

## PENGARUH RASIO O/U TERHADAP PERUBAHAN FASE PADA HASIL PROSES OKSIDASI GAGALAN PELET SINTER $UO_2$

**Futichah, Ratih Langenati**

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN  
Kawasan PUSPIPTEK Serpong, Tangerang Selatan 15314, Banten  
*e-mail: futichah@batan.go.id*

(Diterima 6-5-2010, disetujui 11-6-2010)

### ABSTRAK

#### PENGARUH RASIO O/U TERHADAP PERUBAHAN FASE PADA HASIL PROSES OKSIDASI GAGALAN PELET SINTER $UO_2$ .

Penanganan dan pemanfaatan gagal pelet sinter dilakukan melalui proses oksidasi reduksi pada temperatur dan waktu tertentu. Proses oksidasi yang dilanjutkan dengan proses reduksi gagal pelet sinter uranium oksida dapat menghasilkan serbuk  $UO_2$  kembali, sehingga dapat digunakan sebagai serbuk awal bahan umpan dalam pembuatan pelet mentah. Selama proses oksidasi, gagal pelet sinter  $UO_2$  mengalami proses pemanasan dalam tungku dengan atmosfer udara, sehingga pelet  $UO_2$  berubah fase menjadi serbuk  $U_3O_8$ . Terjadinya perubahan fase pada uranium oksida tersebut menunjukkan pengaruh temperatur oksidasi terhadap rasio O/U pada rentang temperatur 100 °C sampai dengan 1500 °C. Sedangkan perubahan O/U menentukan jenis fase yang terbentuk pada gagal uranium oksida hasil oksidasi. Dengan demikian dapat diduga bahwa O/U sangat berpengaruh terhadap perubahan fase dan parameter kisi kristal dari fase yang terbentuk. Untuk mengetahui pengaruh rasio O/U terhadap perubahan yang mungkin terjadi pada fase yang terbentuk dan parameter kisi (panjang rusuk kisi) dari senyawa uranium oksida hasil proses oksidasi, maka diperlukan proses oksidasi gagal pelet sinter  $UO_2$  pada temperatur 600 °C dengan waktu bervariasi dari 1, 2, 3, 4, 5 dan 6 jam. Selanjutnya dilakukan uji dan analisis rasio O/U dengan metode gravimetri serta uji dan analisis kristalografi menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD) terhadap gagal pelet sinter  $UO_2$  hasil oksidasi. Dari hasil penelitian ini, dapat disimpulkan bahwa dari kurva antara rasio O/U dengan variasi waktu diperoleh korelasi dengan pendekatan persamaan  $O/U = -0,001 x^2 + 0,013 x + 2,649$  dengan  $x$  adalah waktu dalam jam. Diperoleh nilai rasio O/U pada pelet sinter yaitu sekitar 2,66 sampai 2,68, sehingga gagal pelet sinter yang telah dioksidasi pada suhu 600 °C dengan waktu tahan berbeda-beda memiliki fase  $U_3O_8$ . Korelasi O/U terhadap perubahan parameter kisi "a" dapat didekati dengan persamaan  $y = -6,986 x + 24,78$  sedangkan parameter "c" dapat didekati dengan persamaan  $y = -7,276 x + 24,99$  dengan  $x$  adalah angka rasio O/U.

**KATA KUNCI:** rasio O/U, proses oksidasi  $UO_2$ , gagal pelet sinter, parameter kisi  $U_3O_8$

## **ABSTRACT**

**THE EFFECT OF O/U RATIO ON THE PHASE CHANGE IN REJECT SINTERED  $UO_2$  PELLETS AFTER OXIDATION PROCESS.** Handling and utilization of reject sintered pellets have been performed by means of oxidation and reduction processes at certain temperature and time. An oxidation process followed by a reduction process of reject sintered uranium dioxide pellets can be used to recover the  $UO_2$  powder, so that the  $UO_2$  powder can be used as the feed in the making of raw pellets. During the oxidation process, reject sintered  $UO_2$  pellets underwent heating process in the furnace in an air atmosphere, so the  $UO_2$  pellets experienced change of phase into  $U_3O_8$  powder. The occurrence of phase change on uranium dioxide shows the effect of oxidation temperature on the O/U ratio within a temperature range of 100 °C to 1500 °C. Meanwhile, the change of O/U determines the type of phase that is formed in the uranium dioxide pellets resulted from oxidation. Therefore it can be suggested that the O/U has high influence on the phase change of crystal lattice parameters of the phase that is formed. To find out the effect of the O/U ratio on the change that may take place in the phase that is formed and the lattice parameters (lattice lengths) of the uranium oxide compound from the oxidation process, the oxidation process of reject sintered  $UO_2$  pellets was conducted at a temperature of 600 °C with variation of time of 1, 2, 3, 4, 5 and 6 h. Afterward, testing and analysis of the O/U ratio were carried out using gravimetry method and testing and analysis of the crystallography were accomplished using X-Ray Diffraction (XRD) for the reject sintered  $UO_2$  pellets from the oxidation process. From the results of this study, it can be concluded that the plot of O/U ratio against time provides a correlation with an equation approximation of  $O/U = -0.001x^2 + 0.013x + 2.649$  with  $x$  as the time in hour. The O/U ratio of the sintered pellets attained is around 2.66 to 2.68, thus the reject sintered pellets that have been oxidized at a temperature of 600 °C with different soaking time have a  $U_3O_8$  phase. The correlation between O/U and the change of the lattice parameter "a" can be approximated with the equation  $y = -6.986x + 24.78$ ; whereas for the parameter "c" it can be approximated with the equation  $y = -7.276x + 24.99$  with  $x$  as the O/U ratio value.

