

## KARAKTERISASI LAPISAN PENYERAP DAPAT BAKAR PADA PERMUKAAN PELET $UO_2$ + DOPAN $TiO_2$

Sungkono<sup>1</sup>, Tri Mardji Atmono<sup>2</sup>

1. Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir, BATAN

Kawasan Puspiptek, Serpong, Tangerang Selatan, 15314

2. Pusat Sains Teknologi Akselerator – BATAN

Jalan Babarsari Kotak Pos 6101 YKBB Yogyakarta 55281

e-mail : sungkhana@gmail.com

(Naskah diterima : 27-07-2016, Naskah direvisi: 25-08-2016, Naskah disetujui:  
04-09-2016)

### ABSTRAK

**KARAKTERISASI LAPISAN PENYERAP DAPAT BAKAR PADA PERMUKAAN PELET  $UO_2$  + DOPAN  $TiO_2$ .** Lapisan penyerap dapat bakar pada permukaan pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$  telah berhasil dibuat dengan menggunakan metode RF *sputtering*. Penelitian ini bertujuan untuk mendapatkan karakter mikrostruktur pelet  $UO_2$  + dopan, ketebalan, kekerasan mikro, komposisi kimia dan struktur kristal lapisan penyerap dapat bakar pada permukaan pelet  $UO_2$ . Penentuan mikrostruktur dan ketebalan lapisan dilakukan dengan menggunakan mikroskop optik, kekerasan lapisan dengan metode kekerasan mikro Vickers, komposisi kimia dengan spektrometri XRF dan struktur kristal dengan difraksi sinar-X. Hasil penelitian menunjukkan bahwa semakin besar kandungan  $TiO_2$  dalam pelet maka semakin besar ukuran butir dalam mikrostruktur pelet dan semakin tebal lapisan yang terbentuk pada permukaan pelet  $UO_2$ . Kekerasan lapisan permukaan pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$  sinter relatif sama dan tidak bergantung pada konsentrasi dopan  $TiO_2$ . Lapisan permukaan pelet  $UO_2$  + 0,3 %  $TiO_2$ , pelet  $UO_2$  + 0,5 %  $TiO_2$  dan pelet  $UO_2$  + 0,7 %  $TiO_2$  sinter mengandung unsur zirkonium masing-masing 1,97  $\mu\text{g}$ , 2,47  $\mu\text{g}$  dan 4,81  $\mu\text{g}$ . Lapisan penyerap dapat bakar pada permukaan pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$  sinter mempunyai fasa  $ZrB_2$  dengan struktur kristal heksagonal.

**Kata Kunci:** lapisan permukaan, penyerap dapat bakar, pelet  $UO_2$ , mikrostruktur, kekerasan, komposisi kimia, struktur kristal.

## **ABSTRACT**

**CHARACTERIZATION OF BURNABLE ABSORBER LAYER ON THE SURFACE OF  $UO_2$  + DOPED  $TiO_2$  PELLETS.** Burnable absorber layer on the surface of  $UO_2$  + doped  $TiO_2$  pellets have successfully created using RF sputtering methods. The objective of this research is to obtain of microstructure characters of  $UO_2$  + doped  $TiO_2$  pellets, thickness, micro hardness, chemical composition and crystal structure of burnable absorber layer on the surface of  $UO_2$  pellets. The methods used are the microstructure and layer thickness using optical microscopy, layer hardness with micro Vickers hardness method, chemical composition by XRF spectrometry, and crystal structure by X-ray diffraction. The results showed that the larger of  $TiO_2$  content in the pellets then the greater of the grain size in the microstructure of the pellets and the thicker of the layer formed on the surface of  $UO_2$  pellets. The hardness of surface layer of  $UO_2$  + doped  $TiO_2$  sintered pellets are equal and does not depend on the dopant concentration of  $TiO_2$ . The surface layer of  $UO_2$  + 0.3 %  $TiO_2$ ,  $UO_2$  + 0.5 %  $TiO_2$  and  $UO_2$  + 0.7 %  $TiO_2$  sintered pellets are containing zirconium respectively 1.97  $\mu g$ , 2.47  $\mu g$  and 4.81  $\mu g$ . Burnable absorber layer on the surface of  $UO_2$  + doped  $TiO_2$  sintered pellets have  $ZrB_2$  phase with a hexagonal crystal structure.

**Keywords:** surface layer, burnable absorber,  $UO_2$  pellet, microstructures, micro hardness, chemical composition, crystal structure.

## PENDAHULUAN

Pengembangan teknologi elemen bakar nuklir saat ini lebih diarahkan pada peningkatan fraksi bakar bahan bakar dalam teras reaktor daya tipe *Pressurized Water Reactor* (PWR). Hal ini bertujuan untuk meningkatkan efisiensi Pembangkit Listrik Tenaga Nuklir (PLTN). Berbagai usaha telah dilakukan oleh peneliti untuk meningkatkan fraksi bakar bahan bakar nuklir diantaranya adalah dengan mengembangkan teknologi pembuatan paduan zirkonium baru (Zirlo), bahan bakar  $\text{UO}_2$  berbutir besar dan bahan bakar  $\text{UO}_2$  berlapis bahan penyerap dapat bakar<sup>[1]</sup>. Pembuatan bahan bakar paduan Zirlo dimaksudkan untuk memenuhi kebutuhan material kelongsong yang mempunyai stabilitas iradiasi, sifat mekanik dan ketahanan korosi yang baik, serta ekonomis secara neutronik selama penggunaannya dalam teras reaktor dengan menggunakan bahan bakar dengan fraksi bakar tinggi<sup>[2]</sup>. Sementara itu, pembuatan bahan bakar berbutir besar dilakukan dengan tujuan untuk memperpanjang rute difusi gas produk fisi ke batas butir sehingga terjadi penundaan pelepasan gas yang teraktivasi termal pada temperatur bahan bakar<sup>[3]</sup>. Di lain pihak, pengembangan bahan bakar berlapis tipis bahan penyerap dapat bakar bertujuan untuk mengendalikan kelebihan reaktivitas teras reaktor akibat pemakaian bahan bakar nuklir dengan fraksi bakar tinggi<sup>[4]</sup>. Semua upaya ini dilakukan dalam rangka mengantisipasi kenaikan fraksi bakar bahan bakar nuklir tanpa memberikan efek terjadinya kegagalan dini pada elemen bakar nuklir.

