

SINTESIS DAN KARAKTERISASI KERNEL URANIUM KARBIDA OKSIDA (UCO)

Damunir

Pusat Teknologi Akselerator dan Proses Bahan – BATAN, Yogyakarta
(Diterima 8 April 2008, disetujui 15 Oktober 2008)

ABSTRAK

SINTESIS DAN KARAKTERISASI KERNEL URANIUM KARBIDA OKSIDA

(UCO). Sintesis dan karakterisasi kernel uranium karbida oksida (UCO) telah dipelajari. Pertama kali dibuat gel uranium karbida bulat seperti bola yang mengandung uranium 1M, PVA 8% dan karbon dengan rasio C/U = 1,67 – 8,33 dengan proses gelasi eksternal dalam medium NH_4OH 8M. Setelah itu, gel dikalsinasikan pada 350 °C selama 4 jam, menghasilkan kernel UCO. Kernel UCO mengalami sintering secara fluidisasi di dalam medium gas argon dengan laju alir 33,3 ml/menit menggunakan *fluidized bed*. Suhu sinter divariasi pada 1000 – 1150 °C dengan waktu sintering 2 jam dan waktu sinter divariasi, 1 – 4 jam pada 1100 °C. Hasil sintering adalah kernel UCO sinter. Karakter kernel UCO hasil kalsinasi dan sintering ditentukan dari sifat kimia dan fisika. Sifat kimia meliputi analisis struktur molekul UCO dengan metode spektroskopi FTIR dari pita serapan infra merah ikatan O–U–O, U–O, U–C atau C–U–C, karbida C–C pada bilangan gelombang 400 – 4000 cm^{-1} . Sifat fisis meliputi analisis kerapatan dengan menggunakan piknometer dan larutan CCl_4 sebagai pelarut, luas muka spesifik dan jari-jari pori merata dengan metode adsorpsi gas menggunakan *surface area meter* NOVA-1000 dan N_2 sebagai adsorbat serta diameter butiran menggunakan mikroskopi optik dengan pembesaran 50 \times . Hasil percobaan menunjukkan bahwa kernel UCO sinter dapat disintesis dari kernel UCO hasil kalsinasi seperti diatas. Kondisi yang relatif baik adalah pada suhu 1100°C, waktu sinter 2 jam dan rasio C/U = 4,17. Analisis sifat kimia menunjukkan bahwa pada proses sintering terjadi perubahan struktur molekul kernel UCO, diikuti pergeseran pita serapan infra merah ikatan O–U–O dari 740,6 cm^{-1} ke 650,0 cm^{-1} dan pita serapan ikatan C–C yang terkonjugasi dengan ikatan O–U–O membentuk ikatan C–C–U dari 1319,12 – 123,70 cm^{-1} ke 1339,82 cm^{-1} , dan hilangnya pita serapan infra merah ikatan rangkap dua dan tiga, ikatan hidrogen dan hidroksi pada kernel UCO sinter. Analisis sifat fisis ditunjukkan bahwa terjadi perubahan struktur kristal pada kernel UCO sinter diikuti peningkatan kerapatan, perubahan luas muka spesifik, jari-jari pori merata dan diameter butiran. Kernel UCO sinter yang dihasilkan pada kondisi relatif baik terdiri dari campuran UO_2 dan UC_2 , berbentuk bulat, permukaan halus dan diameter padatan sebesar 836 – 954 μm .

KATA KUNCI: Sintesis, Karakterisasi, Kernel uranium karbida oksida sinter, Proses sintering, *Fluidized bed*, FTIR, Mikroskop optik

ABSTRACT

SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION OF SINTERABLE URANIUM CARBIDE

OXIDE (UCO). *Synthesis and characterization of sinterable uranium carbide oxide (UCO) have been carried out. First of all, spherical form of uranium carbide gel which contained 1 M uranium, 8% PVA and 1.67 – 8.33 of C/U ratio was prepared using external gelation process in 8M NH_4OH medium. After that, the gel was calcinated at 350 °C for 4 hours to produce UCO kernel. The UCO kernel was sintered using fluidization method in argon medium with a flow rate of 33.3 ml/min using a fluidized bed. The sintering temperature was varied from 1000 – 1150 °C with sintering time of 2 hours, and at 1100 °C temperature the sintering time was varied from 1 – 4 hours. The sintering product obtained was sinterable UCO kernel. The characteristics of the UCO kernel from calcination process and*

sinterable UCO kernel from sintering process were defined from their chemical and physical properties. The chemical properties included structure analysis of UCO molecule using FTIR spectroscopy method from infrared absorption band of O-U-O, U-O, U-C or C-U-C and carbide of C-C bond at wave number 400 – 4000 cm⁻¹. The physical properties included density analysis using picnometer and CCl₄ solution as the solvent, specific surface area, mean pore radius using surface area meter NOVA-1000 and N₂ gas as absorbents, as well as grain diameter of UCO kernel using optical microscopy with a magnification of 50×. The experiment results showed that sinterable UCO kernel can be synthesized from UCO kernel produced from calcination above. The relatively good condition was at temperature of 1100 °C, sintering time of 2 hours and C/U ratio of 4.17. The analysis of the chemical properties showed changes of UCO molecular structure during sintering process followed by shifting of the absorption band of O-U-O bond from 740.6 cm⁻¹ to 650 cm⁻¹ and the absorption band of C-C bond that was conjugated with O-U-O bond forming C-C-U bond from 1319.12 – 1543.90 cm⁻¹ to 1359.82 cm⁻¹, and the disappearance of infrared absorption band of double bond and triple bond, hydrogen bond and hydroxyl bond in sinterable UCO kernel. The analysis of the physical properties showed changes in the crystal structure of sinterable UCO, accompanied with an increase of the density, changes of the specific surface area, the mean pore radius and grain diameter. The sintered UCO kernel produced at relatively good condition consisted of mixture of UO₂ and UC₂, spherical in form, with fine surface and solid grain diameter of 836 – 954 μm.

