

PEMBESARAN UKURAN BUTIR UO_2 DENGAN PENAMBAHAN DOPAN UNTUK MENGURANGI PELEPASAN GAS FISI

Futichah, Tri Yulianto

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-BATAN
Kawasan PUSPIPTEK, Serpong, Tangerang Selatan 15314, Banten
e-mail: futichah@batan.go.id
(Naskah diterima 28-3-2013, disetujui 17-5-2013)

ABSTRAK

PEMBESARAN UKURAN BUTIR UO_2 DENGAN PENAMBAHAN DOPAN UNTUK MENGURANGI PELEPASAN GAS FISI. Penelitian ini bertujuan untuk mendapatkan korelasi penambahan dopan Cr_2O_3 terhadap densitas dan ukuran butir pada pelet sinter UO_2 . Pengompakan serbuk UO_2 disebut pelet mentah dan berbentuk silindris. Pelet mentah UO_2 mempunyai rapat massa sekitar 45-55% TD. Penyinteran dilakukan menggunakan atmosfer tertentu sebagai media penyinteran atau dengan sistem vakum. Atmosfir penyinteran dapat berupa uap (*steam*) atau gas seperti H_2 , Ar , CO_2 , N_2 , dan gas amoniak (NH_3). Penyinteran pelet UO_2 dilakukan menggunakan atmosfer H_2 pada temperatur 1600°C-1700°C sedangkan lamanya berada pada temperatur puncak (*soaking time*) adalah 2-4 jam. Hasil dari penyinteran pelet UO_2 disebut pelet sinter UO_2 dan mempunyai rapat massa sekitar 94%-97% TD. Penambahan dopan Cr_2O_3 ke dalam serbuk UO_2 dapat menaikkan densitas dan memperbesar ukuran butir pada pelet sinter UO_2 sehingga dapat menghasilkan pelet yang memenuhi kerja elemen bakar nuklir lebih tinggi yang menyebabkan umur pakai elemen bakar menjadi lebih lama. Penambahan dopan Cr_2O_3 dapat menaikkan densitas pellet UO_2 dari 10,58-10,77 g/cm³ pada variasi 0-0,9% berat dopan Cr_2O_3 . Sedangkan ukuran butir pellet UO_2 diperoleh 4,6-73,6µm. Pelepasan gas fisi turun dengan meningkatnya besar butir UO_2 di dalam pelet dan pada besar butir tertentu pelepasan gas fisi mencapai optimum.

Kata Kunci: ukuran butir UO_2 , dopan Cr_2O_3 , pelepasan gas fisi, densitas pelet UO_2 , korelasi ukuran butir dan pelepasan gas fisi.

ABSTRACT

ENHANCEMENT OF UO_2 GRAIN SIZE BY DOPANT ADDITION FOR REDUCING FISSION GAS RELEASE. The objective of this research was to get correlation between densities and grain size in UO_2 sinter pellet after added by Cr_2O_3 dopant.. The benefit was to give an alternative information about increasing product quality of UO_2 fue and to get information as referenses of nuclear fuels which is used to enhance reactor operarion performence that related to fission product release so that meet to Advanced Fuel Cycle initiative. The compacting of UO_2 powder was called green pellets and the shape was cylindrical. The UO_2 green pellet had the mass density of 45-55% TD. The sintering was done in spesific atmosphere and in vacuum condtion. The sintering atmosphere could be steam, H_2 , Ar , CO_2 , N_2 or NH_3 . The UO_2 sinter pellet was done using H_2 atmosphere at temperature of 1600 -1700 °C inthe soaking time at 2-4 hours. The UO_2 sinter pellet had density 94 - 97% TD. The Cr_2O_3 dopant addition in UO_2 powder increased density and grain size of UO_2 sinter pellet. So that resulted pellet which fullfiled the higher performence of nuclear fuel and the longer live time. The dopant addition increased the UO_2 pellet density from 10,58-10,77 g/cm³ in variation of 0-0,9%. The sinter UO_2 pellet had grain size of 4,6-73,6µm. The fission gas release decreased with

enhancement of UO₂ grain size in the pellet and at the given grain size the fission gas was optimum.

Keywords: *UO₂ grain size, Cr₂O₃ dopant, fission gas release, UO₂ pellet density, grain size, fission gas release.*

I. PENDAHULUAN

1.1. Latar Belakang

Dalam program *Advanced Fuel Cycle Initiative* (AFCI) salah satunya adalah pengembangan bahan bakar derajat bakar tinggi (*high burn up*) yang digunakan reaktor saat ini dan untuk reaktor yang akan datang. Bahan yang dimaksud mempunyai kapasitas untuk mengurangi laju bahan bakar bekas (*spent fuel*) yang dihasilkan dan menjadi bahan bakar bekas siap ditanam di dalam tanah dalam jangka panjang (*long-term geological disposal*)^[1].

Salah satu faktor yang membatasi derajat bakar dalam reaktor saat ini adalah laju tekanan di dalam kelongsong yang disebabkan oleh gas fisi yang terlepas dari reaksi inti bahan fisil. Secara teoritis pembesaran ukuran butir di dalam pelet UO₂ dapat mengurangi gas fisi terlepas atau dengan kata lain dapat meningkatkan daya kungkung gas hasil fisi. Sebagai contoh TiO₂ dapat meningkatkan ukuran butir dibanding UO₂ standar menjadi 281% lebih besar.