Berbagai inovasi telah dilakukan para peneliti untuk mengembangkan bahan bakar  $\text{UO}_2$  berbutir besar sebagai bahan bakar dengan fraksi bakar tinggi untuk reaktor tipe PWR, diantaranya dengan menambahkan dopan seperti  $\text{Nb}_2\text{O}_5$ ,  $\text{TiO}_2$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ , dan  $\text{V}_2\text{O}_5$  ke dalam serbuk  $\text{UO}_2$ <sup>[5,6]</sup>. Ukuran butir  $\text{UO}_2$  dalam produk sinter akhir

tergantung pada jenis dan jumlah dopan yang ditambahkan ke dalam bahan bakar. Namun, dopan yang ditambahkan ke dalam bahan bakar tidak boleh menurunkan sifat standar bahan bakar nuklir. Sehubungan dengan hal tersebut maka senyawa  $\text{TiO}_2$  dipilih sebagai dopan dalam pembuatan bahan bakar pelet  $\text{UO}_2$  berbutir besar dengan pertimbangan bahwa  $\text{TiO}_2$  dapat meningkatkan mampu sinter serbuk dan mempromosikan pertumbuhan butir hingga ukuran butir  $\text{UO}_2$  sinter sekitar  $80 \mu\text{m}$  serta perilaku transfer termalnya sangat baik<sup>[7]</sup>.

Selain memperbesar ukuran butir pelet  $\text{UO}_2$ , inovasi lain yang dilakukan para peneliti adalah untuk mencegah terjadinya kegagalan elemen bakar nuklir yaitu dengan penggunaan bahan bakar nuklir berlapis penyerap dapat bakar hidropobik atau *Integrated Fuel Burnable Absorber* (IFBA). Bahan pelapis yang memenuhi kriteria IFBA adalah material yang mempunyai tampang lintang serapan neutron termal rendah, sifat fisika, mekanik baik, ketahanan aus dan korosi tinggi serta kompatibilitas dengan bahan bakar<sup>[8]</sup>. Zirkonium diborida ( $\text{ZrB}_2$ ) dipilih sebagai material pelapis karena memenuhi kriteria IFBA serta mampu menaikkan umur elemen bakar nuklir dalam teras reaktor dan mengendalikan reaktivitas reaktor nuklir yang lebih baik dibandingkan gadolinium oksida ( $\text{Gd}_2\text{O}_3$ )<sup>[8]</sup>.

Permasalahan yang dihadapi dalam pembuatan bahan bakar  $\text{UO}_2$  dengan fraksi bakar yang tinggi adalah meminimalkan pelepasan gas produk fisi dan mengendalikan reaktivitas teras reaktor PWR. Dari sisi pelepasan gas produk fisi, kandungan dopan dalam pelet  $\text{UO}_2$  yang semakin besar akan memberikan dampak pada kebolehjadian terjadinya pengurangan pelepasan gas hasil fisi bertambah besar. Namun bila ditinjau dari sisi proses pelapisan permukaan pelet  $\text{UO}_2$  dengan menggunakan metoda *sputtering*, uap kimia  $\text{ZrB}_2$  akan lebih mudah memasuki pelet  $\text{UO}_2$  + dopan sinter yang berbutir lebih besar dan

terdeposited menjadi lapisan IFBA yang kuat dan kompak pada permukaan pelet. Semakin banyak  $ZrB_2$  terdifusi maka semakin banyak unsur boron yang terkandung dalam lapisan permukaan pelet. Hal ini tidak diinginkan karena unsur boron berfungsi sebagai penyerap neutron termal sehingga sangat merugikan secara ekonomi neutron. Sementara itu, apabila butir dalam pelet  $UO_2$  + dopan sinter kecil maka proses pelapisan permukaan pelet relatif sulit dan membutuhkan tekanan lebih tinggi<sup>[8,9]</sup>. Sehubungan dengan hal tersebut maka dibuat kompromi teknis dan ekonomi neutron dengan cara membuat pelet  $UO_2$  + dopan sinter berlapis tipis zirkonium diborida dengan ketebalan 2 sampai dengan 6  $\mu m$ . Hal ini sesuai dengan kriteria IFBA yang direkomendasikan untuk bahan bakar nuklir dengan fraksi bakar tinggi<sup>[9]</sup>.

