

KARAKTERISASI PELET CAMPURAN URANIUM OKSIDA DAN ZIRKONIUM OKSIDA HASIL PROSES SINTER

Hendro Wahyono⁽¹⁾, Ghaib Widodo⁽¹⁾, Sigit⁽¹⁾, Tata Terbit S⁽¹⁾

1. Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN

Kawasan Puspipstek Serpong, Tangerang

ABSTRAK

KARAKTERISASI PELET CAMPURAN URANIUM OKSIDA HASIL PROSES SINTER DAN ZIRKONIUM OKSIDA. Karakterisasi pelet campuran UO_2 dan ZrO_2 hasil proses sinter telah dilakukan dengan tujuan untuk mengetahui sifat kekerasan, mikrostruktur, ukuran butir dan densitas pelet. Serbuk UO_2 dan ZrO_2 dengan berat yang bervariasi dicampur hingga homogen, lalu dikompaksi hingga diperoleh pelet mentah dan kemudian disinter menjadi pelet (UO_2 dan ZrO_2) sinter. Pelet hasil sinter tersebut dilakukan beberapa pengujian yaitu : penentuan densitas dengan metoda pengukuran (berat dan volume pelet), pengamatan mikrostruktur dengan menggunakan mikroskop optik, penentuan ukuran butir dengan metoda Hillard dan sifat kekerasan dengan metoda Vicker. Hasil pengukuran densitas menunjukkan bahwa terjadi peningkatan densitas pelet hasil sinter mencapai rerata masing-masing dari 5,44 g/mL menjadi 10,42 g/mL (ZrO_2 0%), 5,46 g/mL menjadi 10,40 g/mL (ZrO_2 0,2%) dan 5,51 menjadi 10,34 g/mL (ZrO_2 0,4%). Hasil pengukuran besar butir menunjukkan bahwa besar butir pelet sinter mengalami peningkatan dengan penambahan ZrO_2 yaitu : 5,2 μm (ZrO_2 0%), 4,7 μm (ZrO_2 0,2%), dan 4,9 μm (ZrO_2 0,4%). Hasil pengukuran kekerasan menunjukkan bahwa sifat kekerasan pelet sinter mengalami peningkatan dengan penambahan ZrO_2 masing-masing 495 VHN (ZrO_2 0%), 592 VHN (ZrO_2 0,2%), dan 575 VHN (ZrO_2 0,4%).

Kata kunci : Karakterisasi, pelet (UO_2+ZrO_2) sinter, densitas, ukuran butir, kekerasan.

ABSTRACT

CHARACTERIZATION OF PELLET MIXTURE OF OXYDE URANIUM AND OXYDE ZIRCONIUM THAT IS SINTERING PROCESS PRODUCT. Characterization of mixture pellet UO_2 and ZrO_2 result of sintering process has been done as a mean to know hardness character, microstructure, grain size and pellet density. Powder UO_2 and ZrO_2 weighing varying mingled to be finite of homogen, then is compaction until is obtained raw pellet and then is sintered to become pellet (UO_2 and ZrO_2) sinter. Pellet result of the sinter is done some examinations that is : determination of density with measurement method (heavily and pellet volume), observation mikrostruktur by using optical microscope, determination of grain size with Hillard method and hardness character with method Vicker method. Result of measurement of density indicates that happened improvement of pellet density result of sinter reaches average of each of 5,44 g/mL becomes 10,42 g/mL (ZrO_2 0%), 5,46 g/mL becomes 10,40 g/mL (ZrO_2 0,2%) and 5,51 becomes 10,34 g/mL (ZrO_2 0,4%). Result of big measurement of item indicates that big of item sinter pellet experiences improvement with addition of ZrO_2 that is : 5,2 μm (ZrO_2 0%), 4,7 μm (ZrO_2 0,2%), and 4,9 μm (ZrO_2 0,4%). Result of measurement of hardness indicates that hardness character of

sinter pellet experiences improvement with addition of each ZrO₂ 495 VHN (ZrO₂ 0%), 592 VHN (ZrO₂ 0,2%), and 575 VHN (ZrO₂ 0,4%).

Key words : Characterization, sintering pellet (UO₂+ZrO₂), density, grain size, hardness.