FREE TERMS: Synthesis, Characterization, Sinterable uranium carbide oxide, Sintering process, Fluidization bed, FTIR, Optical microscopy

I. PENDAHULUAN

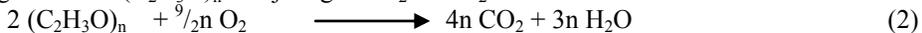
Reaktor temperatur tinggi (*High Temperature Reactor/HTR*) adalah salah satu reaktor maju berpendingin gas Helium, yang dapat digunakan sebagai sumber panas dan pembangkit tenaga listrik. Tipe bahan bakarnya tergantung pada tipe reaktor yang digunakan. Bahan bakar uranium karbida oksida (UCO) adalah salah satu bahan bakar nuklir yang mempunyai prospek yang baik sebagai bahan bakar reaktor temperatur tinggi setelah kernel UO₂. Bahan bakar UCO mempunyai kerapatan teoritis, kandungan uranium, konduktivitas panas dan titik lebur tinggi serta koefisien muai panas kecil dan kestabilan reaksi fisinya lebih besar dari bahan bakar UO₂. Pada tahun 2010 – 2015 akan dilakukan program penelitian dan pengembangan (R &D) bahan bakar reaktor generasi ke IV pertama untuk bahan bakar reaktor temperatur lebih tinggi (*Very High Temperature Reactor – VHTR*). VHTR akan digunakan dalam industri dan pengolahan batu bara cair untuk menghasilkan gas H₂. Salah satu elemen bahan bakarnya adalah kernel UCO sebagai inti yang dilapisi dengan pirolitik karbida (PyC), silika karbida (SiC) atau zirkonium karbida (ZrC) dengan bentuk lapisan tipe TRISO. Partikel kernel UCO terlapis dicampur dengan grafit kemudian dicetak pada suhu tinggi hingga menghasilkan bahan bakar UCO berbentuk bola^[1,2,3].

Kernel UCO dapat dibuat melalui dua tahapan. Pertama, pembuatan gel uranium karbida dengan proses gelasi eksternal menggunakan metode pengendapan gel. Sebagai bahan bakunya adalah uranil nitrat, amonia, polivinil alkohol (PVA), *Span-80*, parafin dan serbuk karbon grafit. Kedua, sintesis kernel UCO dengan metode sintering secara fluidisasi dalam medium gas argon (Ar). Pembuatan gel uranium karbida dengan metode pengendapan gel juga melalui beberapa tahapan; pertama kali uranil nitrat direaksikan dengan amonia, menghasilkan

larutan koloid UO_3 . Sambil diaduk dan dipanaskan pada suhu $60 - 90\text{ }^\circ\text{C}$, larutan koloid UO_3 dicampur dengan PVA, span-80, karbon dan parafin, hingga terbentuk larutan sol karbida. Setelah itu, larutan sol digelasi ke dalam medium amonium hidroksida pada suhu kamar. Dalam medium larutan terjadi reaksi antara sol karbida dengan amonia membentuk gel bulat seperti bola yang mengandung campuran molekul amonium diuranat $(NH_4)_2U_2O_7$ atau $[2UO_3 \cdot 2NH_3 \cdot H_2O]$, PVA dan karbon. Gel dicuci, dikeringkan kemudian dikalsinasi pada suhu $300 - 500\text{ }^\circ\text{C}$. Selama pemanasan, terjadi penguraian amonium diuranat dengan menghasilkan gas NO_2 dan H_2O . Karbon dari grafit bereaksi dengan molekul UO_3 membentuk kernel UCO ^[4]. Reaksinya seperti berikut:



Sedangkan PVA $(C_2H_3O)_n$ menjadi gas CO_2 dan H_2O .



Kemudian kernel UCO hasil kalsinasi disinter dengan metode sintering secara fluidisasi dalam medium gas argon (Ar) menggunakan alat *fluidized bed* pada suhu di atas $1000\text{ }^\circ\text{C}$, menghasilkan kernel UCO sinter. Pada proses sintering terjadi peningkatan kualitas kernel UCO diikuti peningkatan kerapatan dan perubahan pori pori serta luas permukaan padatan^[5].

Ada beberapa faktor yang mempengaruhi kualitas kernel UCO di atas, diantaranya kadar karbon, suhu dan waktu sintering. Perubahan perbandingan kadar karbon terhadap uranium atau rasio C/U lebih besar atau lebih kecil dari 4,8% dapat mempengaruhi sifat kimia dan sifat fisis kernel UCO ^[6]. Sifat kimia meliputi perubahan struktur molekul kernel UCO , sedangkan sifat fisis meliputi kerapatan, luas muka spesifik dan porositas kernel UCO . Suhu dan waktu sintering dalam medium gas argon juga berpengaruh pada sifat kimia dan fisis. Karakterisasi struktur molekul kernel UCO secara kualitatif dapat ditentukan dari pita serapan infra merah ikatan O-U-O, ikatan U-O, ikatan U-C atau C-U-C ikatan karbida C-C, ikatan C-H, ikatan rangkap dua, ikatan rangkap tiga dan ikatan OH dengan metode *Spectroscopy Fourier Transform Infra Red* (FTIR) pada bilangan gelombang (bil.gel) antara $400 - 4000\text{ cm}^{-1}$. Kerapatan dapat ditentukan dengan alat piknometer menggunakan pelarut karbon tetraklorida, luas permukaan spesifik dan porositas dengan metode adsorpsi gas menggunakan *surface area analyzer* dan N_2 sebagai absorbat pada tekanan relatif rendah dan suhu tetap, dan diameter butiran dengan mikroskop optik^[7,8]. Hasil karakter kernel UCO yang diharapkan adalah mempunyai kerapatan $> 95\%$ DT, porositas antara $1 - 10\text{ }\mu\text{m}$ dan diameter butir antara $500 - 800\text{ }\mu\text{m}$ dan komposisinya terdiri dari campuran kernel UO_2 dan UC_2 .

Di BATAN, penelitian dan pembuatan bahan bakar kernel UCO belum dilakukan oleh peneliti sebelumnya, oleh karena itu perlu dipelajari. Dalam penelitian ini akan dilakukan sintesis dan karakterisasi kernel UCO . Sintesis kernel UCO sinter melalui tahapan yaitu pembuatan gel uranium karbida, kalsinasi gel dalam medium udara dan sintering secara fluidisasi dalam medium gas argon (Ar). Karakterisasi kernel UCO sebelum dan sesudah sintering meliputi analisis sifat kimia dan sifat fisis seperti diterangkan diatas.

II. TATA KERJA

2.1. Bahan

Bahan yang digunakan adalah uranil nitrat hasil pelarutan serbuk U_3O_8 dalam asam nitrat; PVA, monosorbitol oleat (*Span-80*), parafin, amonium hidroksida, CCl_4 , isopropanol dari Merck; dan gas argon, gas nitrogen serta air.

