

## **PENGARUH SUHU, WAKTU DAN PROSES RE-OKSIDASI PELET BAHAN BAHAN BAKAR BEKAS PWR SIMULASI**

**Sigit\*, Hendro Wahyono\*, Ghaib Widodo\*, Moch. Setyadji\*\***

\*Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN, Serpong

\*\* Pusat Teknologi Akselerator Dan Proses Bahan – BATAN, Yogyakarta

e-mail: sigit@batan.go.id

(Diterima 03-01-2012, disetujui 21-03-2012)

### **ABSTRAK**

**PENGARUH SUHU, WAKTU DAN PROSES RE-OKSIDASI PELET BAHAN BAHAN BAKAR BEKAS PWR SIMULASI.** Telah dilakukan pembuatan pelet bahan bakar bekas PWR simulasi dengan cara kompaksi terhadap campuran serbuk  $UO_2$  yang ditambah dengan serbuk Sr, Y, Zr, Mo, Ru, Rh, Pd, Te, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Cd, Eu, Gd, dan Sb oksida sebagai unsur hasil fisi simulasi hingga menjadi pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) mentah. Pelet mentah tersebut kemudian disinter pada suhu  $1700\text{ }^\circ\text{C}$  selama 4 jam hingga menjadi pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) sinter. Terhadap pelet mentah dan pelet sinter dilakukan pengukuran dimensi, volume dan berat untuk menentukan densitas pelet, sedangkan untuk serbuk diukur *apparent density*, *tap density* dan *true density*. Pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) sinter tersebut kemudian dioksidasi pada suhu dan waktu yang bervariasi hingga diperoleh serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi). Proses tersebut adalah oksidasi ke-1. Serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi) direduksi menjadi serbuk ( $UO_2$ +hasil fisi) lalu dikenai proses oksidasi ke-2 menjadi ( $U_3O_8$ +hasil fisi). Proses oksidasi dan reduksi diulangi sampai empat kali. Densitas serbuk hasil oksidasi diukur dan diamati struktur mikronya, serta ditentukan efisiensi proses oksidasi. Pengulangan proses oksidasi tersebut bertujuan untuk memperoleh serbuk dengan densitas tinggi sebagai bahan baku untuk proses reduksi. Hasil percobaan menunjukkan bahwa tekanan kompaksi berpengaruh pada densitas pelet yang diperoleh. Makin tinggi tekanan kompaksi, makin tinggi pula densitas baik pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) mentah maupun sinter. Pada tekanan kompaksi  $6,3168\text{ ton/cm}^2$  diperoleh densitas pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) mentah dan sinter masing-masing  $6,13\text{ g/cm}^3$  dan  $9,9726\text{ g/cm}^3$  ( $90,91\%TD/Theoretical\ Density$ ). Proses oksidasi selama 1 jam dan suhu  $500\text{ }^\circ\text{C}$  dan re-oksidasi ke-3 memberikan densitas hasil serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi) yang relatif baik yaitu *apparent*, *tap* dan *true density* masing-masing  $1,9996$ ,  $2,8123$  dan  $7,8057\text{ g/cm}^3$  dan efisiensi proses oksidasi 100%.

**Kata kunci:** Proses oksidasi, pelet bahan bakar bekas PWR simulasi, hasil fisi, densitas nyata, ketuk, dan sejati

### **ABSTRACT**

**EFFECT OF TEMPERATURE, TIME AND RE-OXIDATION PROCESS OF SIMULATION PWR SPENT FUEL PELLETS.** Manufacture of simulation PWR spent fuel pellets has been done by compacting mixture of  $UO_2$  powder with Sr, Y, Zr, Mo, Ru, Rh, Pd, Te, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Cd, Eu, Gd, and Sb oxides as simulation element to produce ( $UO_2$  + fission products) green pellets. Green pellets are then sintered at a temperature of  $1700\text{ }^\circ\text{C}$  for 4 hours until obtained ( $UO_2$ +fission products) sintering pellets. The green pellets and sintered pellets were measured dimensions, volume and weight to determine the density of the pellets, whereas for the powders were measured apparent density, tap density and true density. The ( $UO_2$ +fission products) sintering pellets were then oxidized at various temperatures and times to obtain ( $U_3O_8$  + fission products) powder. The process is called first oxidation process. The ( $U_3O_8$  + fission products) powder then were reduced to powder ( $UO_2$ +fission products) and subjected to second oxidation process to produce ( $U_3O_8$ +fission products) powder. Oxidation

and reduction process was repeated four times. Powder density, microstructure and oxidation efficiency were determined. Repetition of the oxidation process aims to obtain a powder with high density as green material for the reduction process. The experimental results showed that the compacting pressure affects the density of the pellets obtained. The higher the compacting pressure, the higher the density of both pellets ( $UO_2$ +fission products) green or sintered. For compacting pressure  $6.3168 \text{ ton/cm}^3$ , the ( $UO_2$ +fission product) green and sintered pellet density obtained were  $6,13$  and  $9.9726 \text{ g/cm}^3$  ( $90.91\%$  TD/Theoretical Density) respectively. Oxidation process for 1 hour, the temperature of  $500^\circ \text{C}$  and third oxidation provides the results of ( $U_3O_8$ +fission products) powder density were relatively good, that is apparent, tap and true density of  $1.9996$ ,  $2.8123$  and  $7.8057 \text{ g/cm}^3$  respectively and  $100\%$  oxidation processes efficiency.

