

EVALUASI DAN PERKEMBANGAN PEMBUATAN BAHAN BAKAR KERNEL UO_2 DI PTAPB-BATAN YOGYAKARTA

Hidayati, Sri Rinanti Susilowati, R. Didiek Herhady

Pustek Akselerator dan Proses Bahan-BATAN, Yogyakarta

Jl. Babarsari Kotak Pos 6061, Yogyakarta.

ABSTRAK

EVALUASI DAN PERKEMBANGAN PEMBUATAN BAHAN BAKAR KERNEL UO_2 DI PTAPB-BATAN YOGYAKARTA Telah dilakukan evaluasi pembuatan bahan bakar kernel UO_2 serta perkembangannya di Bidang Kimia dan Teknologi Proses Bahan (BKTPB) – PTAPB - BATAN Yogyakarta. Pembuatan kernel UO_2 telah dilakukan dengan metode gelasi internal maupun eksternal. Metode gelasi internal dilakukan dengan cara kombinasi proses KEMA-HKFA (Keuringvan Electrotechnische Materialen at Arnhem-Hkernforschungsanlage) maupun dengan proses ORNL (Oak Ridge National Laboratory), sedangkan metode gelasi eksternal dilakukan dengan proses emulsifikasi NUKEM (Nuclear Chemie und Metalurgie GmbH). Dengan metode gelasi internal, telah dilakukan berbagai optimasi kondisi prosesnya. Hasil sementara menunjukkan bahwa proses yang paling baik adalah proses ORNL menggunakan media gelasi TCE (trichloro etilena). Dengan metode gelasi eksternal, telah diperoleh beberapa kondisi optimum, namun masih perlu dilakukan optimasi lebih lanjut. Untuk memilih metode gelasi internal atau eksternal tergantung pada kemudahan proses, murah secara ekonomi serta yang memberikan hasil terbaik. Pemilihan metode belum bisa diputuskan karena belum semua variabel proses dioptimasi. Penelitian mengenai pelapisan kernel UO_2 menggunakan silikon karbida (SiC) maupun pirokarbon (PyC) baru merupakan tahap awal, sehingga masih diperlukan optimasi berbagai variabel prosesnya. Penelitian pembuatan kernel UO_2 di BKTPB – BATAN Yogyakarta direncanakan untuk pembuatan inti elemen bakar bentuk bola untuk HTR (High Temperature Reactor) dan dikembangkan sebagai bahan awal proses pembuatan pelet (proses SGMP = Sol-Gel Microsphere Pelletization) untuk PHWR (Pressurized Heavy Water Reactor).

ABSTRACT

EVALUATION AND DEVELOPMENT OF FABRICATION OF FUEL OF UO_2 SPHERE IN PTAPB – BATAN YOGYAKARTA. Fabrication fuel of UO_2 sphere and its development in BKTPB - PTAPB - BATAN Yogyakarta have been evaluated. UO_2 microsphere have been fabricated with the internal and external gelation method. The internal gelation method was done by combination process the KEMA-HKFA and with the process ORNL, while the external gelation method was done by the NUKEM emulsification process. Internal gelation method have been done by optimizing various of process condition. Intermediate result showed that the best process was ORNL which used gelation media TCE. Use of external gelation method process were found optimum condition, yet optimum condition should be found. Choosing internal or external method depends on the amenity process, economical and good result. The method have not been decided yet, since all the variables has not optimized. Research of UO_2 sphere use of the SiC and PyC is only early stage, so it is still needed a lot of steps and optimized various variable process. Research of fabrication of UO_2 sphere in BKTPB – PTAPB - BATAN Yogyakarta planned to make of nucleous of fuel the ball form for the HTR and it has also been developed as the early materials of the pelletization process (SGMP process) for the fuel of PHWR

PENDAHULUAN

Salah satu tugas BATAN adalah memanfaatkan IPTEK nuklir untuk kesejahteraan rakyat Indonesia. Sesuai dengan RENSTRA BATAN, litbang maupun pemanfaatan IPTEK nuklir lebih diarahkan untuk menyelesaikan permasalahan yang dihadapi dalam pembangunan nasional jangka pendek, menengah maupun jangka panjang dengan program litbang berbasis pengguna. Salah satu program pembangunan jangka panjang yang telah dicanangkan adalah program operasi PLTN tahun 2016⁽³⁴⁾. Oleh karena itu perlu dipersiapkan program daur bahan bakar nuklir mulai dari kegiatan penambangan bahan nuklir sampai dengan proses pengolahan dan pembuatan bahan bakar nuklir.

Untuk mensukseskan program tersebut, sangat perlu dilakukan penelitian yang berhubungan dengan pembuatan bahan bakar reaktor nuklir serta pendukungnya, terutama untuk jenis reaktor suhu tinggi (RST). RST

mempunyai sifat-sifat yang lebih baik bila dibandingkan dengan reaktor jenis lainnya. Dari segi keselamatannya, RST mempunyai reaktivitas negatif sehingga suhu reaktor akan turun dengan sendirinya bila terjadi kegagalan⁽¹⁾. Pengisian bahan bakar RST bisa dilakukan secara kontinyu sehingga operasi reaktor tidak perlu dihentikan pada saat pengisian⁽⁴⁹⁾.

Selain menghasilkan listrik, RST juga menghasilkan uap air dan panas yang bisa dimanfaatkan untuk keperluan industri⁽¹⁾. Jadi pengembangan teknologi RST dapat digunakan untuk menjawab tantangan batubara bersih, karena dengan penggunaan reaktor nuklir yang bebas polusi, lingkungan akan tetap terjaga. Sedangkan batubara, agar dapat digunakan secara besar-besaran tanpa membahayakan lingkungan harus digasifikasi terlebih dahulu yang berarti perlu panas tinggi. Dengan beroperasinya RST, panas yang merupakan hasil samping dari pemanfaatan teknologi RST dapat digunakan untuk keperluan gasifikasi batubara, desalinasi air laut, destilasi, peleburan, maupun proses industri kimia lain yang memerlukan panas.

Mengingat berbagai kelebihan penggunaan RST, maka RST merupakan salah satu alternatif pembangunan PLTN di Indonesia tahap kedua selain PHWR pada tahun 2020, setelah pembangunan PWR tahap pertama tahun 2016. Untuk mempersiapkan program tersebut, sesuai dengan salah satu tugas dan fungsi PTAPB-BATAN Yogya yaitu teknologi proses bahan sumber energi⁽³⁵⁾, Bidang Kimia dan Teknologi Proses Bahan telah berhasil membuat serbuk UO_2 berderajat nuklir dan keramik ("*nuclear grade*" dan "*ceramic grade*") serta telah dan akan dilakukan penelitian pembuatan kernel untuk bahan bakar HTR maupun PHWR. Selain itu telah dibuat juga grafit untuk bahan moderator, penelitian mengenai pengolahan pasir zirkon dan telah dilakukan pengkajian serta penelitian tahap awal proses olah ulang bahan bakar bekas RST secara simulasi.

Elemen bakar yang digunakan dalam reaktor suhu tinggi yang akan dikembangkan di Bidang Kimia dan Teknologi Proses Bahan adalah berbentuk bola dengan inti kernel UO_2 dan bentuk pelet dengan bahan kernel UO_2 dikembangkan untuk elemen bakar PHWR. Berbagai macam metode telah dilakukan oleh beberapa peneliti serta berbagai variabel telah digunakan untuk mencari kondisi terbaik proses agar diperoleh kernel yang memenuhi syarat sebagai bahan bakar RST maupun PHWR. Untuk memilih maupun memutuskan metode yang sebaiknya diteruskan maupun dikembangkan lebih lanjut, maka perlu dilakukan evaluasi terhadap berbagai macam metode yang telah dilakukan. Oleh karena itu, pada tulisan ini akan dijelaskan mengenai beberapa metode pembuatan kernel UO_2 secara umum maupun yang telah dilakukan oleh para peneliti di BKTPB serta dievaluasi agar diperoleh metode yang tepat, mempunyai banyak kelebihan, mudah, murah serta dapat diperoleh hasil yang memenuhi spesifikasi sebagai bahan bakar RST maupun PHWR.

DASAR TEORI

Elemen bakar HTR bisa berbentuk bola maupun pelet dan bahan bakarnya bisa berupa senyawa UO_2 , ThO_2 - UO_2 maupun UO_2 - PuO_2 ⁽¹⁾. Adapun elemen bakar yang akan dikembangkan disini adalah dari senyawa UO_2 . Secara garis besar, proses pembuatan elemen bakar HTR bentuk bola dengan inti kernel UO_2 dapat dibagi menjadi 3 tahap yaitu pembuatan kernel, pelapisan kernel dan pembuatan elemen bakar⁽⁴⁾. Sedangkan bentuk pelet dengan bahan kernel UO_2 yang dinamakan SGMP untuk elemen bakar PHWR dibentuk dari bahan kernel UO_2 dengan ukuran tertentu yang dipres pada suhu dan tekanan tertentu⁽⁶⁾.

