

ANALISIS STRUKTUR DAN KOMPOSISI FASE PADUAN U-7%Mo-x%Zr (x = 1, 2, 3% berat) HASIL PROSES PELEBURAN

Supardjo*, Boybul*, Agoeng Kadarjono* , Wisnu A.A.**

* Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN

**Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir – BATAN

Kawasan PUSPIPTEK Serpong, Tangerang Selatan 15314, Banten

e-mail: suparjo@batan.go.id

(Diterima 16-8-2010, disetujui 12-10-2010)

ABSTRAK

ANALISIS STRUKTUR DAN KOMPOSISI FASE PADUAN U-7%Mo-x%Zr (x = 1, 2, 3% berat) HASIL PROSES PELEBURAN. Telah dilakukan karakterisasi ingot paduan U-7%Mo-x%Zr hasil proses peleburan menggunakan tungku busur listrik dalam rangka pengembangan bahan bakar nuklir berbasis paduan uranium molibdenum. Proses peleburan dilakukan dengan arus listrik 150 A dalam media gas argon (Ar) dan setiap paduan dilebur dengan 5 kali pengulangan. Hasil uji ingot paduan yang diperoleh dari proses peleburan relatif bersesuaian dengan komposisi stoikiometri. Hasil *refinement* dari pola difraksi sinar-X menunjukkan bahwa struktur yang terbentuk pada ingot paduan U-7%Mo-x%Zr adalah larutan padat molibdenum dan zirkonium ke dalam struktur bcc uranium. Peningkatan kadar Zr dalam paduan U-7%Mo meningkatkan kristalisasi bahan, yang dapat diamati dengan adanya peningkatan intensitas puncak pada bidang (110), (200), (211) dan (220). Hal ini menunjukkan bahwa di dalam ingot paduan U-7%Mo-x%Zr terjadi perubahan volume unit sel dan kerapatan atomik.

KATA KUNCI: metode proses peleburan, ingot paduan U-7%Mo-x%Zr, bahan bakar dispersi.

ABSTRACT

STRUCTURE ANALYSIS AND PHASE COMPOSITION OF U-7%Mo-x%Zr (x = 1, 2, 3 wt%) ALLOYS FROM MELTING PROCESS. The characterization of U-7%Mo-x%Zr alloys as result of melting process using an electric arc furnace has been conducted in order to develop nuclear fuel based on uranium molybdenum alloys. Melting process was conducted using an electric current of 150 A in argon (Ar) gas media and each alloy was melted for 5 times. The results of alloy testing obtained from the melting process matched the stoichiometry composition. Result of refinement from X-ray diffraction pattern indicated that the structures formed in U-7%Mo-x%Zr alloy was a solid solution of molybdenum and zirconium into bcc structure of uranium. The increase of Zr concentration in U-7%Mo alloy increased the crystallization of material, which can be observed through the increment of peak intensity in (110), (200), (211)

and (220) planes. This indicates in U-7%Mo-x%Zr alloy ingot there was transformation of unit-cell volume and atomic density.

FREE TERMS: melting process method, U-7%Mo-x%Zr alloys, dispersion fuel

I. PENDAHULUAN

Bahan bakar berbasis UMo merupakan pengembangan bahan bakar dispersi U_3Si_2 -Al dengan uranium pengayaan rendah (<20% U^{235}) yang dapat dibuat menjadi bentuk batang maupun pelat. Bahan bakar dispersi U_3Si_2 -Al tipe pelat difabrikasi dengan cara memadukan logam uranium dan logam silikon dengan perbandingan 92,5%U dan 7,5% Si, dan dibuat ingot paduan U_3Si_2 dengan teknik peleburan. Ingot paduan U_3Si_2 diubah menjadi serbuk dan didispersikan ke dalam matriks aluminium dengan perbandingan sesuai densitas uraniumnya dan dilanjutkan menjadi inti elemen bakar dengan pengepresan pada tekanan tinggi. Inti elemen bakar bersama pelat paduan aluminium dibentuk menjadi pelat elemen bakar dengan teknik pengerolan panas dan dingin^[1]. Bahan bakar U_3Si_2 -Al memiliki stabilitas iradiasi cukup baik selama digunakan sebagai bahan bakar di dalam reaktor, namun densitas uranium maksimum yang dapat dicapai hanya sekitar 4,8 gU/cm³, sehingga umur penggunaan di dalam reaktor relatif pendek. Selain itu olah ulang gagal proses fabrikasi bahan bakar U_3Si_2 -Al maupun pasca iradiasi sangat sulit, sehingga memerlukan biaya yang cukup tinggi^[2]. Mengingat bahan bakar paduan U_3Si_2 ini sudah banyak digunakan di reaktor riset di dunia, maka para peneliti berlomba untuk mencari paduan uranium dengan paduan logam lain yang memiliki densitas uranium tinggi, mudah difabrikasi, stabil selama iradiasi, dapat digunakan sebagai bahan bakar di dalam reaktor dalam waktu yang lebih lama dan olah ulangnya mudah sehingga lebih ekonomis.