Perubahan butir tentu berpengaruh kepada kekuatan mekanik, padahal pelet UO₂ mempunyai persyaratan tertentu misal kekuatan luluh sebesar $2,19 \times 10^8$ KN/m². Dalam mengkarakterisasi ukuran butir dan sifat mekanik memang tidak mudah dan perlu peralatan. Tetapi dengan adanya konversi dapat digunakan uji kekerasan mikro. Dari data ini dapat dikonversi ke kekuatan luluh.

Sehubungan dengan hal tersebut di atas maka berikut merupakan ilustrasi dari program AFCI. Tujuan penelitian ini adalah memahami korelasi mikrostruktur dengan pelepasan gas fisi dan mikrostruktur dengan sifat mekanik bahan bakar maju pelet UO₂.

Jika ukuran butir diperbesar maka jalan difusi menjadi lebih panjang sehingga pelepasan gas fisi berkurang dan material menjadi *ductile* sesuai dengan formula Hall–Petch.

1.2. Peletisasi

1.2.1. Pengepresan

Pengompakan serbuk merupakan usaha untuk menggabungkan serbuk sedemikian sehingga diperoleh bentuk dan dimensi yang diinginkan dengan densitas tertentu. Dalam hal ini cara yang digunakan adalah pengompakan dengan sistem kompaksi cetakan (*die compaction*) yaitu penekanan serbuk UO₂ dalam cetakan dengan suatu mesin *press* pada temperatur kamar^[3]. Tujuan pengompakan ialah memperoleh bentuk dan ukuran tertentu pada suatu pelet, memiliki densitas yang tinggi dan mendekatkan butir-butir untuk mempermudah penyinteran^[4]. Hasil pengompakan disebut pelet mentah yang diharapkan mempunyai rapat massa yang optimum yaitu 5-6 g/cm³^[5].

Pada pengompakan serbuk biasanya ditambahkan bahan pelumas (*lubricants*) atau bahan pengikat. Penambahan bahan pengikat dimaksudkan untuk menambah kelekatan/kekuatan dalam kompakan (pelet mentah). Penambahan ini dilakukan dengan cara basah atau kering. Dengan cara kering, bahan pengikat dalam bentuk serbuk ditambahkan ke dalam serbuk UO₂ kemudian dihomogenkan dengan alat pencampur (*mixer*) sedangkan dengan cara basah bahan pengikat dilarutkan ke dalam air dan alkohol kemudian dicampur dengan serbuk UO₂. Larutan ini dihomogenkan dengan menggunakan pencampur (*mixer*). Bahan pelumas yang biasa digunakan adalah *Zinc*

stearat^[6].

Fenomena dasar proses pengompakan serbuk Uranium dioksida meliputi penyusunan dan penggabungan partikel (*packing*), deformasi elastik, pengelasan dingin dan fragmentasi.

Pada proses pengompakan, gaya tekan dari luar pada tahap awal sebagian besar dikonsumsi untuk mengatasi gesekan antar partikel (*interparticle friction*), sehingga terjadi penggabungan antar partikel tersebut. Tahap kedua, gesekan yang ditimbulkan pada dinding cetakan dan partikel adalah yang paling dominan. Gesekan tersebut mengakibatkan terjadinya deformasi elastik atau perubahan bentuk elastis pada serbuk UO_2 . Gaya tekan dari luar sebagian besar digunakan untuk mengatasi gesekan tersebut. Pada tahap ketiga terjadi pengelasan dingin dimana antar partikel saling menyatu/bergabung dengan ikatan kuat akibat adanya proses fragmentasi atau peragian. Hasil pengompakan serbuk UO_2 disebut pelet mentah dan berbentuk silindris. Pelet mentah UO_2 mempunyai rapat massa sekitar 45-55% TD.

1.2.2. Sintering

Sintering merupakan proses pengikatan partikel serbuk dalam kompakanya (pelet mentah) melalui perpindahan atom-atom akibat pemberian panas luar, yang terjadi di bawah temperatur titik leleh^[7]. Tujuan sintering adalah memperkuat ikatan partikel hasil pengompakan melalui perpindahan atom. Perpindahan atom terjadi karena adanya difusi atom, laju pemanasan, susunan kristal dan pertumbuhan butir^[8]. Faktor-faktor yang dapat mempengaruhi penyinteran adalah laju pemanasan, temperatur sintering, atmosfer, dopan (zat aditif) dan kandungan pengotor. Penyinteran dilakukan menggunakan atmosfer tertentu sebagai media penyinteran atau dengan sistem vakum. Atmosfer penyinteran dapat berupa uap atau gas seperti H_2 , Ag, CO_2 , N_2 , dan gas amoniak (NH_3).

Penyinteran pelet UO_2 menggunakan atmosfer H_2 pada temperatur 1600 - 1700°C sedangkan lamanya berada pada temperatur puncak (*soaking time*) adalah 2-4 jam. Hasil dari penyinteran pelet UO_2 disebut pelet sinter UO_2 dan mempunyai rapat massa sekitar 94 - 97% TD^[3].

