHLORINASI PASIR ZIRKON

Sunardjo, Dwiretnani, Budi Sulistyono dan Pristi H.

P3TM – BATAN

ABSTRAK

PENGARUH UKURAN BUTIR PASIR DAN JUMLAH KOKAS PADA KHLORINASI PASIR ZIRKON . Penelitian dengan judul pengaruh ukuran butir pasir dan jumlah kokas pada khlorinasi pasir zirkon telah dilakukan. Tujuan dari penelitian ini adalah untuk dapat mengetahui kondisi optimum dari ukuran butir pasir dan jumlah kokas pada khlorinasi pasir zirkon. Penelitian ini menggunakan alat khlorinasi yang dilengkapi dengan pemanas dan penyerap gas buang. Metode yang digunakan dalam penelitian ini adalah sistem reaktor fluidisasi. Parameter yang dipelajari adalah ukuran butir pasir dan jumlah kokas pada khlorinasi pasir zirkon. Caranya mula - mula pasir zirkon ditimbang 50 gram pasir zirkon ditambah dengan kokas dan dimasukkan ke dalam alat pengumpan khlorinator. Pemanas dihidupkan sampai pada suhu tertentu kemudian gas khlor bersama dengan udara dari blower dialirkan dengan kecepatan tertentu. Setelah waktu tertentu pemanas dan aliran udara dimatikan. Hasil khlorinasi ditimbang dan dianalisis kadar Zr nya dengan titrasi EDTA. Dari hasil percobaan yang telah dilakukan dapat diambil kesimpulan bahwa ukuran butir pasir yang optimum pada 0,18 mm dengan hasil $ZrCl_4$ sebesar 6,641 gram atau 12,99 % dan jumlah kokas yang optimum 9,00 gram dengan hasil $ZrCl_4$ sebesar 6,223 gram atau 12,17 %.

ABSTRACT

PARTICLE SIZE OF SAND AND WEIGHT OF COKES EFFECT ON THE CHLORINATION OF ZIRCON SAND. The investigation of the particle size of sand and weight of cokes on the chlorination of zircon sand was carried out. The purpose of this investigation was to know the optimum condition of the particle size of sand and weigh of cokes on the chlorination of zircon sand. In this investigation the chlorination equipment provided by the air heater and the of flue gas scrubber. The fluidized reactor system was used in this investigation. The investigated parameters in this experiment were the particle size of sand and weight of cokes on the chlorination of zircon sand. The experiment was performed firstly by weighing 50 grams of the zirconium sand and adding cokes and then put in the chlorinator feeder. The furnace was operated up to the a certin temperature then the chlorine gas together with air from the blower were flown at the certain rate. After some time the heating and realised the gas flow. The yield of this chlorination process was weighed and analyzed for the Zr content with EDTA titration. The result of this investigation could be concluded that the optimum of the particle size of sand was 0.18 mm with the $ZrCl_4$ yield of 6,641 grams or 12.99 % and the weigh of cokes at the 9.00 grams with the $ZrCl_4$ yield of 6.223 grams or 12.17 %.

PENDAHULUAN

Pengaruh ukuran butir pasir dan jumlah kokas pada khlorinasi pasir zirkon adalah merupakan sebagian dari parameter proses pembuatan logam zirkonium dari pasir zirkon dengan proses kering. Proses yang pernah dilakukan di P3TM - BATAN Yogyakarta adalah proses basah atau menggunakan NaOH sebagai bahan reagenya. Secara teoritis proses basah kurang ekonomis dibandingkan dengan proses kering karena efisiensi proses basah lebih rendah dari pada proses kering. Oleh karena itu dalam hal ini akan dikembangkan khlorinasi dengan proses kering. Proses khlorinasi merupakan reaksi antara senyawa khlor dengan senyawa lain

sehingga membentuk senyawa baru. Reaksi khlorinasi berjalan pada suhu $800^{\circ}C - 1000^{\circ}C$ ⁽¹⁾.

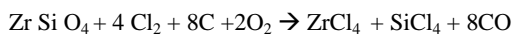
Logam zirkon dalam reaktor nuklir juga dapat digunakan sebagai peralatan yang memerlukan persyaratan khusus misalnya untuk bejana tekan, tangki dan pipa-pipa. Persyaratan yang harus dipenuhi logam zirkon antara lain mempunyai kemurnian yang tinggi, kandungan Hf harus seminimal mungkin. Karena Hf mempunyai tampang lintang yang relatif besar yakni 115 barn, sehingga dapat mengakibatkan penyerapan neutron yang relatif cukup besar.