Paduan UMo memiliki berat jenis sekitar 16,4 g/cm³ (tergantung kadar Mo), tahan terhadap korosi, tampang lintang serapan neutron rendah, namun paduan bersifat ulet (*ductile*) sehingga sulit dibuat serbuk secara mekanik (*grinding mill / ball mill*). Berat jenis tersebut lebih tinggi dibandingkan dengan berat jenis paduan uranium/uranium oksida yang telah digunakan sebagai bahan bakar reaktor riset seperti U_3Si_2 , U_3O_8 , dan UAl_x yang masing masing sebesar 12,2; 8,4; dan 6,7 g/cm³. Penggunaan UMo sebagai bahan bakar tipe dispersi, tingkat muat uranium di dalam *meat* pelat elemen bakar dapat ditingkatkan menjadi 9,0 gU/cm³. Tingkat muat tersebut sesuai dengan yang diperlukan reaktor terkait penggunaan uranium pengayaan rendah.

Kelebihan lain paduan UMo sebagai bahan bakar adalah proses olah ulang lebih mudah dibandingkan bahan bakar U_3Si_2-Al [3,4].

Struktur kristal paduan UMo adalah bcc, pada suhu 1280 °C terjadi reaksi peritektik dengan fase γ maksimum pada komposisi 40% Mo. Pada suhu yang lebih rendah (<648 °C) terjadi keseimbangan reaksi eutektik antara fase β (1,4% atom Mo) menjadi α (0,1% atom Mo) dan fase δ_2 (8% atom Mo). Sedangkan keseimbangan antara fase γ (21,5% atom) dengan α (<0,1% atom) dan δ_2 terjadi pada suhu 572 °C [5]. Paduan UMo dengan kandungan Mo antara 7 – 10% berat memiliki prospek yang sangat baik untuk digunakan sebagai bahan bakar dispersi dengan pengayaan uranium rendah.

Penelitian dan pengembangan bahan bakar reaktor riset berbasis UMo dengan pengayaan uranium <20% U^{235} merupakan program internasional dalam rangka mendapatkan bahan bakar baru yang memiliki densitas uranium antara 8 – 9 gU/cm³ sesuai program *Reduced Enrichment Research and Test Reactor (RERTR)*. Menggunakan paduan UMo sebagai bahan bakar dispersi, densitas uranium dapat ditingkatkan hingga >8 gU/cm³. Namun selama perlakuan panas / iradiasi di dalam reaktor, *swelling* bahan bakar UMo-Al lebih tinggi dibandingkan dengan bahan bakar U_3Si_2-Al [6]. Oleh karena itu perlu dilakukan penelitian lanjut dengan memadu UMo dengan logam lain agar diperoleh paduan baru yang memiliki karakteristik lebih baik dibandingkan dengan $U_3Si_2-Al/UMo-Al$.

Pada penelitian ini unsur logam yang ditambahkan pada paduan UMo adalah Zr yang dimaksudkan untuk penstabil terjadinya interaksi lapisan (*layer*) antara UMo dan matriks Al. Perlakuan panas pada $\gamma UMoZr$ adalah fase γU yang metastabil, dan pada konsentrasi Mo dan Zr yang tinggi membentuk endapan $(U,Mo)_2Zr$ di batas butir. Butiran dan densitas endapan menjadi lebih keras seiring kenaikan kadar Zr [7,8].

Oleh karena itu, keberhasilan kegiatan ini akan diwujudkan dalam bentuk pengembangan bahan bakar paduan UMoZr yang secara teoritis memiliki densitas uranium tinggi, yang akan menaikkan nilai ekonomi, baik ditinjau dari sudut operasi reaktor, biaya produksi bahan bakar, biaya pemungutan (*recovery*) uranium dan sebagainya.