Pada tahap awal proses sintering serbuk UO_2 , butiran akan saling mendekat dan bersinggungan pada bidang singgung (titik kontak). Ion-ion pada bidang singgung akan berdifusi terutama dengan cara difusi kekosongan did dalam difusi diri (*self diffusion*) dari ion-ion uranium dan oksigen di dalam kisi kristal UO_2 , sehingga akan memperluas daerah kontrol antar butir yang disebut daerah batas butir. Kemudian pada bidang singgung (titik kontak) akan terjadi proses pertumbuhan daerah leher (*neck growth*) disebabkan oleh difusi ion-ion dari daerah batas butir ketempat kosong terdekat dan membentuk pori. Pada tahap awal proses sintering, pergerakan batas butir belum terjadi. Hal ini disebabkan oleh kekosongan yang terjadi belum mencukupi sehingga dibutuhkan gaya yang lebih besar untuk menggerakkan batas butir.

Dalam tahap awal proses sintering penambahan dopan ke dalam serbuk UO_2 akan dapat mempengaruhi densifikasi dan struktur mikro pelet sinter UO_2 . Hal ini disebabkan oleh kation dopan akan menimbulkan ketidakseimbangan di dalam kisi. Akibat ketidakseimbangan muatan kisi akan terjadi kerusakan kisi atau kekosongan untuk mengkompensasi ketidakseimbangan tersebut.

Kekosongan kisi pada kristal UO_2 dapat menaikkan mobilitas ion-ion yang berdifusi disebabkan oleh berkurangnya hambatan yang ditimbulkan dopan. Hal ini dapat dilihat dari hubungan antara mobilitas ion dengan hambatan yang menghubungkan antara pergerakan elektron di dalam logam yang disebabkan oleh adanya medan listrik dengan pergerakan ion-ion didalam larutan padat karena adanya perbedaan potensial.

Bertambahnya penyusun UO_2 dengan mobilitas ion-ion penyusun UO_2 dapat disebabkan oleh penambahan dopan yang akan menyebabkan koefisien difusi ion-ion penambahan dopan menjadi lebih tinggi dibandingkan dengan koefisien difusi ion-ion penyusun UO_2 tanpa penambahan dopan.

Proses pembentukan kekosongan di dalam kisi dimulai saat kation dopan menempati celah-celah kosong (*interstitial holes*) atau mengganti posisi ion uranium di dalam kisi kristal UO_2 membentuk larutan padat. Di dalam fasa ionik, ukuran ion akan menentukan jenis dari larutan yang terbentuk. Larutan padat substitusi akan terbentuk apabila atom atau ion pelarut yang larut mempunyai ukuran yang sama atau hampir sama dan mempunyai elektron yang sama. Dengan meningkatnya perbedaan atom atau ion, kemampuan substitusinya akan menurun. Kemampuan substitusi ini akan terbatas apabila terdapat selisih ukuran jari-jari atom atau ion melebihi 15%. Kemampuan pelarut ini akan lebih terbatas bila komponen penyusunnya mempunyai struktur kristal atau valensi yang berlainan.

Pada tahap sintering lebih lanjut, dopan akan tereduksi oleh atmosfer hidrogen sehingga valensinya menjadi lebih rendah. Pada keadaan tersebut, kenaikan harga koefisien difusi ion uranium hanya terjadi apabila kation dopan menempati celah-celah kosong pada kisi kristal UO_2 . Pada proses pertumbuhan butir, dengan adanya dopan akan menyebabkan pergerakan batas butir menjadi terhambat sehingga memudahkan terjadinya proses densifikasi. Pergerakan batas butir dari butir berukuran kecil akan menjadi lebih terhambat atau berhenti dibandingkan dengan pergerakan batas butir yang berukuran lebih besar yang akan terus tumbuh mengurangi ukuran butir yang kecil.

1.3. Pelepasan Gas Fisi

Dalam bahan bakar nuklir gas mulia xenon dan kripton ditimbulkan selama

pembelahan isotop uranium dan plutonium. Fraksi gas hasil belah (*fission products*) terlepas masuk ke volume bebas *rod* bahan bakar sehingga dapat meningkatkan tekanan internal *rod* bahan bakar. Gas tersebut dapat terlepas juga ke *gap* pelet–kelongsong bahan bakar yang dapat menurunkan konduktansi termal gas di dalam *gap* tersebut, selanjutnya mengakibatkan temperatur bahan bakar lebih tinggi dan menyebabkan peningkatan pelepasan gas hasil belah. Pelepasan gas fisi dipertimbangkan sebagai fenomena potensial batas umur (*life-limiting*) atau batas derajat bakar (*burnup-limiting*). Hal ini menyebabkan kosekuensi pada integritas kelongsong bahan bakar yang diakibatkan oleh tekanan internal *rod* bahan bakar berlebih.

Proses pelepasan gas fisi dalam bahan bakar UO_2 dibayangkan ada dua mekanisme yaitu pelepasan atermal (*athermal release*) dan pelepasan termal (*thermal release*). Pelepasan atermal disebabkan oleh *direct recoil* fragmen fisi di dalam *layer* sebanding dengan jarak fragmen fisi di dalam bahan bakar, kurang lebih sebesar $10 \mu m$. Selain itu pelepasan atermal disebabkan oleh mekanisme tumbukan (*knockout*) yaitu tumbukan elastik antara fragmen fisi atom gas hasil fisi di dalam bahan bakar. Pelepasan atermal utamanya tergantung pada laju fisi dan di dalam reaktor air ringan hampir linear dengan derajat bakar sampai 40 MWd/kgU . Secara spesifik laju jumlah pelepasan atom gas oleh proses atermal dapat ditulis $\frac{dN_r}{dt} = N_g \Phi$ dimana N_g adalah jumlah atom gas yang ditimbulkan per satuan volume bahan bakar, $N_g = \Phi t y$, y adalah limpahan fisi (*fission yield*), Φ adalah laju fisi dan t adalah waktu iradiasi. Fraksi pelepasan adalah $F_{ath} = \frac{N_r}{N_g} \sim \Phi t = Cu$ dimana u adalah derajat bakar bahan bakar [MWd/kgU] dan C adalah suatu konstanta proporsionalitas. Sebagai contoh, pelepasan gas hasil fisi atermal berdasarkan