**Keywords:** Oxidation process, PWR simulation spent fuel pelet, fission products, apparent, tap and true density

## I. PENDAHULUAN

Reaktor Air Bertekanan (*Pressurized Water Reactor/PWR*) merupakan salah satu jenis reaktor air ringan dan banyak digunakan untuk pembangkit tenaga listrik. Reaktor ini menggunakan teknik fisi nuklir dalam memanaskan air di bawah tekanan tinggi di dalam reaktor yang kemudian dilewatkan alat penukar panas (*steam generator*) sehingga dihasilkan uap untuk menggerakkan turbin dan seterusnya generator listrik. Reaktor ini pada mulanya dirancang oleh Westinghouse untuk keperluan militer yang kemudian dikembangkan untuk aplikasi komersial. Di Amerika PWR dianggap sebagai reaktor Generasi II. Di dunia saat ini, PWR banyak digunakan sebagai pembangkit listrik tenaga nuklir<sup>[1,2]</sup>. Reaktor nuklir jenis PWR mempunyai keunggulan yaitu sangat stabil karena kecenderungannya yang menghasilkan daya lebih kecil apabila ada peningkatan suhu sehingga reaktor lebih aman beroperasi dipandang dari sisi stabilitas. Di samping itu sistem pendingin primer terpisah dari sistem pendingin sekunder sehingga tidak akan terkontaminasi oleh zat radioaktif. Tetapi kekurangannya adalah air pendingin harus bertekanan tinggi agar tetap dalam kondisi cair, sehingga memerlukan pemipaan dan bejana tahan tekanan karena kenaikan tekanan dapat menyebabkan *LOCA* (*loss-of-coolant accident*)

memerlukan penambahan peralatan seperti generator uap, pompa pendingin, *pressurizer* dll<sup>[3]</sup>. Dalam teknologi nuklir saat ini yang merupakan energi terbarukan, energinya digunakan untuk pembangkit tenaga listrik yang memenuhi kriteria ketersediaan bahan bakar, penggunaan air untuk pendingin serta aspek keselamatan dan keamanan yang handal<sup>[4]</sup>.

Bahan bakar PWR yang digunakan adalah uranium dalam bentuk  $UO_2$  keramik yang diperkaya 3-4%. Bahan bakar bentuk keramik mempunyai keunggulan yaitu ketahanan pada saat operasi reaktor karena titik lelehnya yang tinggi, stabil pada lingkungan radiasi, baik mengenai struktur dimensi, maupun volume karena tidak terjadi perubahan transformasi fasa pada suhu rendah dan mempunyai daya tahan korosi karena oksidasi<sup>[5,6,7]</sup>. Setelah digunakan, bahan bakar tersebut menjadi bahan bakar bekas yang masih mengandung 0,9% uranium-235. Sementara itu uranium alam mengandung 0,7% U-238 yang merupakan bahan bakar reaktor tipe Candu atau PHWR sehingga bahan bakar bekas PWR dapat diolah lagi agar dapat digunakan menjadi bahan bakar untuk reaktor Candu/PHWR<sup>[8]</sup>.

Di Amerika, pengolahan bahan bakar bekas dari reaktor komersial dilakukan dengan proses AIROX (*Atomics International Reduction Oxidation*). AIROX merupakan proses daur ulang cara kering yang hanya melibatkan material bentuk padat

dan gas. Reaksi pirokimia yang terjadi pada suhu 400-600 °C memisahkan bahan bakar dari kelongsongnya dan bahan volatil lainnya. Proses oksidasi yang terjadi merontokkan bahan bakar dari kelongsong,  $UO_2$  keramik mekah dan hancur menjadi butiran  $U_3O_8$  yang mudah dipisahkan dari kelongsongnya. Selama proses tersebut berlangsung, produk fisi seperti Xe, I,  $^3H$ , Kr terlepas, sedangkan bahan semi volatil Cs dan Ru lepas pada saat proses sinter. Adapun hasil fisi volatil sedang dan rendah seperti Zr, La, Pd, Sr dan Ba tertinggal dalam bahan bakar bekas bersama-sama dengan uranium, plutonium dan aktinida. Setelah proses Airox tersebut, di dalam bahan bakar bekas masih terkandung 1,4% bahan fisil tergantung dari *burn up* dan pengkayaan awalnya yang kemudian digunakan kembali dengan proses peletisasi, fabrikasi untuk membuat *rod* bahan bakar. Bahan bakar hasil daur ulang dengan proses Airox ini dapat digunakan sebagai bahan bakar pada reaktor CANDU atau dapat pula dipakai pada reaktor pembiak cepat. Untuk penggunaan pada reaktor air ringan, bahan bakar hasil proses Airox perlu ditambah dengan  $^{235}U$  atau  $^{239}Pu$ . Dengan menggunakan kelongsong yang baru, maka bahan bakar hasil proses Airox tidak menimbulkan persoalan<sup>[9]</sup>.

Kanada telah mengembangkan siklus bahan bakar CANDU-LWR secara sinergi, di mana reaktor PWR yang menghasilkan bahan bakar bekas dengan kandungan  $^{235}U$  sekitar 0,9% digunakan kembali untuk reaktor CANDU setelah mengalami proses oksidasi-reduksi. Seperti diketahui reaktor CANDU menggunakan uranium alam dengan kandungan  $^{235}U$  0,7%. Korea Selatan telah merealisasikan pengoperasian reaktor PWR dan CANDU sehingga bahan bakar bekas dari PWR dapat digunakan untuk reaktor CANDU[10]. Proses yang dilakukan adalah pengulangan proses oksidasi dan reduksi (*OREOX/Oxidation and reduction of oxide fuel*) beberapa kali hingga diperoleh serbuk sebagai bahan bakar baru (disebut bahan bakar *DUPIC/Direct Use of PWR fuel In Candu*

*reactor*) atau sebagai tambahan pada bahan bakar segar. Proses oksidasi pelet ( $UO_2+ZrO_2$ ) sinter telah dilakukan guna mengetahui karakteristik dari serbuk yang dihasilkan<sup>[11]</sup>.