2.2. Alat

Alat yang digunakan meliputi seperangkat alat tungku kalsinator, alat *fluidized bed* yang berfungsi sebagai tungku sintering, seperangkat alat *surface area analyzer* NOVA-1000 untuk analisis sifat fisis, seperangkat alat proses gelas untuk tempat pembuatan gel uranium-karbida, seperangkat alat FTIR Shimadzu untuk analisis sifat kimia pada kernel UCO hasil kalsinasi dan hasil sintering, dan seperangkat alat mikroskop optik untuk analisis morfologi permukaan dan diameter butiran

2.3. Cara Kerja

2.3.1. Pembuatan gel uranium karbida dan kernel UCO

2.3.1.1. Pembuatan gel uranium-karbida

Ke dalam gelas piala yang mengandung larutan $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ dengan konsentrasi uranium sebesar 1 M ditambahkan NH_4OH 1 M, lalu diaduk sampai terbentuk larutan koloid UO_3 . Setelah itu ditambahkan campuran larutan PVA 8% (v/v), *Span-80* 1% (v/v), parafin 2,5% (v/v), karbon dengan rasio C/U = 1,67 – 8,33 dan air hingga volume larutan menjadi 20 ml. Larutan campuran diaduk dan dipanaskan pada suhu 70 °C selama 30 menit hingga menghasilkan larutan sol uranium-karbida, kemudian larutan dibiarkan pada suhu ruangan selama 2 jam. Untuk mendapatkan gel uranium karbida bulat seperti bola kecil, larutan sol digelasikan ke dalam kolom gelas (tinggi 100 cm dan diameter kolom 6 cm) yang mengandung 500 ml NH_4OH 8 M, menggunakan alat penetes dari tip pipet dengan diameter 2 mm. Gel hasil gelas dibiarkan dalam larutan medium selama 2 jam, lalu dicuci dengan isopropanol, amonium hidroksida 2,5% dan air. Setelah itu dikeringkan pada 60 °C selama 24 jam dan pada suhu 120 °C selama 8 jam dalam medium udara, kemudian disimpan dalam eksikator supaya tidak terkontaminasi dengan udara.

2.3.1.2. Pembuatan kernel UCO dengan proses kalsinasi

Gel hasil proses gelas eksternal diatas di kalsinasikan pada suhu 350 °C selama 4 jam dalam medium udara, menghasilkan kernel UCO, kemudian disimpan dalam eksikator.

2.3.1.3. Pembuatan kernel UCO sinter dengan proses sintering secara fluidisasi

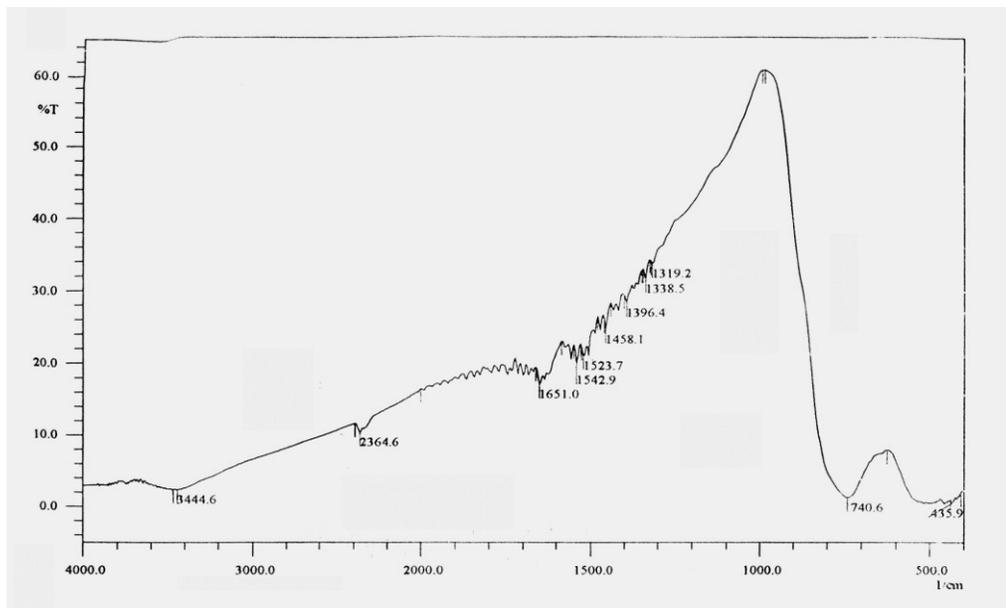
Kernel UCO hasil kalsinasi disinter secara fluidisasi dalam medium gas argon menggunakan alat *fluidized bed*, menghasilkan kernel UCO sinter. Pada proses sintering, suhu divariasikan 1000 – 1150 °C selama 2 jam dan waktu sinter divariasikan selama 1 – 4 jam pada suhu 1100 °C dengan laju alir gas sebesar 33,3 ml/jam. Setelah itu kernel UCO sinter disimpan dalam eksikator.

2.3.2. Karakterisasi kernel UCO

Karakterisasi kernel UCO hasil kalsinasi dan sintering diatas meliputi sifat kimia dan fisis. Sifat kimia meliputi analisis struktur molekul kernel UCO dengan menggunakan spektroskopi FTIR Shimadzu. Sifat fisis meliputi analisis kerapatan dengan menggunakan piknometer dan pelarut karbon tetraklorida, luas permukaan spesifik, jari-jari pori merata dengan metode adsorpsi gas menggunakan *surface area analyzer* NOVA-1000 dan gas N_2 sebagai adsorbat. Diameter dan morfologi permukaan padatan dengan menggunakan mikroskop optik pada pembesaran 50×.

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada pemanasan (kalsinasi) gel uranium karbida hasil proses gelasi eksternal yang mengandung uranium 1 M, PVA 8% (v/v) dan karbon dengan rasio C/U = 4,17 pada suhu 350 °C selama 4 jam dalam medium udara, terjadi reaksi antara oksigen dengan senyawa kimia dalam butiran gel menghasilkan gas CO₂, NO₂ dan H₂O serta kernel UCO. Struktur molekul UCO dapat ditentukan secara kualitatif dari spektrum pita serapan infra merah dari ikatan gugus fungsional dengan spektroskopi FTIR pada bilangan gelombang antara 400 – 4000 cm⁻¹ seperti ditunjukkan pada Gambar 1.

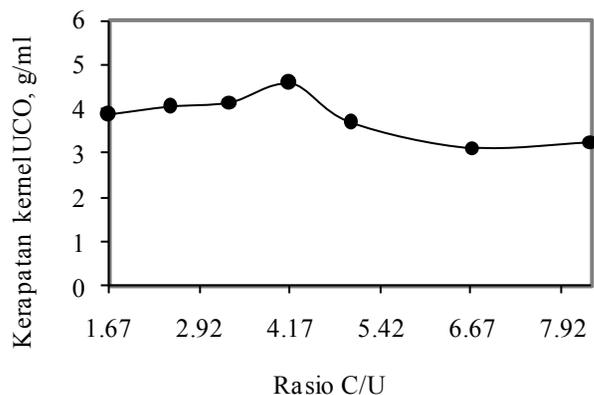


Gambar 1. Spektrum pita serapan infra merah FTIR kernel UCO hasil kalsinasi gel pada suhu 350 °C selama 4 jam dalam medium udara

