

PENGARUH VARIASI KONSENTRASI HIDROGEN TERHADAP DIFUSIVITAS TERMAL PADUAN $UTh_4Zr_{10}H_x$

Hadi Suwarno

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN, Serpong

ABSTRAK

PENGARUH VARIASI KONSENTRASI HIDROGEN TERHADAP DIFUSIVITAS TERMAL PADUAN $UTh_4Zr_{10}H_x$. Konduktivitas termal merupakan salah satu karakter yang penting dalam proses pengembangan bahan bakar reaktor nuklir, baik untuk reaktor daya maupun penelitian. Difusivitas paduan hidrida logam dalam bentuk logam paduan U-Th-Zr-hidrida dengan komposisi atom U:Th:Zr:H = 1:1:4:9,5; 1:2:6:15,3; dan 1:4:10:x dengan nilai x sebesar 20, 24 dan 27 yang diukur dari suhu 298 hingga 750 K telah dilakukan dengan tujuan untuk mengembangkan bahan bakar reaktor nuklir. Konsentrasi hidrogen di dalam logam paduan U-Th-Zr dapat diatur dengan mengendalikan tekanan dan suhu dalam pembentukan paduan hidrida logam. Hasil pengamatan mikrostruktur menggunakan alat *scanning electron micrograph* menunjukkan bahwa sebelum proses hidriding paduan terdiri dari fasa Th dan UZr dan setelah proses hidriding terbentuk fasa $ThZr_2H_x$ dan ZrH_y , sementara logam U terdistribusi secara heterogen di antara batas butir fasa $ThZr_2H_x$ dan ZrH_y . Hasil pengukuran difusivitas termal paduan hidrida menunjukkan bahwa naiknya kandungan Th dan Zr akan menurunkan difusivitas paduan hidrida. Untuk paduan UTh_4Zr_{10} -hidrida, $UTh_4Zr_{10}H_{20}$ memiliki sifat difusivitas termal yang relatif stabil terhadap kenaikan suhu. Konduktivitas termal paduan U-Th-Zr-hidrida lebih baik dibanding UO_2 yang biasa digunakan sebagai bahan bakar reaktor nuklir, sementara paduan $UTh_4Zr_{10}H_{20}$ memiliki konduktivitas termal yang paling stabil.

KATA KUNCI: Bahan bakar nuklir, Hidrida logam, Difusivitas termal

ABSTRACT

THE EFFECTS OF VARYING HYDROGEN CONCENTRATION ON THERMAL DIFFUSIVITY OF $UTh_4Zr_{10}H_x$ ALLOY. Thermal conductivity is one among the important characteristics in the development of nuclear fuels, both for power and research reactors. Diffusivity of the metal-hydride alloys in the form of U-Th-Zr-hydride with the atomic ratio of U:Th:Zr:H = 1:1:4:9.5; 1:2:6:15.3; and 1:4:10:x with the x values equal to 20, 24, and 27 measured at temperature of 298 to 750 K has been studied in order to develop nuclear reactor fuels. Hydrogen concentration in the U-Th-Zr compounds could be arranged by controlling the temperature and pressure during the formation of metal-hydride alloys. Microstructure analyses using scanning electron micrograph showed that before hydriding process the alloys consisted of Th and UZr phases and after hydriding $ThZr_2H_x$ and ZrH_y phases were formed, while the U metal was distributed heterogeneously among the $ThZr_2H_x$ and ZrH_y phases. Thermal diffusivity measurement results showed that the increase of Th and Zr contents in the alloys will reduce the thermal diffusivity of the alloys. In the case of UTh_4Zr_{10} -hydrides, the thermal diffusivity properties of $UTh_4Zr_{10}H_{20}$ compound was relatively stable at elevated temperature. Thermal conductivity of the U-Th-Zr alloys showed better properties compared to that of UO_2 pellets normally used in the nuclear power plant, while that of $UTh_4Zr_{10}H_{20}$ is the most stable.

FREE TERMS: Nuclear fuel, Metal hydride, Thermal diffusivity

I. PENDAHULUAN

Studi senyawa hidrida logam paduan U-Th-Zr dengan rasio komponen logam penyusun yang bervariasi telah dilakukan oleh Penulis dalam rangka pengembangan bahan bakar reaktor nuklir, baik untuk reaktor riset maupun reaktor pembangkit tenaga. Senyawa hidrida paduan U-Th-Zr-H merupakan pilihan yang menarik karena penelitian awal menunjukkan bahwa paduan ini memiliki karakter termal yang baik dan bisa digunakan sebagai bahan bakar nuklir, khususnya sebagai bahan bakar target, yaitu bahan bakar nuklir yang sekaligus berfungsi sebagai sarana transmudasi dari produk fisi berumur panjang^[1].