*FREE TERMS: O/U ratio,  $UO_2$  oxidation process, reject sintered pellets, lattice parameter of  $U_3O_8$*

## **I. PENDAHULUAN**

Rangkaian proses pembuatan pelet (peletisasi) dimulai dari serbuk uranium oksida atau  $UO_2$  alam yang dikompaksi dengan tekanan tertentu menjadi pelet mentah (*green pellet*) berbentuk silinder. Pelet mentah selanjutnya disinter dalam tungku pada temperatur, waktu dan atmosfer tertentu menjadi pelet sinter. Pelet yang telah disinter (*sintered pellet*) disempurnakan dengan penggerindaan (*grinding*) sehingga membentuk pelet akhir dengan

dimensi yang sesuai dengan spesifikasi yang ditetapkan. Pelet akhir atau pelet yang telah disempurnakan selanjutnya dilakukan uji kualitas, antara lain pengamatan visual, berat, dimensi (panjang dan diameter), densitas, angka rasio O/U, kekasaran permukaan, mikrostruktur, kelembaban, kandungan fluorin dan klorin serta pengotor. Dari seluruh tahapan proses peletisasi ini, kemungkinan terjadinya kegagalan produk tidak dapat dihindari, misalnya pelet sinter yang dihasilkan retak, ukuran pori yang terbentuk dan diameter serta tinggi pelet tidak sesuai dengan spesifikasi yang diijinkan, sehingga pelet tersebut tidak digunakan dan dikelompokkan sebagai gagal pelet. Gagal pelet ini semakin lama semakin menumpuk dan belum ada yang mengolah dan memanfaatkan kembali. Oleh karena itu, perlu diupayakan agar gagal pelet sinter dapat dimanfaatkan kembali menjadi bahan umpan atau bahan baku dalam pembuatan pelet mentah.

Penanganan dan pemanfaatan gagal pelet sinter ini dilakukan melalui proses oksidasi-reduksi pada temperatur dan waktu tertentu. Proses oksidasi yang dilanjutkan dengan proses reduksi gagal pelet sinter uranium oksida dapat menghasilkan serbuk  $UO_2$  kembali, sehingga dapat digunakan sebagai serbuk awal bahan umpan dalam pembuatan pelet mentah. Proses oksidasi yaitu proses pemanasan gagal pelet sinter  $UO_2$  dalam tungku dengan atmosfer udara, sehingga pelet  $UO_2$  berubah menjadi serbuk  $U_3O_8$  melalui reaksi berikut:



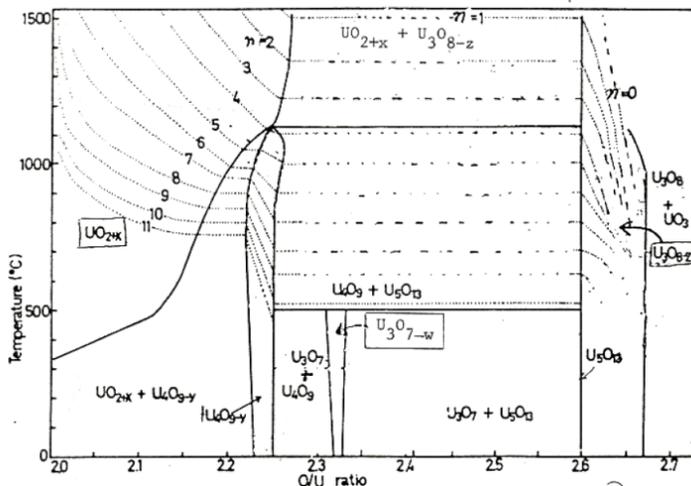
Kemudian dilanjutkan dengan proses reduksi, yaitu pemanasan dalam tungku dengan atmosfer hidrogen, mengubah  $U_3O_8$  menjadi serbuk  $UO_2$ , dengan reaksi seperti di bawah ini<sup>[2,3]</sup>.



Serbuk  $UO_2$  yang diperoleh bila sudah memenuhi spesifikasi yang ditetapkan siap digunakan kembali sebagai campuran serbuk umpan dalam pembuatan pelet mentah.

Hal-hal yang mempengaruhi proses oksidasi tersebut antara lain adalah temperatur dan waktu pemanasan. Secara umum, semakin tinggi temperatur atau semakin lama waktu pemanasan, maka kebolehdjian proses oksidasi terjadi semakin tinggi, seperti terlihat pada Gambar 1 diagram fase di bawah ini<sup>[4,5]</sup>. Diagram fase uranium-oksigen tersebut menunjukkan pengaruh temperatur terhadap rasio O/U pada rentang temperatur 100 °C sampai dengan 1500 °C. Pada temperatur antara 100 – 400 °C, adanya oksigen menyebabkan