Tujuan penelitian ini adalah untuk mendapatkan paduan UMoZr yang memiliki karakteristik sesuai bahan bakar dispersi untuk reaktor riset.

II. TATA KERJA

Bahan baku uranium (U), molibdenum (Mo) dan zirkonium (Zr), masing-masing dianalisis secara kimia untuk mengetahui kadar dan

impuritasnya. Berdasarkan data analisis tersebut, dibuat campuran U-7%Mo-x%Zr dengan cara sebagai berikut. Tiga buah campuran U-7%Mo (93% berat U + 7% berat Mo) masing-masing ditambahkan 1, 2 dan 3% Zr dari berat UMo. Perhitungan untuk preparasi sampel berdasarkan % berat ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Hasil perhitungan penimbangan serbuk UMo dan Zr berdasarkan % berat.

Paduan	Komposisi (% berat)		
	UMo	Zr	U-7%Mo-x%Zr
U-7%Mo-x%Zr, x = 1%	99	1	100
U-7%Mo-x%Zr, x = 2%	98	2	100
U-7%Mo-x%Zr, x = 3%	97	3	100

Masing-masing komposisi dibuat paduan dengan cara peleburan menggunakan tungku busur listrik dengan media gas argon (Ar). Setiap campuran dilebur selama 1 menit dengan arus 150 A, dengan 5 kali pengulangan. Pada awalnya dibuat komposisi U-7%Mo, yaitu 93% berat uranium ditambahkan 7% berat molibdenum, kemudian campuran U-7%Mo dibuat komposisi U-7%Mo-x%Zr, dengan x sebesar 1, 2, dan 3% berat Zr. Pada Tabel 2 ditunjukkan hasil penimbangan komposisi paduan sistem U-7%Mo-x%Zr.

Tabel 2. Hasil perhitungan dan penimbangan serbuk U, Mo, dan Zr dalam gram.

Paduan	Berat (gram)				
	U	Mo	Zr	Penimbangan	Perhitungan
U-7%Mo-x%Zr, x = 1	15,1163	1,1371	0,1643	16,4177	16,4176
U-7%Mo-x%Zr, x = 2	14,9653	1,1257	0,3284	16,4193	16,4178
U-7%Mo-x%Zr, x = 3	14,9937	1,1279	0,4986	16,6206	16,6205

Kualitas dan kuantitas fase-fase yang ada di dalam sampel diukur menggunakan alat *X-Ray Diffractometer (XRD) Philips* tipe PW1710. Pengukuran pola difraksi sampel dilakukan dengan berkas sinar-X dari tabung anode Cu dengan panjang gelombang, $\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$, mode = *continuous-scan*,

step size = 0,02°, dan *time per step* = 0,5 detik. Profil difraksi sinar-X dianalisis menggunakan perangkat lunak program RIETAN (*Rietveld Analysis*) 1994^[9].

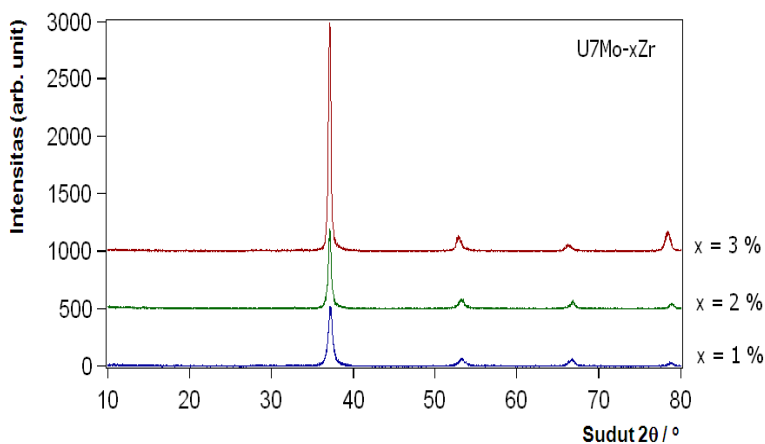
III. HASIL DAN PEMBAHASAN

Data perhitungan pada Tabel 1, maka komposisi stoikiometri dari paduan tersebut dapat ditentukan berdasarkan % atom seperti yang ditunjukkan pada Tabel 3.

Tabel 3. Hasil perhitungan logam U, Mo, dan Zr berdasarkan % atom.