Penelitian bahan bakar U-Th-Zr-H dikembangkan atas dasar paduan U-Zr-H yang telah digunakan sebagai bahan bakar reaktor riset jenis TRIGA sejak tahun 1957 dan terbukti hingga sekarang merupakan bahan bakar yang andal dan aman. Karakteristik bahan bakar U-Zr-H dalam bentuk senyawa $U-ZrH_{1,6}$ sebagai bahan bakar reaktor TRIGA adalah sebagai berikut^[2,3,4,5]. Pertama, adanya hidrogen membuat bahan bakar jenis ini memiliki sifat koefisien reaktivitas negatif pada elevasi suhu reaktor sehingga bisa digunakan sebagai unsur elemen bakar padat-moderator yang kompak. Konsekuensinya, apabila reaktivitas reaktor meningkat secara mendadak, kenaikan suhu yang terjadi akan diatasi oleh hidrogen yang terkandung di dalam elemen bakar sehingga kerusakan elemen bakar dapat dihindari. Kedua, kapasitas panas $U-ZrH_{1,6}$ cukup besar sehingga ukuran geometri elemen bakar relatif kecil dan nilai fluks neutron termal yang tinggi karena konsentrasi hidrogen yang tinggi. Ketiga, seperti reaktor tipe MTR lainnya, TRIGA dirancang dengan sistem kolam terbuka dengan pendinginan konveksi alami maupun pendinginan paksaan, tergantung dari kapasitas reaktor. Keempat, adanya kemampuan pulsa yang sangat tinggi dengan insersi reaktivitas mencapai $3,2\% \delta k/k$ ($\$ 4,60$) dan tenaga puncak 6500 MW yang mampu menghasilkan fluks neutron $\sim 10^{15}$ n/cm² setiap pulsa.

Pembuatan paduan U-Th-Zr-H dengan komposisi rasio atom U:Th:Zr = 2:1:6, 1:1:4, 1:2:6 dan 1:4:10 telah dilakukan oleh Penulis dengan hasil yang menunjukkan bahwa senyawa hidrida paduan UTh_4Zr_{10} merupakan paduan dengan karakteristik yang paling baik, yaitu diukur berdasarkan sifat difusivitasnya^[1]. Difusivitas termal suatu bahan bakar nuklir merupakan salah satu karakter yang penting untuk diketahui karena dapat memberikan gambaran unjuk kerja panas bahan bakar nuklir ketika dipakai di reaktor nuklir.

Pengukuran sifat difusivitas paduan U-Th-Zr-H dengan konsentrasi H yang bervariasi dan difokuskan pada paduan $UTh_4Zr_{10}H_x$, dimana nilai x adalah 20, 24 dan 27, adalah topik penelitian Penulis dalam program pasca doctoral di Universitas Tokyo yang belum selesai karena keterbatasan waktu, dan akhirnya dilanjutkan oleh B. Tsuchiya, seorang peneliti dari Universitas Tohoku, Jepang. Hasil pengukuran disajikan dalam makalah ini.

II. TATA KERJA

2.1. Penyiapan Paduan U-Th-Zr dan Proses Hidriding

Paduan logam U-Th-Zr dibuat dengan melebur paduan U-Th-Zr yang memiliki komposisi atomik U:Th:Zr = 2:1:6, 1:1:4, 1:2:6 dan 1:4:10, yang ditulis sebagai U_2ThZr_6 , $UThZr_4$, UTh_2Zr_6 dan UTh_4Zr_{10} , di dalam tungku lebur. Untuk menghindari terjadinya oksidasi selama peleburan, di dalam tungku lebur diletakkan logam titanium murni yang berfungsi menyerap oksigen yang tersisa di dalam tungku.

Untuk memperoleh paduan U-Th-Zr-H, paduan hasil leburan mengalami proses hidriding pada suhu 1173 K dalam sistem hidriding dengan hasil hidriding berupa paduan hidrida dengan komposisi U:Th:Zr:H = 2:1;6:13,5; 1:1:4:9,5; 1:2:6:15,2 dan 1:4:10:27, yang

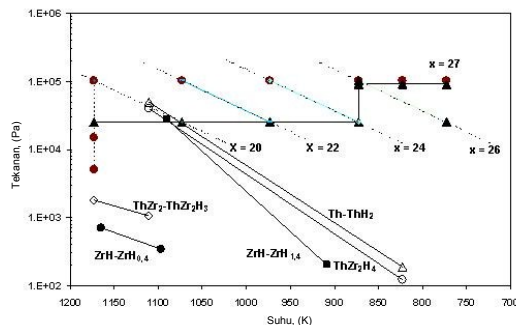
ditulis sebagai $U_2ThZr_6H_{13,5}$; $UThZr_4H_{9,5}$; $UTh_2Zr_6H_{15,2}$ dan $UTh_4Zr_{10}H_{27}$. Sedangkan hasil hidriding dengan komposisi U:Th:Zr:H = 1:4:10:20 dan 1:4:10:24, yang ditulis sebagai $UTh_4Zr_{10}H_{20}$ dan $UTh_4Zr_{10}H_{24}$, diperoleh dengan cara mengatur suhu dan tekanan hidrogen di dalam sistem sedemikian rupa sehingga kandungan H sesuai dengan hasil yang diinginkan dapat tercapai. Gambar 1 menampilkan proses hidriding yang dilakukan pada percobaan ini. Dari gambar tampak bahwa untuk mendapatkan konsentrasi $UTh_4Zr_{10}H_x$ dengan nilai $x = 20$ suhu diatur pada 1173 K dengan tekanan 102 kPa. Ketika suhu diturunkan menjadi 973 K serapan hidrogen menjadi $x = 24$, dan pada suhu 773 K menjadi $x = 27$. Nilai x yang sama juga dapat diperoleh dengan memvariasi tekanan dan suhu.