perubahan stoikiometri uranium oksida menjadi uranium oksida lainnya, antara lain untuk rentang nilai O/U sekitar 2,25 sampai dengan 2,26 fase yang terbentuk adalah  $U_4O_9 + U_3O_7$ ,  $U_3O_{7-w}$ ,  $U_3O_7 + U_5O_{13}$ . Perubahan oksida uranium tersebut dipengaruhi oleh waktu pemanasan<sup>[2,4]</sup>. Untuk rentang nilai O/U yang sama, pada temperatur 500 °C sampai dengan 1000 °C terbentuk fase  $U_4O_9 + U_5O_{13}$  dan hampir mendekati fase  $U_3O_8$ . Demikian pula sebaliknya, perubahan dari  $U_3O_8$  menjadi  $UO_2$ , dipengaruhi oleh temperatur dan waktu pemanasan<sup>[2,4]</sup>. Berdasarkan perubahan fase yang terjadi akibat perubahan temperatur dan waktu pemanasan serta ditinjau dari unsur penyusunnya yaitu O dan U, tampak bahwa rasio O/U sangat berpengaruh terhadap jenis fase yang dibangun. Fase yang dibangun bisa berbeda dengan fase semula, tetapi terdapat juga yang sama atau pada kisaran rasio O/U tertentu tidak terjadi perubahan fase. Hal ini menimbulkan suatu pemikiran bahwa jika perubahan O/U tidak mengubah fase, maka kemungkinan besar hanya mengubah dimensi panjang (a, b atau c) dari kisi kristal fase yang terbentuk. Dengan demikian dapat diduga bahwa O/U sangat berpengaruh terhadap parameter kisi kristal dari fase yang terbentuk baik yang tetap maupun yang berubah fase, sehingga dapat diketahui perubahan fase dan parameter kisi kristal yang terbentuk dari hasil proses oksidasi gagal pelet sinter  $UO_2$ . Untuk mengetahui pengaruh rasio O/U terhadap perubahan yang mungkin terjadi pada parameter kisi kristal dari fase uranium oksida hasil proses oksidasi, maka diperlukan uji dan analisis rasio O/U dengan metode gravimetri serta uji dan analisis kristalografi menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD).



Gambar 1. Diagram fase antara temperatur dan rasio O/U<sup>[5]</sup>.

## II. TEORI

### 2.1. Rasio O/U<sup>[4]</sup>

Rasio O/U merupakan salah satu uji dari pelet atau serbuk pada analisis kendali kualitas menggunakan metode gravimetri. Metode gravimetri adalah suatu metode analisis yang berdasarkan pada prinsip penimbangan. Metode gravimetri digunakan pada beberapa bidang, di antaranya untuk mengetahui suatu spesies senyawa dan kandungan unsur tertentu atau molekul dari suatu senyawa murni yang diketahui berdasarkan pada perubahan berat atau melihat adanya perubahan senyawa yang terjadi selama pemanasan dari  $UO_2$  menjadi  $U_3O_8$  seperti pada persamaan reaksi (1). Cara pengukuran yang digunakan untuk mengetahui berat suatu bahan. Rasio O/U merupakan rasio antara oksigen dan uranium yang terkandung dalam pelet atau serbuk, yang dapat diperoleh dari % U dan dicari dengan metode gravimetri atau dengan koreksi pada tabel. Dengan rumus (3), (4), (5), (6):

$$\text{Berat U dalam } U_3O_8 = \frac{3 \times \text{BA U-238}}{\text{BM } U_3O_8} \times \text{Berat } U_3O_8 \quad (3)$$

$$\%U = \frac{\text{Berat U}}{\text{Berat } UO_2} \times 100\% \quad (4)$$

$$\text{Berat O} = \text{Berat } UO_2 - \text{Berat U} \quad (5)$$

$$\frac{O}{U} = \frac{\frac{\text{Berat O}}{\text{BA O}}}{\frac{\text{Berat U}}{\text{BA U}}} \quad (6)$$

Keterangan: pada persamaan (3), berat U adalah berat uranium setelah oksidasi atau dalam  $U_3O_8$ , BA U-238 adalah berat atom uranium sebesar 238, BM  $U_3O_8$  adalah berat molekul  $U_3O_8$  sebesar 842, dan berat  $U_3O_8$  adalah berat sampel ( $UO_2$ ) setelah oksidasi. Persamaan (4) yaitu mencari persentase uranium (% U) dengan cara menentukan berat U yang telah diperoleh dari persamaan (3) terhadap berat  $UO_2$  atau berat sampel awal (sebelum oksidasi) dikalikan dengan 100%. Persamaan (5) adalah menentukan berat O (berat oksigen) dengan cara mencari selisih antara berat  $UO_2$  atau berat sampel awal (sebelum oksidasi) dengan berat U yang diperoleh dari persamaan (3). Persamaan (6) adalah persamaan akhir untuk mendapatkan rasio O/U yang dapat ditentukan dari berat O yakni berat oksigen yang diperoleh dari

persamaan (5), BA O yakni berat atom oksigen sebesar 16, berat U yakni berat uranium yang diperoleh dari persamaan (3) dan BA U yakni berat atom uranium sebesar 238.

Dari persamaan di atas, dapat digambarkan hubungan antara suhu dan rasio O/U, seperti Gambar 1, yaitu pada fase tunggal  $UO_{2+x}$  berada di daerah sebelah ujung kiri diagram yang besar selang rasio O/U adalah 2,0 sampai  $\pm 2,25$  dengan suhu  $\pm 350$  sampai  $1500$  °C. Berikutnya daerah fase tunggal  $U_4O_{9-y}$  besar rasio O/U adalah 2,25. Rasio O/U antara 2,25 – 2,6 adalah daerah dua fase dan membatasi daerah fase tunggal  $U_3O_{7-w}$ , dengan nilai w kurang dari 1. Rasio O/U lebih besar adalah pada fase tunggal  $U_3O_{7-w}$ , yang membentuk bijih uranium. Paling kanan (yang tidak ditunjukkan) adalah fase  $UO_3 + U_3O_8$ .