Pada penelitian ini dipelajari proses pengulangan oksidasi pelet bahan bakar bekas PWR yang dibuat secara simulasi yaitu dengan mencampur serbuk  $UO_2$  dengan unsur Sr, Y, Zr, Mo, Ru, Rh, Pd, Te, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Cd, Eu, Gd, dan Sb dalam bentuk oksida serbuk yang dimaksudkan sebagai hasil fisi simulasi dan yang diperoleh dari aplikasi program Origen-2. Campuran serbuk tersebut kemudian dibuat pelet dengan jalan dipres, lalu dilakukan penyinteran pada suhu 1700 °C selama 4 jam. Pelet hasil sinter dioksidasi hingga menjadi serbuk  $U_3O_8$  dan hasil fisi. Serbuk ini kemudian direduksi sehingga  $U_3O_8$  berubah menjadi  $UO_2$  dan hasil fisi kembali. Proses oksidasi tersebut diulangi beberapa kali untuk mendapatkan densitas hasil yang baik. Parameter yang dipelajari adalah suhu, waktu dan pengulangan proses (re-oksidasi) terhadap densitas serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi) hasil oksidasi. Densitas yang diukur adalah *apparent, tap* dan *true density* (densitas nyata, ketuk dan sejati). Diharapkan dari percobaan ini dapat diketahui kondisi proses oksidasi yang relatif baik sehingga nantinya dapat digunakan sebagai acuan untuk proses pembuatan bahan bakar DUPIC.

## II. TATA KERJA

Bahan utama yang dipakai adalah serbuk uranium dioksida ( $UO_2$ ) dan hasil fisi simulasi yaitu serbuk Sr, Y, Zr, Mo, Ru, Rh, Pd, Te, Ba, La, Ce, Pr, Nd, Sm, Cd, Eu, Gd, dan Sb dalam bentuk oksida dengan kadar masing-masing 0,1100; 0,0649; 0,4967; 0,4171; 0,2123; 0,0426; 0,0681; 0,0426; 0,1567; 0,1335; 0,2754; 0,0168; 0,4474; 0,0769; 0,0026; 0,0119; 0,0028 dan 0,1034%, sedangkan  $UO_2$  97,3129%. Serbuk  $UO_2$  dan serbuk hasil fisi ditimbang lalu dicampur dengan alat *mixer* dan dikompaksi

dengan mesin pres Komage pada berbagai tekanan menjadi pelet ( $\text{UO}_2$ +Hasil Fisi) mentah. Pelet mentah tersebut kemudian disinter menggunakan tungku sinter pada suhu  $1700\text{ }^\circ\text{C}$  selama 4 jam hingga menjadi pelet ( $\text{UO}_2$ +Hasil Fisi) sinter. Peralatan bantu lainnya adalah piknometer, timbangan analitik, krus dari bahan keramik, gelas ukur dll. Pelet mentah dan pelet sinter tersebut ditentukan densitasnya dengan cara seperti pada pustaka<sup>[12]</sup>.

Pelet ( $\text{UO}_2$ +Hasil Fisi) sinter ditimbang pada berat tertentu kemudian dioksidasi di dalam tungku Heraeus pada suhu  $400 - 500\text{ }^\circ\text{C}$  selama  $0,5 - 2$  jam. Hasil oksidasi adalah ( $\text{U}_3\text{O}_8$ +Hasil Fisi) berbentuk serbuk yang kemudian ditimbang dan ditentukan densitasnya. Proses oksidasi tersebut adalah oksidasi ke-1. Serbuk ( $\text{U}_3\text{O}_8$ +Hasil Fisi) ini kemudian direduksi menjadi serbuk ( $\text{UO}_2$ +Hasil Fisi). Sebagai proses oksidasi ke-2, serbuk ( $\text{UO}_2$ +Hasil Fisi) dioksidasi kembali sehingga menjadi ( $\text{U}_3\text{O}_8$ +Hasil Fisi). Proses oksidasi-reduksi ini diulangi lagi sampai 4 kali. Serbuk hasil oksidasi ditentukan densitasnya. Densitas yang diukur adalah *apparent*, *tap* dan *true density*. *Apparent density* ditentukan dengan cara memasukkan serbuk kedalam gelas ukur kapasitas 10 mL, kemudian ditimbang dan diukur volumenya. *Tap density* ditentukan dengan cara menjatuhkan gelas ukur setinggi 10 cm sebanyak 7 kali lalu diukur volumenya. *True density* ditentukan dengan menggunakan piknometer. Densitas ditentukan sebagai berat dibagi volume. Selain itu ditentukan juga efisiensi proses oksidasi dengan membandingkan berat serbuk yang diperoleh dengan perhitungan teoritisnya dikalikan 100%..

### III. HASIL DAN PEMBAHASAN

#### 3.1. Pembuatan pelet sinter

Hasil kompaksi campuran serbuk  $\text{UO}_2$  dan hasil fisi adalah pelet mentah ( $\text{UO}_2$ +hasil fisi). Kompaksi dilakukan pada berbagai tekanan pengompakan yaitu  $3 - 7$  MP atau  $3,1584 - 7,3696\text{ ton/cm}^2$ . Sebanyak

113 buah pelet ( $\text{UO}_2$ +hasil fisi) mentah telah berhasil dibuat kemudian ditimbang, diukur dimensinya untuk menentukan volum setiap pelet. Masing-masing pelet ditentukan densitasnya dengan membagi berat dengan volumenya. Untuk pelet ( $\text{UO}_2$ +hasil fisi) sinter penentuan densitasnya sama dengan pelet mentah. Hasil pengukuran untuk masing-masing pelet dirata-rata, hasilnya dapat dilihat pada Tabel 1 (lampiran). Terlihat bahwa makin tinggi tekanan, densitas makin tinggi. Hal ini dapat dimaklumi karena semakin tinggi tekanan, semakin kecil volum pelet. Densitas pelet ( $\text{UO}_2$ +hasil fisi) sinter juga makin tinggi dengan naiknya tekanan pengompakan. Dibandingkan dengan densitas pelet  $\text{UO}_2$  teoritis (DT) yaitu  $10,96\text{ g/cm}^3$ , densitas pelet ( $\text{UO}_2$ +hasil fisi) sinter tertinggi yang diperoleh masih lebih rendah yaitu  $9,9726\text{ g/cm}^3$  atau 90,99%. Hal ini disebabkan adanya tambahan hasil fisi ke serbuk  $\text{UO}_2$  yang cukup banyak sehingga mempengaruhi densitas akhirnya. Berat pelet sinter yang diperoleh lebih ringan daripada berat pelet mentah karena pada waktu sinter terjadi penguapan bahan volatil yang ada misalnya air.