2.2. Analisis Difraksi Sinar-X

Analisis dengan difraksi sinar-X (*XRD*) yang dilakukan pada suhu kamar dimaksudkan untuk mengetahui struktur paduan sebelum dan sesudah proses hidriding. Hasil analisis menunjukkan bahwa paduan U-Th-Zr terdiri dari senyawa UZr_2 dan logam Th, sedangkan paduan U-Th-Zr-H terdiri dari senyawa $ThZr_2H_{7+x}$, ZrH_{2-y} dan logam U. Rincian analisis *XRD* akan disampaikan pada pembahasan.

2.3. Pengamatan Mikrostruktur

Paduan hidrida yang diperoleh kemudian dipoles dengan mesin poles sampai diperoleh dimensi akhir spesimen berbentuk balok dengan ukuran tinggi sekitar 1,6 – 2,9 mm dan 4 – 6 mm untuk panjang dan lebarnya. Pemolesan dilakukan menggunakan kertas poles dengan tingkat kekasaran bervariasi antara 400 sampai 2000 *grain* dan pemolesan akhir dilakukan dengan serbuk Al_2O_3 dengan tingkat kehalusan 2500 *grain*.



Gambar 1. Proses hidriding pada suhu dan tekanan bervariasi yang menghasilkan konsentrasi H di dalam paduan $UTh_4Zr_{10}H_x$ bervariasi

2.4. Pengukuran Difusivitas Panas

Pengukuran difusivitas panas untuk paduan $UThZr_4H_{9,5}$ dan $UTh_2Zr_6H_{15,5}$ dilakukan dengan menggunakan *Laser Flash Thermal Constant Analyzer* di *Japan Atomic Energy Agency (JAEA)*, sedangkan untuk paduan $UTh_4Zr_{10}H_x$ dengan nilai $x = 20, 24$ dan 27 dilakukan dengan alat sejenis yang berada di *Institute for Materials Research, Oarai Branch, Tohoku University*.

2.5. Analisis konduktivitas panas

Konduktivitas panas dihitung dengan menggunakan persamaan:

$$k = \alpha \rho C_p \quad (1)$$

dimana k = konduktivitas panas (W/cm K)
 ρ = densitas spesimen (g/cc)
 C_p = kapasitas panas spesimen (kal/mol K)

Mengingat data C_p spesimen tidak ada dan pengukuran juga tidak dilakukan, nilai C_p spesimen diperoleh dengan perhitungan teoritis berdasarkan komposisinya..

Untuk paduan U-Th-Zr:

$$C_{p_{camp}} = aC_{p_{UZr_2}} + bC_{p_{Th}} \quad (2)$$

Untuk paduan U-Th-Zr-H:

$$C_{p_{camp}} = aC_{p_{UZrH_2}} + bC_{p_{ThH_2}} \quad (3)$$

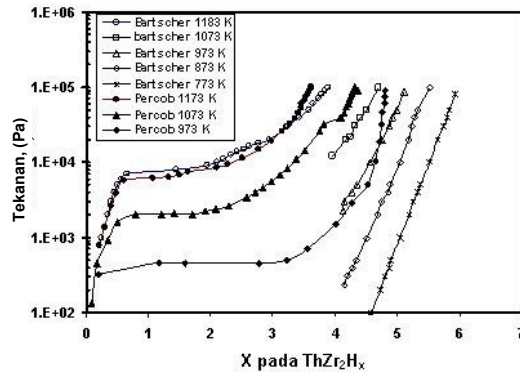
Persamaan (2) dan (3) adalah pendekatan yang paling memungkinkan karena tidak dijumpai data C_p senyawa $ThZr_2H_{7\pm x}$.

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

3.1. Pengaturan Konsentrasi H di dalam Paduan

Pengaturan konsentrasi hidrogen di dalam paduan dilakukan dengan mengatur suhu dan tekanan hidrogen di dalam sistem hidriding. Untuk mendapatkan konsentrasi hidrogen pada paduan $UTh_4Zr_{10}H_{20}$, sebagai contoh, langkah awal yang dilakukan adalah dengan memanaskan sistem pada suhu 1173 K dengan tekanan sistem 5 kPa seperti ditunjukkan pada Gambar 1. Pada tekanan ini tidak akan terbentuk senyawa biner sebagai ThH_x dan ZrH_x sedangkan senyawa terner $ThZr_2H_x$ akan tumbuh dengan baik. Setelah tekanan kesetimbangan pada 5 kPa tercapai, tekanan dinaikkan secara bertahap hingga 102 kPa dan sistem dibiarkan dalam kesetimbangan. Konsentrasi hidrogen dalam paduan pada akhir kesetimbangan adalah $UTh_4Zr_{10}H_{20}$. Suhu kemudian diturunkan menjadi 1073 K dan kesetimbangan baru yang terbentuk adalah $UTh_4Zr_{10}H_{22}$. Bila suhu diturunkan lagi menjadi 973 K, maka kesetimbangan baru yang terbentuk adalah $UTh_4Zr_{10}H_{24}$, yang akhirnya menjadi $UTh_4Zr_{10}H_{27}$ pada suhu 773 K. Pada percobaan ini dipilih konsentrasi hidrogen di dalam paduan $UTh_4Zr_{10}H_x$ pada nilai $x = 20, 24$ dan 27 .