evaluasi dari *rod* yang diiradiasi dengan derajat bakar rata-rata sekitar 40 GWd/kgU, diperoleh bahwa $C = 8,5 \times 10^{-8}$. Data terkini dari *rod* beroperasi pada *power* rendah mengindikasikan peningkatan pelepasan gas fisi atermal pada derajat bakar sekitar 45 MWd/kgU mengikuti pola eksponensial^[9].

Pelepasan termal sangat tergantung pada temperatur dan dikendalikan oleh proses termal dalam bahan bakar teriradiasi. Hal tersebut termasuk difusi gas ke batas butir, pertumbuhan butir, penjumlahan batas butir dan lepas. Secara spesifik di dalam reaktor ekperimental dikenakan pada bahan bakar dengan uji *ram* dengan level daya yang berbeda, diindikasikan bahwa di atas laju generasi panas linear (*linear heat generation rate/LHGR*) pelepasan produk gas fisi ditingkatkan oleh penyapuan batas butir (*grain boundary sweeping*). Peningkatan temperatur bahan bakar yang disebabkan oleh kenaikan LHGR memperbesar difusi volume gas hasil fisi ke batas butir bahan bakar UO₂ dan juga kemungkinan menyebabkan pertumbuhan butir yang menyapu gas masuk ke batas butir. Setelah batas butir jenuh dengan gas akhirnya lepas ke volume bebas *rod*.

Pada dekade terakhir telah dilakukan beberapa usaha untuk pengembangan dasar fisis dalam kerangka perhitungan pelepasan gas fisi dalam bahan bakar nuklir. Diperoleh data pelepasan difusi intragranular, pengendapan, pelarutan dan penjumlahan batas butir selanjutnya lepas. Parameter waktu meliputi koefisien difusi dan laju produksi gas juga telah dianalisis. Kondisi variasi waktu menghasilkan pelepasan gas intergranular dan efek pelarutan. Pelepasan gas fisi volatil meliputi fenomena pertumbuhan butir, pertumbuhan gelembung batas butir dan pelarutan.

Telah diukur secara ekperimental di dalam reaktor bahwa pelepasan gas fisi ⁸⁵Kr secara difusional dari suatu cuplikan dengan metode *surface to volume ratio*. Dengan metode pengukuran tersebut memungkinkan

pelepasan gas fisi dihitung dari bentuk bola melalui mekanisme migrasi atomik (*migrate atomically*) atau gelembung intragranular (*intergranular bubble*). Selanjutnya diperoleh koefisien difusi (D) sebagai berikut^[10]:

$$D = 7,8 \times 10^{-2} \exp \left(\frac{288kJmol^{-1}}{R \left(\frac{T}{10^3} \right)} \right) m^2 s^{-1} \quad (1)$$

Keterangan bahwa T adalah temperatur absolut (K) dan R adalah konstanta gas ($8,31Jmol^{-1}K^{-1}$). Pada temperatur rendah, laju difusi tergantung terhadap laju fisi daripada temperatur. Dengan demikian dapat diasumsikan bahwa pada kondisi normal reaktor *power* berpendingin air (*water cooled power reactor*) nilai koefisien difusi mencapai minimum pada temperatur 1273 K.

Perhitungan pelepasan gas fisi selama interval waktu (Δt) diperoleh dari gas yang timbul selama waktu tersebut dan yang tersimpan awal di dalam bahan bakar sebagai *old gas*. Sehingga gas baru yang timbul adalah^[10]

$$f = \left(4 \left(\frac{Dt}{a^2 \pi} \right)^{0.5} - 0.2 \frac{Dt}{a^2} \right) 10^{-4} \quad (2)$$

Untuk $\frac{\pi^2 Dt}{a^2} \geq 1$ maka

$$f = 1 - \frac{a^2}{15Dt} + \frac{6a^2}{\pi^4 Dt} \exp \left(\frac{-\pi^2 Dt}{a^2} \right) \quad (3)$$

Keterangan bahwa f adalah fraksi pelepasan gas fisi, D adalah koefisien difusi, a adalah jari butir (μm) dan t adalah interval waktu (s)

Jika bahan bakar mengandung gas awal dan pelepasan disebabkan periode waktu tambahan atau perubahan temperatur maka diasumsikan bahwa fraksi pelepasan gas pada awal waktu adalah f_0 yang disebabkan oleh kondisi operasi baru dengan waktu t_0 . Fraksi pelepasan gas dapat dihitung sebagai berikut^[10]

$$f_0 = 6 \left(\frac{Dt_0}{\pi a^2} \right)^{1/2} - 3Dt_0 \quad (4)$$

Persamaan di atas berlaku untuk $\frac{\pi^2 Dt_0}{\pi a^2} \leq 1$ atau jika $\frac{\pi^2 Dt_0}{\pi a^2} \geq 1$ maka

$$f_0 = 1 - \frac{6}{\pi^2} \exp\left(-\frac{\pi^2 Dt_0}{a^2}\right) \quad (5)$$

Pelepasan gas total adalah dalam waktu Δt adalah f_1 dengan $t_1 = t_0 + \Delta t$. Diperoleh korelasi temperatur dengan derajat bakar sebagai berikut^[11]

$$T_{link} = \frac{9800}{\ln(176 \cdot Bu)} + 273 \quad (6)$$

Untuk $Bu \leq 18,2 MWd/kgU$

$$T_{link} = 1434 - 12,85 B_u + 273 \quad (7)$$

Untuk $Bu \geq 18,2 MWd/kgU$

Keterangan bahwa T_{link}, K adalah temperatur *linkage* B_u adalah derajat bakar rerata, $\frac{MWd}{kgU}$. Dengan demikian pelepasan gas fisi dan besar butir dapat dikorelasikan.