Berdasarkan uraian tersebut di atas, maka dalam penelitian ini akan dibuat pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$  sinter berlapis tipis bahan penyerap dapat bakar ( $ZrB_2$ ) dengan metode *radio frequency* (RF) *sputtering*. Selanjutnya, lapisan penyerap dapat bakar tersebut dikarakterisasi untuk mendapatkan karakter mikrostruktur pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$  sinter, kekerasan mikro, komposisi kimia dan struktur kristal lapisan penyerap dapat bakar pada permukaan pelet  $UO_2$ . Hipotesis penelitian yang diajukan adalah konsentrasi dopan  $TiO_2$  akan mempengaruhi ukuran butir dan ketebalan lapisan permukaan pelet  $UO_2$  sinter

## METODOLOGI

Bahan yang digunakan dalam pembuatan pelet  $UO_2$  berlapis tipis bahan penyerap dapat bakar adalah pelet  $UO_2$  dengan dopan  $TiO_2$ . Titanium oksida ( $TiO_2$ ) yang ditambahkan dalam pembuatan pelet  $UO_2$  terdiri dari 3 (tiga) variasi yaitu 0,3 %, 0,5 % dan 0,7 % berat. Bahan lainnya adalah pelat  $ZrB_2$  dengan diameter 75 mm dan tebal 4 mm sebagai target serta lem konduktif (*Ag paint*)<sup>[10]</sup>. Sementara itu, bahan

yang digunakan dalam karakterisasi kapisan penyerap dapat bakar pada permukaan pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$  adalah resin acryfic dan pengeras sebagai bahan pembingkai (*mounting*), kertas ampelas grit 320 sampai dengan 1200, pasta intan grit 0,5  $\mu m$  serta bahan etsa yaitu asam nitrat, asam klorida, asam fluorida dan gliserin. Peralatan yang digunakan dalam pelapisan permukaan pelet  $UO_2$  adalah mesin *radio frequency* (RF) *sputtering*. Sementara itu, mesin potong, mesin gerinda dan poles digunakan untuk melakukan preparasi metalografi sampel. Peralatan mikroskop optik (MO), spektrometer *X-ray fluorescence* (XRF) dan difraktometer sinar-X (XRD) digunakan untuk mengkarakterisasi lapisan penyerap dapat bakar pada permukaan pelet  $UO_2$ .

Proses pelapisan pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$  dengan  $ZrB_2$  dilakukan dengan menggunakan mesin RF *sputtering* pada kondisi tegangan bias 1.000 volt, jarak antar pelet dan target diatur sedemikian hingga terjadi awan elektron, tekanan  $10^{-5}$  mbar, dan waktu proses 100 menit. Langkah berikutnya, mesin RF *sputtering* dimatikan dan setelah dingin pelet  $UO_2$  berlapis tipis  $ZrB_2$  dilepas dari pemegang spesimen. Proses selanjutnya adalah karakterisasi terhadap lapisan permukaan pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$ .

Tahapan preparasi metalografi terhadap lapisan penyerap dapat bakar pada permukaan pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$  adalah (1) pelet dipotong dengan mesin *accutom* menjadi 3 (tiga) bagian masing-masing untuk sampel metalografi dan kekerasan, sampel uji XRF dan sampel uji XRD; (2) sampel metalografi dibingkai dengan resin acryfic dan pengeras; (3) sampel diampelas dengan kertas ampelas grit 320 hingga 1.200 untuk mendapatkan permukaan sampel yang rata dan bebas goresan; (4) sampel dipoles dengan pasta intan grit 0,5  $\mu m$  untuk mendapatkan permukaan rata dan mengkilap, dan berikutnya dilakukan proses etsa; (5)

pengamatan mikrostruktur dan ketebalan lapisan sampel menggunakan mikroskop optik. Pengamatan mikrostruktur pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$  sinter dan ketebalan lapisan pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  menggunakan mikroskop optik.

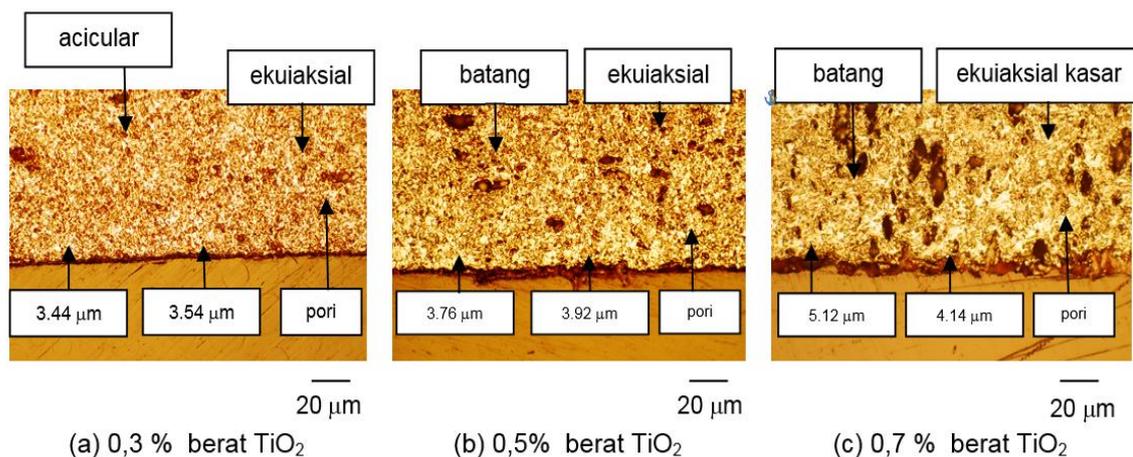
Analisis kekerasan mikro pelet dan lapisan permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$  dilakukan dengan menggunakan peralatan uji kekerasan mikro *Vickers* dengan beban indenter sebesar 245,25 N, pada 3 (tiga) titik di lokasi pelet dan lapisan pada permukaan pelet. Sementara itu, penentuan komposisi kimia dilakukan dengan peralatan XRF menggunakan metode kualitatif dan metode kuantitatif. Metode kualitatif digunakan untuk mengetahui jenis unsur penyusun dan metode kuantitatif untuk menentukan

konsentrasi unsur yang terdapat pada lapisan permukaan pelet  $\text{UO}_2$ . Struktur kristal dan fasa-fasa yang terbentuk dalam proses pelapisan permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$  ditentukan dengan menggunakan metode difraksi sinar-X menggunakan peralatan XRD.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### a. Mikrostruktur

Gambar 1 menunjukkan mikrostruktur pelet  $\text{UO}_2$  dengan kandungan dopan 0,3 %, 0,5 % dan 0,7 % berat. Gambar 1 (a) terlihat bahwa mikrostruktur pelet  $\text{UO}_2$  + 0,3 %  $\text{TiO}_2$  mempunyai campuran butir ekuiaksial halus dan *acicular* serta pori-pori *intergranular* sferis.