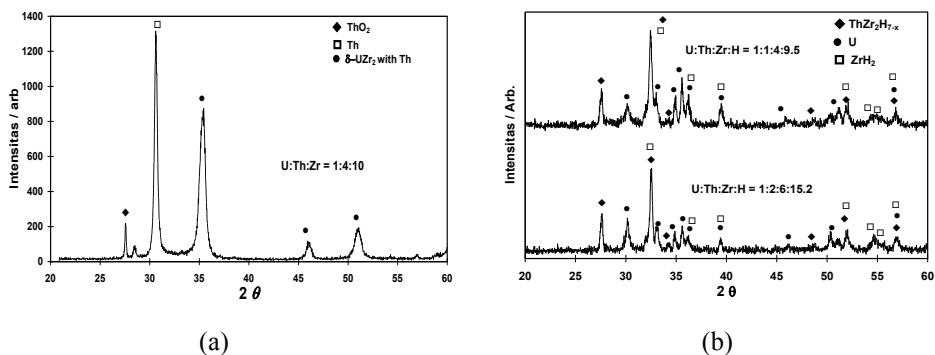
Gambar 2 menampilkan diagram $P-C-T$ hasil percobaan yang menunjukkan kesetimbangan UTh_4Zr_{10} -hidrida pada suhu bervariasi yang ditampilkan bersama dengan paduan $ThZr_2$ -hidrida tanpa uranium yang diperoleh Bartscher^[6]. Dari gambar tampak bahwa hanya ada sedikit pengaruh keberadaan logam U dan kelebihan Zr terhadap pembentukan senyawa $ThZr_2$ -hidrida.



Gambar 2. Diagram p - c - T paduan $UTh_4Zr_{10}H_x$ hasil percobaan dan ditampilkan bersama dengan paduan $ThZr_2H_x$ hasil percobaan Bartscher

3.2. Analisis XRD

Pengukuran XRD dilakukan pada suhu kamar, baik untuk paduan U-Th-Zr maupun U-Th-Zr-H. Sebelum proses hidriding, hasil leburan terdiri dari fasa Th, $\delta-UZr_2$ dan dijumpai pula puncak-puncak yang diidentifikasi sebagai ThO_2 . Adanya oksida dicurigai akibat proses evakuasi yang tidak sempurna sebelum peleburan berlangsung. Gambar 3(a) adalah profil XRD paduan U-Th-Zr sebelum proses hidriding, sedangkan setelah proses hidriding hasil analisis XRD ditampilkan pada Gambar 3(b). Dari hasil analisis diketahui bahwa $UTh_4Zr_{10}H_x$, dimana $x = 20, 24$ dan 27 , memiliki struktur fasa $\alpha-U$, fasa $\delta-ZrH_x$ ($1,5 < x < 1,7$), fasa $\varepsilon-ZrH_x$ ($1,7 < x < 2,0$) dan $ThZr_2H_x$ ($4,0 < x < 6,3$). Dicurigai pula ada sejumlah kecil kontaminan yang diidentifikasi sebagai ThO_2 , ZrO_2 , residu Th dan Th hidrida pada spesimen UTh_4Zr_{10} -hidrida. Analisis lanjutan yang dilakukan oleh Tsuchiya menunjukkan bahwa $UTh_4Zr_{10}H_{20}$, $UTh_4Zr_{10}H_{24}$ dan $UTh_4Zr_{10}H_{27}$ terdiri dari dua fasa sebagai $ThZr_2H_{4,42}$ dan $\varepsilon-ZrH_{1,74}$, $ThZr_2H_{5,59}$ dan $\varepsilon-ZrH_{1,84}$, dan $ThZr_2H_{5,69}$ dan $\varepsilon-ZrH_{1,88}$. Ekspansi kisi $ThZr_2H_x$ dan $\varepsilon-ZrH_x$, yang merupakan kubus *Friauf-Laves* dan berstruktur *fcc* (tetragonal pengarah sisi) mempengaruhi penurunan densitas ρ paduan $UTh_4Zr_{10}H_x$ dengan bertambahnya nilai x seperti ditunjukkan oleh Gambar 3.



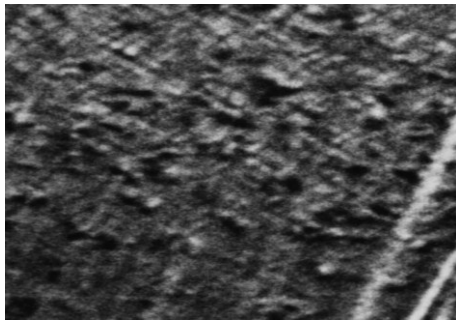
Gambar 3. Hasil analisis XRD paduan U-Th-Zr sebelum dan setelah proses hidriding. (a) U-Th-Zr dan (b) U-Th-Zr-H

3.3. Analisis Mikrostruktur

Pengamatan SEM yang dilakukan terhadap spesimen UTh_4Zr_{10} -hidrida pada suhu kamar berupa analisis *BEI* (*Backscattered Electron Image*) telah dilakukan oleh Penulis dan hasilnya menunjukkan bahwa U-Th-Zr-hidrida terdiri dari fasa U, $ThZr_2H_{7\pm x}$ dan ZrH_{2-y} . Fasa U dan ZrH_x yang berukuran $1 \mu m$ terdispersi secara merata di antara fasa $ThZr_2H_{7\pm x}$ ^[7].