## 2.2. Analisis Fase dan Parameter Kisi

Uranium dioksida mempunyai struktur kubik berpusat muka FCC (*face centered cubic*) dengan susunan atom  $CaF_2$  atau struktur fluorit. Dalam satu sel satuan  $UO_2$  ada 4 atom uranium (pada posisi  $000, \frac{1}{2} \frac{1}{2} 0, \frac{1}{2} 0 \frac{1}{2}, 0 \frac{1}{2} \frac{1}{2}$ ) dan 8 atom oksigen (pada posisi  $\pm \frac{1}{4} \frac{1}{4} \frac{1}{4}$ ). Pada suhu kamar,  $UO_2$  stoikiometri mempunyai parameter kisi sebesar  $5,469$  Å.  $UO_2$  akan cenderung menyimpang dari keadaan stoikiometri dan membentuk fase non-stoikiometri, sebagai U(IV) yang teroksidasi menjadi U(VI). Kecepatan oksidasi akan naik dengan kenaikan suhu. Pada fase non-stoikiometri, struktur fluorit  $UO_2$  perlahan-lahan berubah menjadi struktur ortorombik  $U_3O_8$ <sup>[6]</sup> yang memiliki parameter kisi sebesar  $a = 6,70$  Å;  $b = 11,94$  Å;  $c = 4,14$  Å. Tetapi kemungkinan juga membentuk struktur heksagonal dengan parameter kisi  $a = 6,708$  Å dan  $c = 4,120$  Å<sup>[7]</sup>. Dalam perhitungan parameter kisi, struktur heksagonal  $U_3O_8$  dapat didekati dengan asumsi bahwa struktur tersebut dibangun oleh tiga buah struktur BCT (*body centered tetragonal*) sehingga dapat digunakan rumusan untuk struktur tetragonal<sup>[6]</sup>.

Analisis konstanta kisi dilakukan menggunakan metode Cohen dan algoritme Cramer. Metode Cohen digunakan untuk menentukan parameter kisi saat strukturnya tetragonal. Metode ini digunakan untuk langsung menentukan parameter dengan persamaan yang kompleks dari struktur kubik.

Fase tetragonal membutuhkan persamaan Hukum Bragg (7), (8), (9)<sup>[7]</sup>.

$$\lambda = 2d \sin \theta, \quad (7)$$

$$\frac{1}{d^2} = \frac{h^2 + k^2}{a^2} + \frac{l^2}{c^2}, \quad (8)$$

$$\left. \begin{aligned} \sum \alpha \sin^2 \theta &= C \sum \alpha^2 + B \sum \alpha \gamma + A \sum \alpha \delta \\ \sum \gamma \sin^2 \theta &= C \sum \alpha \gamma + B \sum \gamma^2 + A \sum \gamma \delta \\ \sum \delta \sin^2 \theta &= C \sum \alpha \delta + B \sum \gamma \delta + A \sum \delta^2 \end{aligned} \right\} \quad (9)$$

dimana:  $d$  = jarak antar difraksi;  $a, c$  = konstanta kisi;  $h, k, l$  = indeks bidang;  $\lambda$  = panjang gelombang ( $\lambda_{cu} = 1,54056 \text{ \AA}$ );  $\theta$  = sudut difraksi;  $\alpha = h^2 + k^2$ ,  $\gamma = l^2$ ;  $\delta = 10 \sin^2 2\theta$ ,  $A = D/10$ ;  $B = \lambda^2/(4c^2)$ ;  $C = \lambda^2/(4a^2)$ ;  $A, B, C$  = numerator; dan  $D$  = konstanta.

Solusi numerator  $A, B$ , dan  $C$  dari persamaan (9) menggunakan algoritme Cramer. Terdapat tiga persamaan dengan tidak diketahui besar numerator  $A, B$ , dan  $C$ , seperti persamaan (10) antara lain:

$$\left. \begin{aligned} a_1 C + a_2 B + a_3 A &= a_4 \\ b_1 C + b_2 B + b_3 A &= b_4 \\ c_1 C + c_2 B + c_3 A &= c_4 \end{aligned} \right\}, \quad (10)^{[7]}$$

### III. TATA KERJA

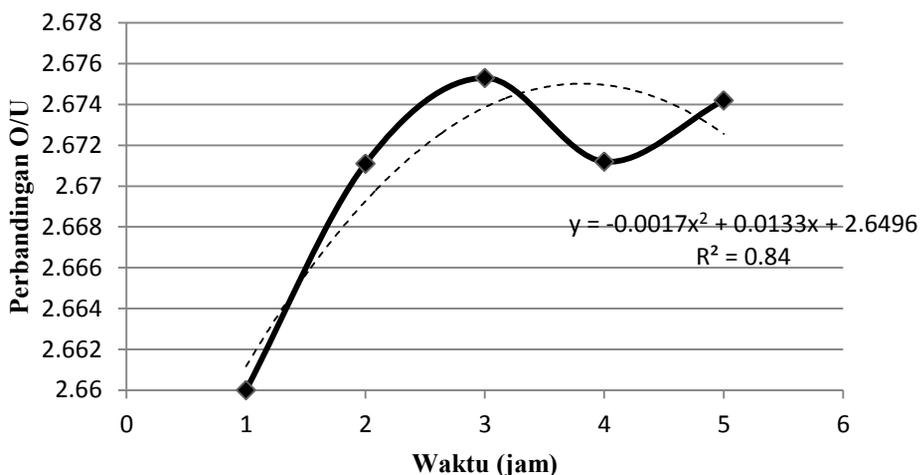
Penelitian ini menggunakan bahan yang diambil dari bagian proses peletisasi di B3N-PTBN, yaitu berupa gagal pelet sinter uranium dioksida. Gagal pelet sinter ini dioksidasi dalam tungku pada suhu  $600 \text{ }^\circ\text{C}$  dengan laju pemanasan  $3 - 5 \text{ }^\circ\text{C}/\text{menit}$  dan lama pemanasan (*soaking time*) bervariasi yaitu 1, 2, 3, 4 dan 5 jam. Gagal pelet baik sebelum maupun sesudah mengalami proses oksidasi, ditimbang dan diperiksa rasio O/U nya dengan metode gravimetri. Selanjutnya pada pelet yang sudah dioksidasi, dilakukan uji kristalografi dengan menggunakan alat *X-Ray Diffraction* (XRD). Kemudian hasil yang diperoleh dianalisis untuk menentukan parameter kisi dari fase yang terbentuk dari hasil proses oksidasi tersebut. Pola difraksi yang diolah mengacu pada hasil pengukuran pola difraksi pada hasil penelitian sebelumnya<sup>[8]</sup>.