Terlihat pada Gambar 1 bahwa spektrum infra merah tersebut terdiri dari pita serapan ikatan U–O yang terkonyugasi dengan karbon yang membentuk ikatan U–C–O pada bil.gel 435,9 cm⁻¹, pita serapan ikatan O–U–O pada bil.gel 740,6 cm⁻¹, pita serapan C–O yang terkonyugasi dengan ikatan O–U–O pada bil.gel 1319,12 cm⁻¹, pita serapan ikatan karbida C–C pada bil.gel 1338,5; 1396,4; 1458,1; 1523,7 dan 1542,9 cm⁻¹. Pada kernel UCO ini terdapat pita serapan ikatan rangkap dua pada bil.gel 1651,0 cm⁻¹ dan ikatan rangkap tiga pada bil.gel 2364,6 cm⁻¹, tetapi jumlahnya kecil sekali dan dapat diabaikan. Sedangkan pada bil.gel 3444,6 cm⁻¹ terdapat pita serapan ikatan hidrogen dan pita serapan OH dari molekul H₂O. Dari analisis pita serapan infra merah tersebut dapat dipahami bahwa komposisi kernel uranium karbida oksida hasil kalsinasi terdiri dari campuran senyawa UO₂·xUC₂ dan yH₂O.

Pada Gambar 2 ditunjukkan pengaruh perubahan kadar karbon (rasio C/U) dalam butiran gel uranium karbida terhadap kerapatan kernel UCO hasil kalsinasi. Terlihat pada Gambar 2 bahwa perubahan kadar karbon yang terdapat dalam butiran gel uranium karbida

dapat menyebabkan terjadinya perubahan kerapatan kernel UCO hasil kalsinasi pada suhu 350 °C selama 4 jam dalam medium udara. Pada suhu 350 °C, karbon, nitrogen dan hidrogen dari senyawa kimia dalam gel terkomposisi menjadi gas CO₂, NO₂ dan H₂O, kemudian keluar melalui pori-pori padatan dengan membentuk pori-pori dengan ukuran yang berbeda.



Gambar 2. Pengaruh rasio C/U terhadap perubahan kerapatan UCO hasil kalsinasi gel pada suhu 350 °C selama 4 jam dalam medium udara

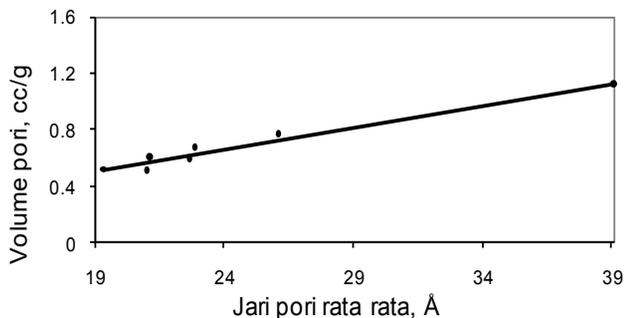
Pada umpan gelasi yang mengandung karbon dengan rasio C/U = 1,67 – 8,33, dihasilkan kernel UCO yang mempunyai kerapatan bervariasi dari 3,86 – 4,57 g/ml, kerapatan kernel UCO relatif baik sebesar 4,57 g/ml pada rasio C/U = 4,17. Pada umpan gelasi yang mengandung karbon dengan rasio C/U = 5,00 – 8,33, jumlah gas-gas seperti di atas yang terbentuk pada suhu 350 °C juga dipengaruhi oleh jumlah karbon, nitrogen dan hidrogen dalam gel. Semakin besar jumlah unsur tersebut, semakin banyak gas yang terbentuk dan semakin besar pori-pori padatan yang dihasilkan, akibatnya terjadi penurunan kerapatan kernel UCO pada setiap perubahan kadar karbon.

Pada Tabel 1 ditunjukkan pengaruh kandungan karbon (rasio C/U) terhadap perubahan luas muka spesifik, jari-jari pori merata dan diameter butiran kernel UCO hasil kalsinasi pada suhu 350 °C selama 4 jam dalam medium udara. Terlihat pada Tabel 1 bahwa perubahan luas muka spesifik tersebut tidak mempunyai perbedaan yang berarti (signifikan) karena distribusi pori-pori permukaan padatan relatif merata dan mirip satu sama lain.

Tabel 1. Pengaruh kadar karbon (rasio C/U) terhadap luas muka, jari-jari pori rerata dan diameter kernel UCO hasil kalsinasi pada suhu 350 °C selama 4 jam dalam medium udara

Rasio C/U	Luas muka spesifik (m ² /g)	Jari-jari pori rerata (Å)	Diameter butiran (µm)
1,67	4,85	20,99	1282
2,50	5,75	39,18	1936
3,33	5,90	26,09	1944
4,17	5,88	22,83	1930
5,00	5,71	21,14	1862
6,67	5,44	19,34	1863
8,33	5,17	22,64	1667

Hal ini dapat dijelaskan dari hubungan antara volume pori (V_p) sebagai sumbu y terhadap jari pori rata rata sebagai sumbu x. Besarnya $V_p = (S_A \times r_p) / 2^{[9]}$, dimana S_A adalah luas muka spesifik dan r_p adalah jari pori rata-rata. Setelah satuan m² dikonversikan menjadi 10⁴ cm² dan Å = 10⁻⁸ m menjadi 10⁻⁶ cm, sehingga $V_p = (S_A \times r_p) / 200$ dalam satuan cc/g. Hubungan antara V_p dengan $r_p = 19,34 - 39,18$ Å menghasilkan persamaan garis lurus $y = 0,032x - 0,114$ dan koefisien regresi $R = 0,982$ seperti pada Gambar 3.

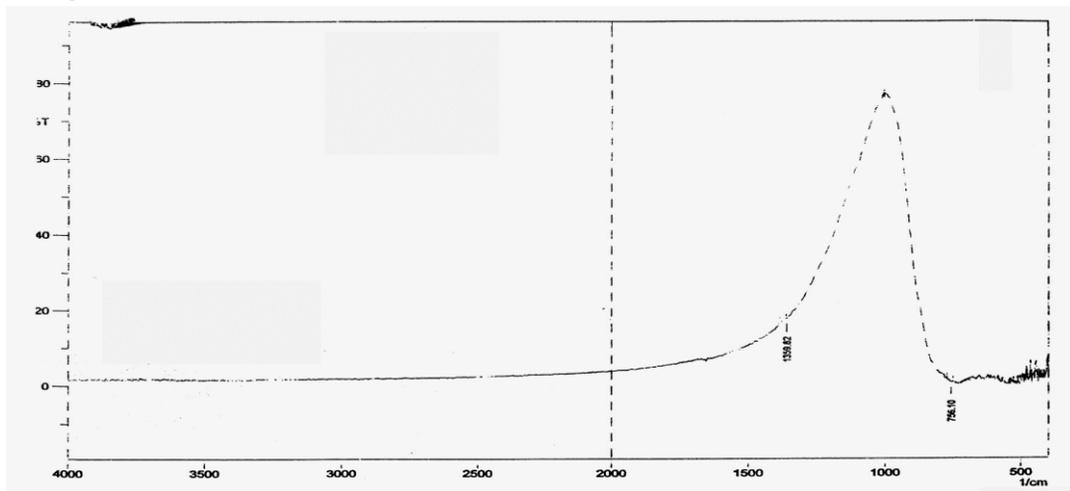


Gambar 3. Hubungan antara volume pori dengan jari pori rata-rata kernel UCO hasil kalsinasi