Gambar 1. Mikrostruktur pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$ .

Gambar 1 (b) menunjukkan bahwa mikrostruktur pelet  $\text{UO}_2$  + 0,5 %  $\text{TiO}_2$  yang mempunyai butir batang dan ekuiaksial relatif besar dengan pori-pori *intergranular* sferis. Sementara itu, dari Gambar 1 (c) menunjukkan bahwa mikrostruktur pelet  $\text{UO}_2$  + 0,7 %  $\text{TiO}_2$  yang mempunyai butir batang dan ekuiaksial dengan pori-pori *intergranular* sferis lebih besar dibandingkan dengan Gambar 1 (b). Mikrostruktur  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$  dengan kandungan 0,3 % sampai dengan 0,7 % berat  $\text{TiO}_2$  menunjukkan kecenderungan serupa yaitu semakin besar dopan  $\text{TiO}_2$  yang terkandung dalam pelet

$\text{UO}_2$  maka ukuran butirnya semakin besar. Hal ini disebabkan bahwa kation pada dopan ( $\text{Ti}^{4+}$ ) di dalam kisi kristal  $\text{UO}_2$  akan menimbulkan ketidakseimbangan muatan di dalam kisi, sehingga terjadi cacat-cacat kisi. Adanya cacat kisi dapat meningkatkan mobilitas ion-ion yang berdifusi sehingga menyebabkan koefisien difusi ion dengan dopan menjadi lebih tinggi dibandingkan tanpa dopan<sup>[11]</sup>.

Kation dopan dari  $\text{Ti}^{4+}$  dapat menggantikan posisi kation  $\text{U}^{4+}$  dan dapat menempati kekosongan (*vacancies*) di dalam kisi. Pada temperatur dimana terjadi

reaksi larutan padat, difusivitas ion  $U^{4+}$  bertambah besar sehingga cukup efektif untuk mengubah muatan kisi menjadi lebih positif. Penambahan dopan  $TiO_2$  akan mengurangi konsentrasi kekosongan anion sehingga konsentrasi kation bertambah. Bertambahnya jumlah kekosongan kation atau uranium di dalam kisi akan menaikkan koefisien difusinya dan memperbesar proses pertumbuhan butir yang terjadi<sup>[12]</sup>.

Dopan  $TiO_2$  memberikan efek terhadap penurunan kekerasan dan kenaikan densitas pelet  $UO_2$ . Mikrostruktur pelet  $UO_2$  berukuran butir besar ( $> 30 \mu m$ ) akan memperbesar panjang difusi gas-gas produk fisi ke batas butir sehingga dapat menunda waktu pelepasan gas hasil fisi dari pelet  $UO_2$ . Kenaikan densitas pelet  $UO_2$  memberikan dampak pada penurunan kebolehdan terjadinya densifikasi selama iradiasi terhadap bakar bakar. Sementara itu, pelet  $UO_2$  yang lebih lunak dapat mengurangi dan menurunkan kebolehdan terjadinya intensitas proses *pellet-cladding mechanical interaction* (PCMI) pada saat reaktor daya beroperasi dengan beban maksimal. Fenomena ini dapat mengurangi atau meminimalkan resiko kegagalan kelongsong bahan bakar nuklir<sup>[13]</sup>.

Gambar 1 (a), (b) dan (c) memperlihatkan adanya lapisan tipis pada permukaan pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$ . Lapisan tipis terbentuk dari proses *sputtering* target  $ZrB_2$  ke arah permukaan pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$  yang berpengaruh kepada ketebalan lapisan permukaan pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$ . Pada Tabel 1 terlihat bahwa ketebalan lapisan rata-rata pada permukaan pelet  $UO_2$  + 0,3 %  $TiO_2$  adalah  $2,74 \mu m$ , sedangkan ketebalan lapisan pada permukaan pelet  $UO_2$  + 0,5 %  $TiO_2$  dan pelet  $UO_2$  + 0,7 %  $TiO_2$  masing-masing adalah  $3,79 \mu m$  dan  $4,28 \mu m$ . Sementara itu, diameter butir dalam mikrostruktur pelet  $UO_2$  + 0,3 %  $TiO_2$ , pelet  $UO_2$  + 0,5 %  $TiO_2$  dan pelet  $UO_2$  + 0,7 %  $TiO_2$  masing-masing adalah  $20,72 \pm 0,84 \mu m$ ;  $22,60 \pm 1,22 \mu m$  dan  $24,56 \pm$