### IV. HASIL DAN PEMBAHASAN

#### 4.1. Analisis Gravimetri

Analisis gravimetri bertujuan untuk mengetahui rasio O/U sehingga perubahan fase  $\text{UO}_2$  menjadi fase  $\text{U}_3\text{O}_8$  dapat diketahui. Fase  $\text{UO}_2$  yang memiliki besar rasio O/U sekitar 2 menjadi 2,67 dengan fase  $\text{U}_3\text{O}_8$  dan 2,7 dengan fase  $\text{U}_3\text{O}_8 + \text{UO}_3$ <sup>[5,6]</sup>. Penjelasan pada Tabel 2 dalam Lampiran adalah hasil perhitungan besarnya rasio O/U yang diperoleh dari persamaan (6).

Analisis gravimetri dalam penelitian ini dilakukan pada satu jenis sampel, yaitu pelet hasil oksidasi dari gagal pelet sinter  $UO_2$  dengan tiga kali pengulangan proses oksidasi dalam variasi waktu 1, 2, 3, 4, dan 5 jam dan juga pada sampel sebelum diberi perlakuan. Besar rasio O/U pada gagal pelet sinter rata-rata adalah sekitar 2,0189 dan setelah dioksidasi besar rasio O/U adalah 2,67. Dari Tabel 2 pada Lampiran, juga dapat dibuat kurva hubungan antara rasio O/U dengan variasi waktu, yang dapat dilihat pada Gambar 2. Penjelasan pada Tabel 2, O/U awal adalah rasio oksigen dengan uranium sebelum diberi perlakuan atau sebelum oksidasi, sedangkan O/U akhir adalah rasio antara oksigen dengan uranium setelah diberi perlakuan yaitu dengan cara dioksidasi.

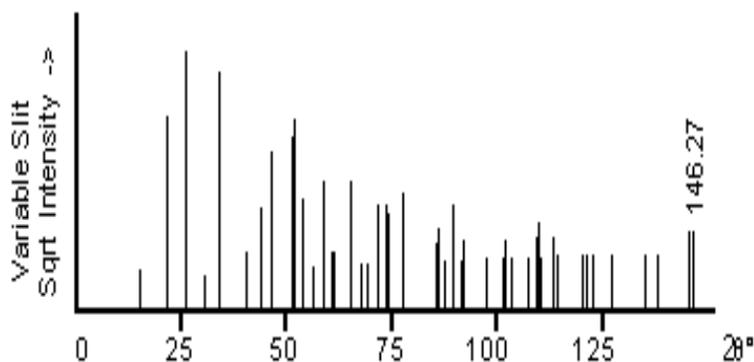


Gambar 2. Kurva hubungan antara rasio O/U dan waktu oksidasi pada suhu 600 °C.

Pada Gambar 2, jika diamati dari kurva antara rasio O/U dengan variasi waktu diperoleh korelasi dengan pendekatan persamaan rasio O/U,  $y = -0,001x^2 + 0,013x + 2,649$  dengan  $x$  adalah waktu dalam jam. Diperoleh nilai rasio O/U pada gagal pelet sinter yang telah dioksidasi yaitu sekitar 2,66 sampai 2,68. Menurut pustaka, jika ditinjau dari diagram fase (Gambar 1), fase  $U_3O_8$  berada pada rasio O/U sekitar 2,60 sampai 2,67, sehingga gagal pelet sinter yang telah dioksidasi pada suhu 600 °C dengan waktu tahan berbeda-beda memiliki fase  $U_3O_8$ .

## 4.2. Analisis Konstanta Kisi

Pengujian untuk menganalisis sistem kristal, indeksasi bidang pantulan / indeks Miller ( $hkl$ ) dan parameter kisi dengan metode Cohen pada sampel material gagal pelet sinter  $UO_2$  yang telah dioksidasi menggunakan data XRD berupa data intensitas cacahan dan besarnya sudut difraksi ( $2\theta$ ) dari sampel tersebut<sup>[9]</sup>. Salah satu contoh penentuan parameter kisi dan sistem kristalnya untuk sampel pelet sinter hasil oksidasi dengan waktu 1 jam dapat dilihat pada Tabel 3 dalam Lampiran. Langkah pertama menentukan 12 puncak tertinggi yang muncul pada pola XRD tersebut, yakni berada pada posisi  $2\theta$  : 21,16; 25,77; 33,84; 43,59; 46,46; 51,66; 53,45; 58,32; 65,75; 74,25; 85,69; dan 91,37. Posisi tersebut dibandingkan dengan data JCPDF "Smith 1979" dan dengan asumsi bahwa fase yang terbentuk adalah  $U_3O_8$  dalam struktur tetragonal. Pola difraksi atau hubungan antara intensitas dan ( $2\theta$ ) pada pelet sinter tercantum dalam pustaka<sup>[8]</sup>, dan untuk memastikan bahwa indeks bidang ( $hkl$ ) yang muncul adalah milik  $U_3O_8$  maka dibandingkan dengan pola difraksi  $U_3O_8$  yang ada pada JCPDF. Dari hasil perbandingan ternyata diperoleh lebih dari tiga puncak dari pola difraksi tersebut yang mempunyai sudut yang sama dengan pola  $U_3O_8$  dari JCPDF seperti pada Gambar 3. Sebenarnya spektra XRD pada  $U_3O_8$  ini mempunyai banyak struktur kristal yang beragam. Berdasarkan pustaka JCPDF struktur yang kemungkinan muncul adalah tetragonal dan ortorombik, tetapi dalam analisis metode Cohen ini,  $U_3O_8$  digunakan dengan memilih struktur kristalnya yaitu tetragonal, dengan maksud untuk mempermudah perhitungan sesuai dengan persamaan (8)<sup>[7]</sup>. Dari hasil perhitungan diketahui bahwa puncak-puncak tersebut adalah milik  $U_3O_8$  dengan bidang ( $hkl$ ): (0 0 1), (1 0 0), (1 1 1), (0 0 2), (3 0 0), (1 1 2), (2 0 0), (2 2 1), (3 0 2), (1 1 3), (3 2 2), (4 2 1).