II. TATA KERJA

2.1. Karakterisasi serbuk UO_2

Serbuk UO_2 sebelum ditimbang terlebih dahulu dilakukan karakterisasi. Karakterisasi yang dilakukan yaitu karakterisasi *bulk* dan *tap* densitas. Karakterisasi pada *bulk* densitas menggunakan seperangkat alat *tap* densitas sedangkan *bulk* densitas dengan menggunakan alat *Vollumeter Scoot*.

2.2. Pembuatan Pelet UO_2

1. Komposisi sampel yang akan dibuat dengan memvariasikan kandungan Cr_2O_3 sebagai berikut: 0,0%; 0,1%; 0,3%; 0,5%; 0,7%; 0,9% berat

2. Penimbangan dilakukan menggunakan neraca Sartorius dengan nilai skala terkecilnya 0,0001 gram.
3. Pecampuran serbuk dilakukan menggunakan mesin pecampur khusus (*mixing*) selama 15 menit.
4. Pengompakan dengan cara di press dan diperoleh densitas pelet mentah sekitar 50-55% TD.
5. Penyinteran pelet UO_2 akan dilakukan dengan menggunakan gas argon sebagai gas *inert* dari suhu kamar sampai suhu $600^\circ C$. setelah sampai suhu $600^\circ C$ selanjutnya diganti dengan gas H_2 sebagai reduktor sebesar $0,6 Nm^3/jam$ pada temperatur $1600-1700^\circ C$ dan waktu yang diperlukan untuk sintering selama 4 jam, dengan tekanan 10-27 mbar. Pada proses sintering akan diperoleh pelet sinter UO_2 yang mempunyai densitas teoritis sampai 95-99% TD.
6. Metalografi, proses metalografi diawali dengan tahap pemotongan sampel, kemudian *pemounting*, penggerindaan, lalu pemolesan, pencucian, pengetsaan sampel dan pemotretan dengan mikroskop optik.

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

Karakterisasi UO_2 serbuk meliputi *bulk densitas* dan *tap densitas*. Berdasarkan hasil yang diperoleh, yaitu *bulk densitas* sebesar $1,425 g/cm^3$. Sedangkan dengan menggunakan uji *tap densitas* yaitu $2,239 g/cm^3$. Menurut Petunjuk pelaksanaan kendali mutu fabrikasi batas penerimaan *bulk density* dan *tap density* UO_2 serbuk untuk pembuatan pelet adalah $1,5 \pm 0,2 g/cm^3$ dan $2 g/cm^3$, hal ini berarti pada hasil uji *Bulk density* dan *tap density* UO_2 serbuk yang dilakukan dapat memenuhi persyaratan kendali mutu fabrikasi.

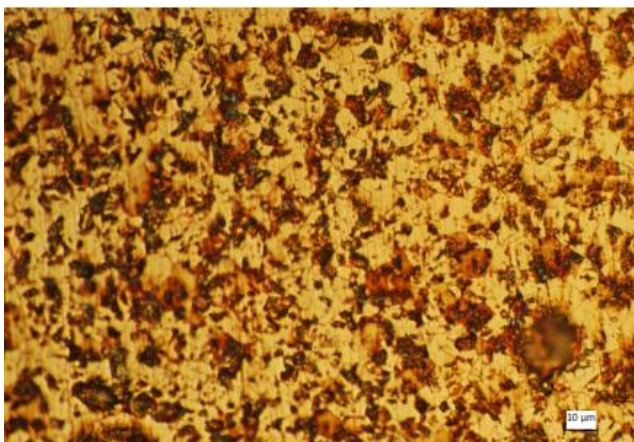
Berdasarkan hasil pengompakan UO_2 pelet mentah didapat densitas pelet mentah yaitu 5,84 sampai 6,09 g/cm^3 pada variasi penambahan 0%-0,9% berat Cr_2O_3 dan 53,25 dan 55,57 %TD. Perbedaan tersebut terjadi karena pada saat proses pengompakan serbuk tekanan *dies* (cetakan) yang berbeda dalam dua arah sehingga pengaruh tekanan akan terdistribusi serbuknya secara tidak merata. Tekanan yang dilakukan pada saat pengepresan UO_2 serbuk yaitu 3-4 MP. Tekanan dilakukan secara variatif sehingga menghasilkan densitas yang berbeda pula. Walaupun demikian, hasil nilai densitas teoritis tersebut sudah masuk ke dalam range yaitu 5 – 6 g/cm^3 atau 45-55 %TD.