$1,51 \mu m$ . Tabel 1 menunjukkan bahwa lapisan IFBA bertambah tebal seiring dengan bertambah besarnya diameter butir dalam mikrostruktur permukaan pelet  $UO_2$ <sup>[8]</sup>. Pada pelet  $UO_2$  berbutir besar, energi ikat antar atomnya lebih rendah sehingga energi yang dibutuhkan atom-atom  $ZrB_2$  untuk berdifusi ke permukaan pelet  $UO_2$  lebih rendah dibandingkan pada permukaan pelet  $UO_2$  berbutir kecil. Kondisi tersebut memungkinkan laju deposisi atom-atom  $ZrB_2$  ke permukaan pelet  $UO_2$  berbutir besar semakin tinggi sehingga lapisan yang terbentuk semakin tebal<sup>[14]</sup>. Ketebalan lapisan pada permukaan pelet  $UO_2$  + 0,3 %  $TiO_2$ , pelet  $UO_2$  + 0,5 %  $TiO_2$  dan pelet  $UO_2$  + 0,7 %  $TiO_2$  antara  $2,74 \mu m$  sampai dengan  $4,28 \mu m$ . Besarnya ketebalan lapisan ini masih dalam rentang lapisan IFBA yang direkomendasikan yaitu  $2 - 6 \mu m$ <sup>[9]</sup>.

Tabel 1. Ketebalan lapisan permukaan pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$

Sampel	Ketebalan lapisan ( $\mu m$ )	Diameter butir ( $\mu m$ )
$UO_2$ + 0,3 % $TiO_2$ sinter	$2,74 \pm 0,16$	$20,72 \pm 0,84$
$UO_2$ + 0,5 % $TiO_2$ sinter	$3,79 \pm 0,28$	$22,60 \pm 1,22$
$UO_2$ + 0,7 % $TiO_2$ sinter	$4,28 \pm 0,44$	$24,56 \pm 1,51$

## b. Kekerasan Mikro

Hasil pengolahan data uji kekerasan mikro pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$  dan lapisan  $ZrB_2$  ditunjukkan pada Tabel 2. Kekerasan pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$  menurun seiring dengan bertambah besarnya kandungan  $TiO_2$  dalam pelet. Kekerasan diperoleh sebesar 516 VHN untuk 0,3 %  $TiO_2$ , 510 VHN untuk 0,5 %  $TiO_2$  dan 488 VHN untuk 0,7 %  $TiO_2$ . Penurunan kekerasan pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$  terjadi karena semakin besar kandungan dopan  $TiO_2$  maka akan semakin besar butir-butir dalam mikrostruktur pelet  $UO_2$ .

Tabel 2. Kekerasan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$  berlapis tipis  $\text{ZrB}_2$ 

Sampel	Kekerasan, VHN	
	Pelet	Lapisan permukaan
$\text{UO}_2$ + 0,3 % $\text{TiO}_2$ sinter berlapis tipis $\text{ZrB}_2$	516	404
$\text{UO}_2$ + 0,5 % $\text{TiO}_2$ sinter berlapis tipis $\text{ZrB}_2$	510	398
$\text{UO}_2$ + 0,7 % $\text{TiO}_2$ sinter berlapis tipis $\text{ZrB}_2$	488	401

Pembesaran ukuran butir pelet  $\text{UO}_2$  menyebabkan tegangan sisa dalam struktur menurun sehingga dapat menurunkan kerapatan dislokasi dan disertai dengan efek pelunakan pada pelet  $\text{UO}_2$ . Kondisi ini menyebabkan gaya ikat antar atomnya rendah sehingga kemampuan menahan beban luar yang diterapkan pada pelet menjadi rendah. Dengan demikian semakin besar kandungan  $\text{TiO}_2$  dalam pelet maka akan semakin besar diameter butir dan semakin rendah kekerasan pelet  $\text{UO}_2$ <sup>[15]</sup>.

Tabel 2 juga memperlihatkan bahwa kekerasan lapisan pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$  sinter relatif sama. Kekerasan lapisan pelet  $\text{UO}_2$  diperoleh masing-masing sebesar 404 VHN untuk kandungan 0,3 %  $\text{TiO}_2$ , 398 VHN untuk kandungan 0,5 %  $\text{TiO}_2$  dan 401 VHN untuk kandungan 0,7 %  $\text{TiO}_2$ . Nilai kekerasan yang relatif sama tersebut menunjukkan bahwa kekerasan lapisan tipis pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  tidak bergantung pada konsentrasi dopan  $\text{TiO}_2$  yang terkandung dalam pelet. Hal ini berarti lapisan tipis yang terbentuk pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  tersusun oleh komponen kimia yang sama dari material target. Dengan demikian, pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$  telah terbentuk lapisan penyerap dapat bakar yang tersusun oleh zirkonium diborida.

### c. Komposisi Kimia

Peralatan XRF yang digunakan dalam penelitian adalah XRF tipe EDXRF

(*Energy Dispersive XRF*) yang mempunyai kemampuan analisis unsur dengan rentang dari  $^{11}\text{Na}$  sampai dengan  $^{92}\text{U}$ . Sehubungan hal tersebut, peralatan XRF ini hanya dapat mengidentifikasi unsur zirkonium sedangkan unsur boron tidak dapat diidentifikasi secara kualitatif. Oleh karena itu, apabila dalam lapisan permukaan pelet teridentifikasi adanya unsur Zr maka lapisan tersusun dari senyawa  $\text{ZrB}_2$ .

Lapisan  $\text{ZrB}_2$  yang terdapat pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$  sangat tipis yaitu 2,74  $\mu\text{m}$  sampai dengan 4,28  $\mu\text{m}$ , maka dalam penentuan konsentrasi Zr digunakan sampel standar UZr sebesar 20 ppm. Analisis kuantitatif hasil pengujian komposisi kimia lapisan permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$  menggunakan XRF ditunjukkan dalam Tabel 3.