1. Pembuatan kernel UO_2 .

Secara umum, pembuatan kernel UO_2 ada 2 macam yaitu proses kering ("*dry chemical process*") dan proses basah ("*wet chemical process*")^(2,23). Contoh proses kimia kering adalah proses granulasi.

Granulasi untuk pembuatan kernel dari bahan awal bentuk serbuk, biasanya dipakai untuk membuat kernel dalam bentuk oksida maupun karbida. Serbuk UO_2 atau U_3O_8 atau dicampur dengan ThO_2 ditambah dengan karbon dan sedikit bahan pengikat kemudian dibuat partikel dengan ukuran tertentu selanjutnya dilebur dalam bed grafit pada suhu 2550°C. Untuk memperoleh kernel dalam bentuk senyawa oksida maka karbon dihilangkan dengan cara membakar hasil yang diperoleh di udara, kemudian partikel disinter dalam lingkungan hidrogen pada suhu 1600-1700°C. Metode ini hanya dapat menghasilkan oksida dengan kerapatan 90% kerapatan teoritis⁽³²⁾.

Proses kimia basah atau proses sol-gel untuk pembuatan kernel UO_2 mempunyai kelebihan yaitu hasilnya lebih homogen dan diperoleh kernel oksida dengan kerapatan 95 – 99% kerapatan teoritis^(20,32). Secara garis besar,

proses pembuatan kernel UO_2 melalui proses sol-gel dilakukan dalam beberapa tahap yaitu pembuatan umpan, proses gelasi, pencucian, pengeringan, kalsinasi, reduksi dan sintering^(20,32).

1.1. Pembuatan umpan gelasi.

Pembuatan kernel UO_2 melalui proses sol-gel menggunakan umpan berupa sol urania. Menurut Turner⁽³⁹⁾, sol didefinisikan sebagai suatu dispersi partikel-partikel zat padat dalam medium cair. Partikel-partikel zat padat tersebut berukuran antara 1-5000 nm, sehingga dapat bergerak secara acak sesuai gerak Brown dalam medium zat cair tanpa mengendap. Berdasarkan proses pembentukan partikel koloid, pembuatan sol dapat digolongkan menjadi dua, yaitu : dispersi dan kondensasi⁽⁵⁰⁾.

Pembuatan sol dengan proses kondensasi didasarkan pada penggabungan partikel-partikel terlarut dalam larutan membentuk suatu partikel berukuran lebih besar yang masih dapat terdispersi dalam larutan. Dialisis, pertukaran ion, ekstraksi pelarut dan netralisasi merupakan contoh pembuatan sol dengan proses kondensasi⁽⁵⁰⁾. Pembuatan sol urania berdasarkan proses kondensasi dilakukan dengan cara mengekstraksi larutan U(IV) nitrat menggunakan pelarut organik (alkohol atau amina alifatik berantai panjang). Pada proses ekstraksi tersebut asam nitrat akan terekstrak dari larutan dan pertumbuhan kristal uranium(IV) oksida akan terjadi.

Pembuatan sol dengan proses dispersi berdasarkan pada pemecahan partikel berukuran besar (endapan) menjadi partikel-partikel berukuran koloid⁽⁵⁰⁾. Pemecahan partikel tersebut dapat dilakukan secara kimia maupun mekanis. Pembuatan sol urania dengan proses dispersi bisa dilakukan dengan cara pelarutan UO_3 maupun U_3O_8 dalam HNO_3 atau mereduksi larutan uranil nitrat dengan reduktor tertentu, kemudian larutan U(IV) nitrat yang diperoleh diendapkan dengan penambahan larutan NH_3 . Endapan yang diperoleh dicuci dan dipeptisasi dengan cara dipanaskan pada suhu $60^\circ C$ sambil diaduk atau dengan penambahan sedikit larutan HCl atau HNO_3 . Larutan HCl atau HNO_3 tersebut berfungsi untuk memutuskan ikatan antar partikel dalam endapan sehingga endapan terdispersi menjadi partikel koloid. Pembuatan sol urania secara dispersi dapat juga dilakukan dengan cara pelarutan UO_3 maupun U_3O_8 sehingga diperoleh larutan uranil nitrat defisien asam (acid deficient uranyl nitrate / ADUN).

Larutan ADUN adalah suatu larutan $UO_2(NO_3)_2$ yang telah mengalami proses denitrasi sehingga angka defisien asam atau perbandingan mol $NO_3^-/U < 2$ dan dapat dituliskan sebagai $UO_2(OH)_x(NO_3)_{2-x}$ dengan x antara 0,3-0,5⁽²⁰⁾. Pembuatan larutan ADUN dapat dilakukan melalui pelarutan oksida-oksida uranium dalam HNO_3 substoikiometris dan proses denitrasi larutan uranil nitrat. Proses denitrasi dapat dilakukan dengan: ekstraksi pelarut, penukar ion, penambahan larutan NH_3 ke dalam larutan uranil nitrat, destilasi vakum dan denitrasi menggunakan uap air panas (*steam stripping*). Pembuatan larutan ADUN yang paling mudah yaitu pelarutan UO_3 atau U_3O_8 dalam larutan HNO_3 substoikiometris⁽²⁰⁾.

1.2. Proses gelasi

Gelasi didefinisikan sebagai proses perubahan suatu tetesan sol (larutan umpan) yang bergerak bebas dalam suatu medium cair menjadi suatu butiran gel dengan ukuran tertentu. Proses gelasi dibagi menjadi 2 yaitu proses gelasi internal dan proses gelasi eksternal^(2,23).

Pada proses gelasi internal, umpan berupa sol urania seperti pada proses KFA (Jerman) maupun larutan ADUN pada proses KEMA (Belanda) dan ORNL (Amerika)^(20,23,32). Pada proses ini, larutan ADUN atau sol urania ditambah urea dan sejumlah tertentu HMTA (heksametilen tetramin, $C_6H_{12}N_4$) pada suhu $0-10^\circ C$. Urea berfungsi untuk membentuk senyawa kompleks uranil urea yang dapat larut dalam air dan untuk mencegah terjadinya kompleks uranil nitrat HMTA yang tidak larut dalam air. Larutan umpan tersebut kemudian ditetaskan ke dalam larutan medium organik panas sehingga HMTA terprotonasi dan menaikkan pH larutan yang akan mengendapkan uranium dalam tetesan membentuk gel^(6,40). Gel yang diperoleh kemudian dicuci (untuk menghilangkan medium organik yang menempel dan menyempurnakan proses gelasi dalam butiran gel), dikeringkan, dikalsinasi, direduksi kemudian disinter untuk memperoleh kernel UO_2 ^(20,23). Medium organik yang sering digunakan dalam gelasi ini antara lain: parafin cair, silikon cair, CCl_4 , 2-etil heksanol dan trikloroetilen.

Adapun proses gelasi eksternal banyak dikembangkan untuk membuat kernel ThO_2 atau campuran ThO_2 dan UO_2 ⁽³²⁾. Proses gelasi eksternal berdasarkan prinsip difusi NH_3 ke dalam tetesan sol sehingga sol mengendap dan membentuk butiran gel. Pengendapan gel dilakukan dengan meneteskan sol ke dalam kolom yang berisi gas dan

larutan NH_3 pekat. Pada saat tetesan sol melewati gas NH_3 maka gas NH_3 akan terdifusi ke dalam permukaan tetesan sol sehingga permukaan tetesan sol mengeras dan terbentuk butiran. Umpam yang digunakan pada proses ini berupa larutan uranil nitrat yang diubah menjadi sol dengan cara tertentu. Sol yang terbentuk kemudian ditambah dengan zat aditif tertentu untuk mempertahankan bentuk butiran pada saat gelasi. Zat aditif yang biasa digunakan antara lain : methocel, tetrahidrofurfural alcohol (4-HF), dextran, polivinil alkohol (PVA) dan SPAN-80⁽³⁹⁾. Pembuatan gel dengan proses gelasi eksternal yang telah dilakukan antara lain proses SNAM dan proses emulsifikasi NUKEM⁽³²⁾.

1.3. Proses Pencucian dan Perendaman

Tujuan dari proses pencucian adalah untuk menghilangkan medium gelasi dari permukaan gel, menghilangkan sebagian besar nitrat, sisa-sisa bahan aditif yang ditambahkan pada umpam gelasi dan hasil samping proses gelasi di dalam gel serta untuk menyempurnakan proses hidrolisis uranium dalam gel^(20,24). Untuk proses gelasi yang menggunakan bahan organik sebagai medium gelasi, proses pencucian gel dapat menggunakan pelarut organik yang mudah menguap. Pelarut organik yang biasa digunakan antara lain : CCl_4 , isopropilalkohol, aseton, heksana dan lain-lain. Sebelum pencucian, gel mempunyai rumus umum : $UO_2(NO_3)_y(OH)_{2-y} \cdot H_2O$, sedangkan sesudah pencucian, mempunyai rumus umum $UO_2(OH)_2 \cdot H_2O$ ⁽²⁰⁾.