Logam zirkon murni nuklir yang digunakan untuk bahan struktur reaktor, kandungan Hf tidak boleh lebih besar dari 100 ppm karena setiap 100

ppm Hf akan dapat menaikkan penampang serapan neutron sebesar 0,01 barn⁽²⁾.

Logam zirkon juga dapat dipakai sebagai bahan pembuat kelongsong bahan bakar nuklir karena mempunyai sifat-sifat tertentu yang dapat memenuhi persyaratan yang diinginkan. Logam tersebut dapat diperoleh dari pasir zirkon yang mempunyai kadar zirkon lebih kurang 40%. Sifat-sifat logam tersebut antara lain, mempunyai penampang lintang yang relatif kecil yakni 0,2 barn, tahan terhadap suhu tinggi, mempunyai struktur yang baik sehingga dapat mempermudah dalam pelepasan bahan bakar setelah habis dipakai⁽³⁾.

Pada proses pembuatan $ZrCl_4$ dari pasir zirkon pada umumnya menggunakan proses khlorinasi. Selama proses khlorinasi terhadap pasir zirkon terjadi reaksi sebagai berikut:



Sifat-sifat dari $ZrCl_4$ ada yang berbentuk butiran dan bentuk serbuk berwarna putih, mempunyai titik sublimasi 331°C, titik leleh 438°C dan bila kena air akan terdekomposisi menjadi $ZrOCl_2 \cdot 8H_2O$ serta larut dalam alkohol dan eter⁽⁴⁾.

Dalam suatu reaksi antara gas dan padatan maka suhu dan waktu khlorinasi akan berpengaruh terhadap hasil yang diperoleh dari reaksi tersebut⁽⁵⁾. Dan besarnya suhu juga dipengaruhi oleh daya hantar panas dari bahan yang dipanaskan. Karena reaksi tersebut merupakan reaksi antara gas dan padatan, maka kesempurnaan reaksi juga sangat dipengaruhi oleh sistem reaktor yang digunakan.

Sistem fluidisasi gas-padat adalah suatu sistem fluidisasi yang material hamparannya berupa butiran padat dan fluidanya adalah gas. Dengan bertambahnya arus gas pemfluidisasi melebihi keadaan fluidisasi minimum mengakibatkan butiran padat bergerak lebih cepat, sehingga cenderung untuk bercampur dengan mudah. Volume hamparan menjadi lebih besar dari pada saat fluidisasi minimum, maka keadaan ini disebut terbentuknya hamparan fluidisasi (*fluidized bed*). Untuk keadaan fluidisasi ideal maka penurunan tekanan (ΔP) selama hamparan fluidisasi tidak akan banyak berubah besarnya terhadap kenaikan kecepatan gas pemfluidisasi. Jika arus gas ini dinaikkan lagi maka akan terjadi pengenceran dalam hamparan, batas hamparan tidak akan tampak jelas dan akan terjadi suatu kondisi yang disebut *entrainment*. Kecepatan gas pemfluidisasi pada

keadaan ini disebut kecepatan terminal. Jadi jika kecepatan gas melebihi kecepatan terminal akan terjadi *entrainment* yang lebih besar dan butiran padat akan terbawa arus gas keluar tabung dan keadaan ini disebut fase dispersi.

Penyumbatan (*slugging*) dapat terjadi karena adanya pengaruh geometri dari tabung fluidisasi terutama untuk hamparan yang panjang dan sempit. Pengaruh tersebut menimbulkan gelembung-gelembung gas yang berkumpul dibagian bawah hamparan dan menyebar pada seluruh penampangnya. Kemudian gelembung-gelembung itu menekan butir padatan di atasnya sehingga bergerak keatas seolah-olah seperti tersumbat. Butiran padat yang terangkat ini berangsur-angsur jatuh semua dan bersamaan dengan itu terbentuk lagi penyumbatan yang lain kemudian terangkat dan kejadian ini berulang terus.