Gambar 3. Pola XRD JCPDS  $U_3O_8$

Dari hasil perhitungan yang telah ditampilkan pada tabel 3 dalam Lampiran, kemudian menggunakan metode dasar algoritme Cramer untuk menentukan nilai konstanta  $A$ ,  $B$  dan  $C$  dengan persamaan (9) dan (10), maka dapat ditentukan sistem kristal dari  $U_3O_8$  dengan parameter kisi:  $a = b = 6,2312 \text{ \AA}$ ; dan  $c = 5,63013 \text{ \AA}$ . Spektra XRD  $U_3O_8$  ini menunjukkan struktur tetragonal. Hasil perhitungan konstanta kisi dan dari pustaka JCPDF diberikan pada Tabel 1. Dari hasil perhitungan tersebut selanjutnya diperoleh kurva hubungan antara parameter kisi  $a$  dan  $c$  dengan variasi waktu, seperti tampak pada Gambar 4.

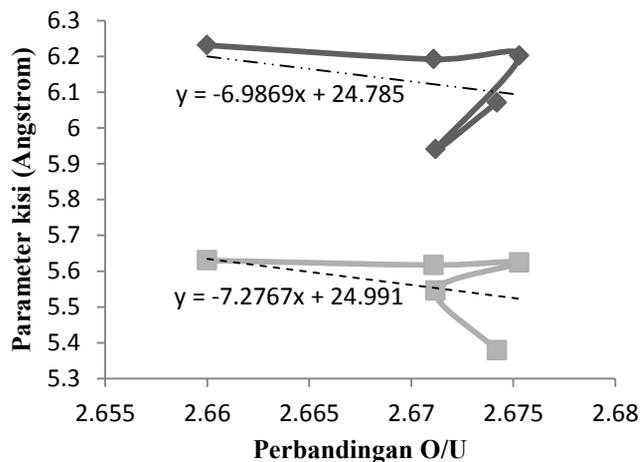
Jika dilihat dari hasil perhitungan pada Tabel 1 tampak bahwa nilai parameter kisi  $c$  lebih besar dibandingkan nilai  $c$  di pustaka, sedangkan parameter kisi  $a$  sebaliknya, sehingga nilai rasio  $c/a$  hasil penelitian lebih besar dari nilai rasio  $c/a$  dari pustaka. Hasil percobaan mengalami kenaikan sampai puncak tertinggi pada 4 jam, tetapi pada saat 5 jam mengalami penurunan kembali. Hal ini menunjukkan bahwa ukuran parameter kisi dari fase yang terbentuk bervariasi tergantung pada suhu dan lamanya waktu pemanasan serta rasio O/U nya.

Tabel 1. Hasil perhitungan konstanta kisi dari gagal pelet sinter yang telah dioksidasi pada suhu  $600 \text{ }^\circ\text{C}$  selama 1 jam hingga 5 jam, serta data dari pustaka dan JCPDF .

|   | Parameter kisi    | Pelet sinter |              |              |              |              |
|---|-------------------|--------------|--------------|--------------|--------------|--------------|
|   |                   | 1 jam        | 2 jam        | 3 jam        | 4 jam        | 5 jam        |
| Konstanta kisi  | $a \text{ (\AA)}$ | 6,2312       | 6,192        | 6,202        | 5,941        | 6,071        |
|   | $c \text{ (\AA)}$ | 5,63013      | 5,617        | 5,624        | 5,546        | 5,379        |
|   | $c/a$             | 0,903 538    | 0,907 138 24 | 0,906 804 25 | 0,933 512 88 | 0,886 015 48 |
| Pustaka konstanta kisi "Smith 1979"                   | $a \text{ (\AA)}$ | 6,812        |              |              |              |              |
|   | $c \text{ (\AA)}$ | 4,142        |              |              |              |              |
|   | $c/a$             | 0,608 0446   |              |              |              |              |
| Pustaka konstanta kisi "Samoilov '65" <sup>[10]</sup> | $a \text{ (\AA)}$ | 6,798        |              |              |              |              |
|   | $c \text{ (\AA)}$ | 4,120        |              |              |              |              |
|   | $c/a$             | 0,6061       |              |              |              |              |
| Pustaka konstanta kisi "Sigel 1955"                   | $a \text{ (\AA)}$ | 6,805        |              |              |              |              |
|   | $c \text{ (\AA)}$ | 4,136        |              |              |              |              |