Adapun tujuan proses perendaman adalah untuk mengurangi senyawa-senyawa pengotor seperti zat organik maupun zat-zat sisa hasil reaksi yang masih menempel serta untuk menstabilkan struktur gel⁽²⁴⁾.

1.4. Proses pengeringan, kalsinasi, reduksi dan sintering

Setelah pencucian, gel masih mengandung air, NH_4OH dan bahan pengotor yang tidak bisa dihilangkan pada proses pencucian. Bahan-bahan tersebut harus dihilangkan agar dapat dihasilkan kernel dengan kualitas baik. Langkah pertama yang digunakan untuk menghilangkan bahan-bahan tersebut adalah dengan proses pengeringan. Proses pengeringan dapat dilakukan dengan tiga cara, yaitu : (1) pengeringan dengan udara, uap air panas serta pengeringan dengan alkohol (etanol, n-butanol atau isopropanol). Setelah pengeringan, gel mempunyai rumus umum: $UO_3 \cdot xNH_3 \cdot yH_2O$ dengan harga x dan y tertentu tergantung pada komposisi umpam dan kondisi operasi pada saat pembuatannya⁽³¹⁾.

Selain itu didalam gel mungkin masih terdapat pengotor-pengotor yang belum hilang pada proses pengeringan, sehingga dilakukan proses kalsinasi, terutama untuk menghilangkan air, NH_3 dan pengotor-pengotor yang mungkin masih tersisa serta mengubah senyawa uranium tri oksida (UO_3) menjadi U_3O_8 ⁽²¹⁾.

Untuk pembuatan bahan bakar nuklir, U_3O_8 perlu diubah menjadi UO_2 dengan proses reduksi karena UO_2 lebih stabil pada suhu tinggi serta mempunyai kerapatan yang lebih tinggi⁽²⁾. Proses reduksi terutama bertujuan untuk mengubah butiran U_3O_8 menjadi kernel UO_2 serta menghilangkan pengotor-pengotor yang mungkin masih terdapat dalam butiran. Proses ini dilakukan dengan cara pemanasan U_3O_8 pada suhu tertentu dalam lingkungan gas NH_3 atau campuran gas N_2 dan H_2 . Proses selanjutnya adalah sintering.

Proses sintering adalah proses pemanasan pada suhu mendekati titik leleh UO_2 yang bertujuan untuk menaikkan kerapatan dan memperbaiki sifat fisik kernel UO_2 . Proses sintering dapat dilakukan dengan cara memanaskan UO_2 pada suhu 1100-1600 °C dalam lingkungan gas H_2 atau gas *inert*. Dari proses ini diharapkan memperoleh UO_2 dengan kerapatan tinggi mendekati kerapatan teoritisnya (10,9 g/ml).

1.5. Perbandingan Beberapa Macam Proses Sol Gel

Ada beberapa proses sol-gel yang telah dikerjakan, antara lain proses sol-gel KFA, ORNL, Emulsifikasi NUKEM, SNAM, H-KFA dan Proses KEMA^(20,32). Pada proses Sol-Gel KFA, larutan uranil nitrat atau uranil khlorida direduksi dengan gas hidrogen kemudian diendapkan sebagai uranium oksid hidrat dengan menambahkan ammonia. Apabila kadar uranium kurang dari 25% tidak perlu dilakukan reduksi. Larutan uranium oksid hidrat dicuci, kemudian dipeptisasi dengan larutan HCl sehingga terbentuk larutan sol, ditambah HMTA, didinginkan pada suhu 0 °C kemudian ditetaskan ke dalam kolom yang berisi minyak parafin panas (90-95 °C) sehingga terjadi gelasi. Gel yang diperoleh dicuci dengan amonia pekat, kemudian dikeringkan dan disinter pada suhu 1200 °C. Kernel yang diperoleh kerapatannya dapat mencapai 10,8 g/ml (> 98% kerapatan teoritis). Kernel uranium karbida dapat dibuat dengan proses ini dengan mendispersikan *carbon black* ke dalam larutan sol sebelum gelasi.

Pada proses ORNL (Amerika)⁽²⁰⁾ digunakan gelas internal dengan medium gelas trichloro etilen atau 2-etil heksanol. Denitrasi merupakan tahap terpenting dalam pembuatan sol dengan proses ORNL, bisa dilakukan dengan proses ekstraksi pelarut, penukar ion, maupun pelarutan oksida uranium dalam larutan HNO_3 substoikiometris.

Untuk proses emulsifikasi NUKEM dan proses SNAM⁽³²⁾ keduanya menggunakan metode gelas eksternal. Keduanya didasarkan atas proses pengendapan tetes bola larutan uranil nitrat atau dicampur dengan thorium atau plutonium yang telah ditambahkan dengan aditif tertentu dalam amonia pekat. Pada proses emulsifikasi NUKEM, sebagai aditif digunakan larutan PVA (poli vinil alkohol) + minyak -parafin dan emulgator sehingga diperoleh larutan umpan berbentuk emulsi. Pada proses SNAM, sebagai bahan aditif dipakai misalnya polisakarida turunan selulosa dan tetrahydro furfural alkohol. Proses ini mempunyai kelemahan yaitu sulit membuat kernel dengan ukuran besar ($\geq 800 \mu m$).

Adapun proses H-KFA dan KEMA⁽³²⁾ keduanya menggunakan proses gelas internal. Umpan berupa larutan uranil nitrat yang mengandung urea dan HMTA. Larutan umpan didinginkan pada suhu $0^\circ C$ kemudian diteteskan ke dalam kolom yang berisi minyak parafin panas $90-95^\circ C$. HMTA terurai menghasilkan NH_3 sehingga pH dalam tetes fase air naik dan uranium terendapkan dalam bentuk bola. Gel yang diperoleh dicuci, dikeringkan dan direduksi dengan campuran gas H_2-Ar dan disinter sehingga diperoleh kernel dengan kerapatan tinggi. Perbandingan kedua proses tersebut adalah pada proses KEMA, larutan uranil nitrat yang digunakan adalah larutan ADUN, sedangkan pada proses KFA digunakan larutan uranil nitrat dengan konsentrasi HNO_3 rendah (sekitar 1N)⁽³²⁾.

2. Pelapisan Kernel dengan PyC dan SiC

Kernel bahan bakar oksida atau karbida dilapisi dengan lapisan PyC atau SiC yang berfungsi untuk menahan hasil fisi. Lapisan PyC dan SiC diperoleh melalui proses deposisi senyawa hidrokarbon dan methyltrichlorosilan dalam reaktor fluidisasi. Suhu pelapisan bervariasi antara $1200 - 2100^\circ C$. SiC yang baik memiliki kerapatan tinggi dan stabil terhadap iradiasi.

3. Pembuatan Elemen Bakar Bentuk Bola maupun Pelet

Elemen bakar bola dibentuk dengan proses cetak dingin dari partikel berlapis dan grafit. Secara garis besar, langkah pembuatannya dibagi menjadi beberapa tahap, yaitu tahap penyiapan serbuk grafit, tahap pencetakan elemen bakar dan tahap perlakuan panas serta pengerjaan mekanis. Untuk penyiapan serbuk grafit matrik biasanya digunakan serbuk grafit dicampur dengan bahan pengikat resin phenol formaldehid atau senyawa pembentuk resin phenol-formaldehid. Campuran dipanaskan kemudian digiling (*grinding/milling*) sehingga diperoleh serbuk yang sudah mengandung bahan pengikat. Serbuk grafit yang telah dicampur bahan pengikat dicampur dengan partikel berlapis untuk membuat selaput pelindung (*over coating*). Selanjutnya ditambah serbuk grafit lagi kemudian dicetak dengan tekanan $40 kP/cm^2$ untuk membentuk inti bola elemen bakar. Inti elemen bakar ini dicetak lagi bersama dengan serbuk grafit pada tekanan $3000 kP/cm^2$ untuk membentuk kulit (daerah bebas bahan bakar) sehingga diperoleh elemen bakar mentah. Elemen bakar mentah dipanaskan pada suhu $800^\circ C$ dalam lingkungan gas inert kemudian dipanaskan pada suhu $1800-1900^\circ C$ dalam vakum. Selanjutnya bahan bakar dibubut (*lathing*) sehingga memenuhi diameter yang diinginkan.