Tabel 3. Konsentrasi unsur zirkonium dalam lapisan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$ 

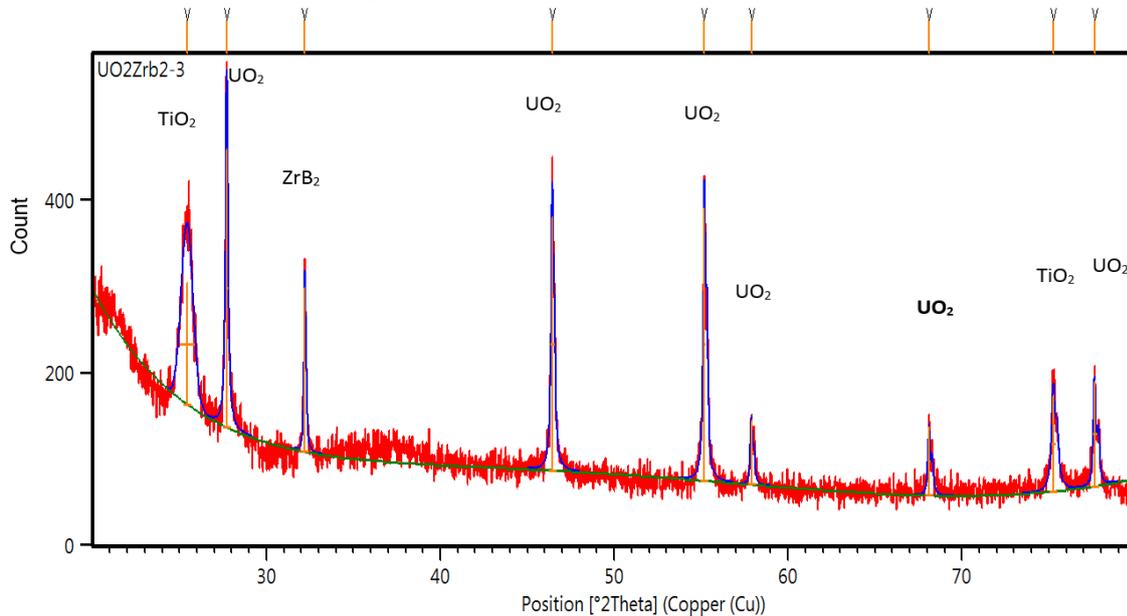
Sampel	Konsentrasi Zr ( $\mu\text{g}$ )
Pelet $\text{UO}_2$ + 0,3 % $\text{TiO}_2$ berlapis tipis	$1,97 \pm 0,27$
Pelet $\text{UO}_2$ + 0,5 % $\text{TiO}_2$ berlapis tipis	$2,47 \pm 0,30$
Pelet $\text{UO}_2$ + 0,7 % $\text{TiO}_2$ berlapis tipis	$4,81 \pm 0,49$

Tabel 3 memperlihatkan bahwa pada sampel pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$  berlapis tipis terdapat unsur zirkonium dengan konsentrasi masing-masing adalah ( $1,97 \pm 0,37$ )  $\mu\text{g}$  untuk pelet  $\text{UO}_2$  + 0,3 %  $\text{TiO}_2$ ; ( $2,47 \pm 0,49$ )  $\mu\text{g}$  untuk pelet  $\text{UO}_2$  + 0,5 %  $\text{TiO}_2$  dan ( $4,81 \pm 0,49$ )  $\mu\text{g}$  untuk pelet  $\text{UO}_2$  + 0,7 %  $\text{TiO}_2$ . Adanya kandungan unsur Zr dalam lapisan tipis yang terbentuk pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$  menunjukkan bahwa lapisan telah tersusun oleh komponen kimia dari material target. Dengan demikian, pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + 0,3 %  $\text{TiO}_2$ , pelet  $\text{UO}_2$  + 0,5 %  $\text{TiO}_2$  dan  $\text{UO}_2$  + 0,7 %  $\text{TiO}_2$  telah terbentuk lapisan penyerap dapat bakar senyawa  $\text{ZrB}_2$ .

#### d. Kristalografi

Data pengujian kekerasan dan komposisi kimia terhadap pelet  $UO_2$  + dopan  $TiO_2$  mengidentifikasi bahwa lapisan yang terbentuk pada permukaannya adalah zirkonium diborida ( $ZrB_2$ ). Sehubungan dengan hal tersebut, maka dalam pengujian menggunakan XRD dilakukan terhadap salah satu sampel yaitu pelet  $UO_2$  + 0,3 %  $TiO_2$ . Hasil pengujian XRD terhadap sampel pelet  $UO_2$  + 0,3 %  $TiO_2$  diperoleh pola difraksi berupa grafik dengan puncak-puncak spektrum pada sudut tertentu. Pola difraksi yang diperoleh kemudian dilakukan pencocokan spektrum terhadap basis data pola difraksi COD (*Crystallography Open*

*Database*). Gambar 2 menunjukkan bahwa pola difraksi pelet  $UO_2$  + 0,3 %  $TiO_2$  berlapis tipis yang dianalisis dengan basis data pola difraksi COD. Sementara itu, Tabel 4 menunjukkan identifikasi terhadap 9 puncak spektrum yang terdapat pada pola difraksi pelet  $UO_2$  + 0,3 %  $TiO_2$  berlapis tipis material penyerap dapat bakar. Dari Gambar 2 dan Tabel 4 diketahui adanya fasa  $UO_2$  yang mempunyai struktur kristal kubus dengan parameter kisi  $a = 5,45 \text{ \AA}$  sesuai referensi code #01-073-1715. Selain itu, diperoleh juga adanya fasa  $ZrB_2$  yang mempunyai struktur kristal heksagonal dengan parameter kisi  $a = b = 3,17 \text{ \AA}$  dan  $c = 3,53 \text{ \AA}$  sesuai referensi code #00-034-0423.