#### 3.2. Oksidasi Pelet Sinter

Proses oksidasi dilakukan di dalam tungku kalsinasi Heraeus. Pelet ( $\text{UO}_2$ +hasil fisi) sinter dari berbagai tekanan pengompakan tersebut ditimbang, diletakkan pada krus keramik, dimasukkan dalam tungku lalu dipanaskan pada suhu  $400 - 600\text{ }^\circ\text{C}$  dan waktu  $0,5 - 2$  jam. Proses oksidasi ini merupakan oksidasi ke-1. Setelah mengalami pemanasan tersebut, bahan bakar yang tadinya berbentuk pelet pecah menjadi serbuk. Hal ini disebabkan oksidasi bahan bakar keramik  $\text{UO}_2$  berubah menjadi  $\text{U}_3\text{O}_8$  granular yang memecah pelet menjadi bentuk serbuk.  $\text{U}_3\text{O}_8$  granular yang tercampur dengan hasil fisi kemudian ditentukan densitasnya dan ditentukan pula efisiensi dari proses oksidasinya.

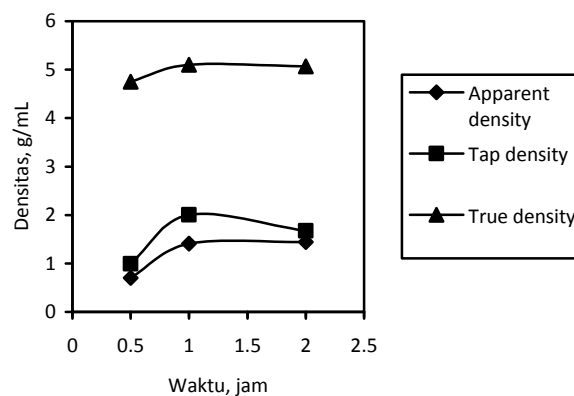
### 3.3. Pengaruh suhu dan waktu terhadap densitas

Pada Tabel 2 (lampiran) dapat dilihat tekanan kompaksi pada pembuatan pelet mentah, berat pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) sinter sebelum dikenai proses oksidasi, berat serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi) hasil oksidasi, berat  $U_3O_8$  menurut perhitungan teoritis (stoikhiometri), densitas dan efisiensi oksidasi untuk tekanan kompaksi yang dilakukan. Pengaruh tekanan pengompakan pada pembuatan pelet mentah dari serbuk tidak berpengaruh terhadap densitas dan efisiensi oksidasi. Oleh karena itu densitas yang ditampilkan dalam grafik adalah nilai rerata. Dari Tabel 2 dapat dibuat grafik waktu versus densitas baik *apparent*, *tap* maupun *true density* seperti pada Gambar 1 – 6.

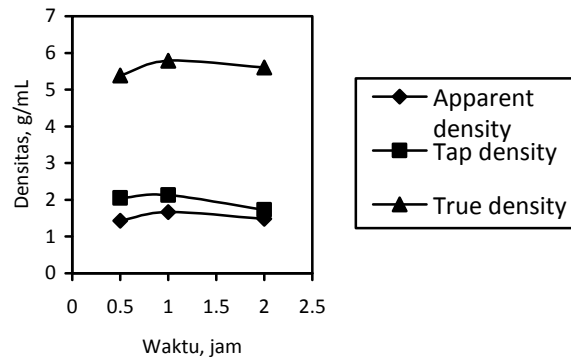
Pada Gambar 1 terlihat pengaruh waktu proses oksidasi pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) sinter pada suhu  $400\text{ }^\circ\text{C}$  terhadap *apparent*, *tap* dan *true density* dari serbuk hasil oksidasi yaitu ( $U_3O_8$ +hasil fisi). Tampak bahwa pemanasan selama 0,5 jam densitas serbuk masih rendah masing-masing adalah 0,7, 0,9918 dan 4,7521 g/mL. Jika waktu

oksidasi diperlama menjadi 1 jam, maka terjadi kenaikan densitas yang disebabkan proses oksidasi berlangsung lebih sempurna dibandingkan dengan waktu yang singkat. Namun jika waktu oksidasi ditambah, maka kenaikan itu kecil atau relatif konstan karena waktu 1 jam sudah cukup untuk kesempurnaan proses oksidasi. Kondisi yang sama seperti tersebut terjadi pula pada suhu  $500$  dan  $600\text{ }^\circ\text{C}$ , yaitu makin lama waktu oksidasi, makin tinggi pula densitas serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi) yang diperoleh (Gambar 2 dan 3).