PENDAHULUAN

Di alam, uranium memiliki tiga isotop yaitu U-234, U-235 dan U-238 masing-masing sebanyak 0,0056%, 0,718% dan 99,276%. Uranium alam digunakan pada reaktor jenis PHWR (*Pressurized High Water Reactor*) tipe Candu, sedangkan untuk PWR (*Pressurized Water Reactor*) digunakan uranium dengan pengkayaan 3-4%. Uranium yang digunakan berbentuk keramik dapat berupa oksida (UO₂), nitrida (UN), karbida (UC), silikat (USi) dan sulfida (US). Uranium dioksida adalah bahan bakar utama untuk reaktor jenis LWR (*Light Water Reactor*) dan PHWR. Bentuk keramik mempunyai beberapa keuntungan yaitu ketahanan pada penggunaan suhu operasi reaktor karena titik lelehnya tinggi, stabil terhadap radiasi baik dimensi, struktur maupun volum karena tidak ada transformasi fasa pada suhu rendah serta ketahanan korosi yang tinggi terhadap oksida. Namun demikian, bahan bakar U oksida memiliki kelemahan pada sifat konduktifitas termalnya. Semakin tinggi kenaikan densitas maka konduktifitas U-oksida semakin meningkat, tetapi sebaliknya semakin tinggi suhu maka konduktifitas U-oksida semakin menurun^[1-2].

Selama proses iradiasi di dalam reaktor, bahan bakar uranium mengalami reaksi pembelahan yang menghasilkan hasil fisi cukup banyak. Salah satu hasil fisi adalah zirkonium yang membentuk presipitat oksida (ZrO₂)^[3]. Bahan bakar uranium pasca pemakaian di dalam reaktor atau yang disebut bahan bakar bekas, masih mengandung uranium dalam jumlah yang cukup banyak. Oleh karena itu, uranium dalam bahan bakar bekas tersebut perlu dipungut kembali dengan

berbagai cara. Salah satu metoda adalah cara kering yang hanya menggunakan proses termal dan mekanik, tidak ada proses pemisahan uranium, plutonium dan hasil fisi.

Dari sisi *safeguards* bahan bakar nuklir cara kering memiliki keunggulan yaitu *proliferation resistance*^[4].

Metoda kering yang dilakukan tersebut adalah dengan cara proses AIROX (*Atomics International Reduction Oxidation*). Pada proses ini, bahan bakar bekas dipisahkan dari bahan volatil dan kelongsong, kemudian dikenai proses oksidasi-reduksi dan terakhir dilakukan pengkayaan kembali untuk digunakan sebagai bahan bakar baru^[4]. Proses AIROX ini dikembangkan di Amerika Serikat dengan melakukan *recycling* bahan bakar bekas LWR untuk dapat digunakan kembali.

Di Indonesia, studi proses AIROX telah dimulai dengan melakukan oksidasi-reduksi pelet bahan bakar UO₂ hingga diperoleh karakteristik serbuk akhir yang diperoleh^[5]. Penelitian dilanjutkan dengan menambahkan ZrO₂ ke dalam UO₂ kemudian dikompaksi menjadi pelet mentah lalu disinter. Setelah proses sinter selesai, diperoleh pelet (UO₂+ZrO₂) sinter. Penambahan ZrO₂ ini dimaksudkan sebagai salah satu hasil fisi secara simulasi.

Proses sintering memberikan pengaruh terhadap perubahan densitas pelet, sedangkan penambahan unsur ZrO₂ memberikan pengaruh terhadap perubahan kekerasan pelet dan ukuran serbuk. Pada penelitian ini dipelajari karakterisasi pelet (UO₂+ZrO₂) sinter yaitu densitas, mikrostruktur, besar butir dan kekerasan dengan harapan diperoleh kenaikan densitas pelet dan

penambahan kekerasan dan ukuran serbuk sebelum dilakukan proses oksidasi-reduksi.

TATA KERJA

Bahan yang digunakan serbuk UO_2 dan serbuk ZrO_2 , sedangkan peralatan yang dipakai mesin kompaksi Komage, tungku sinter, jangka sorong, mikroskop optik dan alat uji kekerasan. Serbuk UO_2 dan serbuk ZrO_2 dengan persen berat ZrO_2 yang divariasi yaitu 0%, 0,2%, 0,4% dan 0,6% dan seng stearat 0,2% dimasukkan ke dalam botol polietilen. Botol dimasukkan dalam wadah khusus lalu dipasang pada alat pencampur. Mesin dihidupkan selama 1 jam supaya terjadi pencampuran homogen. Campuran serbuk dikompaksi menjadi pelet mentah dan disinter pada suhu $1700\text{ }^\circ\text{C}$ selama 4 jam hingga diperoleh pelet (UO_2+ZrO_2) sinter. Pelet yang diperoleh dari hasil kompaksi berbentuk silinder pejal dengan bagian atas dan bawah melengkung. Pelet mentah dan pelet sinter diukur dimensinya untuk menentukan volum, ditimbang dan ditentukan densitasnya. Penentuan volum pelet dilakukan dengan menggunakan rumus :^[1]

$$V = (B/4 D^2 H) - V_d$$

$$V_d = Bh(1/4 c^2 + 1/3 h^2)$$

$$c = D - 2s$$

dengan : D = diameter luar pelet,

H = tinggi pelet,

V_d = volum *dish*,

c = diameter dalam pelet,

s = spala (tembereng),

h = kedalaman *dish*.