Berdasarkan hasil pengukuran diperoleh densitas UO_2 pelet sinter yaitu 10,40 sampai 10,85 g/cm^3 dan 94,91-98,98

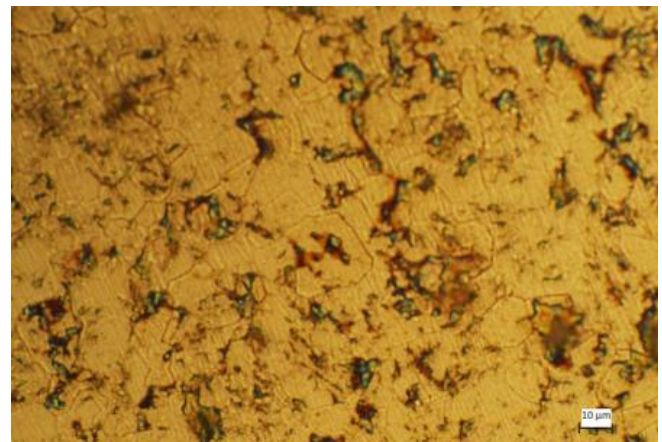
%TD UO_2 pelet sinter pada variasi penambahan 0%-0,9% berat Cr_2O_3 . Berdasarkan hasil perhitungan densitas tersebut, terbukti bahwa penambahan dopan Cr_2O_3 dapat menambah densitas pelet sinter UO_2 secara signifikan dari 0%-0,9%. Hasil densitas pelet sinter UO_2 selain dengan perhitungan manual dilakukan juga dengan menggunakan alat *ultrapycnometer*, hal ini dilakukan sebagai perbandingan densitas pelet sinter UO_2 untuk memperoleh hasil yang terbaik. Perbedaan densitas antara perhitungan manual dan secara otomatis terjadi karena ketelitian pengukuran dan keakuratan alat. Berdasarkan hasil penelitian, densitas yang diperoleh telah mencapai persyaratan standar densitas teoritis pelet sinter yaitu 10,65 g/cm^3 atau 97% TD. Hasil antara perhitungan manual dengan alat *ultrapycnometer* terdapat pada Tabel 1.

Tabel 1. Hasil perhitungan densitas pelet sinter UO_2 antara manual dengan *ultrapyc*.

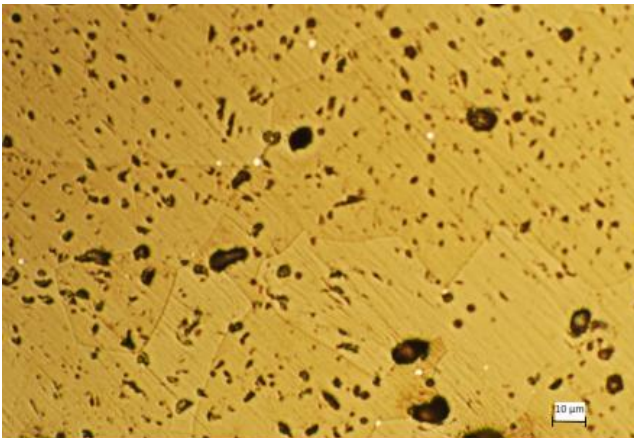
No	% wt dopan Cr_2O_3	Perhitungan Densitas pellet sinter	
		(g/cm ³)	
		Manual	<i>Ultrapycnometer</i>
1	0	10,4289	10,527
2	0,1	10,5352	10,6609
3	0,3	10,6258	10,6354
4	0,5	10,417	10,4294
5	0,7	10,7837	10,822
6	0,9	10,7475	10,8007



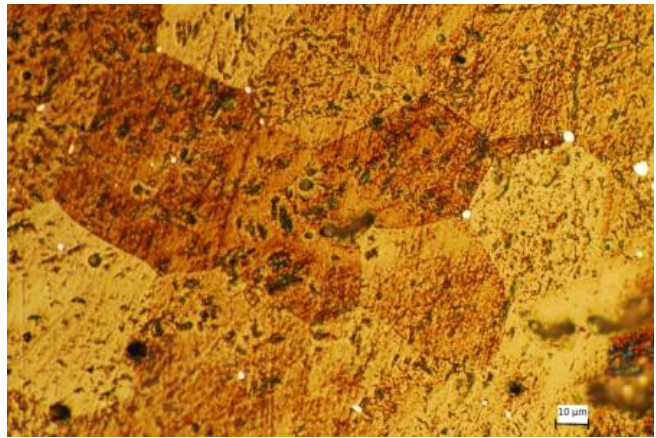
Gambar 1. UO_2 pelet 0% dopan Cr_2O_3 perbesaran 500 x



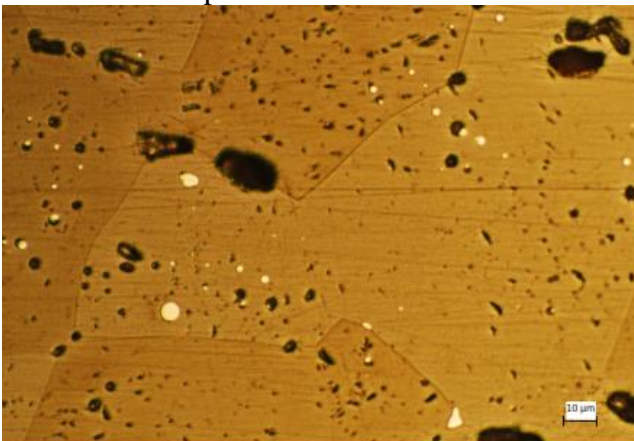
Gambar 2. UO_2 pelet 0,1% dopan Cr_2O_3 perbesaran 500 x