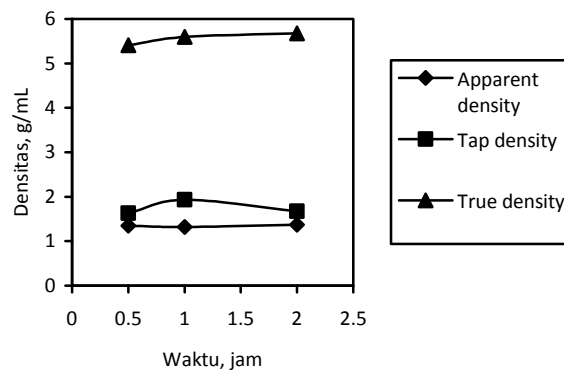
Untuk waktu oksidasi yang sama dan suhu yang bervariasi, maka tampak pada Gambar 4 – 6 dan Tabel 2 (lampiran) bahwa pada suhu  $400\text{ }^\circ\text{C}$ , densitas yang diperoleh relatif masih rendah, sedangkan jika suhu dinaikkan menjadi  $500\text{ }^\circ\text{C}$  densitasnya makin tinggi, namun pada suhu yang lebih tinggi yaitu  $600\text{ }^\circ\text{C}$ , densitasnya relatif tetap atau menurun. Dari kondisi tersebut dapat dilihat bahwa kondisi yang relatif baik adalah proses oksidasi dijalankan pada suhu  $500\text{ }^\circ\text{C}$  dengan lama pemanasan 1 jam.



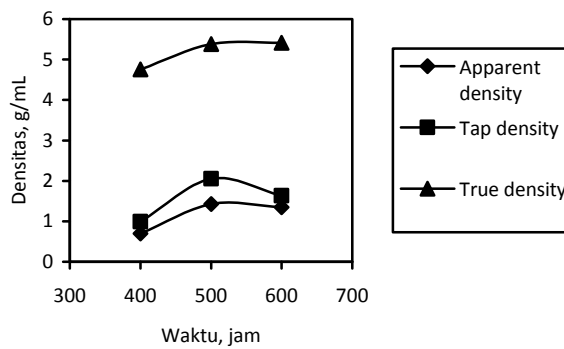
Gambar 1. Pengaruh waktu terhadap densitas pada suhu oksidasi  $400\text{ }^\circ\text{C}$ .



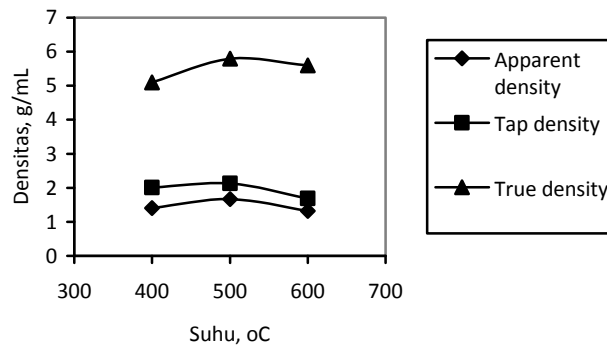
Gambar 2. Pengaruh waktu terhadap densitas pada suhu oksidasi 500 °C.



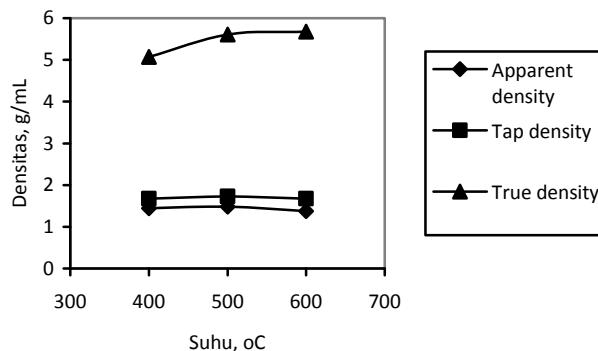
Gambar 3. Pengaruh waktu terhadap densitas pada suhu oksidasi 600 °C.



Gambar 4. Pengaruh suhu terhadap densitas untuk waktu oksidasi 0,5 jam.



Gambar 5. Pengaruh suhu terhadap densitas untuk waktu oksidasi 1 jam.



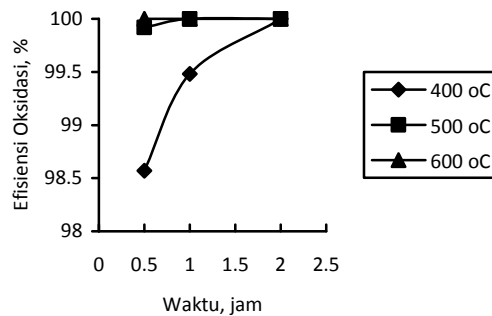
Gambar 6. Pengaruh suhu terhadap densitas untuk waktu oksidasi 2 jam.

### 3.4. Pengaruh suhu dan waktu terhadap efisiensi oksidasi

Efisiensi oksidasi dihitung sebagai perbandingan berat serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi) yang diperoleh pada percobaan dengan hasil reaksi secara teoritis stoikiometri dikalikan 100 %. Pada Gambar 7 disajikan pengaruh suhu oksidasi pada berbagai waktu terhadap efisiensi oksidasi yang diperoleh. Tampak bahwa oksidasi pada suhu rendah yaitu 400 °C, untuk waktu oksidasi 0,5 jam masih memberikan efisiensi yang rendah yaitu 98,57 atau kurang dari 100%, demikian juga jika waktu ditambah menjadi 1 jam. Efisiensi oksidasi mencapai 100% bila waktu ditambah menjadi 2 jam. Hal ini dapat dimaklumi karena semakin lama waktu oksidasi, reaksi oksidasi pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) sinter menjadi serbuk ( $U_3O_8$ + hasil fisi) karena kesempatan oksigen mengoksidasi makin besar.

Jika suhu diperbesar menjadi 500 °C dan waktu masih pendek yaitu 0,5 jam, maka efisiensi oksidasi sudah mencapai 99,92% dan apabila diperlama sampai 1 jam, maka efisiensi sudah 100 %, apalagi jika waktunya ditambah menjadi 2 jam. Untuk suhu 600 °C, dengan waktu relatif singkat yaitu 0,5 jam, efisiensi oksidasi sudah mencapai 100%. Namun penggunaan suhu yang tinggi ini berarti energi yang dibutuhkan juga lebih besar.