Untuk mengetahui mikrostruktur pelet sinter, dilakukan uji metalografi.

Pelet dikungkung dalam suatu resin, dihaluskan dengan amplas, dietsa lalu difoto menggunakan mikroskop optik untuk pengamatan mikrostruktur, pengukuran besar butir menggunakan metoda Hilliard^[6]. Pengujian kekerasan dilakukan dengan menggunakan *hardness tester*.

HASIL DAN PEMBAHASAN

• Penentuan Densitas

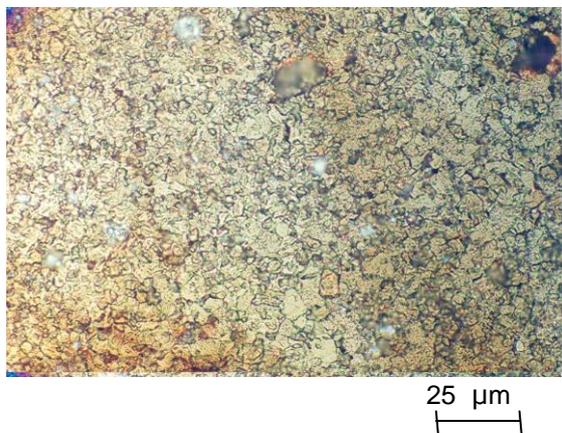
Pada Tabel 1 (terlampir) disajikan hasil penentuan densitas pelet (UO_2+ZrO_2) mentah dan pelet sinter dengan variasi konsentrasi ZrO_2 dalam campuran (UO_2+ZrO_2). Tampak bahwa telah terjadi kenaikan densitas setelah pelet mentah mengalami proses sinter. Untuk uranium oksida tanpa ZrO_2 , telah terjadi kenaikan densitas rerata dari 5,44 g/mL menjadi 10,42 g/mL, sedangkan untuk ZrO_2 0,2% dan 0,4%, kenaikan densitas rerata masing-masing adalah dari 5,46 g/mL ke 10,40 g/mL dan dari 5,51 menjadi 10,34 g/mL. Hal ini menunjukkan keberhasilan proses sinter yang terbukti telah menaikkan densitas pelet mentah. Namun bila konsentrasi ZrO_2 dinaikkan menjadi 0,6%, maka pelet sinter menjadi rapuh atau pecah-pecah sehingga pengukuran densitas tidak dapat dilakukan. Penambahan ZrO_2 yang semakin tinggi mengakibatkan terjadinya penurunan densitas pelet sinter. Jika uranium oksida tidak ditambah dengan zirkonium oksida, maka densitasnya adalah 10,42 g/mL, sedangkan bila ditambah ZrO_2 hingga konsentrasinya 0,2% dan 0,4%, maka densitasnya turun menjadi masing-masing 10,40 g/mL dan 10,34 g/mL atau 94,80% dan 94,26% dari densitas teoritis (DT).

Tabel 1. Data hasil pengukuran densitas pelet (UO_2+ZrO_2)