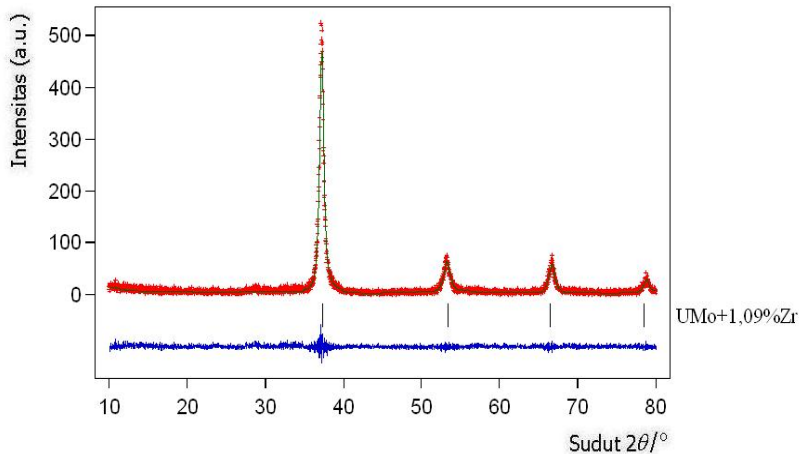
Paduan	Komposisi (% atom)			
	U	Mo	Zr	Total
U-7%Mo-x%Zr, x = 1	0,8229	0,1537	0,0234	1
U-7%Mo-x%Zr, x = 2	0,8039	0,1501	0,0460	1
U-7%Mo-x%Zr, x = 3	0,7852	0,1466	0,0682	1

Dengan demikian senyawa yang terbentuk dalam ingot paduan U-7%Mo-1%Zr, U-7%Mo-2%Zr, dan U-7%Mo-3%Zr berturut-turut adalah $U_{0,823}Mo_{0,154}Zr_{0,023}$, $U_{0,804}Mo_{0,150}Zr_{0,046}$, dan $U_{0,785}Mo_{0,147}Zr_{0,068}$. Hasil pengujian difraksi sinar-X terhadap sampel ingot paduan U-7%Mo-x%Zr dengan x = 1, 2, 3% berat ditunjukkan pada Gambar 1.



Gambar 1. Hasil *refinement* pola difraksi sinar-X ingot paduan U-7%Mo-1%Zr.

Hasil *refinement* dari pola difraksi sinar-x ingot paduan U-7%Mo-1%Zr, U-7%Mo-2%Zr dan U-7%Mo-3%Zr berturut-turut ditunjukkan pada Gambar 2, 3, dan 4. Pada Gambar 2, 3, dan 4 terlihat bahwa pada ingot paduan U-7%Mo-x%Zr terbentuk fase stabil, dan struktur yang terbentuk pada sistem ini adalah larutan padat molibdenum dan zirkonium ke dalam struktur bcc uranium. Identifikasi fase paduan sistem U-7%Mo-x%Zr mengacu pada hasil penelitian Smith [9] dan memiliki struktur kristal kubik (bcc), *space group* Im3m (229) dengan parameter kisi $a = b = c = 3,474 \text{ \AA}$. Puncak-puncak yang tumbuh merupakan puncak fase U-7%Mo-x%Zr pada bidang (110), (200), (211) dan (220). Data hasil *refinement* ini menghasilkan kualitas *fitting* sangat baik, dimana faktor R merupakan *criteria of fit* dan faktor S adalah *goodness of fit* bernilai relatif kecil.



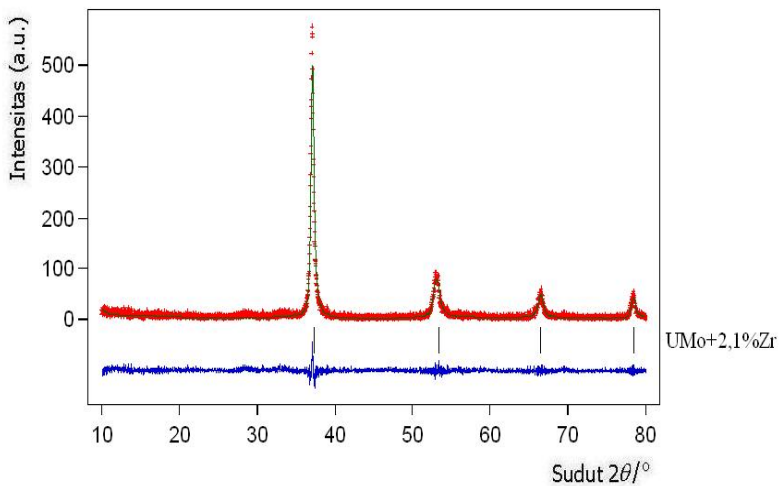
Gambar 2. Hasil *refinement* pola difraksi sinar-X ingot paduan U-7%Mo-1%Zr.