Pada Gambar 3 dapat dilihat bahwa perbedaan distribusi volume pori terhadap jari pori rata-rata pada garis lurus relatif kecil. Secara statistik, dari analisis hipotesis jumlah kuadrat regresi (SSR) dengan derajat bebas 1 dan jumlah kuadrat kesalahan (SSE) dengan derajat bebas 5 yang menggunakan tabel standar distribusi t pada interval kepercayaan sebesar 95%, diperoleh harga $F_{(0,05),(1,5)} = 2,015^{[10]}$. Sedangkan F hasil perhitungan (F_h) = bS_{xy}/S^2 , $S_{xy} = 9,625$, $b = -0,114$ dan $S^2 = 0,2765$, diperoleh harga $F_h = (-0,114)(9,625)/(0,276) = -3,975$. Jadi $F_h < f_{(0,05),(5)}$, berarti tidak ada perbedaan nyata perubahan volume pori padatan pada daerah jari pori rata rata antara 19 – 39 Å. Maka perubahan luas muka spesifik di permukaan padatan tidak mempunyai perbedaan yang berarti seperti diterangkan di atas. Sedangkan jari-jari pori reratanya mempunyai perbedaan yang signifikan. Hal ini disebabkan oleh jumlah gas yang terbentuk selama pemanasan, yang kemudian keluar dari padatan dengan membentuk pori-pori yang berbeda. Hasil analisis diameter butiran kernel UCO secara manual dengan menggunakan mikroskop optik relatif besar tetapi distribusinya relatif merata. Hal ini

dikarenakan kernel UCO hasil kalsinasi pada suhu 350 °C masih banyak mengandung sisa karbon di dalam padatan, sehingga perlu dilakukan proses sintering pada suhu di atas 1000 °C dalam medium gas argon.

Pada Gambar 4 ditunjukkan spektrum pita serapan infra merah FTIR kernel UCO sinter, hasil sintering pada suhu 1100 °C selama 2 jam dalam medium gas argon, menggunakan alat *fluidized bed* dengan laju alir gas argon sebesar 33,3 ml/menit. Sebagai umpan proses sintering adalah kernel UCO hasil kalsinasi gel yang mengandung uranium 1 M, PVA 8% dan karbon dengan rasio C/U = 4,17.

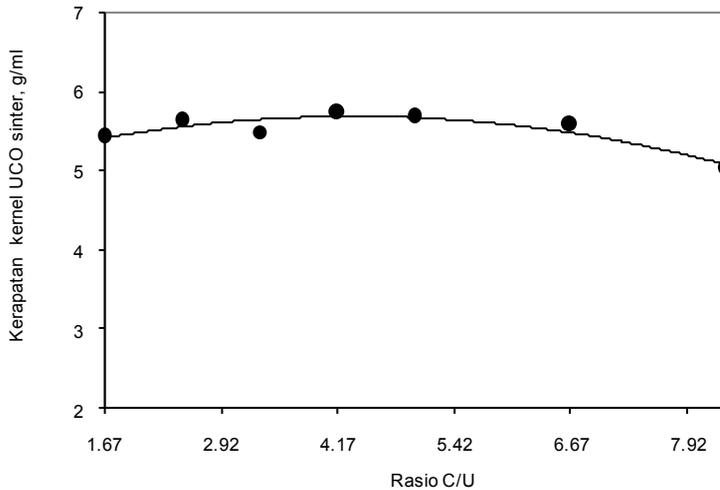


Gambar 4. Spektrum pita serapan infra merah FTIR kernel UCO sinter, hasil sintering pada suhu 1100 °C selama 2 jam dalam medium gas argon menggunakan alat *fluidized bed* dengan laju alir gas sebesar 33,3 ml/menit

Terlihat pada Gambar 4 bahwa kernel UCO sinter hasil sintering mempunyai dua buah pita serapan infra merah pada bil.gel 756,10 cm^{-1} dan 1359,83 cm^{-1} . Pita serapan infra merah pada bil.gel 756,10 cm^{-1} yang berasal dari pita serapan ikatan rantai O-U-O, sedangkan pada bil.gel 1359,82 cm^{-1} berasal dari pita serapan ikatan karbida C-C yang terkonjugasi dengan atom uranium membentuk ikatan C-C-U. Pada spektrum infra merah tersebut tidak terdapat pita serapan ikatan rangkap dua, ikatan rangkap tiga, ikatan hidrogen dan ikatan OH dari molekul air seperti pada Gambar 1. Hal ini menunjukkan bahwa senyawa karbida yang terbentuk pada proses sintering terdiri dari campuran molekul UO_2 dan UC_2 .

Pada Gambar 5 ditunjukkan pengaruh perubahan kadar karbon (rasio C/U) terhadap kerapatan kernel UCO sinter, hasil sintering dalam media gas argon pada suhu 1100 °C selama 2 jam menggunakan alat *fluidized bed* dengan laju alir gas sebesar 33,3 ml/menit. Sebagai umpan sintering digunakan kernel UCO hasil kalsinasi seperti pada Gambar 3. Terlihat pada Gambar 5 bahwa perubahan kadar karbon dalam kernel UCO dengan rasio C/U = 1,67 – 8,33, setelah disinterkan secara fluidisasi pada kondisi yang sama terjadi peningkatan kerapatan kernel UCO sinter sebesar 25,16 – 53,99% terhadap kerapatan kernel UCO hasil kalsinasi. Kernel UCO sinter yang dihasilkan mempunyai kerapatan sebesar 5,02 – 5,72 g/ml, kerapatan

relatif baik sebesar 5,72 g/ml yang dihasilkan pada kernel UCO sinter yang mengandung karbon dengan rasio C/U = 4,17.