Gambar 2. Pola difraksi pelet  $UO_2$  + 0,3 %  $TiO_2$  berlapis tipis material penyerap dapat bakar.

Tabel 4. Identifikasi puncak spektrum pola difraksi  $UO_2$  + 0,3 %  $TiO_2$  berlapis tipis material penyerap dapat bakar.

Puncak spektrum ke	Sudut $2\theta$		Senyawa
	Sampel	Referensi	
1	25,421	25,335	$TiO_2$
2	27,701	28,298	$UO_2$
3	32,199	32,601	$ZrB_2$
4	46,429	47,053	$UO_2$
5	55,186	55,819	$UO_2$
6	57,888	58,535	$UO_2$
7	68,104	68,737	$UO_2$
8	75,260	75,126	$TiO_2$
9	77,620	78,270	$UO_2$

Selain fasa diatas, ditemukan juga fasa  $TiO_2$  dengan struktur kristal tetragonal yang mempunyai parameter kisi  $a = b = 3,78 \text{ \AA}$  dan  $c = 9,51 \text{ \AA}$  sesuai referensi code #01-083-2243. Dengan demikian, dari hasil analisis XRD membuktikan bahwa lapisan penyerap dapat bakar yang terbentuk pada permukaan pelet  $UO_2$  + 0,3 %  $TiO_2$  sinter adalah zirkonium diborida ( $ZrB_2$ ).

Berdasarkan bahasan mikrostruktur pelet  $UO_2$  + 0,3 %  $TiO_2$ , pelet  $UO_2$  + 0,5 %  $TiO_2$  dan pelet  $UO_2$  + 0,7 %  $TiO_2$ , kekerasan mikro, komposisi kimia dan struktur kristal

lapisan tipis pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$ , sinter diketahui bahwa kandungan dopan  $\text{TiO}_2$  yang ditambahkan mempengaruhi struktur dan ukuran butir dalam mikrostrukturnya. Struktur butir dalam mikrostruktur permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan 0,3 %  $\text{TiO}_2$  sinter lebih seragam dengan ukuran butir relatif kecil sehingga laju difusi atom-atom  $\text{ZrB}_2$  lambat dan membutuhkan tekanan lebih tinggi dibandingkan struktur dan ukuran butir permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + 0,5 %  $\text{TiO}_2$  dan pelet  $\text{UO}_2$  + 0,7 %  $\text{TiO}_2$  sinter. Hal ini menyebabkan pada kondisi proses *sputtering* yang sama, ketebalan lapisan  $\text{ZrB}_2$  pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan 0,3 %  $\text{TiO}_2$  sinter lebih tipis dibandingkan ketebalan lapisan pada permukaan  $\text{UO}_2$  + 0,5 %  $\text{TiO}_2$  dan pelet  $\text{UO}_2$  + 0,7 %  $\text{TiO}_2$  sinter. Lapisan pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$  sinter mempunyai kekerasan relatif sama dan tidak bergantung pada konsentrasi dopan  $\text{TiO}_2$ . Hal ini berarti bahwa lapisan tipis pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$  sinter tersusun oleh komponen yang sama dari material target  $\text{ZrB}_2$ . Lapisan penyerap dapat bakar yang terbentuk pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + 0,3 %  $\text{TiO}_2$ , pelet  $\text{UO}_2$  + 0,5 %  $\text{TiO}_2$  dan pelet  $\text{UO}_2$  + 0,7 %  $\text{TiO}_2$  sinter adalah  $\text{ZrB}_2$  yang dibuktikan dengan adanya unsur Zr secara kuantitatif dari hasil pengujian lapisan dengan XRF dan fasa  $\text{ZrB}_2$  dengan struktur kristal heksagonal dari hasil pengujian XRD.

## SIMPULAN

Pembuatan lapisan penyerap dapat bakar pada permukaan bahan bakar nuklir dengan menggunakan metoda *sputtering* telah berhasil dilakukan pada pelet  $\text{UO}_2$  + 0,3 %  $\text{TiO}_2$ , pelet  $\text{UO}_2$  + 0,5 %  $\text{TiO}_2$  dan pelet  $\text{UO}_2$  + 0,7 %  $\text{TiO}_2$  sinter. Karakter mikrostruktur pelet  $\text{UO}_2$  + 0,3 %  $\text{TiO}_2$  sinter yang diperoleh adalah butir campuran ekuiaksial dan *acicular* dengan diameter rerata 20,72  $\mu\text{m}$ , pelet  $\text{UO}_2$  + 0,5 %  $\text{TiO}_2$  berupa campuran batang dan ekuiaksial