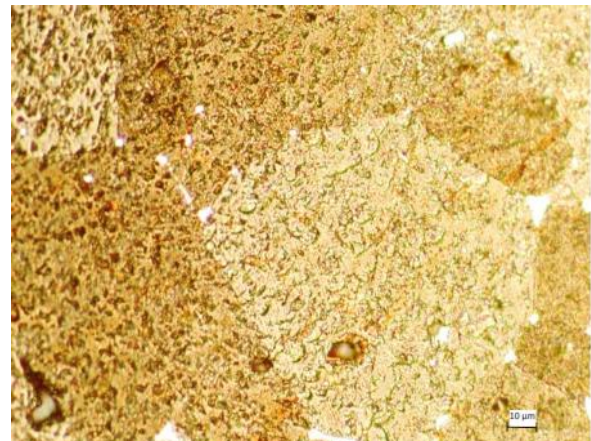
Gambar 3. UO_2 pelet 0,3% dopan Cr_2O_3
perbesaran 500 x



Gambar 4. UO_2 pelet 0,5% dopan Cr_2O_3
perbesaran 500 x



Gambar 5. UO_2 pelet 0,7% dopan Cr_2O_3
perbesaran 500 x



Gambar 6. UO_2 pelet 0,9% dopan Cr_2O_3
perbesaran 500 x

Dari hasil penelitian diketahui bahwa mampu sinter pada pelet UO_2 dipengaruhi oleh dopan atau zat aditif Cr_2O_3 . Hal ini dapat dilihat dengan perubahan densitas pada pelet sinter UO_2 yang semakin naik dan batas butir yang semakin besar pada struktur mikro pelet UO_2 dengan bertambahnya dopan Cr_2O_3 . Semakin besar penambahan dopan yang ditambahkan sangat menguntungkan dalam kaitannya dengan persyaratan kerja bahan bakar reaktor daya. Hal ini terjadi bukan hanya karena bertambahnya ukuran butir, yang dapat menyebabkan pengurangan pelepasan gas hasil fisi dari pelet UO_2 , akan tetapi juga bergesernya distribusi ukuran pori akan menyebabkan pembesaran probabilitas terperangkapnya kekosongan pori^[3].

Dari hasil pengukuran besarnya butir mikrostruktur pada pelet UO_2 bahwa penambahan dopan Cr_2O_3 mempengaruhi kelakuan densifikasi pelet UO_2 baik perubahan densitas maupun ukuran butir dan ukuran pori. Pada Gambar 1 sampai Gambar 6 menunjukkan bahwa semakin besar fraksi aditif yang ditambahkan ukuran butir semakin besar. Pada gambar tersebut terlihat bahwa ukuran butirnya semakin besar dan saling menghubungkan antara batas butir yang satu dengan batas butir lain. Tabel 2 menunjukkan bahwa semakin bertambahnya konsentrasi dopan Cr_2O_3 , ukuran butir pada pelet UO_2 menjadi semakin besar.

Pengamatan struktur mikro pada pelet UO_2 menunjukkan, bahwa setiap penambahan dopan Cr_2O_3 akan mempengaruhi proses

densifikasi pelet. Hal ini disebabkan oleh kation pada dopan Cr_2O_3 di dalam kisi kristal UO_2 akan menimbulkan ketidakseimbangan muatan di dalam kisi, sehingga terjadi kerusakan kisi. Adanya kerusakan kisi tersebut dapat menaikkan mobilitas ion $-ion$ yang berdifusi. Sementara itu konsentrasi mobilitas ion disebabkan oleh berkurangnya tahanan/resistansi yang ditimbulkan oleh dopan Cr_2O_3 . Bertambahnya mobilitas ion-ion penyusun UO_2 pada penambahan dopan Cr_2O_3 akan menyebabkan koefisien difusi ion menjadi lebih tinggi dibandingkan dengan tanpa dopan^[3].

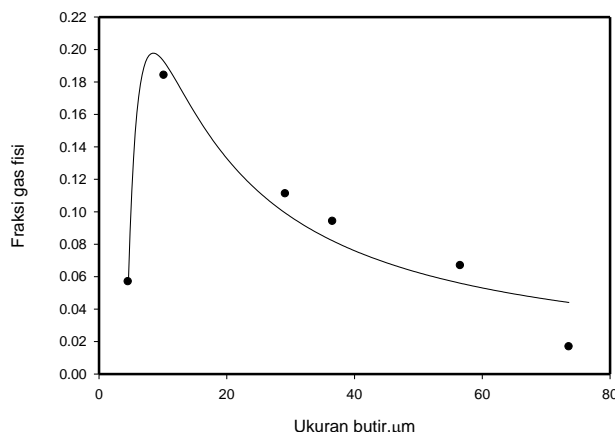
Penambahan dopan Cr_2O_3 ke dalam serbuk UO_2 , kation dopan (Cr) akan menggantikan posisi ion uranium atau menempati celah kosong didalam kisi. Pada suhu dimana terjadi reaksi larutan padat, difusivitas pada uranium bertambah besar. Hal ini terjadi karena valensi pada Cr_2O_3 mensubstitusi ion uranium di dalam kisi kristal UO_2 akan cukup efektif untuk mengubah muatan kisi menjadi lebih positif. Meskipun cacat didalam kisi adalah kekosongan oksigen yang terjadi secara berkesinambungan. Penambahan dopan Cr_2O_3 tetap akan mengurangi konsentrasi

kekosongan anion sehingga konsentrasi kation bertambah. Dengan bertambahnya jumlah kekosongan kation atau uranium di dalam kisi maka akan menaikkan koefisien difusinya dan memperbesar pertumbuhan butir yang terjadi. Bertambahnya difusivitas ion uranium dapat terjadi apabila kation Cr_2O_3 menempati intertisi. Hal ini akan sangat efektif untuk membuat muatan kisi lebih positif dan kekosongan uranium akan terbentuk sebagai hasil kompensasinya. Sebaliknya, kation Cr_2O_3 akan mensubstitusi ion uranium di dalam kekosongan oksigen akan terjadi.