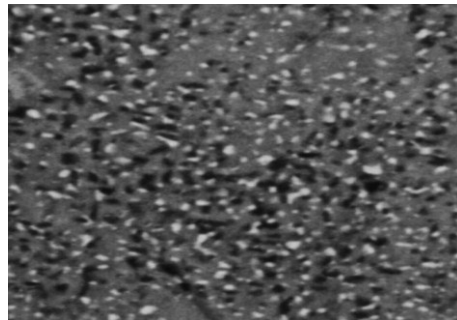
Sesuai dengan hasil analisis pendar sinar-X, hasil peleburan terdiri dari fasa stabil $\delta-UZr_2$ dan Th bebas. Tidak ada Th yang bersenyawa dengan Zr. Hal ini sesuai dengan kaidah fasa untuk sistem Th-Zr^[8], yaitu hanya sedikit kelarutan Zr di dalam Th dan sebaliknya, dan itupun terjadi pada suhu yang tinggi. Gambar 4(a) adalah paduan U:Th:Zr = 1:2:6 dengan pembesaran 5000 \times . Disini terlihat bahwa hanya ada 2 fasa utama yang dengan menggunakan *Energy Dispersive X-ray Scanning* (EDS) dapat diidentifikasi sebagai $\delta-UZr_2$ (*major component*) yang ditunjukkan oleh warna gelap dan Th bebas yang ditunjukkan oleh warna terang. Hal ini dapat dilihat lebih jelas pada Gambar 4(c) yakni paduan U:Th:Zr = 2:1:6 dengan pembesaran 10 000 \times , dimana Th membentuk seperti jaringan (warna terang) di antara fasa $\delta-UZr_2$ (warna gelap).

Setelah proses hidriding Th dan Zr membentuk senyawa stabil yang diidentifikasi sebagai senyawa $ThZr_2H_{7-x}$ (warna kelabu) dan kelebihan Zr di dalam paduan membentuk ZrH_{2-y} (warna gelap). Sementara itu uranium, yang ditunjukkan oleh warna terang, memisah dari senyawa stabil $\delta-UZr_2$ dan terdistribusi secara homogen sebagai logam bebas di antara partikel $ThZr_2H_{7-x}$ dan ZrH_{2-y} . Ukuran butir partikel uranium di dalam logam paduan tergantung dari konsentrasi U dalam U-Th-Zr. Semakin besar kandungan Unya, semakin besar ukuran partikel U di dalam paduan U-Th-Zr-H. Perbedaan butiran partikel U ini dapat dilihat dengan jelas pada Gambar 4(b) dan 4(d).



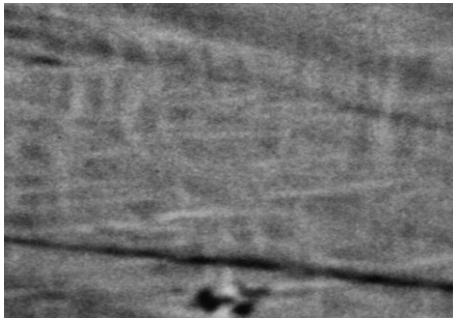
(a)

U:Th:Zr = 1:2:6, Pembesaran 5000 \times



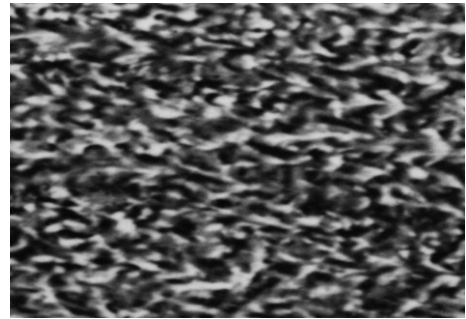
(b)

U:Th:Zr:H = 1:2:6:15.2, Pembesaran 5000 \times



(c)

U:Th:Zr = 2:1:6, Pembesaran 10000×



(d)

U:Th:Zr:H = 2:1:6:13,3, Pembesaran 10000×

Gambar 4. Logam paduan U-Th-Zr sebelum hidriding terdiri dari fasa UZr (gelap) dan Th (terang) untuk UTh_2Zr_6 (a) dan U_2ThZr_6 (c), dan terdiri dari fasa $ThZr_2H_{7-x}$ (suram), ZrH_{2-y} (gelap) dan U (terang) untuk $UTh_2Zr_6H_{15,2}$ (b) dan $U_2ThZr_6H_{13,3}$ (d)

3.4. Analisis Difusivitas Termal

Gambar 5 menampilkan hubungan perubahan sifat difusivitas termal UTh_4Zr_{10} terhadap konsentrasi hidrogen pada elevasi suhu. Dari grafik terlihat bahwa semakin tinggi suhu akan menurunkan sifat difusivitas termal paduan, kecuali untuk paduan $UTh_4Zr_{10}H_{20}$ yang memperlihatkan kondisi difusivitas yang stabil. Dari Gambar 5 ditunjukkan pula bahwa semakin tinggi kandungan Th di dalam paduan juga akan menurunkan sifat difusi bahan. Dengan melihat grafik dapat diketahui bahwa sifat difusivitas bahan berbanding lurus dengan konsentrasi hidrogen dan suhu, kecuali paduan $UTh_4Zr_{10}H_{20}$ yang memiliki kecenderungan sedikit berbeda. Sesuai diagram $P-C-T$ yang ditampilkan pada Gambar 2, tampak bahwa penurunan konsentrasi hidrogen di dalam paduan disebabkan oleh lepasnya hidrogen dari paduan, yaitu pada suhu tinggi energi yang diserap paduan cukup untuk menggetarkan atom hidrogen yang berada pada bidang di antara batas butir dan cukup bagi hidrogen untuk melepaskan diri dan keluar dari paduan. Hal ini akan menurunkan sifat difusivitas bahan karena adanya ruang kosong yang ditinggalkan hidrogen yang akan menyebabkan naiknya sifat porositas bahan. Pengecualian terjadi pada paduan $UTh_4Zr_{10}H_{20}$, yaitu pada kondisi kandungan hidrogen terendah pada tekanan 102 kPa, yang tidak terpengaruh dengan naiknya suhu. Meskipun harus dibuktikan, peristiwa ini diperkirakan karena pada paduan tersebut semua hidrogen terikat dengan paduan dalam bentuk tetrahedral maupun oktahedral dan tidak ada yang berada bebas sebagai molekul H_2 yang terikat di antara batas butir. Hal ini menjadi pertimbangan positif apabila bahan ini dipromosikan sebagai bahan bakar baru.