Beberapa hal yang berhubungan dengan proses fluidisasi misalnya: fluidisasi minimum, adalah merupakan suatu kondisi apabila kecepatan gas yang dinaikkan terus menerus secara perlahan-lahan sehingga mencapai suatu harga tertentu. Keadaan ini disebut permulaan fluidisasi yang memenuhi persamaan berikut⁽⁵⁾:

$$\Delta P \text{ At} = W = (\text{At Lmf})(1 - \epsilon mf) (\rho_g - \rho_s) g / gc \quad (1)$$

Apabila disederhanakan hubungan antara ΔP dengan ϵmf menjadi:

$$\frac{\Delta P}{Lmf} = (1 - \epsilon mf)(\rho_s - \rho_g) g / gc \quad (2)$$

Untuk kecepatan gas fluidisasi minimum pada bilangan Re tertentu maka berlaku rumus:

$$U_{mf} = \left(\frac{(\rho_s dp)^2}{150} \right) \left(\frac{\rho_s - \rho_g}{\mu} \right) g \left(\frac{(\epsilon mf)^3}{1 - \epsilon mf} \right) \quad (3)$$

Untuk $Re < 20$

Kecepatan terminal adalah suatu kondisi apabila kecepatan gas melebihi titik permulaan terjadinya *entrainment*. Pada keadaan ini, butiran padatan terbawa keluar atau terjadi pengenceran hamparan. Kecepatan terminal apabila dengan pendekatan bahwa butiran berbentuk bola dapat dihitung dengan rumus sebagai berikut:

$$U_t = \frac{g(\rho_s - \rho_g)}{18 \mu} dp^2 \text{ untuk } Re < 0,4 \quad (4)$$

$$Re_p = \frac{d_p U_t \rho_g}{\mu} \quad (5)$$

Pada aliran fluida berlaku hubungan sebagai berikut:

$$W = At Lm (1 - \epsilon mf) \rho_s \quad (6)$$

Keterangan:

- ρ_s = densitas padatan
 ρ_g = densitas gas
 ϵ = fraksi kosong
 M_f = tinggi bed
 μ = viskositas
 ΔP = Penurunan tekanan

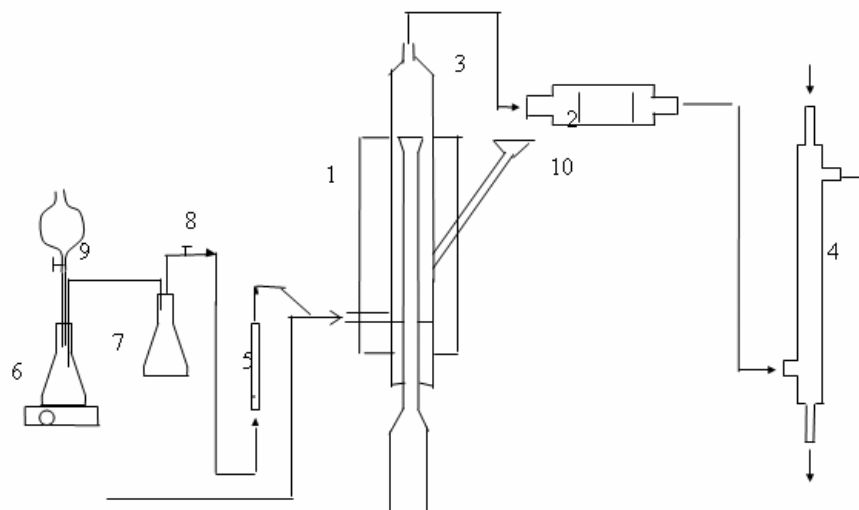
ϕ_s = *sphericity*

A = luas

TATA KERJA

Bahan

Pasir Zirkon digunakan sebagai bahan baku dan MnO_2 sebagai bahan tambahannya. Sedangkan *Eriochrome Cyanine*, *EDTA*, HNO_3 dipakai sebagai bahan analisis



Gambar 1. Rangkaian alat khlorinator

Keterangan:

1. Dapur pemanas
2. Alat desublimato
3. Tabung khlorinator
4. Penyerap gas Cl_2
5. *Flowmeter*
6. Alat pembangkit gas Cl_2
7. Penyerap uap air
8. Kran gas Cl_2
9. Corong pemisah
10. Tempat pemasukan sampel

Cara Kerja

Parameter ukuran butir pasir

Untuk parameter ukuran butir pasir mula-mula disiapkan bahan sebagai berikut: ditimbang pasir zirkon sebanyak 50 gram, berdiameter 0,09 mm, dan kokas sebanyak 7 gram kemudian dimasukkan kedalam alat pengumpan khlorinator. Selanjutnya alat khlorinator dipanaskan sampai suhu $900^\circ C$. Gas Cl_2 dibuat dengan mereaksikan MnO_2 dan HCl di dalam gelas erlenmeyer yang dilengkapi dengan penangkap cairan. Gas Cl_2 dan udara dari blower dialirkan dengan kecepatan tertentu.