Jika dilihat pada Gambar 4, korelasi O/U terhadap perubahan parameter kisi khususnya panjang rusuk " $a$ " dapat didekati dengan persamaan  $a \text{ (\AA)} = y = -6,986x + 24,78$  sedangkan parameter kisi (panjang rusuk) " $c$ " dapat didekati dengan persamaan  $c \text{ (\AA)} = y = -7,276x + 24,99$  dengan  $x$  adalah

rasio O/U. Pada nilai rasio O/U 2,66 hingga 2,67 (waktu oksidasi 1 hingga 2 jam) terjadi sedikit penurunan panjang kisi "a" dan "c", tetapi pada waktu oksidasi 3 jam dengan O/U 2,675 terjadi sedikit peningkatan nilai "a" dan "c". Perubahan dari O/U 2,66 hingga 2,675 atau waktu oksidasi 1 jam hingga 3 jam tidak menyebabkan perubahan volume unit sel yang terlalu mencolok. Hal ini mengindikasikan bahwa proses penyusutan tampak mulai terjadi yang berarti bahwa mulai terjadi pengkerutan dari unit sel struktur kubik fluorit non-stoikiometri  $UO_2$ . Kemungkinan fase yang terbentuk adalah campuran  $UO_2$  struktur fluorit<sup>[8,10]</sup> dan  $U_4O_9$  dengan struktur tetragonal yang tidak stabil serta  $U_3O_8$  dengan struktur heksagonal yang stabil. Pada hasil oksidasi selama 4 jam dan posisi nilai rasio O/U 2,671 terjadi penurunan yang sangat drastis dari parameter kisi "a" dan "c" dengan nilai "c" jauh lebih kecil dari "a" yaitu  $a = 5,941 \text{ \AA}$  dan  $c = 5,546 \text{ \AA}$ . Posisi ini mengindikasikan pembentukan fase stabil  $U_3O_8$  dalam jumlah yang besar. Demikian pula pada posisi O/U 2,674 pada hasil oksidasi selama 5 jam, parameter kisi "a" meningkat, sedangkan "c" turun sehingga mengindikasikan fase stabil  $U_3O_8$  semakin banyak. Nilai rasio parameter kisi  $c/a$  mengalami kenaikan sampai puncak tertinggi pada 4 jam, tetapi pada saat 5 jam mengalami penurunan kembali. Untuk mengetahui secara kuantitatif berapa bagian fase stabil  $U_3O_8$  yang terbentuk, maka diperlukan analisis lebih lanjut melalui rasio intensitas puncak dari fase-fase yang terbentuk.



Gambar 4. Korelasi antara nilai rasio O/U terhadap perubahan dimensi kisi a dan c pada sistem kristal dari fase yang terbentuk pada hasil oksidasi gagalan pelet sinter  $UO_2$ .

## V. KESIMPULAN

Dari hasil penelitian ini dapat disimpulkan bahwa dari kurva antara rasio O/U dengan variasi waktu diperoleh korelasi dengan pendekatan persamaan rasio  $O/U = -0,001x^2 + 0,013x + 2,649$  dengan  $x$  adalah waktu dalam jam.

Rasio O/U mempengaruhi jenis fase yang terbentuk pada gagal pelet sinter yang telah dioksidasi. Diperoleh nilai rasio O/U sekitar 2,66 sampai 2,68, sehingga gagal pelet sinter yang telah dioksidasi pada suhu 600 °C dengan waktu tahan berbeda-beda memiliki fase  $U_3O_8$ .

Rasio O/U berpengaruh pula terhadap perubahan parameter kisi yakni panjang rusuk kisi "a" yang didekati dengan persamaan  $a (\text{Å}) = -6,986x + 24,78$  dan panjang rusuk kisi "c" yang dapat didekati dengan persamaan  $c (\text{Å}) = -7,276x + 24,99$  dengan  $x$  adalah angka rasio O/U.

## VI. DAFTAR PUSTAKA

1. BATAN. (n.d). Rencana Strategis Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN 2006 – 2010.
2. ENEA. (n.d.). Manufacturing Cirene Fuel. Italy: Comb. IEEC, Nuclear Fuel Manufacturing Division.
3. Sulistyorini, D. (2007). Kestabilan Alat Kompak dalam Memproduksi Pelet  $UO_2$  Mentah (*Green Pellet*). Kerjasama antara Bidang Bahan Bakar Nuklir, Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir dan Universitas Jenderal Soedirman, Purwokerto.
4. Wati, S.K. (2006). Proses Pembuatan Bahan Bakar Nuklir. Universitas Muhammadiyah Surakarta, Surakarta.
5. Olander, D.R. (1998). Mechanistic Interpretations of  $UO_2$  Oxidation. *Journal of Nuclear Materials*, 252, 121-130.
6. Hidayati. (1993). Cacat Kisi pada Uranium Dioksida. Hasil Studi Program Doktor dan Magister, BATAN, Jakarta.
7. Irzaman, Y., Darvina, P., Arifin, M., Budiman, & Barmawi, M. (2004). Lattice Constants Analysis of Tantalum Oxide Doped Lead Zirconium Titanate Ceramic by Delphi Program. *Indonesian Journal of Physics*, 16 (2), 47-52.
8. Langenati, R., & Futichah. (2009). Regangan mikro dan Pengaruhnya terhadap Morfologi Mikrostruktur Hasil Oksidasi Gagal Pelet Sinter  $UO_2$ . *Jurnal Teknologi Bahan Nuklir*, 5 (2), 53-63.
9. Cullity, B.D., & Stock, S.R. (2001). *Elements of X-Ray Diffraction*. New Jersey: Prentice Hall.