Dari uraian di atas dapat dipahami bahwa dilihat dari sisi besarnya densitas yang diperoleh dan efisiensi proses oksidasi, maka dipilih kondisi operasi yang relatif baik adalah suhu 500 °C, waktu 1 jam. Pada kondisi tersebut, oksidasi pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) sinter menghasilkan *apparent*, *tap* dan *true density* serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi) masing masing sebesar 1,6659, 2,1305 dan 5,7908 g/mL serta efisiensi oksidasi 100%.



Gambar 7. Pengaruh suhu terhadap efisiensi proses oksidasi untuk waktu 0,5 – 2 jam.

Sebagai ilustrasi, pada Gambar 8a disajikan pelet ( $\text{UO}_2$ +hasil fisi) sinter sebelum dioksidasi yaitu masih berupa pelet,



Gambar 8a. Pelet ( $\text{UO}_2$ +hasil fisi) sinter

dan Gambar 8b serbuk ( $\text{U}_3\text{O}_8$ +hasil fisi) hasil proses oksidasi yang sudah berubah menjadi serbuk.



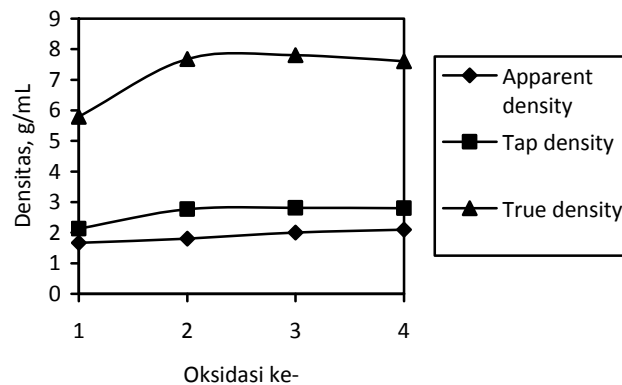
Gambar 8b. Serbuk ( $\text{U}_3\text{O}_8$ +hasil fisi) hasil proses oksidasi

### 3.5. Proses Re-oksidasi

Seperti telah dijelaskan di depan, untuk mendapatkan bahan bakar DUPIC dilakukan proses OREOX atau oksidasi-reduksi sampai diperoleh serbuk bahan bakar yang *sinterable*. Untuk itu proses oksidasi diulangi sampai beberapa kali pengulangan sehingga dapat menaikkan densitas serbuk. Guna merealisasikan tahap ini, maka serbuk ( $\text{U}_3\text{O}_8$ +hasil fisi) di atas direduksi menjadi serbuk ( $\text{UO}_2$ +hasil fisi) kembali. Kemudian

sebagai siklus oksidasi ke-2, serbuk ( $\text{UO}_2$ +hasil fisi) dioksidasi pada kondisi operasi yang relatif baik yang diperoleh sebelumnya yaitu pada suhu  $500\text{ }^\circ\text{C}$  dan waktu 1 jam. Hasil oksidasi adalah serbuk ( $\text{U}_3\text{O}_8$ +hasil fisi) yang kemudian ditentukan densitasnya. Proses tersebut diulangi sampai siklus oksidasi ke-4. Data hasil proses ditampilkan pada Tabel 3 (lampiran) dan Gambar 9.





Gambar 9. Pengaruh proses re-oksidasi terhadap densitas serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi)

Pada Gambar 9 dapat dilihat bahwa densitas serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi) baik *apparent*, *tap* maupun *true density* pada oksidasi ke-1 lebih rendah dibandingkan pada pengulangan proses oksidasi yaitu pada oksidasi ke- 2, ke-3 dan ke-4. Hal ini disebabkan pada oksidasi ke-1, bentuk serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi) yang diperoleh dari oksidasi pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) masih belum sempurna mengingat perubahan bentuknya dari pelet ke serbuk. Sebaliknya pada oksidasi ke-2, ke-3 dan ke-4, bahan awalnya sudah berbentuk serbuk sehingga reaksi lebih sempurna dan butir-butir lebih terdistribusi merata. Jika dilihat antara oksidasi ke-2 dan ke-3, kenaikan densitas masih terjadi walaupun kecil, sedangkan untuk oksidasi ke-4, relatif sudah konstan atau terjadi penurunan sedikit (lihat juga Tabel 3 – lampiran). Pada proses re-oksidasi tersebut, kondisi operasi yang relatif baik adalah pada pengulangan proses oksidasi (re-oksidasi) ke-3 dimana densitas yang diperoleh untuk *apparent*, *tap* dan *true density* masing-masing 1,9996, 2,8123 dan 7,8057 g/mL, atau untuk *true density* sebesar 94,16% ( $TD/Theoretical\ Density$ ).

#### IV. KESIMPULAN

Dari penelitian dapat disimpulkan bahwa oksidasi telah merubah pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) menjadi ( $U_3O_8$ +hasil fisi) yang berbentuk serbuk karena  $UO_2$  keramik