Sedangkan pembuatan elemen bakar dengan proses SGMP dari bahan kernel UO_2 telah dikembangkan di BARC (= Bhabha Atomic Research Centre)⁽⁶⁾. SGMP merupakan proses campuran (*hibrid process*) yang meliputi proses sol-gel di depannya, digabung dengan proses pembuatan pelet pada proses akhirnya, dikembangkan untuk diambil proses yang paling baik dari kedua proses tersebut. Proses SGMP lebih menguntungkan dibandingkan dengan proses pelet dari bahan serbuk karena tanpa ada resiko kemungkinan bertebarnya serbuk radioaktif yang mempunyai toksisitas tinggi, sehingga tidak diperlukan remotisasi. Pada proses SGMP, sebagai bahan awal gel UO_3 maupun butiran U_3O_8 , bisa dibuat melalui proses gelas internal maupun eksternal. Setelah proses kalsinasi, butiran U_3O_8 direduksi pada suhu $600^\circ C$, kemudian dipres menjadi pelet dan disinter dalam lingkungan gas CO_2 pada suhu $1250^\circ C$, kemudian direduksi lagi pada suhu $600^\circ C$ dalam lingkungan gas hidrogen untuk memperoleh pelet kerapatan tinggi ($>98\%$ kerapatan teoritis). Kerapatan maupun porositas pelet dikontrol dengan perlakuan panas. Bahan bakar bentuk pelet dari uranium alam ini cocok digunakan untuk PHWR.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Penelitian yang telah dilakukan

Kernel UO_2 sebagai inti elemen bakar pada RST maupun sebagai bahan utama untuk pembuatan pelet yang digunakan untuk elemen bakar PHWR dapat dibuat melalui berbagai jalur proses terutama proses sol gel. Penelitian yang telah dilakukan di Bidang Kimia dan Teknologi Proses Bahan yaitu mengacu pada proses yang telah dilakukan di Lab KEMA (Belanda), HKFA (Jerman) dan ORNL (Amerika) dan NUKEM (Jerman). Kernel UO_2 yang akan dikembangkan untuk proses SGMP, mengacu pada proses ORNL yaitu menggunakan metode gelasi internal. Sedangkan pelapisan kernel menggunakan PyC dan SiC telah dimulai penelitian pendahuluan, perencanaan alat, perhitungan teoritis serta pembuatan alat fluidisasi dengan bahan gelas kuarsa oleh Imam Dahroni dan Dwi Retnani⁽¹²⁻¹³⁾ serta perancangan, perhitungan teoritis dan pembuatan alat fluidisasi dari bahan logam oleh R. Sukarsono dan R. Didiek Herhady^(26,36,51).

1. Pembuatan butiran U_3O_8 maupun kernel UO_2 yang dilakukan dengan proses gelasi internal.

Proses yang dilakukan di laboratorium KEMA dan HKFA adalah metode gelasi internal⁽³³⁾. Larutan uranil nitrat distabilkan dengan urea, ditambah HMTA diteteskan ke dalam kolom yang berisi minyak parafin panas sehingga uranium mengendap dan tetes larutan berubah menjadi butir gel. Disebut proses KEMA-HKFA karena dalam proses ini menggunakan perpaduan kedua proses tersebut yaitu proses dengan menggunakan jalur KEMA tetapi menggunakan umpan uranil nitrat tidak defisien asam.

Di Bidang Kimia dan Teknologi Proses Bahan PTAPB – BATAN Yogyakarta, penggunaan proses KEMA maupun HKFA pertama kali dilakukan oleh Wardoyo, dkk^(4,5,41-45), dengan kondisi terbaik proses yang diperoleh seperti yang terlihat pada Tabel 1. Pada kondisi tersebut, diperoleh hasil gel UO_3 dengan kerapatan 4,56g/l, dan hasil kernel UO_2 yang diperoleh mempunyai kerapatan : 8,36 – 9,72 g/l.(76,2 – 88,7% kerapatan teoritis). Proses tersebut kemudian dilanjutkan serta disempurnakan oleh Hidayati dan Endang Susiantini menggunakan kondisi terbaik yang telah dilakukan oleh Wardoyo. Kondisi terbaik proses selanjutnya yang diperoleh Hidayati^(21,23-24,27), seperti yang tertera pada Tabel 1. Pada kondisi tersebut, hasil butiran dari proses kalsinasi mempunyai sifat fisis seperti yang tertera pada Tabel 1. Dari hasil tersebut dapat dilihat bahwa walaupun hasil penyempurnaan yang dilakukan oleh Hidayati belum direduksi (karena alat reduksi sedang dalam perbaikan), kerapatan butiran mengalami kenaikan yaitu dari 76,2-88,7% menjadi 84,15-93,75% kerapatan teoritis. Kernel UO_2 yang mempunyai kerapatan tinggi diperoleh dari induk U_3O_8 yang mempunyai kerapatan tinggi pula.

Dari hasil penyempurnaan tersebut, walaupun mengalami perbaikan sifat fisis terutama kerapatannya, namun hasil yang diperoleh pada setiap perlakuan kurang reproduisibel terutama mengenai keutuhan butiran setelah pemanasan maupun kalsinasi serta sering mengalami gangguan pada saat penetasan larutan umpan. Larutan umpan mempunyai suhu 0°C diteteskan ke dalam media parafin yang mempunyai suhu 90-95°C sehingga larutan umpan tersebut sering mengalami penyumbatan pada alat penetes. Oleh karena itu pada penelitian selanjutnya diarahkan untuk mencari alternatif penggunaan media gelasi yang bisa digunakan pada suhu gelasi yang agak rendah.

Pada penelitian selanjutnya, Hidayati, Endang Susiantini dan Sri Rinanti Susilowati^(15-18,25) mencari alternatif lain yaitu menggunakan proses gelasi pada suhu yang agak rendah, yaitu pada suhu antara 50-70°C menggunakan media gelasi trichloro etilen dan 2-etil heksanol. Pada proses tersebut, masalah penyumbatan pada alat penetes saat gelasi telah terpecahkan, namun diperlukan larutan umpan yang defisien asam (ADUN = acid deficient uranyl nitrate).

Adapun secara garis besar, perbedaan beberapa proses gelasi internal yang dilakukan oleh beberapa peneliti di BKTPB – PTAPB – BATAN diringkas dalam Tabel 1.

Prosedur tersebut mengacu pada proses ORNL (Amerika). Untuk penyediaan larutan ADUN, Hidayati⁽²⁵⁾ telah mencoba membuat larutan ADUN dengan jalan penguapan vakum dari larutan uranil nitrat 0,1 N pada suhu < 60°C dan tekanan 0,4-0,5 atm, pelarutan serbuk U_3O_8 atau UO_3 dalam larutan asam nitrat substoikiometris sejumlah tertentu pada suhu < 60°C maupun dengan penambahan NH_4OH ke dalam larutan uranil nitrat hingga diperoleh larutan ADUN dengan perbandingan mol nitrat / uranium < 2 (0,4 - 1,9).

Tabel 1. Perbedaan beberapa proses gelas internal yang telah dilakukan oleh beberapa peneliti di Bidang KTPB – PTAPB – BATAN Yogyakarta

No.	Variabel	Peneliti			
		Ward ^(4,5,41-45)	Hid ^(21,23,24,26)	Hid + SRS ⁽²⁵⁾	Endang S ⁽¹⁵⁻¹⁸⁾
A	Kondisi proses pembuatan gel UO_3				
1.	Umpan awal				
	- [U] (g/l)	580	580	550-600	533
	- [H ⁺] (N)	1	1	-	-
	- Perb.mol NO_3/U	-	-	1,3	1,5
	- Perb.mol HMTA/U	2,0	2,3	1,25	1,2
	- Perb.mol urea/U	2,1-2,2	2,2	1,25	1,2
2.	Media gelas	Parafin	Parafin	TCE	2-etil-hek
3.	Pencampuran urea + uranium (suhu & waktu)	T kamar - larut	50°C 5 jam	50°C 5 jam	T kamar - larut
4.	Diameter lubang penetes (mm)	0,85-1,45	0,5-1,5	1,5-2,0	0,4
5.	Aging dlm. media gelas (jam)	-	-	2	6
6.	Aging dlm NH_4OH (jam)	17	17	17	3
7.	[NH_4OH] untuk merendam & mencuci	2-3%	2,5%	2,5%	2%
8.	Suhu media gelas	90-95°C	90-95°C	60-70°C	60°C
B	Hasil gel UO_3 :				
	- Kerapatan (g/ml)	4,559	-	3,23	-
	- Ketampakan fisik gel dan bentuknya	99% utuh bulat spt.bola	100% utuh blt spt.bola	100% utuh bulat spt.bola	- sebagian utuh agak gepeng
	- diameter (mm)	-	1,0-1,8	1,90-1,95	0,5-2,0
C	Kondisi proses kalsinsi				
	- Suhu (°C)	700°C	700°C	600°C	700°C
	- Waktu (jam)	2 jam	2 jam	2 jam	2 jam
D	Hasil butiran U_3O_8 :				
	- Kerapatan (g/ml)	-	7,86	7,89-7,96	5,06
	- SurfaceArea (m^2/g)	-	1,372	4,34-10,23	-
	- Jari ² pori rerata (Å)	-	25,09	8,56-10,85	-
	- Vol.pori total (10^{-3} ml/g)	-	2,173	1,86-11,12.	-
	-Ketampakan fisik butiran	97% utuh	90%utuh	100% utuh	-
	- % kerapatan teoritis	-	94,3	94,15-95,02	60,67
	- diameter (mm)	-	0,8-1,4	1,00-1,15	0,5-1,5
E	Hasil kernel UO_2 :		hasilnya belum direduksi		
	- Kerapatan (g/ml)	8,36-9,72			
	- % kerapatan teoritis	76,2-88,7			
	- diameter	0,40-1,60			

Ternyata yang paling mudah, cepat serta memberikan hasil gel yang baik adalah pelarutan UO_3 dalam larutan HNO_3 substoikiometris. Endang Susiantini⁽¹⁵⁾ juga telah membuat larutan ADUN dengan cara ekstraksi menggunakan tridodesil amin dengan kondisi optimum proses ekstraksi yang diperoleh sbb.:

- konsentrasi uranium dalam larutan umpan ekstraksi : 100 g/l
- Perbandingan mol tridodesil amin / NO_3^- : $\pm 0,75$
- Suhu : $\pm 60^\circ C$

Dari hasil ekstraksi, diperoleh larutan ADUN dengan konsentrasi uranium 580,73 g/l, konsentrasi nitrat total = 3,16 M dan perbandingan mol NO_3/U = 1,29.