Dari Gambar 5 tampak bahwa difusivitas termal $UTh_4Zr_{10}H_{24}$ dan $UTh_4Zr_{10}H_{27}$ berkurang dengan kenaikan suhu, sedangkan untuk $UTh_4Zr_{10}H_{20}$ relatif stabil bahkan sedikit bertambah dengan kenaikan suhu secara bertahap hingga 773 K. Hal ini menarik karena data ketiga spesimen saling memotong pada suhu 600 K. Untuk menjelaskan hal ini kontribusi setiap fasa (logam U, Th-Zr-H dan Zr-H) terhadap difusivitas termal dapat dipahami sebagai berikut. Seperti dijelaskan pada bab analisis XRD dan SEM dan pustaka^[1] bahwa $UTh_4Zr_{10}H_{20}$, sebagai contoh, terdiri dari tiga fasa yaitu fasa $\alpha-U$, fasa $ThZr_2H_{4,17}$ dan fasa

ϵ -ZrH_{1,74}, sehingga bila dianggap bahwa difusivitas termal $\alpha_{\text{UTh}_4\text{Zr}_{10}\text{H}_x}$ dapat dinyatakan menurut kaidah hukum campuran, diperoleh^[8]:

$$\alpha_{\text{UTh}_4\text{Zr}_{10}\text{H}_x} = V_U \alpha_U + V_{\text{ThZr}_2\text{H}_x} \alpha_{\text{ThZr}_2\text{H}_x} + V_{\text{ZrH}_x} \alpha_{\text{ZrH}_x} \quad (4)$$

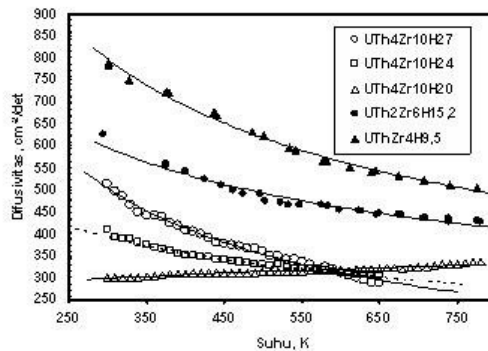
dimana α_i = difusivitas termal konstituen fasa i
 V_i = fraksi volume konstituen fasa i

Untuk paduan UTh₄Zr₁₀H₂₀ dengan fraksi volume masing-masing fasa α -U = 4,5%; fasa ThZr₂H_{4,17} = 83,4% dan fasa ZrH_{1,74} = 12,1%, maka hasilnya dapat ditunjukkan pada Gambar 5. Tsuchiya et al. telah meneliti bahwa data difusivitas termal secara eksperimen untuk ϵ -ZrH_x bertambah dengan naiknya suhu. Difusivitas termal α -U, yang telah dipublikasikan pada pustaka [9], relatif konstan pada suhu 773 K. Difusivitas termal ThZr₂H_{4,17}, yang diperoleh dengan mengekstraksi α -U dan ϵ -ZrH_{1,74} dari total paduan, bertambah dengan naiknya suhu. Karena itu, difusivitas termal UTh₄Zr₁₀-hidrida pada suhu rendah (<600 K) pada Gambar 5 tergantung dari fasa ϵ -ZrH_x yang diperkirakan sebanding dengan suhu. Untuk mengklarifikasi bukti pada suhu tinggi, diperlukan penelitian fasa tunggal ThZr₂-hidrida untuk mengukur difusivitas termalnya.

Berdasar penjelasan di atas, ketergantungan suhu atas difusivitas termal α (cm²/det) untuk beberapa komposisi x dapat diekspresikan dengan persamaan sederhana seperti kurva pada Gambar 5:

$$\alpha = \frac{1,11x - 21,2}{T} + 2,29 \times 10^{-2} + (-3,18 \times 10^{-6}x + 7,59 \times 10^{-5})T \quad (5)$$

dimana T = suhu (K)



Gambar 5. Difusivitas paduan UThZr₄H_{9,5}, UTh₂Zr₆H_{15,2} dan UTh₄Zr₁₀H_{20,24,27} pada rentang suhu 298 – 800 K.