Setelah waktu tertentu aliran gas Cl_2 dan aliran udara dihentikan, pemanas dimatikan. Setelah suhunya tercapai suhu kamar, alat khlorinator dibuka dan hasil desublimasi yang diperoleh diambil, ditimbang dan dianalisis kadar Zr nya dengan titrasi memakai *EDTA*. Demikian seterusnya, dan ukuran butir pasir divariasi sebagai berikut: 0,02 mm; 0,06 mm; 0,10 mm; 0,14 mm; 0,18 mm dan 0,22 mm.

Parameter jumlah kokas

Caranya hampir sama dengan parameter ukuran butir pasir, hanya jumlah kokasnya yang divariasi sebagai berikut: 7,00 gram; 7,50 gram; 8,00 gram; 8,50 gram 9,00 gram ; 9,50 gram dan 10,00 gram.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Parameter Ukuran Butir Pasir

Dari Tabel 1 terlihat bahwa pada ukuran butir pasir 0,02 mm sampai dengan 0,22 mm memberikan hasil grafik khlorinasi yang mula-mula naik kemudian konstan. Pada ukuran butir pasir 0,02 mm memberikan hasil khlorinasi berupa $ZrCl_4$ sebesar 4,200 gram.

Tabel 1. Hubungan antara ukuran butir pasir dengan berat $ZrCl_4$. (Berat pasir: 50,00 g, jumlah kokas 7,00 gram, suhu 900 °C, waktu 30 menit, kecepatan alir gas Cl_2 0,05 m/det.).

No	Ukuran butir pasir (mm)	Hasil Khlorinasi (gram)	Berat Zr hasil (gram)	Berat $ZrCl_4$ hasil (gram)	Konversi (%)
1	0,02	25,926	1,640	24,200	8,20
2	0,06	30,123	2,912	4,880	9,56
3	0,10	36,241	2,300	5,880	11,50
4	0,14	38,351	2,435	6,224	12,17
5	0,18	40,923	2,598	6,641	12,99
6	0,22	40,876	2,595	6,634	12,97

Kemudian pada ukuran butir pasir 0,14 mm memberikan hasil khlorinasi berupa $ZrCl_4$ sebesar 6,224 gram hal ini disebabkan karena pada kecepatan fluidisasi tersebut masih mengalami peningkatan terjadinya reaksi antara gas klor dengan pasir zirkon. Tetapi setelah ukuran butir pasir 0,18 mm hasil khlorinasi mengalami konstan yaitu sebesar 6,641 gram. Hal ini disebabkan karena pada ukuran butir pasir 0,18 mm sudah mulai terjadi reaksi yang

stabil sehingga banyak gas $ZrCl_4$ yang dapat terdesublimasi sehingga menempel pada kondensator karena adanya penurunan suhu, sehingga hasil khlorinasi sudah mulai konstan. Jadi kondisi yang optimum dicapai pada ukuran butir pasir 0,18 mm dengan memberikan hasil $ZrCl_4$ sebesar 6,641 gram atau 12,99 %

Parameter Jumlah Kokas

Tabel 2. Hubungan antarajumlah kokas dengan hasil khlorinasi dan berat $ZrCl_4$ (Berat pasir: 50,00g, ukuran butir pasir 0,14 mm; suhu: 900°C, waktu 30 menit, kecepatan fluidisasi 9,00 m/det.).

No	Jumlah kokas (gram)	Hasil Khlorinasi (gram)	Berat Zr hasil (gram)	Berat $ZrCl_4$ Hasil (gram)	Konversi (%)
1	7,00	33,643	2,136	5,460	10,68
2	7,50	33,374	2,119	5,416	10,59
3	8,00	35,910	2,280	5,828	11,40
4	8,50	36,572	2,322	5,935	11,61
5	9,00	38,346	2,434	6,223	12,17
6	9,50	38,345	2,434	6,223	12,17
7	10,00	38,243	2,248	6,206	12,14

Dari Tabel 2 terlihat bahwa jumlah kokas 7,00 gram sampai dengan 10,00 gram memberikan hasil grafik yang mula mula naik kemudian konstan. Pada jumlah kokas 7,00 gram memberikan hasil khlorinasi berupa $ZrCl_4$ sebesar 5,460 gram Kemudian pada jumlah kokas 8,50 gram memberikan hasil khlorinasi berupa $ZrCl_4$ sebesar 5,935 gram hal ini disebabkan karena pada jumlah kokas tersebut sudah mengalami terjadinya reaksi antara gas klor dengan pasir zirkon tetapi belum mencapai kesempurnaan. Dan setelah jumlah kokas ditambah menjadi 9,00 gram hasil khlorinasi mengalami kenaikan menjadi sebesar 6,223 gram. Hal ini disebabkan karena pada kecepatan tersebut sudah mulai terjadi penambahan

kecepatan reaksi sehingga hasil yang diperoleh juga bertambah. Dan setelah jumlah kokas mencapai 10,00 gram maka hasil reaksi relatif konstan yaitu menjadi 6,206 gram. Jadi kondisi yang optimum pada jumlah kokas 9,00 gram dengan memberikan hasil $ZrCl_4$ sebesar 6,223 gram atau 12,17 %.