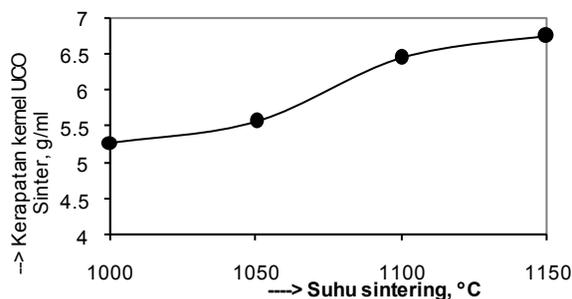
Gambar 5. Pengaruh rasio C/U terhadap perubahan kerapatan kernel UCO sinter, hasil sintering pada suhu 1100 °C selama 2 jam dalam medium argon menggunakan *fluidized bed* dengan laju alir gas sebesar 33,3 ml/menit

Pada Tabel 2 ditunjukkan pengaruh kadar karbon (rasio C/U) terhadap luas muka spesifik dan jari-jari pori rerata dan diameter kernel UCO sinter. Terlihat pada Tabel 2 bahwa luas muka spesifik dan jari-jari pori rerata kernel UCO sinter mempunyai perbedaan relatif kecil. Luas muka spesifik berkisar antara 3,94-4,38 m²/g dan jari-jari pori rerata berkisar antara 24,08 – 27,24 Å. Hal ini menunjukkan bahwa pada proses sintering terjadi perubahan struktur kristal yang diikuti penyusutan luas muka spesifik dan pembesaran jari-jari pori-pori padatan. Jika dibandingkan dengan sifat fisis kernel UCO hasil kalsinasi pada Tabel 1 diatas, perubahan (penyusutan) luas muka spesifik kernel UCO sinter sebesar 25,51 – 32,99% dan pembesaran jari-jari pori rerata sebesar 5,47 – 19,32%. Dari konversi jari-jari pori ke dalam diameter pori padatan diperoleh diameter pori sebesar 48,16 – 54,48 Å, yang terletak dalam interval diameter material meso pori standar antara 15 – 1000 Å^[11]. Sedangkan diameter butiran kernel UCO sinter juga mengalami perubahan yang berarti dengan penyusutan butiran sebesar 51,61 – 57,10% dan terletak dalam interval antara 200 – 1000 µm untuk bahan bakar reaktor suhu tinggi (IAEA,1970)^[12].

Pada Gambar 6 ditunjukkan pengaruh suhu sintering terhadap kerapatan kernel UCO sinter, hasil proses sintering secara fluidisasi dalam medium gas argon selama 2 jam. Sebagai umpan sintering juga menggunakan kernel UCO hasil kalsinasi gel yang mengandung uranium 1 M dan karbon dengan rasio C/U = 4,17 dan mempunyai kerapatan sebesar 4,57 g/ml.

Tabel 2. Pengaruh kadar karbon (rasio C/U) terhadap luas muka spesifik, jari-jari pori rerata dan diameter kernel UCO sinter, hasil sintering dalam media gas argon pada suhu 1100 °C selama 2 jam dengan laju alir gas sebesar 33,3 ml/menit

Rasio C/U	Luas muka spesifik (m ² /g)	Jari-jari pori rerata (Å)	Diameter butiran (µm)
1,67	4,30	24,08	828
2,50	4,08	25,28	866
3,33	4,38	27,24	934
4,17	4,01	25,96	835
5,00	4,23	25,92	918
6,67	4,19	25,46	918
8,33	3,94	25,59	867



Gambar 6. Pengaruh suhu sintering terhadap kerapatan kernel UCO sinter, hasil sintering dalam media gas argon selama 2 jam menggunakan alat *fluidized bed* dengan laju alir gas sebesar 33,3 ml/menit

Terlihat pada Gambar 6 bahwa perubahan suhu sintering dari 1000 – 1150 °C berpengaruh pada kerapatan kernel UCO sinter. Kerapatan UCO sinternya berkisar antara 5,27 – 6,74 g/ml dengan peningkatan sebesar 15,32 – 47,48% terhadap kerapatan kernel UCO hasil kalsinasi. Menurut Rough et al., kernel UCO terdiri dari campuran UO₂ dan UC₂, masing-masing mempunyai kerapatan teoritis untuk kernel UO₂ sebesar 10,96 g/ml dan kernel UC₂ sebesar 11,68 g/ml^[13], kerapatan teoritis rerata sebesar 11,34 g/ml. Sedangkan kerapatan kernel UCO sinter hasil perobaan pada Gambar 6 berkisar 46,47 – 59,44% DT rerata. Boleh jadi kernel UCO hasil sintering tersebut belum memenuhi persyaratan sebagai bahan bakar reaktor suhu tinggi. Oleh karena itu perlu dilakukan sintering pada suhu antara 1400 – 1700 °C. Pada suhu tersebut terjadi perubahan bola butiran menjadi lebih bulat dan mampat serta peningkatan sifat densifikasi pada kernel UCO menjadi lebih besar dari 95% DT rerata.

Pada Tabel 3 ditunjukkan pengaruh suhu sintering dalam media gas argon selama 2 jam terhadap luas muka spesifik, jari-jari pori rerata dan diameter kernel UCO sinter.

Tabel 3. Pengaruh suhu sintering terhadap luas muka spesifik, jari-jari pori merata dan diameter kernel UCO sinter, hasil sintering pada suhu 1100 °C dalam media gas argon selama 2 jam menggunakan alat *fluidized bed* dengan laju alir gas sebesar 33,3 ml/menit

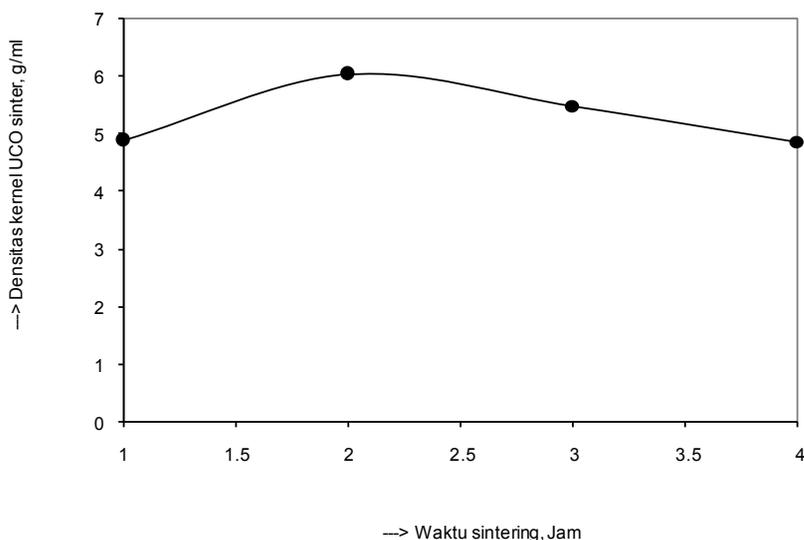
Suhu (°C)	Luas muka spesifik (m ² /g)	Jari-jari pori merata (Å)	Diameter butiran (µm)
1000	5,67	29,72	856
1050	4,68	27,14	876
1100	4,41	25,18	954
1150	4,38	23,37	918