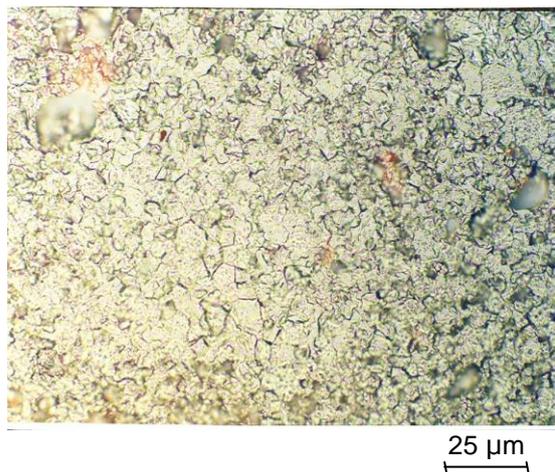
No	ZrO ₂ , %	Pelet mentah			Pelet sinter			Keterangan
		Vol, mL	Berat, g	Densitas, g/mL	Vol, mL	Berat, g	Densitas, g/mL	
1	0	-	-	-	0,3824	3,9219	10,25	
2	0	0,7533	4,1004	5,44	0,3811	3,9730	10,42	
3	0	0,7609	4,1263	5,42	0,3830	3,9861	10,37	
4	0	0,7586	4,1445	5,46	0,3612	3,7839	10,47	
5	0	0,7708	4,1972	5,44	0,3877	4,0625	10,47	
6	0	-	-	-	0,3846	4,0358	10,49	
7	0	0,9410	5,1151	5,44	0,3821	3,9747	10,40	
8	0	0,7585	4,1272	5,44	0,3791	3,9934	10,53	
				Rerata : 5,44			Rerata : 10,42	
9	0,2	0,7678	4,1307	5,38	0,3849	4,0045	10,40	
10	0,2	0,7617	4,1854	5,49	0,3921	4,0575	10,34	
11	0,2	0,7593	4,1277	5,44	0,3823	3,9983	10,45	
12	0,2	0,7647	4,2324	5,54	0,3950	4,1049	10,39	
				Rerata : 5,46			Rerata : 10,40	
13	0,4	0,7640	4,2271	5,33	0,5808	4,0811	10,45	
14	0,4	0,7639	4,2176	5,21	0,4036	4,1427	10,26	
15	0,4	0,7662	4,2840	5,59	0,3957	4,1504	10,48	
16	0,4	0,7616	4,2103	5,53	0,3969	4,0786	10,27	
17	0,4	0,7525	4,1079	5,46	0,3838	3,9768	10,36	
18	0,4	0,7638	4,2399	5,55	0,3995	4,1075	10,28	
19	0,4	0,7638	4,3043	5,64	0,4031	4,1679	10,33	
20	0,4	0,7593	4,2286	5,57	0,3992	4,0964	10,26	
21	0,4	0,7442	4,2078	5,65	0,3934	4,0744	10,35	
22	0,4	0,7786	43188	5,55	0,3960	4,1892	10,56	
23	0,4	0,7626	4,2019	5,51	0,3979	4,0675	10,22	
24	0,4	0,7594	4,1182	5,42	0,3800	4,9729	10,08	
25	0,4	0,7662	4,2668	5,57	0,3917	4,1130	10,50	
				Rerata : 5,51			Rerata : 10,34	
26	0,6	0,7662	4,2840	5,59	-	4,1065	-	Pelet pecah

• Pengaruh konsentrasi ZrO_2 terhadap mikrostruktur, diameter butir dan kekerasan

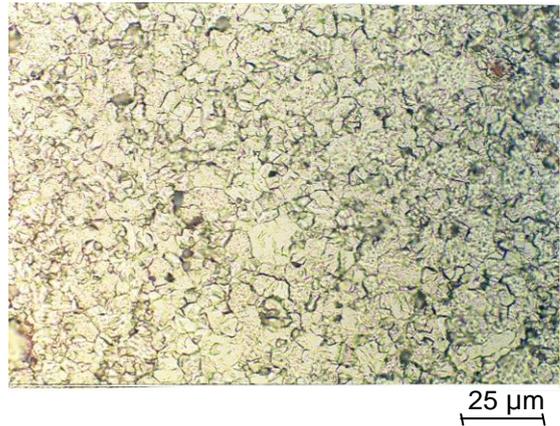
Gambar 1 memperlihatkan mikrostruktur pelet uranium oksida tanpa penambahan zirkonium oksida, sedangkan pada Gambar 2 dan 3 kondisi adanya penambahan zirkonium oksida dengan konsentrasi masing-masing 0,2% dan 0,4%. Besar butir dan sifat kekerasan ditunjukkan pada Tabel 2.