Data hasil *refinement* parameter kisi, dan faktor R untuk sampel U-7%Mo-1%Zr (Gambar 2) berturut-turut adalah $a = b = c = 3,4550(3) \text{ \AA}$; $R_{WP} = 18,46$; $R_P = 10,54$; $R_I = 10,51$; $R_F = 10,08$; dan $S = 1,26$. Tampak bahwa faktor R relatif kecil, dan faktor S bernilai lebih kecil dari nilai standar *Rietveld* ($S_{\text{standar}} = 1,30$), sedangkan data hasil *refinement* posisi atom ditunjukkan pada Tabel 4.

Tabel 4. Data hasil *refinement* posisi atom pada sampel U-7%Mo-1%Zr.

Atom	x	y	z	Okupansi
U	0,0	0,0	0,0	0,758(9)
Mo	0,0	0,0	0,0	0.152(1)
Zr	0,0	0,0	0,0	0.023(6)

Pada Gambar 3 tampak hasil *refinement* pola difraksi sinar-X sampel ingot paduan U-7%Mo-2%Zr.



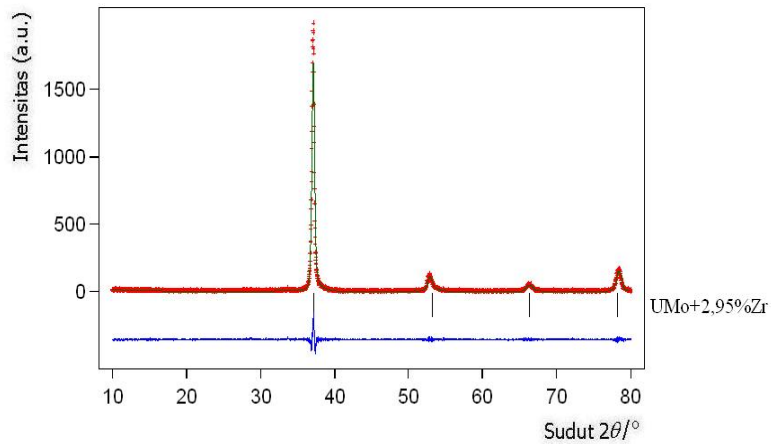
Gambar 3. Hasil *refinement* pola difraksi sinar-X ingot paduan U-7%Mo-2%Zr.

Data hasil *refinement* parameter kisi, dan faktor R untuk ingot paduan U-7%Mo-2%Zr (Gambar 3) berturut-turut adalah $a = b = c = 3,4635(2) \text{ \AA}$; $R_{WP} = 19,65$; $R_P = 18,14$; $R_I = 10,84$; $R_F = 6,58$; dan $S = 1,25$. Terlihat bahwa faktor R relatif kecil dan faktor S bernilai lebih kecil dari nilai standar *Rietveld*, sedangkan data hasil *refinement* posisi atom ditunjukkan pada Tabel 5.

Tabel 5. Data hasil *refinement* posisi atom pada sampel U-7%Mo-2%Zr.

Atom	x	y	z	Okupansi
U	0,0	0,0	0,0	0,762(7)
Mo	0,0	0,0	0,0	0.148(9)
Zr	0,0	0,0	0,0	0.046(1)

Pada Gambar 4 tampak hasil *refinement* pola difraksi sinar-X sampel ingot paduan U-7%Mo-3%Zr.



Gambar 4. Hasil *refinement* pola difraksi sinar-x sampel ingot paduan U-7%Mo-3%Zr.

Data hasil *refinement* parameter kisi, dan faktor R untuk sampel U-7%Mo-3%Zr (Gambar 4) berturut-turut adalah $a = b = c = 3,4638(3) \text{ \AA}$; $R_{WP} = 13,57$; $R_P = 11,38$; $R_I = 3,16$; $R_F = 4,45$; dan $S = 1,17$. Tampak bahwa faktor R juga relatif kecil dan faktor S juga bernilai lebih kecil dari nilai standar *Rietveld*, sedangkan data hasil *refinement* posisi atom ditunjukkan pada Tabel 6.