Catatan: Perbandingan kadar karbon dengan uranium (C/U) = 4,17

Terlihat pada Tabel 3 bahwa perubahan suhu sintering pada suhu 1000 – 1150 °C terjadi perubahan struktur kristal dalam padatan diikuti penyusutan luas muka dan pembesaran jari jari porinya. Dengan membandingkan luas muka spesifik dan jari jari pori merata kernel UCO hasil sintering dengan hasil kalsinasi, diperoleh besarnya penyusutan luas muka spesifiknya sebesar 3,57 – 25,51% dan pembesaran jari-jari pori merata sebesar 2,36 – 30,18%. Sebaliknya diameter butiran kernel UCO sinter berkisar antara 856 – 954 µm dengan perubahan sebesar 50,57 – 55,65%. Perubahan struktur kristal kernel UCO lebih jelas dapat dilakukan dengan metode difraksi sinar-X, tetapi dalam penelitian ini belum dilakukan. Sedangkan konversi jari-jari pori merata ke dalam diameter pori akan menghasilkan diameter pori sebesar 46,74 – 59,44 Å, yang terletak dalam interval diameter material meso pori standar.

Pada Gambar 7 ditunjukkan pengaruh waktu sintering terhadap kerapatan kernel UCO sinter hasil proses sintering pada suhu 1100 °C dalam media gas argon. Proses sintering ini juga menggunakan kernel UCO hasil kalsinasi sebagai umpan sintering seperti pada Gambar 5 di atas. Dapat dilihat pada Gambar 7 bahwa pada waktu sintering selama 1 jam proses sinteringnya belum sempurna, kernel UCO sinternya mempunyai kerapatan relatif kecil yaitu sebesar 4,89 g/ml. Pada waktu sintering selama 2 jam, proses sinteringnya relatif sempurna dan terjadi perubahan struktur kristal yang diikuti penyusutan pori padatan sehingga kerapatan naik menjadi 6,03 g/ml. Sedangkan pada waktu sintering selama 3 – 4 jam terjadi pembesaran volume pori padatan (*swelling*), sehingga jumlah pori-porinya bertambah besar dan kerapatan kernel UCO turun menjadi lebih kecil yaitu dari 5,50 sampai 4,87 g/ml. Secara keseluruhan, peningkatan kerapatan kernel UCO sinter, hasil sintering pada suhu 1100 °C selama 1 – 4 jam sebesar 6,56 – 31,95% terhadap kerapatan kernel UCO hasil kalsinasi.

Pada Tabel 4 ditunjukkan pengaruh waktu sintering terhadap luas muka spesifik, jari-jari pori merata dan diameter butiran kernel UCO sinter.



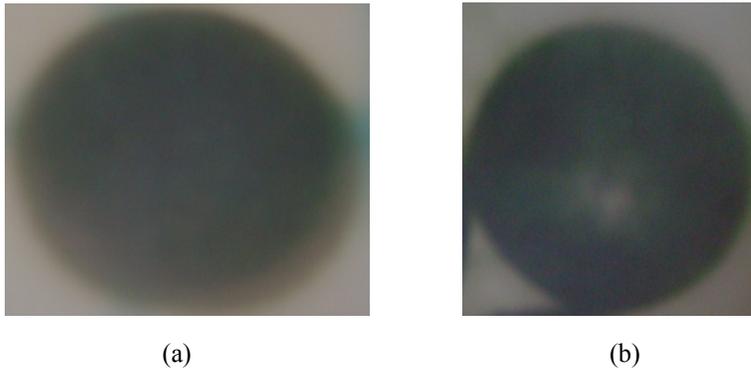
Gambar 7. Pengaruh waktu sinteing terhadap kerapatan kernel UCO sinter, hasil sinteing pada suhu 1100 °C dalam media gas argon menggunakan alat *fluidized bed* dengan laju alir gas sebesar 33,3 ml/menit

Tabel 4. Pengaruh waktu sinteing kernel UCO hasil kalsinasi pada suhu 1100 °C dalam media gas argon terhadap luas muka spesifik, jari-jari pori rerata dan diameter kernel UCO sinter

Waktu sinteing (Jam)	Luas muka spesifik (m ² /g)	Jari-jari pori rerata (Å)	Diameter butiran (µm)
1	5,34	21,92	896
2	3,64	25,08	836
3	6,68	30,29	894
4	8,46	53,36	927

Sebaliknya pada waktu sinteing selama 3-4 jam terjadi pembesaran luas muka spesifik dan jari-jari pori padatan. Perubahan luas muka spesifik kernel UCO sinter hasil sinteing selama 1 – 3 jam sebesar 38,09 – 43,88% dan jari-jari pori rerata sebesar 3,99 – 32,68%. Sedangkan pada waktu sinteing selama 4 jam terjadi pembesaran volume (*swelling*) diikuti pembesaran jari-jari pori padatan. Diameter butiran kernel UCO sinter, hasil sinteing selama 1 – 4 jam sebesar 836 – 929 µm dengan perubahan sebesar 43,83 – 49,33%. Sedangkan konversi jari-jari pori rerata ke dalam diameter pori kernel UCO sinter pada Tabel 4 di atas menghasilkan diameter pori rerata sebesar 43,84 – 106,72 µm, yang terletak dalam interval diameter material meso pori standar.

Pada Gambar 8 ditunjukkan bentuk morfologi permukaan kernel UCO hasil kalsinasi gel uranium karbida pada suhu 350 °C selama 4 jam dalam medium udara (Gambar 8(a)) dan bentuk morfologi permukaan kernel UCO sinter, hasil sintering pada suhu 1100 °C selama 2 jam dalam medium gas argon (Gambar 8(b)).



Gambar 8. Bentuk morfologi permukaan kernel UCO hasil kalsinasi pada suhu 350 °C dalam medium udara selama 4 jam dengan pembesaran 50× (Gambar (a)) dan morfologi permukaan kernel UCO hasil sintering pada suhu 1100 °C dalam media gas argon selama 2 jam dengan pembesaran 50× (Gambar (b))

Dapat dilihat pada Gambar 8(a) bahwa bentuk morfologi permukaan kernel UCO hasil kalsinasi, hasil analisis dengan menggunakan mikroskop optik pada pembesaran 50× adalah bulat berwarna hitam dan permukaan relatif kasar, karena masih mengandung lapisan karbon yang belum terbakar pada suhu 350 °C. Pada butiran kernel tersebut tidak terlihat adanya keretakan akibat pemanasan selama kalsinasi. Sedangkan pada Gambar 8(b) bahwa bentuk morfologi permukaan kernel UCO sinter adalah bulat, berwarna hitam, permukaan relatif halus, karena semua sisa karbon dalam padatan sudah terbakar sempurna dan tidak terlihat ada keretakan akibat pemanasan selama sintering.