Gambar 1. Mikrostruktur UO_2+ZrO_2 dengan konsentrasi ZrO_2 0%



Gambar 2. Mikrostruktur UO_2+ZrO_2 dengan konsentrasi ZrO_2 0,2%



Gambar 3. Mikrostruktur UO_2+ZrO_2 dengan konsentrasi ZrO_2 0,4%

Dari Gambar 1 sampai dengan 3 serta Tabel 2 (terlampir) dapat dilihat bahwa telah terjadi sedikit perubahan ukuran butir yang disebabkan adanya perbedaan konsentrasi ZrO_2 . Adanya ZrO_2 mengakibatkan ukuran butir semakin kecil. Jika uranium oksida tanpa zirkonium oksida besar butir (diameter) sebesar $5,2 \mu m$ dan bila ditambah dengan ZrO_2 diameter turun menjadi $4,7 \mu m$ dan $4,9 \mu m$. Perubahan ini tidak terlalu besar, namun jika dilihat dari kekerasannya uranium oksida tanpa zirkonium oksida memiliki kekerasan 495 VHN, Sedangkan untuk penambahan ZrO_2 hingga konsentrasi 0,2% kekerasannya menjadi 592 VHN dan pada penambahan ZrO_2 hingga konsentrasi 0,4 % kekerasannya turun menjadi 575 VHN. Kenaikan dan penurunan kekerasan ini seiring dengan besar butir yang terukur. Dibandingkan dengan penelitian lain^[7] yaitu pelet ($UO_2+Er_2O_3$) sinter untuk konsentrasi yang sama maka kekerasan pelet (UO_2+ZrO_2) lebih rendah, namun ukuran butir tidak jauh berbeda. Hal ini diduga adanya perbedaan sifat hasil fisi Zr dengan Er yang merupakan *burnable poison*.

Tabel 2. Data besar butir dan kekerasan pelet (UO_2+ZrO_2) sinter

No	Konsentrasi ZrO_2 , %	Diameter butir, μm	Kekerasan, VHN
1	0	5,2	495
2	0,2	4,7	592
3	0,4	4,9	575

SIMPULAN

Densitas pelet mentah mengalami kenaikan setelah dilakukan penyinteran. Untuk uranium oksida tanpa ZrO_2 (ZrO_2 0%) dan ZrO_2 0,2% dan 0,4%, telah terjadi kenaikan densitas rerata masing-masing dari 5,44 g/mL menjadi 10,42 g/mL, dari 5,46 g/mL menjadi 10,40 g/mL dan dari 5,51 menjadi 10,34 g/mL. Jika konsentrasi ZrO_2 bertambah hingga menjadi 0,6%, maka pelet sinter menjadi rapuh atau pecah-pecah sehingga pengukuran densitas tidak dapat dilakukan.

Perbedaan konsentrasi ZrO_2 dalam campuran pelet (UO_2+ZrO_2) juga mempengaruhi ukuran butir dan kekerasan. Untuk pelet dengan konsentrasi ZrO_2 0%, 0,2% dan 0,4% diperoleh besar butir (diameter) masing-masing sebesar 5,2 μm , 4,7 μm dan 4,9 μm dan kekerasan 495 VHN, 592 VHN dan 575 VHN.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Zahedi BE. , Arief Sasongko Adhi S.Si, Martoyo A.Md, Heri Adi Kiswanto dan semua pihak yang telah membantu hingga selesainya penelitian ini.

DAFTAR PUSTAKA

1. FIZZOTTI, C., "Principles of Nuclear Fuel Production, vol. 1, Uranium and Plutonium, ENEA/BATAN, 1984.
2. BENJAMIN, M.A., "Nuclear Reactor Materials and Applications", Van Nostrand Reinhold Co., New York, 1983.
3. YANG, M.S., KIM, B.G., SONG, K.W., BAE, K.K., KIM, S.S., KIM, W.K., JUNG, I.H., PARK, H.S., "Characteristics of Dupic Fuel Fabrication Technology", Kaeri, Taejon, 2005.
4. MAJUMDAR, D., JAHSHAN, S.N., ALLISON, C.M., KUAN, P., THOMAS, T.R., "Recycling of Nuclear Spent Fuel with AIROX Processing", DOE/ID-10423, 1992.
5. SIGIT, MARTOYO, NGATIJO, RAHMAT, P., R. DIDIEK HERHADY, "Pengaruh Siklus Proses Oksidasi-Reduksi Uranium Oksida Terhadap Densitas dan Butiran Serbuk U_3O_8 dan UO_2 ", J. Tek. Bhn. Nukl., Vol.1, No.2, 2005 (68-76).
6. ASTM E112-96, "Standard Test Methods for Determining Average Grain Size.
7. ABDUL LATIEF, TATA TERBIT S., DJOKO KISWORO, SLAMET PRIBADI, ARIEF, S.A., "Pengaruh Tekanan Pengompakan, Komposisi Er_2O_3 dan Penyinteran Pada Temperatur Rendah Terhadap Kualitas Pelet ($UO_2+Er_2O_3$), J. Tek. Bhn. Nukl., Vol.1, No.2, 2005 (58-67).