Penambahan dopan meskipun dalam jumlah yang sedikit dapat mengurangi kandungan bahan fisil bahan bakar nuklir. Sebagai konsekuensinya dopan yang ditambahkan harus seminimum mungkin untuk menghasilkan perubahan struktur yang maksimal. Selain itu dengan bertambahnya ukuran butir pelet UO_2 dapat mempengaruhi sifat mekaniknya yaitu mengurangi terjadinya creep atau retak pada saat *burn up*^[11], sehingga pelepasan gas fisipun juga akan berkurang seperti ditunjukkan pada persamaan 1 dan 2.

Tabel 2 Hasil perhitungan ukuran butir pada pelet sinter UO_2 dengan perbesaran 500 kali

Penambahan Kosentrasi Dopan Cr_2O_3 (%)	Ukuran Butir Pelet (μm)
0	4,6
0,1	10,2
0,3	29,2
0,5	36,6
0,7	56,8
0,9	73,6



Gambar.7: Korelasi ukuran butir UO_2 dalam pelet versus fraksi gas fisi pada dan waktu temperatur 1600 K dan waktu 200 hari ($1,73 \times 10^7$ s)

Pelepasan gas fisi dihitung dari persamaan 1 dan 2 memakai temperatur 1600 K dan waktu 200 hari ($1,73 \times 10^7$ s). Hasil perhitungan dibuat grafik korelasi antara besar butir versus fraksi gas fisi yang ditunjukkan pada Gambar 7. Persamaan 2 merupakan persamaan parabolik sehingga dari Gambar 7 diperoleh kurva optimum pada ukuran butir 10,2 μm , selanjutnya menurun secara parabolik dengan besar butir. Dengan demikian jelas bahwa pelepasan gas fisi turun dengan meningkatnya besar butir UO_2 di dalam pelet dan pada besar butir tertentu pelepasan gas fisi mencapai optimum.

IV. KESIMPULAN

1. Penambahan dopan Cr_2O_3 ke dalam serbuk UO_2 dapat menaikkan densitas dan memperbesar ukuran butir pada pelet sintier UO_2 sehingga dapat menghasilkan pelet yang memenuhi kerja elemen bakar nuklir lebih tinggi yang menyebabkan umur pakai elemen bakar menjadi lebih lama.
2. Penambahan dopan Cr_2O_3 dapat menaikkan densitas dari 10,58-10,77 g/cm^3 pada variasi 0-0,9% berat dopan Cr_2O_3 , sedangkan ukuran butir diperoleh 4,6-73,6 μm .

3. Pelepasan gas fisi turun dengan meningkatnya besar butir UO_2 di dalam pelet dan pada besar butir tertentu pelepasan gas fisi mencapai optimum.

V. DAFTAR PUSTAKA

1. IAEA, (2004), Advanced fuel pellet materials and designs for water cooled reactors, proceedings of a technical committee meeting, 20-24 October 2003, Brussel.
2. Dooies, B.J., (2008), Enhancement Of Uranium Dioxide Thermal And Mechanical Properties By Oxide Dopants, A thesis-University of Florida
3. Desti, (2009), Proses Pembuatan Pelet Mentah Di Instalasi Elemen Bakar Eksperimen. Purwokerto, Kerja Praktek jurusan fisika UNSOED
4. Muchlis, (1984), Pengompakan, Pusat Elemen Bakar Nuklir dan Pusat Pengembangan Industri Nuklir, BATAN, Serpong
5. Muchlis, (1984), Teori Sintering, Pusat Elemen Bakar Nuklir dan Pusat Pengembangan Industri Nuklir, BATAN, Serpong
6. Sugondo, (2003), Analisis Pemadatan Pengkerutan Dan Pertumbuhan Butir Sintering UO_2 , Hasil-hasil Penelitian EBN, ISSN 0852-4777, Serpong

7. Voort, George F. Vander, (2004), ASM Handbook, Metallography and Microstructure, Metal Handbook, Vol 9, American Society For Metal, America
8. Notley, M.J.F and Hasti, I.J., (1980), A Microstructure-Dependent Model For Fission Product Gas Release And Swelling In UO_2 Fuel, Nuclear Engineering And Design, North-Holland Publishing Company, 163-175, Ontario
9. Forsberg, K., and Massih, A.R., (2001), Theory Of Gas Release During Grain Growth, Transaction, 16, 1-12, Washington DC
10. Jernkvist, L.O., and Massih, A.R., (2005), Model For Fuel Rod Behavior At High Burnup, SKI report, 41, ISSN 1104-1374, Sweden
11. Turnbull, J.A., and Beyer, C.E., (2010), Background and Derivation of ANS-5.4 Standard Fission Product Release Model, NUREG / CR-7003 PNNL - 18490, Richland