dengan diameter butir rerata 22,60  $\mu\text{m}$ , sedangkan pelet  $\text{UO}_2$  + 0,7 %  $\text{TiO}_2$  sinter mempunyai struktur butir berupa ekuiaksial kasar dan batang dengan diameter butir rerata 24,56  $\mu\text{m}$ . Lapisan yang terbentuk pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + 0,3 %  $\text{TiO}_2$ , pelet  $\text{UO}_2$  + 0,5 %  $\text{TiO}_2$  dan pelet  $\text{UO}_2$  + 0,7 %  $\text{TiO}_2$  sinter mempunyai ketebalan rerata masing-masing sebesar 2,74  $\mu\text{m}$ , 3,79  $\mu\text{m}$  dan 4,28  $\mu\text{m}$ . Kekerasan lapisan pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + 0,3 %  $\text{TiO}_2$ , pelet  $\text{UO}_2$  + 0,5 %  $\text{TiO}_2$  dan pelet  $\text{UO}_2$  + 0,7 %  $\text{TiO}_2$  sinter rerata masing-masing adalah 404 VHN, 398 VHN dan 401 VHN. Kekerasan lapisan tidak bergantung pada konsentrasi dopan  $\text{TiO}_2$ . Lapisan permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + 0,3 %  $\text{TiO}_2$ , pelet  $\text{UO}_2$  + 0,5 %  $\text{TiO}_2$  dan pelet  $\text{UO}_2$  + 0,7 %  $\text{TiO}_2$  sinter mengandung unsur zirkonium masing-masing 1,97  $\mu\text{g}$ , 2,47  $\mu\text{g}$  dan 4,81  $\mu\text{g}$ . Karakter lapisan penyerap dapat bakar yang terbentuk pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$  sinter adalah fasa  $\text{ZrB}_2$  yang mempunyai struktur kristal heksagonal dengan parameter kisi  $a = b = 3,17 \text{ \AA}$  dan  $c = 3,53 \text{ \AA}$ .

## UCAPAN TERIMAKASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Dr. Jan Setiawan, M.Si, Helmi Fauzi R, S.ST, Edi Indarto, A.Md dan Isfandi, A.Md yang telah membantu pelaksanaan dalam pembuatan dan karakterisasi lapisan permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan  $\text{TiO}_2$ .

## DAFTAR PUSTAKA

- [1] P. R. Rudling, et al., (2008). *High Burnup Fuel Issues*, Journal Nuclear. Engineering and Technology., 40 (1), Hal. 1-8.
- [2] Wei, J., P. Frankel, E. Polatidis, M. Blat, A. Ambard, R. J. Comstock, L. Hallstadius, D. Hudson, G. D. W. Smith, C. R. M. Grovenor, M. Klausf, R. A. Cottis, S. Lyon, M. Preuss, (2013). *The Effect of Sn on Autoclave*

- Corrosion Performance and Corrosion Mechanisms in Zr-Sn-Nb Alloys*, Acta Materialia, 61, Hal.4200-4214.
- [3] Masih, A. R. (2014). *Effects of Additives on Uranium Dioxide Fuel Behaviour*, Report Number 2014 : 21 ISSN : 2000-0456, Stral Sakerhets Myndigheten, Swedish.
- [4] Yahya, M. S., (2016). *Burnable Absorber-integrated Guide Thimble (BigT) – II: Application to 3D PWR Core Design*, Journal of Nuclear Science and Technology, 53 (10), Hal. 1521-1527.
- [5] Futichah, T. Yulianto, (2013). *Pembesaran Ukuran Butir UO<sub>2</sub> Dengan Penambahan Dopan Untuk Mengurangi Pelepasan Gas Fisi*, Jurnal Teknologi Bahan Nuklir 9 (1), Hal. 1-11.
- [6] Mutiara, E., T. Yulianto, (2013). *Efek Penambahan Dopan Terhadap Karakteristik Pelet UO<sub>2</sub> Sinter*, Jurnal Urania, 19 (2), Hal. 84-91.
- [7] Yao, T., S. M. Scott, G. Xin, J. Lian, (2015). *TiO<sub>2</sub> Doped UO<sub>2</sub> Fuels Sintered by Spark Plasma Sintering*, Journal of Nuclear Materials 469, Hal.251-261.
- [8] C. Sironen, (2014). *Neutronic Characteristics of Using Zirconium Diboride and Gadolinium in a Westinghouse 17x17 Fuel Assembly*, Dissertation No. 1509920,, University of South Carolina
- [9] Sungkono, T. Yulianto, (2015). *Karakterisasi Zirconium Diborida Sebagai Bahan Lapisan Penyerap Mampu Bakar Pada Pelet UO<sub>2</sub>*, Jurnal Teknologi Bahan Nuklir 11 (1), Hal. 1-12.
- [10] P. Liu, P. Zhang, X. Pang, Q. Wang, T. Liu, (2012). *A Study on Fabrication Technique of ZrB<sub>2</sub> Target*, Proceeding Engineering, 27, Hal. 1305-1312.
- [11] R. Jovani-Abril, (2014). *Synthesis and Characterization of Nanocrystalline UO<sub>2</sub> Ceramics*, Dissertation, Universidad de Santiago de Compostela, Spain, Hal. 171-179.
- [12] V. Peres, L. Favergeon, M. Andrieu, J. C. Palussiere, J. Baland, C. Delafoy, M. Pijolat, (2012). *High Temperature Chromium Volatilization from Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Powder and Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Doped UO<sub>2</sub> Pellets in Reducing Atmospheres*, J. of Nuclear Materials, 423, Hal.93-101.
- [13] L. Tengdelius, (2013). *Growth and Characterization of ZrB<sub>2</sub> Thin Films*, Thesis No. 1614, Linkoping University, Sweden.
- [14] Rhee, Y. W., D. J. Kim, I. H. Nam, J. H. Kim, J. S. Oh, J. H. Yang, K. S. Kim, (2012). *Fabrication of Boron-containing Burnable Absorber Fuel Pellet*, Tran. of the Korean Nuclear Society Spring Meeting, Jeju, Korea.
- [15] Armstrong, R. W., (2014). *Engineering Science Aspects of The Hall-Petch Relation*, Acta Mechanica, 225 (4), Hal. 1013-1028.