Tabel 6. Data hasil *refinement* posisi atom pada sampel ingot paduan U-7%Mo-3%Zr.

Atom	x	y	z	Okupansi
U	0,0	0,0	0,0	0,798(6)
Mo	0,0	0,0	0,0	0.146(9)
Zr	0,0	0,0	0,0	0.068(1)

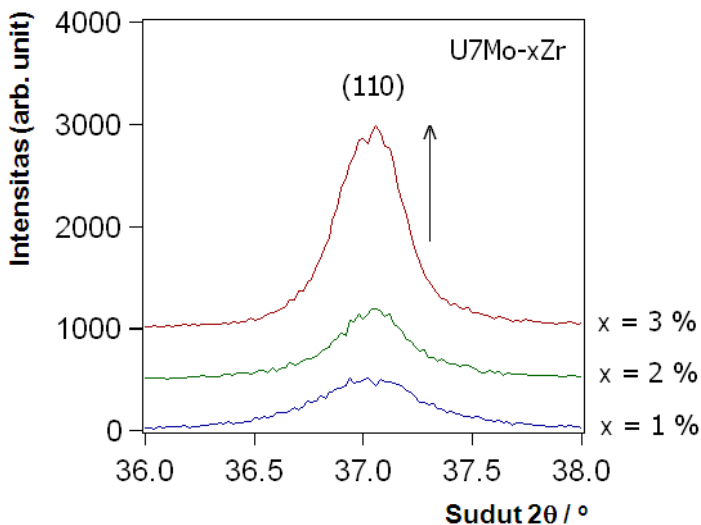
Berdasarkan asumsi, struktur yang terbentuk pada sistem ini adalah larutan padat molibdenum dan zirkonium ke dalam struktur bcc uranium. Dengan demikian dari hasil *refinement* ini, dapat dihitung komposisi unsur logam yang terbentuk seperti ditunjukkan pada Tabel 7.

Tabel 7. Komposisi unsur logam.

U-7%Mo-x%Zr	Stoikiometri				Refinement			
	% atom			% berat	% atom			% berat
	U	Mo	Zr	Zr	U	Mo	Zr	Zr
x = 1%	82,29	15,37	2,34	1	81,20	16,27	2,53	1,09
x = 2%	80,39	15,01	4,60	2	79,65	15,55	4,80	2,10
x = 3%	78,52	14,66	6,82	3	78,79	14,49	6,72	2,95

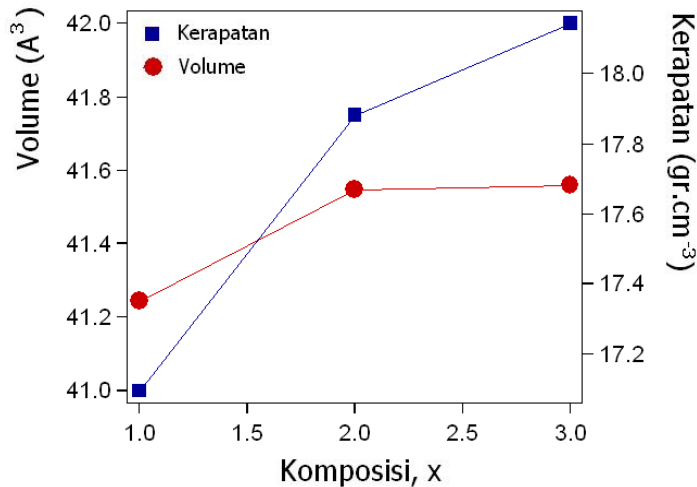
Dengan demikian komposisi % berat masing-masing sampel U-7Mo-1Zr [99%(93%U-7%Mo) 1%Zr], U-7Mo-2Zr [98%(93%U7%Mo) 2%Zr], dan U-7Mo-3Zr [97%(93%U-7%Mo) 3%Zr] berturut-turut adalah U-7Mo-1,09Zr [99%(92,53%U7,47%Mo) 1,09%Zr], U-7Mo-2,1Zr [99%(92,71%U-7,29%Mo) 2,1%Zr], dan U-7Mo-2,95Zr [99%(93,1%U-6,9%Mo) 2,95%Zr]. Data yang diperoleh menunjukkan bahwa komposisi yang diperoleh dari proses peleburan pada paduan ini relatif bersesuaian dengan komposisi stoikiometri, walaupun penambahan Zr ada yang berlebih dan kurang dari komposisi stoikiometri.