Dari hasil pembahasan di atas menunjukkan bahwa kernel UCO hasil sintering pada suhu 1000 – 1150 °C selama 1 – 4 jam mempunyai kerapatan lebih kecil > 95% DT rerata sehingga belum dapat digunakan sebagai partikel bahan bakar. Oleh karena itu perlu dilakukan sintering pada suhu 1400 – 1700 °C untuk mendapatkan kernel UCO bulat seperti bola yang mempunyai densitas > 95% DT rerata. Kernel UCO dengan kerapatan > 95% DT rerata dapat digunakan sebagai partikel untuk elemen bahan bakar, kemudian dilapisi dengan pirolitik karbida (PyC) bufer dan PyC bagian dalam, kemudian dilapisi dengan SiC atau ZrC, terakhir lapisan Py bagian luar. Kernel UCO yang dilapisi dengan PyC dan SiC atau ZrC disebut lapisan TRISO, kemudian dicetak menjadi bahan bakar berbentuk bola atau blok prisma. Bahan bakar bentuk bola akan dikembangkan menjadi bahan bakar reaktor generasi ke-IV untuk HRT atau VHRT, sedangkan bahan bakar bentuk blok prisma dikembangkan di Amerika. Bahan bakar kernel UCO bentuk bola maupun blok prisma mempunyai stabilitas neutron tinggi karena mengandung karbon sebagai moderator neutron. Di BATAN, bahan bakar kernel UCO mempunyai prospek yang baik untuk dikembangkan sampai ke tingkat keramik murni nuklir (*nuclear grade*) sebagai bahan bakar reaktor HTR atau VHTR untuk pembangkit listrik bertenaga nuklir atau sumber panas.

IV. KESIMPULAN

1. Perubahan kadar karbon (rasio C/U) dalam gel uranium karbida hasil proses gelasi eksternal, suhu dan waktu sintering berpengaruh terhadap sifat kimia dan fisis kernel UCO sinter. Kondisi relatif baik adalah pada rasio C/U sebesar 4,17; suhu sintering 1100 °C dan waktu sintering 2 jam.
2. Analisis sifat kimia kernel UCO sebelum dan sesudah sintering menunjukkan bahwa terjadi perubahan struktur molekul kernel UCO diikuti pergeseran pita serapan infra merah ikatan O–U–O dari bilangan gelombang 740,6 cm⁻¹ ke 650,0 cm⁻¹ dan pita serapan ikatan C–C yang terkonyugasi dengan ikatan O–U–O dengan membentuk ikatan C–C–U dari bilangan gelombang 1319,12 – 123,7cm⁻¹ ke 1339,82 cm⁻¹ serta hilangnya pita serapan infra merah pada ikatan rangkap dua dan tiga, ikatan hidrogen dan hidroksi pada kernel UCO sinter.
3. Analisis sifat fisisnya menunjukkan bahwa terjadi perubahan struktur kristal pada kernel UCO sinter, diikuti peningkatan kerapatan, perubahan luas muka spesifik, jari-jari pori merata dan diameter butiran padatan. Perubahan sifat fisis tersebut adalah akibat perubahan struktur kristal pada kernel UCO selama proses sintering. Kernel UCO sinter yang dihasilkan terdiri dari campuran UO₂ dan UC₂, berbentuk bulat, memiliki permukaan halus dan diameter padatan sebesar 836 – 954 µm.

V. UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terima kasih penulis sampaikan pada saudara Anis Rohanda dan Bambang Kuncoro, Mahasiswa Teknik Fisika UGM dan para teknisi Bidang Kimia dan Proses Bahan PTAPB–BATAN yang telah banyak membantu hingga penelitian dapat diselesaikan.

VI. DAFTAR PUSTAKA

1. STINTON, D.P., LACKEY, W.J., and SPENCE, R.D., “Production of Spherical UO₂-UC₂ for Nuclear Fuel Applications Using Thermochemical Principles”, J. American Ceramic Society, Vol.65, No.7, 1982, pp.321-324.
2. BIILLOT, P., and BARBIER, D., “Very High Temperature Reactor (VHTR) – The French Atomic Energy Commission (CEA) R&D Program”, 2nd Int. Topical on High Temperature Reactor Technology, Beijing, China, 2004, pp.1-26.
3. ION, S., NICHOLLS, D., and MATZNER, D., “Pebble Bed Modular Reactor – The First Generation IV Reactor to be Constructed”, World Nuclear Association Annual Symposium, 2003, pp.1-6.
4. DAMUNIR, “Kajian Pengaruh Aditif Urea dan Heksametenil Tetraamin pada Proses Pengendapan Gelasi Total Uranium terhadap Sifat Kimia Gel Poli (Uranil-Vinil Alkohol)”, Prosiding PPI-PDIPTN Pustek Akselerator dan Proses Bahan, BATAN, Yogyakarta, 2007, pp.74-81.
5. BAMBANG KUNCORO, “Pengaruh Suhu dan Waktu Sintering terhadap Kualitas Kernel UO₂”, Skripsi Program S-1 Teknik Nuklir, Jurusan Teknik Fisika, Fakultas Teknik UGM, Yogyakarta, 2006.
6. CUNINGHAM, G.W., WORD, J.J., and ALEXANDER, C.A., “Thermodynamics for Compatibility Studies of Metal-Clad Uranium Carbide”, BMI-1601, Battelle Memorial Institute, Columbus, Ohio, 1962, pp.1-15.

7. ALLEN, G.C., CROTS, J.A, and GRIFFITS, A.J., “Infra Red Spetroscopy of the Uranium/Oxygen System”, J. Nuclear Materials, Vol. 62, 1976, pp. 273-281.
8. SUNSHINE, I., “CRC Handbook of Spectrophotometric Data of Drugs”, CRC Series in Analytical Toxicology, CRC Press, Florida, 1981, pp.167-185.
9. WALPOLE, R., and MYERS, R., “Probability and Statistics for Engineers and Scientists”, 3rd ed., Macmillan, New York, 1983, pp.315-575.
10. DEBOER, J.H., “The Structure and Properties of Porous Materials”, Butterworths, London, 1958, pp.1-68.
11. GREGG, S.J., and SING, K.S.W., “Adsorption, Surface Area and Porosity”, 2nd ed., Academic Press Inc., London, 1982, pp.25-150.
12. BREY, I., FAKUDA, K., HARSON, D.L., MOMAN, R., and KHOULRV, A., “Fuel Performance and Fission Product Behavior in Gas Cooled Reactor”, IAEA-TECDOC-987, International Atomic Energy Agency, IAEA, Austria, 1997, pp.3-113.
13. ROUGH, F.A., and BAUER, A.A, “Constitution of Uranium and Thorium Alloys”, BMI-1300, Battelle Memorial Institute, Columbus, Ohio, 1958, pp.19-52.