Penggunaan trichloro etilena untuk media gelas ternyata sangat menguntungkan karena di samping proses gelas bisa dilakukan pada suhu rendah, TCE mempunyai kerapatan yang relatif tinggi (1,4 g/l) dibandingkan dengan media parafin (0,9 g/l) maupun minyak bimoli (0,9 g/l). Menurut Haas⁽²⁰⁾, perbedaan kerapatan yang sedikit (sekitar 0,1 g/l) akan memberikan hasil gel yang baik pada proses gelas. Pada proses gelas tersebut, sebagian variasi menggunakan variabel yang telah dilakukan di ORNL, namun ternyata tidak semua variabel bisa menghasilkan gel yang baik sehingga sebagian variabel dilakukan optimasi. Adapun hasil optimasi kondisi proses pembuatan gel UO_3 yang telah dilakukan oleh Hidayati + Sri Rinanti Susilowati⁽²⁵⁾, seperti yang tertera pada Tabel 1.

Dari hasil tersebut diperoleh gel UO_3 yang baik, 100% utuh dan bulat, berwarna kuning dan setelah dikeringkan $100^\circ C$ juga 100% utuh, serta mempunyai kerapatan 3,23 g/ml. Setelah pengeringan dilakukan kalsinasi pada suhu $600^\circ C$ dan diperoleh hasil U_3O_8 berwarna hitam, 100% utuh, serta mempunyai sifat-sifat fisis seperti yang tertera pada tabel 1. Kalau dilihat dari hasil tersebut, pembuatan butiran U_3O_8 metode gelas internal menggunakan media gelas TCE, dibandingkan dengan media parafin (metode KEMA-KFA) ternyata hasilnya lebih baik menggunakan TCE kalau dilihat dari kerapatannya yang lebih tinggi (94,60 – 95,47% kerapatan teoritis dengan TCE dan 84,6-94,3% dengan parafin) maupun dari segi kedapatulangan hasilnya yang kesemuanya 100% tidak pecah setelah dikalsinasi bila digunakan TCE.

Endang Susiantini juga telah memakai metode ORNL menggunakan media gelas 2-etil heksanol. Kondisi paling baik yang diperoleh seperti yang tertera pada Tabel 1. Pada kondisi tersebut, diperoleh hasil gel yang masih retak-retak pada proses pengeringan maupun kalsinasi, serta hasil U_3O_8 setelah proses kalsinasi mempunyai kerapatan : 5,006 g/ml (60% kerapatan teoritis). Dengan kondisi tersebut, Endang Susiantini masih terus mencoba mengembangkan penelitiannya dengan mencari alternatif media gelas yang lain, misalnya CCl_4 , minyak jarak, dsb. Hasil sementara menunjukkan bahwa CCl_4 lebih baik digunakan dari pada minyak jarak.

Telah dipelajari juga pengamatan dekomposisi termal gel UO_3 dari suhu $100^\circ C$ - $600^\circ C$ menggunakan alat STA (Simultaneous Thermal Analysis) dan XRD (X-Ray Diffractometer)⁽²¹⁾. Dari penelitian tersebut diamati ada 5 puncak diperoleh dari alat STA yaitu puncak pertama & kedua yang muncul pada suhu $173,87^\circ C$ dan $279,87^\circ C$ terjadi pelepasan air kristal dengan entalpi sebesar $-28,45 \mu volt$ detik/mg dan $-49,808 \mu volt$ detik/mg. Puncak ke-3 dan ke-4 yang muncul pada suhu $302,02$ dan $419,87^\circ C$, terjadi pelepasan NH_3 secara bertahap dengan entalpi sebesar 105.161 dan $31,904 \mu volt$ detik/mg. Puncak ke-5 muncul pada suhu $535,67^\circ C$ merupakan indikasi perubahan senyawa UO_3 menjadi U_3O_8 dan sempurna pada suhu $580^\circ C$.

Adapun analisis dengan alat XRD setelah pemanasan pada suhu $200^\circ C$ menunjukkan bahwa gel UO_3 mempunyai senyawa $UO_3 \cdot xH_2O \cdot yNH_3$, setelah pemanasan pada suhu 400 & $500^\circ C$ menjadi senyawa UO_3 serta setelah pemanasan pada suhu $600^\circ C$ terjadi senyawa U_3O_8 . Penggabungan kedua analisis tersebut menunjukkan bahwa gel UO_3 yang telah dibuat dengan metode gelas internal menggunakan medium gelas parafin setelah pengeringan mempunyai senyawa $UO_3 \cdot 6NH_3 \cdot 2H_2O$ dan untuk kesempurnaan terjadinya senyawa U_3O_8 setelah kalsinasi, maka diharapkan suhu kalsinasi minimum $600^\circ C$ ⁽²¹⁾.

Hidayati⁽²⁴⁾ juga telah mempelajari perbedaan mikrostruktur UO_3 maupun U_3O_8 pada berbagai kondisi pencucian UO_3 dengan NH_4OH menggunakan mikroskop elektron dan STA. Hasilnya menunjukkan bahwa kondisi pencucian gel UO_3 sangat berpengaruh terhadap morfologi permukaan gel UO_3 maupun butiran U_3O_8 serta kandungan amonia yang bersenyawa dengan gel UO_3 . Semakin encer larutan NH_4OH yang digunakan sebagai pencuci, semakin halus pori-pori yang ditimbulkan pada permukaan gel UO_3 maupun U_3O_8 serta semakin banyak NH_3 yang terkandung dalam senyawa gel UO_3 dan sebaliknya.

Analisis senyawa butiran U_3O_8 maupun gel UO_3 hasil proses perendaman juga telah dipelajari oleh Endang Susiantini⁽¹⁸⁾ dengan alat FTIR dan dijelaskan bahwa pada proses gelas internal dengan menggunakan medium 2-etil-heksanol, HMTA tidak terdissosiasi menjadi NH_4OH dan $HCOH$ melainkan terprotonasi membentuk $HMTAH^+$. Pada proses perendaman dan pencucian dengan NH_4OH , terjadi proses pertukaran kation antara $HMTAH^+$ dalam butiran gel dengan NH_4^+ dalam larutan yang ditunjukkan dengan hilangnya puncak-puncak serapan pada daerah $1030-1300 \text{ cm}^{-1}$ (getaran renggang simetris ikatan C-N dalam $HMTAH^+$) setelah perendaman. Hal ini sesuai dengan apa yang telah ditemukan oleh Charles M.King, et all⁽⁷⁾, yaitu hasil spektroskopinya memberikan gambaran bahwa kondensasi trimer terjadi selama proses sol-gel membentuk lapisan polianionik *hydrous uranium oxides*, dan $HMTAH^+$ termasuk sebagai kation *intercalation*. Agen gelas HMTA secara kuantitatif stabil sebagai senyawa dalam proses sol-gel. Ikatan hidrogen pada kation yang terprotonasi tersebut yang mungkin bisa memainkan struktur pada proses pembentukan gel. Koloid sol merupakan campuran dari *uranil oligomer*. Fragmen hidrolisis uranil (UO_2^{++}) yang dihasilkan dalam sol koloid secara selektif menyebabkan pembentukan trimer uranil $[(UO_2)_3O(OH)_3]^+$ dan jaringan gel (*gel network*). Pada proses pencucian terjadi pertukaran dan pembentukan lapisan *hydrous ammonium uranate* dengan bentuk struktur : $(NH_4)_2[(UO_2)_8O_4(OH)_{10}] \cdot 8H_2O$ ⁽⁷⁾.

Secara singkat kalau dilihat pada Tabel 1 tersebut, dapat diambil hasil sementara bahwa medium gelas yang paling baik digunakan adalah TCE, walaupun belum semua variabel proses selesai dilakukan penelitian. Hasil gel

UO_3 maupun butiran U_3O_8 yang diperoleh menunjukkan sifat-sifat fisis yang paling baik. Diharapkan hasil tersebut juga memberikan struktur mikro yang memenuhi spesifikasi pembuatan bahan bakar reaktor nuklir.