3.5. Evaluasi Konduktivitas Termal

Dengan menggunakan persamaan (1) dan (3), konduktivitas termal $k_{\text{UTh}_4\text{Zr}_{10}\text{H}_x}$ dapat dihitung dari hubungan $k = \alpha C_p \rho$, dimana C_p adalah panas spesifik UTh₄Zr₁₀-hidrida. Meskipun C_p belum diukur, namun karena paduan telah diketahui terdiri dari fasa α -U, ThZr₂H_x dan ϵ -ZrH_x, maka hal ini dapat diatasi dengan menggunakan persamaan berikut:

$$C_p^{UTh_4Zr_{10}H_x} = W_U C_p^U + W_{ThZr_2H_x} C_p^{ThZr_2H_x} + W_{ZrH_x} C_p^{ZrH_x} \quad (6)$$

dimana C_p^i = fraksi panas spesifik konstituen fasa i
 W_i = fraksi berat konstituen fasa i

Nilai C_p^U dan $C_p^{ZrH_x}$ telah dilaporkan sebagai fungsi suhu dan komposisi (ZrH_x) [5]. Karena $C_p^{ThZr_2H_x}$ belum diukur, maka dianggap sebagai:

$$C_p^{ThZr_2H_x} = W_{ThH_2} C_p^{ThH_2} + W_{ZrH_x} C_p^{ZrH_x} \quad (7)$$

Nilai $C_p^{ThH_2}$ telah dilaporkan [9]. Akhirnya, oleh Tsuchiya et al. persamaan (6) dapat diekspresikan menurut persamaan berikut untuk komposisi x , seperti ditampilkan pada Gambar 7, untuk rentang suhu 298 – 750 K [10]:

$$C_p = -0,110 + 6,87 \times 10^{-4} T + 6,36 \times 10^{-3} x \quad (8)$$

Untuk menghitung k , variasi ρ terhadap suhu tidak diperhitungkan karena pertambahan volume akibat ekspansi termal <1,0% pada kenaikan suhu hingga 773 K [11].

Jumlah konsentrasi hidrogen di dalam paduan UTh_4Zr_{10} -hidrida dapat juga ditentukan oleh perubahan berat spesimen setelah proses hidriding yaitu dengan mengukur secara celup, selain berdasarkan perubahan tekanan kesetimbangan spesimen di dalam sistem yang telah dijelaskan di atas. Densitas ρ terhadap rasio H/UTh_4Zr_{10} ditentukan dari berat dan volume terukur yang oleh Penulis dirumuskan dalam persamaan:

$$\rho = 8,3971 - 0,4246 x \quad (9)$$

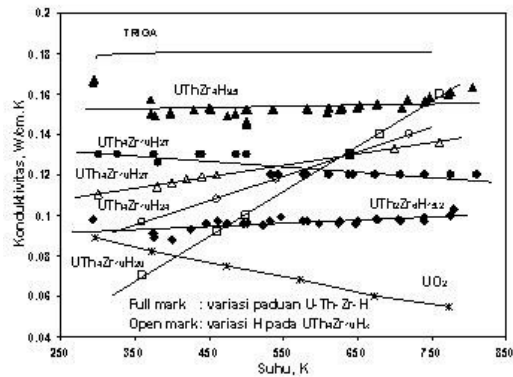
yang berbeda dengan hasil pengukuran yang diperoleh oleh Tsuchiya yang dinyatakan dengan rumus [12]:

$$\rho = 8,40 - 2,99 \times 10^{-2} x \quad (10)$$

Dari kedua hasil pengukuran tampak dengan jelas bahwa semakin tinggi konsentrasi hidrogen di dalam paduan akan menurunkan densitasnya. Hal ini disebabkan adanya hidrogen yang mengakibatkan paduan menjadi tidak masif. Dibandingkan dengan bahan bakar oksida, $\rho_{UO_2} = 10,96$ g/ml, maupun logam uranium, $\rho_U = 19,07$ g/ml, tampak bahwa nilai ρ untuk UTh_4Zr_{10} -hidrida lebih rendah.

Gambar 6 menampilkan konduktivitas termal paduan U-Th-Zr-H dengan kandungan logam Th, Zr dan H yang bervariasi hasil perhitungan oleh Penulis dan hasil perhitungan yang dilakukan oleh Tsuchiya [12] untuk $UTh_4Zr_{10}H_{20}$, $UTh_4Zr_{10}H_{24}$ dan $UTh_4Zr_{10}H_{27}$, bertanda (Tsu), yang hanya berlaku untuk rentang suhu 298 – 750 K, dihitung menurut persamaan (1) dan (3). Dari Gambar 6 tampak bahwa untuk suhu <800 K ada persamaan rentang nilai konduktivitas paduan untuk konsentrasi Th, Zr dan H yang bervariasi, yaitu antara 0,1 – 0,17 W/cm.K. Nilai ini setara dengan nilai konduktivitas termal $\alpha_{UZrH1,6}$ sebesar 0,18 W/cm.K yang digunakan untuk perhitungan bahan bakar reaktor TRIGA [4,5]. Namun, nilai ini lebih besar dibanding dengan konduktivitas UO_2 yang digunakan untuk reaktor pembangkit listrik tenaga nuklir [13].

Perbedaan yang muncul pada hasil perhitungan Penulis dan Tsuchiya disebabkan karena peralatan yang digunakan berbeda. Namun demikian, secara umum rentang perbedaan tidak terlalu signifikan dan masih dalam rentang konduktivitas bahan bakar TRIGA. Hal ini menunjukkan bahwa konduktivitas paduan U-Th-Zr hidrida sangat dipengaruhi oleh konsentrasi logam Zr.