Analisis struktur dari ketiga paduan ini menunjukkan bahwa dengan meningkatnya kadar Zr ke dalam paduan UMo dapat menaikkan tingkat kristalisasi paduan. Tampak terjadi peningkatan intensitas puncak, baik pada bidang (110), (200), (211) dan (220) seperti yang ditunjukkan pada Gambar 5.



Gambar 5. Hasil pola difraksi sinar-X bidang (110) ingot paduan U-7%Mo-x%Zr.

Peningkatan puncak difraksi pada bidang (110) ini menunjukkan terjadinya perubahan volume unit sel dan kerapatan atomik pada masing masing komposisi seperti yang ditunjukkan pada Gambar 6.



Gambar 6. Hasil *refinement* kerapatan atomik dan volume unit sel ingot paduan U-7%Mo%-x%Zr.

Untuk kadar Zr sebesar 2%, kerapatan dan volume unit sel meningkat. Hal ini sangat bersesuaian karena dengan penambahan kadar Zr, volume unit sel mengembang dan kerapatan juga meningkat. Namun setelah penambahan kadar Zr menjadi 3%, terjadi optimasi kerapatan atomik. Hal ini terlihat pada perubahan volume unit sel yang mendekati konstan, namun kerapatan atomiknya terus meningkat, sehingga tingkat kepadatan dalam satu unit sel tersebut meningkat dibandingkan untuk kadar Zr sebesar 2%. Peningkatan kepadatan atomik dalam satu unit sel ini diduga dapat meningkatkan intensitas puncak dari pola difraksi sinar-X pada paduan dengan kadar 3% Zr.

IV. KESIMPULAN

Komposisi ingot paduan hasil peleburan bersesuaian dengan komposisi stoikiometri. Hasil *refinement* dari pola difraksi sinar-X menunjukkan bahwa struktur yang terbentuk dalam ingot paduan U-7%Mo-x%Zr adalah larutan padat molibdenum dan zirkonium ke dalam struktur bcc uranium. Peningkatan kadar Zr dalam paduan U-7%Mo meningkatkan kristalisasi bahan, yang dapat diamati dari peningkatan intensitas puncak pada bidang (110), (200), (211) dan

(220). Hal ini menunjukkan terjadinya perubahan volume unit sel dan kerapatan atomik.

V. UCAPAN TERIMA KASIH

Atas terlaksananya penelitian dan penulisan makalah ini, ucapan terima kasih disampaikan kepada rekan-rekan pegawai di Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBN)-BATAN yang telah berkenan berpartisipasi dalam penelitian ini.

VI. DAFTAR PUSTAKA

1. PT. BATAN Teknologi. Prosedur Fabrikasi Bahan Bakar U_3Si_2 -Al.
2. Olivares, L., et.al. (2007). Nuclear Fuel Development Based on UMo Alloys under Irradiation Evaluation of LEU $U_3Si_2 - 4.8 \text{ gU/cm}^3$ Test Fuel. Proceedings of the International RERTR Meeting, Prague, Czech Republic.
3. Kim, K.H., et.al. (1996). Development of High Loading Alloy Fuel by Centrifugal Atomization. Proceedings of the International RERTR Meeting, Korea.
4. Hofman, G.L., et.al. (1999). Initial Assesment of Radiation Behavior of Very High Density Low Enriched Uranium Fuels. Proceedings of the International RERTR Meeting, Budapest, Hungary.
5. Ivanov, O.S, et.al. (1983). Phase Diagram of Uranium Alloys. Amerind Publishing Co.
6. Kim, Y.S., et.al. (2008). Swelling of U_3Si_2 during Irradiation. Proceedings of the International RERTR Meeting. Washington, D.C., USA.
7. Park, J.M., et.al. (2006). Interdiffusion Behavior of UMoZr/AlSi. Proceedings of the International RERTR Meeting, Cape Town, South Africa.
8. Park, J.M., et.al. (2007). Phase Stability of UMoTi Alloys and Interdiffusion Behaviors of UMoTi/AlSi. Proceedings of the International RERTR Meeting, Praque, Czech Republic.
9. Izumi, F. (1996). A Rietveld-Refinement Program RIETAN-94 for Angle-Dispersive X-Ray and Neutron Powder Diffraction. Japan: The National Institute for Research in Inorganic Materials 1-1.