mengembang dan hancur menjadi butiran  $U_3O_8$ . Densitas hasil proses oksidasi dipengaruhi oleh suhu, waktu dan pengulangan proses oksidasi. Oksidasi pada suhu 400 °C memberikan densitas hasil yang relatif masih rendah baik *apparent*, *tap* maupun *true density*. Jika suhu dinaikkan menjadi 500 °C, terjadi kenaikan densitas, namun bila suhu dinaikkan lagi menjadi 600 °C densitasnya relatif tetap atau mengalami penurunan sedikit. Pengaruh waktu terhadap densitas juga nampak bahwa semakin lama proses oksidasi densitasnya bertambah, namun setelah 2 jam densitasnya relatif tetap atau menurun. Efisiensi proses oksidasi pada pemanasan 400 °C mencapai 100% untuk waktu yang cukup lama yaitu 2 jam, tetapi jika suhunya dinaikkan menjadi 500 °C atau 600 °C, maka efisiensi proses oksidasi sudah mendekati/mencapai 100%. Pada oksidasi ke-1 di mana pelet pecah menjadi serbuk, densitas serbuk hasil oksidasi masih rendah, tetapi pada oksidasi ke-2 terjadi kenaikan densitas, demikian pada oksidasi ke-3, sedangkan pada oksidasi ke-4 densitasnya relatif tetap atau bahkan sedikit terjadi penurunan. Kondisi proses oksidasi yang relatif baik adalah suhu 500 °C, waktu 1 jam dan proses re-oksidasi yang ke-3. Pada kondisi tersebut diperoleh *apparent*, *tap* dan *true density* masing-masing 1,9996, 2,8123 dan 7,8057 g/cm<sup>3</sup> dan efisiensi proses oksidasi 100%.

## V. UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih yang sebesar-besarnya kepada Ir. Haryono Setyo Wibowo, Ir. Prayitno, Drs. Damunir, Triyono, ST, para pelaksana kompaksi dan sintering serta semua pihak yang telah membantu dalam penelitian ini.

## VI. DAFTAR PUSTAKA

1. <http://www.nucleartourist.com/type/pwr.htm>. Pressurized Power Reactor. The Virtual Nuclear Tourist, revised 2005
2. <http://www.ansn-jp.org/jneslibrary/npp1.pdf>. Pressurized Water Reactor Power Plant, retrieved on 19<sup>th</sup> February, 2011
3. Glasstone & Sesonske, A., (1994). Nuclear Reactor Engineering. Chapman and Hall, ISBN 0412985217.
4. Benjamin, K. S., (2010), A Critical Evaluation of Nuclear Power and Renewable Electricity in Asia, Journal of Contemporary Asia, Vol. 40, No. 3, , p. 381.
5. Benjamin, M.A., (1983), Nuclear Reactor Material and Applications, Van Nostrand Reinhold Company, New York
6. Fizzoti, C., (1984), Principle of Nuclear Fuel Production, Vol. 1, Uranium and Plutonium, ENEA/BATAN
7. Thomas, L. E. & Einziger, R. E., (2003), Grain Boundary Oxidation Of Pressurized-Water Reactor Spent Fuel In Air, Pacific Northwest Laboratory, P.O. Box 999, Mail Stop P7-14, Richland, WA 99352, USA
8. Yang, M.S., Yang, M.S., Kim ,B.G., Song, K,W., Bae, K.K., Kim, S.S., Kim, W.K., Jung, I.H. & Park, H.S., (2005), Characterisitcs of Dupic Fuel Fabrication Technology, Kaeri, Taejon
9. Majumdar, D., Jahshan, S.N., Allison, C.M., Kuan, P. & Thomas, T.R., (1992), Recycling of Nuclear Spent Fuel with AIROX Processing, DOE/ID-10423
10. Suk, H.C., Sim, M.S., Park, H.S., Kim, B.K., (1995), Korea's Candu Fuel R&D Program", 4<sup>th</sup> International Conference on CANDU Fuel, pp. 1-7 s/d 1-17, Canada
11. Ghaib Widodo, Haryono, S.W., Hendro Wahyono, Sigit, (2008), Proses Oksidasi Pelet (UO<sub>2</sub>+ZrO<sub>2</sub>) Sinter, Jurnal Teknologi Bahan Nuklir, Vol.4, No.1, 12-19
12. Hendro Wahyono, Ghaib Widodo, Sigit, Tata Terbit S, (2008), Karakterisasi Pelet Campuran Uranium Oksida Dan Zirkonium Oksida Hasil Proses Sinter, Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir, Urania, hal. 11-16, Vol.14 No.1, , ISSN 0852-4777

## VII. LAMPIRAN

Tabel 1. Densitas pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) mentah dan pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) sinter.

Tekanan pengompakan, ton/cm <sup>2</sup>	Pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) mentah			Pelet ( $UO_2$ +hasil fisi) sinter		
	Berat pelet, g	Volum pelet, cm <sup>3</sup>	Densitas, g/cm <sup>3</sup>	Berat pelet, g	Volum pelet, cm <sup>3</sup>	Densitas, g/cm <sup>3</sup>
3,1584	5,906	1,114	5,30	5,5912	0,6001	9,3171
4,2112	6,449	1,152	5,60	6,1203	0,6426	9,5243
5,2640	6,581	1,084	6,07	6,2048	0,6430	9,6498
6,3168	6,722	1,097	6,13	6,6165	0,6634	9,9726

Tabel 2. Data pengaruh suhu dan waktu terhadap densitas serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi) serta efisiensi oksidasi.