2. Pembuatan butiran U_3O_8 maupun kernel UO_2 yang telah dilakukan dengan proses gelasi eksternal.

Proses yang dilakukan di Lab NUKEM menggunakan metode gelasi eksternal⁽³³⁾. Larutan uranil nitrat dicampur bahan aditif, emulgator dan parafin, diaduk hingga terbentuk emulsi yang tidak larut dalam fase air. Emulsi tersebut diteteskan kedalam kolom yang berisi larutan amonia sehingga terjadi reaksi pengendapan dan tetes emulsi berubah menjadi butir gel.

Proses emulsifikasi Nukem yang telah dilakukan oleh Wardoyo, Indra Suryawan dan Damunir^(5,8-12,28-31) juga telah memberikan hasil seperti yang tertera dalam Tabel 2. Dari Tabel 2 tersebut dapat dilihat bahwa proses yang telah dilakukan oleh Wardaya telah disempurnakan oleh Damunir dan Indra Suryawan, sehingga hasil gel UO_3 , butiran U_3O_8 maupun kernel UO_2 yang dihasilkan oleh kedua peneliti tersebut telah mengalami perbaikan, terutama kerapatan maupun ketampakan fisiknya. Untuk hasil kernel UO_2 yang telah dihasilkan oleh Damunir, masih ada yang retak namun kerapatannya mencapai 10,92 g/ml karena penentuan kerapatan tersebut menggunakan alat Surface Area Analyser yang sebenarnya kurang akurat bila digunakan untuk analisis kerapatan kernel UO_2 . Untuk sementara, hasil proses pembuatan kernel UO_2 dengan metode gelasi eksternal adalah seperti yang tertera pada Tabel 2 tersebut karena memang sebetulnya optimasi untuk keseluruhan proses belum selesai. Hasil yang telah diperoleh Damunir sebagian masih ada yang retak karena ukuran kernel yang dibuat terlalu besar, yaitu $> 800\mu m$, sedangkan menurut Haas⁽²⁰⁾, proses gelasi eksternal hanya baik digunakan untuk membuat kernel dengan ukuran $< 800\mu m$. Sedangkan kernel yang dibuat oleh Indra Suryawan⁽³¹⁾ sudah baik yaitu 100% utuh setelah dikalsinasi.

Kalau dilihat dari Tabel 1 dan Tabel 2 serta beberapa penjelasan di atas, walaupun belum selesai optimasinya dapat diambil langkah sementara bahwa kedua proses tersebut masih tetap perlu dilakukan untuk memperoleh hasil yang optimum. Secara garis besar dapat dilihat bahwa metode gelasi internal maupun eksternal ternyata keduanya mempunyai kelemahan dan kelebihan.

Proses gelasi eksternal mempunyai kelebihan yaitu langkah proses pembuatannya lebih mudah dan sederhana, proses gelasi pada suhu kamar, pembentukan gel lebih mudah serta pada pembuatan sol tidak diperlukan suhu dingin. Akan tetapi menurut Turner⁽³⁹⁾, proses ini mempunyai kekurangan yaitu gel yang dihasilkan kurang stabil pada saat pemanasan selain sulit menghasilkan kernel dengan diameter lebih dari $800\mu m$. Pada proses gelasi eksternal, bahan pengendap yang menyebabkan terbentuknya gel berasal dari luar tetesan, sehingga apabila ukuran gel / ukuran tetesan besar, bagian yang paling dalam dari tetesan tersebut tidak bisa terendapkan. Bagian dalam yang tak terendapkan tersebut, pada saat pengeringan maupun kalsinasi akan menguap keluar butiran, sehingga akan menyebabkan keretakan maupun pecahnya butiran yang dihasilkan.

Sedangkan kelebihan dari proses gelasi internal adalah kernel yang dihasilkan mempunyai kerapatan yang tinggi dengan diameter dari $30\mu m$ hingga lebih dari $800\mu m$ ($1400\mu m$). Oleh karena itu metode gelasi internal lebih banyak digunakan. Adapun kekurangan dari proses gelasi internal ini adalah langkah proses lebih panjang, diperlukan larutan umpan uranil nitrat defisien asam dengan kadar uranium relatif tinggi serta pada proses pembuatan sol (umpan gelasi) diperlukan suhu dingin.

Secara keseluruhan langkah pembuatan kernel UO_2 dengan metode gelasi internal maupun eksternal, kalau dibandingkan dari Tabel 1 dan 2, hasil sementara yang memberikan gel UO_3 maupun butiran U_3O_8 yang lebih baik adalah dengan metode gelasi internal menggunakan media TCE yang telah menghasilkan gel UO_3 maupun butiran U_3O_8 yang 100% utuh setelah pemanasan maupun kalsinasi serta mempunyai kerapatan 95,02% kerapatan teoritis. Untuk pembuatan larutan umpannya, yang paling mudah dan cepat dilakukan adalah dengan pelarutan UO_3 dalam larutan asam nitrat substoikiometris. Apabila suatu saat nanti semua variabel proses gelasi internal maupun eksternal telah dioptimasi, kalau misalnya dengan menggunakan metode gelasi internal ternyata mempunyai hasil yang lebih baik, tidak ada salahnya apabila nantinya dipilih jalur menggunakan metode gelasi internal. Terutama apabila digunakan bahan bakar bentuk pelet (SGMP), diperlukan butiran kernel dengan ukuran bervariasi dari yang kecil hingga yang besar agar setelah pengepresan diperoleh pelet dengan kerapatan yang tinggi.

Tabel 2. Perbedaan beberapa proses gelas eksternal yang telah dilakukan oleh beberapa peneliti di Bidang KTPB – PTAPB - BATAN Yogyakarta .

No.	Variabel	Peneliti		
		Wardaya ^(5,46-48)	Damunir ⁽⁸⁻¹²⁾	Indra S. ⁽²⁸⁻³¹⁾
A	Kondisi proses pembuatan gel UO_3			
1	Umpan awal : - Konsentrasi U (g/L) - Kadar PVA - Konsentrasi as.bebas (N) - Perb. PVA/U - Perb. NH_4^+/NO_3^- (%) - Perb. NO_3^-/U - pH - Aditif (span80,f.air, parafin)	200-350 80-100 - - - - -	100 60 1,2-1,6 9,18% 50-60% 1,6 1,6	>418 15 2,1-2,2 90 50% - -
2	Medium gelas	NH_4OH	NH_4OH	NH_4OH
3	$[NH_4OH]$ untuk merendam	5 – 9 N	13,4 N	5 – 9 N
4	Waktu perend. dalam NH_4OH	5 hari	3 jam	5 - 6 hari
B	Hasil gel UO_3 - kerapatan (g/ml) - diameter (mm) - ketampakan fisik	- - utuh	3,36 1,324 utuh	- - utuh
C	Kondisi proses kalsinasi - suhu ($^{\circ}C$), waktu	800, 3 jam	700, 3 jam	800, 3 jam
D	Hasil butiran U_3O_8 kerapatan (g/ml), %teori luas muka (m^2/g) jari-jari pori rerata (\AA) % keutuhan diameter	- - - - -	7,951; 95,3% 3,10-3,49 21,78-24,86 ada yg retak 0,813	7,268; 87,15% 0,453 - 100% utuh -
E	Kondisi proses reduksi (suhu ($^{\circ}C$), waktu)	850, 3 jam	800, 4 jam	
F	Hasil kernel UO_2 kerapatan (g/ml) diameter (mm) O/U Ketampakan fisik	- 2,05 sebagian pecah	10,92 0,810 - ada yang retak	Hasilnya Belum Direduksi

3. Pelapisan kernel menggunakan PyC dan SiC.

Selain penelitian proses pembuatan kernel UO_2 , telah dilakukan pula penelitian pembuatan bahan pelapis kernel yang akan digunakan pada Reaktor Temperatur Tinggi yaitu lapisan piro karbon (PyC) dan silika karbida (SiC). Tujuan pelapisan ini adalah untuk menahan hasil-hasil fisi. Penelitian mengenai pelapisan PyC dan SiC dengan cara "Chemical Vapour Deposition" (CVD) dilakukan oleh Dwi Retnani dan Imam Dahroni^(13,14,26) menggunakan reaktor fluidisasi dari bahan gelas kuarsa. Hasil yang diperoleh ditunjukkan pada Tabel 3 di bawah ini.

Dari Tabel 3 tersebut dapat dilihat pelapisan SiC pada pembuatan bahan bakar kernel UO_2 telah dilakukan hingga suhu $1000^{\circ}C$, karena alat yang digunakan hanya mampu hingga suhu $1000^{\circ}C$ yaitu menggunakan reaktor dari bahan gelas kuarsa. Pada suhu tersebut, bahan butiran karbon yang digunakan sebagai bahan simulasi untuk butiran kernel UO_2 , telah terlapis dengan lapisan SiC maupun PyC yang telah dibuktikan dengan analisis menggunakan FTIR.