10. Samoilov, A.G., Kashtanov, A.I., & Volkov, V.S. (1968). Dispersion Fuel Nuclear Reactor Elements. Israel Program for Scientific Translations, Jerusalem, 32.

## LAMPIRAN

Tabel 2. Hasil pengukuran berat sampel dan perhitungan O/U sebelum dan sesudah oksidasi.

| Jenis sampel                | Waktu oksidasi | Suhu oksidasi | Berat awal (Sebelum oksidasi), $W_0$ (g) | Berat akhir (Setelah oksidasi), $W'$ (g) | O/U <sub>rata-rata</sub> awal (Sebelum oksidasi) | O/U akhir (Setelah oksidasi) |
|-----------------------------|----------------|---------------|--|--|--|------------------------------|
| Gagalan pelet sinter $UO_2$ | 1 jam          | 600 °C        | 122,6                                    | 106,4                                    | 2,0189   | 2,6600                       |
|                             | 2 jam          |               | 111,8                                    | 116,0                                    |  | 2,6711                       |
|                             | 3 jam          |               | 100,1                                    | 104,1                                    |  | 2,6753                       |
|                             | 4 jam          |               | 101,2                                    | 105,2                                    |  | 2,6712                       |
|                             | 5 jam          |               | 100,1                                    | 104,0                                    |  | 2,6742                       |

Tabel 3. Analisis parameter kisi pelet sinter 1 jam.

| No       | h k l | $2\theta$ | $\theta$ | $\alpha$ | $\alpha^2$ | $\gamma$ | $\gamma^2$ | $\alpha\gamma$ | $\text{Sin}^2 2\theta$ | $\text{Sin}^2 \theta$ |
|----------|-------|-----------|----------|----------|------------|----------|------------|----------------|------------------------|-----------------------|
| 1        | 0 0 1 | 21,16     | 10,58    | 0        | 0          | 1        | 1          | 0              | 0,1303                 | 0,0337                |
| 2        | 1 0 0 | 25,77     | 12,885   | 1        | 1          | 0        | 0          | 0              | 0,189                  | 0,0497                |
| 3        | 1 1 1 | 33,84     | 16,92    | 2        | 4          | 1        | 1          | 2              | 0,3101                 | 0,0847                |
| 4        | 0 0 2 | 43,59     | 21,795   | 0        | 0          | 4        | 16         | 0              | 0,4754                 | 0,1379                |
| 5        | 3 0 0 | 46,46     | 23,23    | 9        | 81         | 0        | 0          | 0              | 0,5255                 | 0,1556                |
| 6        | 1 1 2 | 51,66     | 25,83    | 2        | 4          | 4        | 16         | 8              | 0,6152                 | 0,1898                |
| 7        | 2 0 0 | 53,45     | 26,725   | 4        | 16         | 0        | 0          | 0              | 0,6454                 | 0,2022                |
| 8        | 2 2 1 | 58,32     | 29,16    | 8        | 64         | 1        | 1          | 8              | 0,7242                 | 0,2374                |
| 9        | 3 0 2 | 65,75     | 32,875   | 9        | 81         | 4        | 16         | 36             | 0,8313                 | 0,2946                |
| 10       | 1 1 3 | 74,25     | 37,125   | 2        | 4          | 9        | 81         | 18             | 0,9263                 | 0,3643                |
| 11       | 3 2 2 | 85,69     | 42,845   | 13       | 169        | 4        | 16         | 52             | 0,9944                 | 0,4624                |
| 12       | 4 2 1 | 91,37     | 45,685   | 20       | 400        | 1        | 1          | 20             | 0,9994                 | 0,512                 |
| $\Sigma$ |       |           |          |          | 824        |          | 149        | 144            |                        |                       |

Tabel 3. Analisis parameter kisi pelet sinter 1 jam. (Sambungan)

| No       | $\delta$ | $\delta^2$ | $\gamma \delta$ | $\alpha \delta$ | $\alpha \sin 2\theta$ | $\gamma \sin 2\theta$ | $\delta \sin 2\theta$ |
|----------|----------|------------|-----------------|-----------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| 1        | 1,303    | 1,6978595  | 1,303           | 0               | 0                     | 0,034                 | 0,044                 |
| 2        | 1,89     | 3,5727025  | 0               | 1,89            | 0,04973               | 0                     | 0,094                 |
| 3        | 3,101    | 9,6168493  | 3,1011          | 6,202           | 0,1694                | 0,085                 | 0,263                 |
| 4        | 4,754    | 22,600591  | 19,016          | 0               | 0                     | 0,551                 | 0,655                 |
| 5        | 5,255    | 27,611954  | 0               | 47,29           | 1,40013               | 0                     | 0,817                 |
| 6        | 6,152    | 37,846454  | 24,608          | 12,3            | 0,37967               | 0,759                 | 1,168                 |
| 7        | 6,454    | 41,647804  | 0               | 25,81           | 0,80895               | 0                     | 1,305                 |
| 8        | 7,242    | 52,445349  | 7,2419          | 57,94           | 1,8993                | 0,237                 | 1,719                 |
| 9        | 8,313    | 69,107636  | 33,252          | 74,82           | 2,65177               | 1,179                 | 2,449                 |
| 10       | 9,263    | 85,806889  | 83,369          | 18,53           | 0,72856               | 3,279                 | 3,374                 |
| 11       | 9,944    | 98,873602  | 39,774          | 129,3           | 6,01151               | 1,85                  | 4,598                 |
| 12       | 9,994    | 99,885707  | 9,9943          | 199,9           | 10,2391               | 0,512                 | 5,117                 |
| $\Sigma$ |          | 550,7134   | 221,66          | 573,9           | 24,3381               | 8,485                 | 21,6                  |