Tekanan Kompaksi, ton/cm <sup>3</sup>	Suhu, °C	Waktu, jam	Berat, g			Densitas serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi), g/mL			Efisiensi oksidasi, %
			Pelet (sblm. oks.)	$U_3O_8$ + hasil fisi (stlh. oks.)	$U_3O_8$ teroris	Apparent	Tap	True	
3,1584	400	0,5	24,1033	24,6897	25,0555	0,7924	1,1132	4,4924	98,54
4,2112			26,8822	27,6595	27,9443	0,7577	1,0608	5,1518	98,98
5,2640			11,4035	11,7659	11,8540	0,6375	0,9394	4,6925	99,26
6,3168			10,2767	10,4159	10,6827	0,6124	0,8351	4,6717	97,50
						Rerata 0,7000	Rerata 0,9918	Rerata 4,7521	Rerata 98,57
3,1584		1	24,1083	24,9583	25,0555	1,3172	2,0326	5,6429	99,61
4,2112			26,8722	27,7737	27,9442	1,3802	2,0304	5,2011	99,38
5,2640			9,39128	9,70567	9,76229	1,5512	2,1132	4,9421	99,42
6,3168			9,78265	10,1195	10,1691	1,3818	2,8214	4,5699	99,51
						Rerata 1,4076	Rerata 2,0030	Rerata 5,1015	Rerata 99,48
3,1584		2	11,3593	11,7866	11,8080	1,3546	1,6639	5,5264	99,81
4,2112			10,4715	10,8783	10,8852	1,4949	1,6924	5,1732	99,94
5,2640			6,7258	7,0058	6,99152	1,4499	1,6715	4,5227	100,20
6,3168			6,5855	6,8622	6,8457	1,4642	1,6582	5,0705	100,24
						Rerata 1,4409	Rerata 1,6715	Rerata 5,0707	Rerata 100
3,1584		500	0,5	9,65705	10,0375	10,0386	1,3784	2,0997	5,6234
4,2112	17,3193			17,9882	18,0035	1,4071	1,9824	5,2982	99,92
5,2640	3,49579			3,62797	3,63389	1,4492	2,0739	5,9106	99,84
6,3168	5,48134			5,69507	5,69789	1,4856	2,0520	4,6944	99,95
						Rerata 1,4301	Rerata 2,0515	Rerata 5,3811	Rerata 99,92

Tekanan Kompaksi, ton/cm <sup>3</sup>	Suhu, °C	Waktu, jam	Berat, g			Densitas serbuk (U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> +hasil fisi), g/mL			Efisiensi oksidasi, %
			Pelet (sblm. oks.)	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> + hasil fisi (stlh. oks.)	U <sub>3</sub> O <sub>8</sub> teroris	Apparent	Tap	True	
3,1584	600	1	10,0903	10,4834	10,4889	1,5799	2,2191	6,9066	99,95
4,2112			8,89466	9,24800	9,24605	1,6677	2,0419	5,1735	100,02
5,2640			8,44652	8,79593	8,78021	1,7296	2,1316	4,5127	100,02
6,3168			7,44195	7,73953	7,73595	1,6865	2,1294	6,5704	100,05
						Rerata 1,6659	Rerata 2,1305	Rerata 5,7908	Rerata 100
3,1584		2	9,37566	9,74967	9,74605	1,3799	1,6135	4,8717	100,04
4,2112			10,4758	10,8768	10,8896	1,4118	1,8317	5,6059	99,88
5,2640			7,05906	7,34198	7,33794	1,3817	1,6911	6,0984	100,06
6,3168			7,13713	7,42416	7,41191	1,4536	1,7756	5,8519	100,07
						Rerata 1,4818	Rerata 1,7280	Rerata 5,6070	Rerata 100
3,1584		0,5	14,1635	14,7076	14,7230	1,3371	1,9741	5,2636	99,89
4,2112			8,7220	9,08079	9,06657	1,3093	1,9372	5,1749	100,16
5,2640			4,2448	4,41357	4,41252	1,3823	1,8956	4,7996	100,02
6,3168			10,0129	10,4180	10,4180	1,3679	1,9245	6,4012	100,09
						Rerata 1,3492	Rerata 1,9328	Rerata 5,4098	Rerata 100
3,1584		1	11,9128	12,3897	38,3455	1,3163	2,1994	4,9891	100,05
4,2112			14,1868	14,7947	14,7473	1,2749	2,2291	5,7217	99,98
5,2640			6,0907	6,3388	6,3313	1,3799	1,7595	5,9289	100,12
6,3168			4,5626	4,7429	4,7427	1,3155	1,7056	5,7517	100
						Rerata 1,3216	Rerata 1,6874	Rerata 5,5978	Rerata 100
3,1584	2	9,68889	10,0710	10,0717	1,4034	1,6690	4,8914	99,99	
4,2112		12,4045	12,8988	12,8946	1,3720	1,7192	5,6204	100,03	
5,2640		6,8441	7,1274	7,1145	1,3588	1,6484	6,1537	100,18	
6,3168		7,1983	7,4922	7,4827	1,3607	1,6596	6,0350	100,13	
					Rerata 1,3737	Rerata 1,6735	Rerata 5,6751	Rerata 100	

Tabel 3. Data pengaruh proses re-oksidasi terhadap densitas serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi). Suhu oksidasi 500 °C, waktu 1 jam.

Tekanan pengompakan, ton/cm <sup>2</sup>	Densitas serbuk ( $U_3O_8$ +hasil fisi), g/mL		
	<i>Apparent</i>	<i>Tap</i>	<i>True</i>
Oksidasi ke-1			
3,1584	1,5799	2,2191	6,9066
4,2112	1,6677	2,0419	5,1735
5,2640	1,7296	2,1316	4,5127
6,3168	1,6865	2,1294	6,5704
	Rerata 1,6659	Rerata 2,1305	Rerata 5,7908
Oksidasi ke-2			
3,1584	1,8550	2,8984	6,9982
4,2112	1,8888	2,6444	7,2710
5,2640	1,7027	2,7244	7,0377
6,3168	1,7819	2,8001	6,9350
	Rerata 1,8071	Rerata 2,7668	Rerata 7,0605
Oksidasi ke-3			
3,1584	1,8979	2,8468	7,6781
4,2112	2,0019	2,9224	7,5918
5,2640	1,8804	2,8088	8,0607
6,3168	2,2180	2,6712	7,8922
	Rerata 1,9996	Rerata 2,8123	Rerata 7,8057
Oksidasi ke-4			
3,1584	2,2064	2,8075	7,7042
4,2112	2,0992	3,0149	7,9507
5,2640	1,8789	2,7945	7,8770
6,3168	2,2092	2,5881	6,7083
	Rerata 2,0984	Rerata 2,8012	Rerata 7,5600