Selain pelapisan dengan cara CVD dilakukan pula kajian mengenai perhitungan fluidisasi pada pelapisan kernel dengan menggunakan program BASIC oleh Sukarsono⁽³⁷⁾. Hasilnya menunjukkan bahwa untuk keadaan ideal, reaktor fluidisasi bisa dibuat dengan diameter nozle pemasukan gas 2 mm, diameter reaktor 2 cm dan diameter bagian atas 3 cm. Pembuatan alat bisa divariasi sudut kerucut di bagian dasar reaktor dengan sudut $45-100^{\circ}$, untuk melihat efek terhadap pelapisannya. Kecepatan alir minimum fluidisasi 3-3,6 cm/det pada silinder

reaktor atau 84,78 ml/det gas pada suhu reaktor ($1500^\circ C$ 1 atm). Gas adalah campuran antara argon dan metana 50%-50%. Perubahan terhadap kandungan metana dalam gas tidak terlalu besar berpengaruh terhadap hasil perhitungan, sebab kerapatan yang paling menentukan perhitungan adalah kerapatan partikel. Pertambahan tinggi bed karena pengoperasian reaktor di atas kecepatan minimum fluidisasi berkisar 30% dengan menggunakan kecepatan 4 x kecepatan minimumnya.

Tabel 3. Penelitian mengenai pelapisan kernel UO_2 dengan PyC dan SiC^(13,14,26).

No.	Variabel	Kondisi terbaik	Hasil & kesimpulan
1	Pelapisan SiC*: - Kec. Gas H_2 - Suhu	140 ml/menit	- $Kc^{***} = 0,020359 \cdot 10^{-4}$ cm/detik - Kec. gas sangat berpengaruh thd. Kc.
		$1000^\circ C$	- $Kc = 0,018046 \cdot 10^{-4}$ cm/detik - Suhu sangat berpengaruh terhadap Kc.
2	Pelapisan PyC : - Suhu -Kons katalisator pelapis**	$1000^\circ C$	Makin besar suhu, kecepatan pelapisan makin besar
		1,5%	Makin besar konsentrasi katalisator pelapis, kecepatan pelapisan makin besar.

* Pelapisan SiC menggunakan metode CVD

** Sebagai katalisator pelapis digunakan fero karbonil trichlorosilan

*** Kc = koefisien perpindahan massa

Didiek Herhady dan Sukarsono juga telah membuat alat pelapis kernel dengan reaktor fluidisasi dari bahan logam dan telah dilakukan uji coba kemampuan alat tersebut hingga suhu $1200^\circ C$ ⁽⁵¹⁾.

Secara keseluruhan, penelitian mengenai pelapisan kernel UO_2 menggunakan PyC maupun SiC di BKTPB-PTAPB baru merupakan tahap awal, sehingga masih diperlukan banyak langkah maupun optimasi berbagai variabel pada proses pembuatannya.

Penelitian yang sedang dan akan dikembangkan

a. Proses pembuatan kernel UO_2 .

Untuk proses pembuatan kernel UO_2 dengan metode gelas internal menggunakan media gelas TCE, walaupun sebagian proses telah memperoleh hasil yang baik, hingga saat ini masih diteruskan pembuatannya dengan melanjutkan beberapa variabel proses yang belum diteliti, terutama pada proses kalsinasi, reduksi maupun sintering. Dengan menggunakan media gelas CCl_4 akan dikembangkan oleh Endang Susiantini untuk memperoleh kondisi yang optimum dari berbagai variabel proses pada pembuatannya. Dari hasil keseluruhan tersebut akan dianalisis sifat-sifat fisis maupun struktur mikronya untuk memperoleh kernel UO_2 yang memenuhi spesifikasi sehingga dapat digunakan sebagai inti elemen bakar nuklir berbentuk bola.

Selain bentuk bola, saat ini juga akan dikembangkan bahan bakar nuklir bentuk pelet (*SGMP = Sol-Gel Microsphere Pelletisation*) yang akan dikembangkan oleh Sutarni dan Rahmat Pratomo. Kernel UO_2 yang digunakan, dibuat dengan metode gelas internal dengan media gelas TCE, seperti yang telah dikerjakan oleh Hidayati. Untuk proses pembuatan pelet akan bekerja sama dengan BATAN- Serpong.

Untuk pembuatan kernel UO_2 dengan metode gelas eksternal, hingga saat ini masih diteruskan dengan melanjutkan optimasi berbagai variabel proses, terutama pada proses kalsinasi, reduksi maupun sintering.

b. Pelapisan kernel menggunakan PyC dan SiC serta pembuatan bahan bakar bentuk bola maupun pelet.

Untuk pelapisan kernel menggunakan PyC dan SiC, sampai saat ini telah dibuat rangkaian alat pelapis SiC maupun PyC dalam reaktor fluidisasi dari bahan logam. Hingga saat ini sedang dilakukan uji coba kemampuan alat pelapis tersebut dan baru bisa dilakukan hingga suhu $1200^\circ C$. Diharapkan sampai tahun 2009 telah selesai pembuatan kernel UO_2 yang telah dilapisi PyC maupun SiC serta tahun 2011/2012 telah selesai pembuatan bahan bakar bentuk bola yang berada dalam matrik grafit serta bahan bakar bentuk pelet (proses SGMP)

KESIMPULAN

Dari berbagai uraian yang telah dijelaskan di atas, dapat diambil kesimpulan sbb. :

1. Pembuatan kernel UO_2 yang telah dilakukan di BKTPB – PTAPB adalah menggunakan metode gelas internal dan eksternal.
2. Dengan metode gelas internal, hasil sementara yang telah diperoleh menggunakan media gelas TCE yang mengacu pada proses ORNL adalah yang paling baik, walaupun masih diperlukan beberapa optimasi kondisi prosesnya.
3. Dengan metode gelas eksternal, mengacu pada proses emulsifikasi NUKEM telah diperoleh beberapa kondisi optimum, namun masih perlu dilakukan optimasi lebih lanjut.
4. Penggunaan metode gelas internal maupun eksternal nantinya tergantung pada kemudahan proses, murah secara ekonomi serta yang memberikan hasil terbaik. Pemilihan metode baru bisa diputuskan apabila semua variabel proses telah dioptimasi.
5. Penelitian mengenai pelapisan kernel UO_2 menggunakan SiC maupun PyC baru merupakan tahap awal, sehingga masih diperlukan banyak langkah maupun optimasi berbagai variabel pada proses pembuatannya.
6. Penelitian pembuatan kernel UO_2 selain direncanakan untuk pembuatan inti elemen bakar bentuk bola untuk reaktor HTR, juga dikembangkan sebagai bahan awal proses pembuatan pelet (proses SGMP) untuk bahan bakar PHWR.

DAFTAR PUSTAKA

1. AHMAD SYAUKAT, *HTR untuk Kogenerasi Panas dan Listrik*, Prosiding Seminar ke-4 RTT & TN, Jakarta, (1999)
2. BEATTY, R.L., et al., *Gel-Shere-Pac Fuel for Thermal Reactors*, ORNL-5469, (1979)
3. BELLE, J., *Uraniun Dioxide, Properties and Nuclear Application*, United State Atomic Energy Comission, Washington DC, (1961)
4. BUSRON MASDUKI, dkk., *Pabrikasi Elemen Bakar Reaktor Suhu Tinggi (RST), Pemilihan Proses Sol gel dan Penelitian Pembuatan Kernel*, Seminar Teknologi dan Aplikasi Reaktor Temperatur Tinggi, PPKTN BATAN, Jakarta, (1994)
5. BUSRON MASDUKI dan WARDOYO, *Pengaruh Konsentrasi Uranium dan Asam Bebas Dalam Larutan Umpan Gelas Terhadap Kualitas Kernel*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, PPNY BATAN, Yogyakarta, (1995)
6. C. GANGULY, P.V., et al., *Preparation, Characterisation and Out-of-pile Property Evaluation of (U, Pu)N Fuel Pellets*, Radio metalurgy Devision, BARC, Bombay India, *Journal of Nuclear Materials* 178, page 234-241, Elsevier Science Publishers B>V., North-Holland, (1991)
7. CHARLES, M. KING, et al., *Magnetic Resonance As A Structural Probe Of A Uranium (VI) Sol-Gel Process*, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 180, Material Research Society, (1990)
8. DAMUNIR, dkk., *Pengaruh Kadar Uranium Dan Rasio PVA/U Terhadap Sifat Fisis Gel PVA-U Dan Oksidanya*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P3TM BATAN, Yogyakarta, (2000)
9. DAMUNIR, dkk., *Pengaruh Konsentrasi Uranium dan Polivinil Alkohol Terhadap Kualitas Butiran UO_2 Untuk Bahan Bakar Reaktor Suhu Tinggi*, Seminar V Reaktor Temperatur Tinggi, P₃TM BATAN, Yogyakarta, (2000)
10. DAMUNIR, dkk., *Pengaruh Netralisasi Ion Nitrat Terhadap Sifat Fisis Kernel Oksida Uranium*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P₃TM BATAN, Yogyakarta, (2001)
11. DAMUNIR dan SUKARSONO, *Pengaruh Asam Bebas Dan Nisbah NO_3/U Larutan Uranil Nitrat Pada Proses Emulsifikasi Nukem*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar dan Teknologi Nuklir, P3TM BATAN, Yogyakarta, (2003)
12. DAMUNIR, *Pengaruh Amonium Hidroksida, pH Larutan dan Waktu Perendaman Butiran Gel Pada Proses Gelas Eksternal*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar dan Teknologi Nuklir, P₃TM BATAN, Yogyakarta, (2004)
13. DWI RETNANI SUDJOKO, dkk., *Pelapisan SiC Dengan Metode CVD*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P₃TM BATAN, Yogyakarta, (1999)