Gambar 6. Konduktivitas termal UTh_4Zr_{10} hidrida yang diturunkan dari persamaan (8). Ditampilkan pula harga k_{UO_2} dan TRIGA sebagai pembandingan

IV. KESIMPULAN

Pengukuran difusivitas termal logam paduan U-Th-Zr-hidrida telah dilakukan untuk komposisi atomik logam penyusun yang bervariasi serta variasi konsentrasi hidrogen untuk paduan UTh_4Zr_{10} -hidrida. Untuk tekanan operasi 102 kPa, konsentrasi hidrogen paduan $UTh_4Zr_{10}H_x$ dengan nilai $x = 20, 24$ dan 27 diperoleh pada suhu 1173 K, 973 K dan 773 K. Dari diagram $P-C-T$ dibuktikan adanya U, dimana U tidak bereaksi dengan Zr maupun H dalam paduan U-Th-Zr-H, sedikit mempengaruhi kesetimbangan fasa paduan Th-Zr-H. Densitas paduan UTh_4Zr_{10} -hidrida akan menurun dengan naiknya konsentrasi H di dalam paduan, dengan variasi dari 8,4 – 7,55 g/ml. Mikrostruktur paduan menunjukkan bahwa sebelum proses hidriding, paduan terdiri dari fasa UZr dan Th, dan setelah proses hidriding logam U akan terdistribusi secara merata di antara fasa $ThZr_2H_x$ dan ZrH_y . Difusivitas termal paduan U-Th-Zr-H dengan komposisi atom U:Th:Zr yang bervariasi menunjukkan bahwa semakin tinggi kandungan Th dan Zr akan menurunkan difusivitas paduan, namun konduktivitas paduan masih dalam rentang konduktivitas bahan bakar nuklir jenis $UZrH_{1,6}$ untuk reaktor TRIGA, sekitar 0,18 W/cm.K. Difusivitas termal paduan U-Th-Zr-hidrida lebih baik dibanding UO_2 yang digunakan untuk bahan bakar reaktor pembangkit listrik tenaga nuklir. Paduan $UTh_4Zr_{10}H_{20}$ memiliki kestabilan konduktivitas lebih baik dibanding komposisi lainnya dan dapat dipertimbangkan untuk dipromosikan sebagai bahan bakar nuklir baru.

V. UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terima kasih disampaikan kepada Prof. Michio Yamawaki yang telah mengundang Penulis untuk melakukan penelitian di *Department of Quantum Engineering and Systems Science*, Universitas Tokyo, Jepang. Ucapan terima kasih juga dialamatkan kepada Saudara B. Tsuchiya dari *Institute for Materials Research*, Universitas Tohoku, Jepang yang melanjutkan penelitian ini.

VI. DAFTAR PUSTAKA

1. SUWARNO, H., "Difusivitas dan Konduktivitas Panas Logam Paduan U-Th-Zr dan U-Th-Zr-H", Prosiding Presentasi Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir IV, PEBN-BATAN, 1-2 Desember, 1998, hal.145.
2. SIMNAD, M.T, et al., Nuclear Technology, 28, 1976, p.31.
3. SIMNAD, M.T, and Chesworth, R., "TRIGA Research Reactor Experimental Instrumentation", Proc. Symp. Research Reactor Instrumentation, Teheran, Iran, IAEA, 1972, p.152.
4. SIMNAD, M.T., "The U-ZrH_x Alloy: Its Properties and Use in TRIGA Fuel", General Dynamics, General Atomic Division, Report GA-A16029, August, 1980, p.52.
5. SIMNAD, M.T., Nucl. Eng. Des., 64, 1981, p.403.
6. BARTSCHER, W., and REBIZANT, J., J. of Less-Common Metals, 136, 1988, p.385.
7. SUWARNO, H., "Pembuatan dan Analisis Logam Hidrida Paduan U-Th-Zr untuk Pengembangan Bahan Bakar Baru", Prosiding Seminar Nasional Hamburan Neutron dan Sinar-X ke-3, P3IB-BATAN, Serpong, 28 Juni, 2000, hal.140.
8. KOVACIK, J., Scripta Mater., 39, 1988, p.153.
9. FLOTOW, H.E, HASCHKE, J.M., and YAMAGUCHI, S., "The Chemical Thermodynamics of Actinide Elements and Compounds", Part 9: The Actinide Hydrides, IAEA, Vienna, 1984, p.11.
10. TSUCHIYA, B., JINTAO, H., KONASHI, K., SAIKI, W., ONOUE, T., and YAMAWAKI, M., J. Alloys and Comp., 312, 2000, p.104.
11. YAMAWAKI, M., YAMAGUCHI, K., SUWARNO, H., KAKIUCHI, K., ITAGAKI, N., ONO, F., NAKAZONO, Y., and KONASHI, K., "Development of U-Th-Zr Alloy Hydrides as Alternative Thorium-Base Fuel and MA Burning Target Fuel", Proc. Global, International Conference, Santa Fe, USA, 1999, p.413.
12. TSUCHIYA, B., JINTAO, H., TESHIGAWARA, M., KONASHI, K., and YAMAWAKI, M., ANS 1999 Winter Meeting, Long Beach, California, November 14-18, 1999, p.125.
13. LUCUTA, P.G., MATZKE, H., and VERRALL, R.A., J. of Nucl. Materials, 223, 1995, p.51.