KESIMPULAN

Dari percobaan yang telah dilakukan dengan menggunakan alat seperti tersebut di atas dengan batasan-batasan yang ada maka dapat diambil kesimpulan sebagai berikut: klorinasi pasir zirkon dengan sistem fluidisasi dapat dilakukan, ukuran butir pasir yang optimum pada 0,18 mm dengan hasil berat $ZrCl_4$ 6,641

gram atau 12,99 % dan jumlah kokas yang optimum pada 9,00 gram dengan hasil berat $ZrCl_4$ 6,223 gram atau 12,17 %.

UCAPAN TERIMA KASIH

Dengan selesainya penulisan laporan penelitian ini maka kami mengucapkan banyak terima kasih kepada Sdr. Paryadi dan semua pihak yang telah memberikan bantuannya sehingga penelitian ini dapat selesai.

DAFTAR PUSTAKA

1. ANWAR MUZAWAR, *et al*, Production Of Hafnium Free Zirconium Tetra Chloride, Nuclear Material Division, Pakistan, (1977).
2. BUNYAMIN LUSTMAN AND FRANK KERZE, J.R., The Metallurgy Of Zirconium, 1st edition , Mc. Graw Hill, Book Company, New York, (1955).
3. FOSTER, A.R., *et al*. Basic Nuclear Engineering 3rd edition Allyn and Bacon Inc, Boston, London, Sidney, Toronto, (1977).
4. GEORGE BRAUER, “Zirconium (IV), Hafnium (IV) and Thorium (IV) Chloride and Bromide”, Hand Book Of Preparative Inorganic Chemistry, 2nd edition, Academic Press New York, London, (1965)(1203).
5. KUNNI. D and LEVENSPIEL. O, Fluidization Engineering, John Wiley and Sons Inc. New York, London, (1969).
6. LEVENSPIEL, O., Chemical Reaction Engineering , 2nd edition, Wiley Eastern Limited, New Delhi, (1972).

TANYA JAWAB

AN. Bintarti

- Disamping ukuran butir dan jumlah kokas, apakah ada parameter lain yang berpengaruh?, jika ada apa saja misal suhu klorinasi, apa alasannya dibatasi 800 – 1000°C, jika lebih 1000°C apa yang terjadi?
- Apakah waktu klorinasi juga berpengaruh?, jika ada apa pengaruhnya terhadap hasil?

Sunardjo

- Parameter yang lain misalnya, waktu, suhu dan kecepatan alir gas Cl_2 , suhu antara 800 – 1000°C, karena di luar batas tersebut tidak terjadi reaksi dengan baik.
- Waktu klorinasi juga berpengaruh, karena semakin lama proses berlangsung kalau tidak segera diambil hasil yang diperoleh akan ikut terbawa gas buang sehingga konsentrasinya menurun.

Murdani S.

- Jelaskan mekanisme reaksi pada penambahan kokas pada klorinasi pasir sirkon!. Berapa efisiensi penambahan kokas pada pembentukan $ZrCl_4$?

Sunardjo

- Mekanisme reaksinya $ZrSiO_4 + 4Cl_2 + 8C + 2O_2 \rightarrow ZrCl_4 + SiCl_4 + 8CO$. Sehingga penambahan kokas (C) jelas akan mempengaruhi jumlah gas CO yang terbentuk efisiensinya kurang lebih 12,17%.

Supriyanto C.

- Fungsi MnO_2 sebagai bahan tambahan apakah maksudnya?, apakah ada pengaruh terhadap hasil klorinasi?
- Apakah dapat diganti dengan bahan lain?

Sunardjo

- Fungsi MnO_2 sebagai bahan tambahan, maksudnya untuk menambah jumlah gas Cl_2 yang terbentuk dari reaksi antara MnO dan HCl yang menghasilkan gas Cl_2 , sehingga jumlah Cl_2 sangat berpengaruh dalam proses klorinasi.
- Apabila diganti dengan bahan lain juga dapat yang penting dapat mengikat oksigen dalam reaksi tersebut.