14. DWI RETNANI SUDJOKO, *Pengaruh Katalisator Terhadap Variabel Proses Penelitian Pelapisan Silikon Karbida*, Prosiding Presentasi dan Pertemuan Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P3TM- BATAN, Yogyakarta , (2000)
15. ENDANG S. dan MOCH. SETYADJI, *Pembuatan U(IV) Dengan cara Pengendapan Peptisasi Sebagai Umpan Proses Dehidrasi Gelasi*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P3TM-BATAN, Yogyakarta, (2002)
16. ENDANG S dan MOCH SETYADJI, *Pembuatan Kernel U_3O_8 Dengan Proses Dehidrasi Gelasi*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir , P3TM-BATAN, Yogyakarta, (2003)
17. ENDANG S dan MOCH SETYADJI, *Variasi Waktu Perendaman Pada Pembuatan Kernel U_3O_8 Proses Gelasi Internal-Dehidrasi Dalam Medium 2- Etilheksanol*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P3TM BATAN, Yogyakarta, (2004)
18. ENDANG S dan MOCH SETYADJI, *Analisis Proses Gelasi Dalam Medium 2- Etilheksanol Dengan FTIR Pada Pembuatan Kernel U_3O_8* , Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P3TM BATAN, Yogyakarta, (2005)
19. HAAS, PAUL A. dan CLINTON, S. D., *Preparation of Thoria and Mixed-Oxide Microspheres*. Oak Ridge National Laboratory, Tennessee, (1966)
20. HAAS,P. A., et all., *Consolidated Fuel Recycle Program – Refabrication. Chemical Flowsheet Condition for Preparing Urania Spheres by Gelation*, ORNL-TM-6850, Tennessee, (1979)
21. HIDAYATI, dkk., *Dekomposisi Thermal Gel UO_3* , Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P3TM BATAN, : Yogyakarta, (2000)
22. HIDAYATI, *Penentuan Angka Defisien Asam Dari Larutan Uranil Nitrat Dengan Metode Titrasi Spektrofotometri*, Majalah Iptek Nuklir, Ganendra, P3TM-BATAN, Yogyakarta, Vol IV, No.1, Januari (2001)
23. HIDAYATI, dkk., *Pengaruh Kondisi Pencampuran Urea + Uranium Pada Pembuatan Gel UO_3* , Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P3TM-BATAN, Yogyakarta, (2001)
24. HIDAYATI, dkk., *Struktur Mikro Gel UO_3 Pada Berbagai Kondisi Pencucian*, Prosiding Seminar Nasional Kimia, Jurusan Kimia FMIPA-UNS, Surakarta, (2001)
25. HIDAYATI, *Pembuatan Gel UO_3 dan Butiran U_3O_8 dalam media TCE*, belum dipublikasikan.
26. HIDAYATI, *Mempelajari Sifat-sifat Gel & Butiran U_3O_8 pada Berbagai Variasi Umpan Awal*, belum dipublikasikan.
27. IMAM DAHRONI, dkk., *Pengaruh Bahan Katalisator Logam Karbonil pada Pelapisan PyC dengan Deposisi Kimia Fase Gas (CVD)*, Prosiding....
28. INDRA SURYAWAN, dkk. *Pengaruh Jumlah Poly Vinil Alkohol dan Suhu Dalam Proses Sol Terhadap Pembentukan Gel $(NH_4)_2U_2O_7$* , Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P3TM-BATAN Yogyakarta, (2000)
29. INDRA SURYAWAN, dkk., *Pengaruh Prosentase $[NH_4^+]/[NO_3^-]$ Dalam Pembuatan Sol Dan Suhu Kalsinasi Terhadap Kerapatan Gel U_3O_8 Dengan Menggunakan Pengomplek Poly Vinil Alkohol*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P3TM-BATAN, Yogyakarta, (2001)
30. INDRA SURYAWAN, dkk., *Pengaruh Kadar Uranium Dan Pemanasan Terhadap Luas Muka, Berat Jenis Dan Diameter Gel*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P3TM-BATAN Yogyakarta, (2002)
31. INDRA SURYAWAN dan ARYADI, *Pengaruh Keasaman Uranil Nitrat Dalam Pembuatan Sol Dan Suhu Kalsinasi $800^\circ C$ Terhadap Kondisi Butiran Gel*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P3TM-BATAN, Yogyakarta, (2003)
32. LLOYD, M.H, et all., *Crystal Habit and Phase Attribution of U(IV) Oxides in A Gelation Process*, Journal of inorganic nuclear chemistry, volume 38. pp. 1141-1147, Pergamon Press, Great Britain, (1976).
33. NICKEL, H., *Development of Coated Fuel Particles. KFA Contribution Whithin the Frame of the German High Temperatur Reactor Fuel Development Program*. Kernforschungsanlage, Julich, (1970).
34. PURADWI, dkk., *Kajian Bahan Bakar Reaktor Suhu Tinggi*, , Prosiding Seminar ke-4 RTT & TN, Jakarta, (1999)

35. SOEDYARTOMO SOENTONO, *Rencana Strategik BATAN 2020*, Badan Tenaga Nuklir Nasional, Jakarta, (2003)
36. SUDJATMOKO, *Rencana Strategik P3TM 2006-2010*, P3TM – BATAN, Yogyakarta, (2004)
37. SUKARSONO, dkk., *Perhitungan Fluidisasi Pada Pelapisan Kernel Bahan Bakar Nuklir*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, P3TM-BATAN, Yogyakarta, (1996)
38. SUKARSONO, dkk., *Sintering Kernel UO_2 untuk Bahan Bakar Reaktor Suhu Tinggi*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir P3TM-BATAN, Yogyakarta, (2000)
39. TURNER, C. W., *Colloid Chemistry and Its Applications to Production of Recycled Fuel by Sol Gel Process*, Atomic Energy Canada Limited, Ontario, (1986)
40. VAIDYA, V.N., *Sol-Gel Process For Ceramic Nuclear Fuels*, Fuel Chemistry Division, <http://www.barc.ernet.in/featurearticle1.html>, Newsletter, (2002).
41. WARDAYA, BUSRON MASDUKI, *Pembuatan Kernel UO_2 Melalui Proses Gel*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, PPNY-BATAN, Yogyakarta, (1990)
42. WARDAYA, dkk., *Pembuatan Gel UO_3* , Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, PPNY-BATAN, Yogyakarta, (1991)
43. WARDAYA, dkk., *Pembuatan Kernel UO_2 Melalui Proses KEMA*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, PPNY-BATAN, Yogyakarta, (1991)
44. WARDAYA, BUSRON MASDUKI, *Pengaruh Waktu Perendaman Dan Konsentrasi NH_3 Pada Pencucian Gel Terhadap kerapatan Kernel UO_2* . Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, PPNY-BATAN, Yogyakarta, (1992)
45. WARDAYA, dkk., *Pengaruh Ukuran Nozzle dan Tekanan Larutan Terhadap Diameter Butir Kernel UO_2* , Proceeding Seminar Sains dan Teknologi Nuklir, PPTN-BATAN, Bandung, (1993)
46. WARDAYA, ARYADI, *Pengaruh Aditif Span 80 dan minyak parafin Terhadap Sifat Emulsi Larutan Uranil Nitrat Untuk Umpan proses Pembentukan Butir Gel*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, PPNY-BATAN, Yogyakarta,
47. WARDAYA, dkk., *Pengaruh Konsentrasi Uranium Dan Aditif PVA Pada Pembentukan Gel UO_2 Proses pengendapan Langsung*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, PPNY-BATAN, Yogyakarta, (1997)
48. WARDAYA, dkk., *Pengaruh Aging Larutan Umpan dan Konsentrasi Amonia Pada Pembentukan Gel UO_3 Proses Pengendapan Langsung*, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Pranata Nuklir, PPNY-BATAN, Yogyakarta, (1998)
49. YUS RUSDIAN A., dkk., *Konfigurasi Dasar Berbagai RST*, Prosiding Seminar ke-4 RTT & TN, Jakarta, (1999)
50. ZIFFERERO, M., *Sol-Gel Research and development, Status Report from Italia, Sol-Gel Processes for Ceramic Nuclear Fuel*, Proceeding of a Panel, IAEA, Viena, (1968)
51. Komunikasi pribadi dengan Ir. R. Didiek Herhady dan Ir. R. Sukarsono