

FABRIKASI KERNEL DAN PELAPISAN BUFFER (BUFFER LAYER) PADA KERNEL CeO₂-STABILIZED ZrO₂ SEBAGAI MATERIAL SURROGATE KERNEL UO₂

Sarjono, Sri Rinanti Susilowati, Erilia Yusnitha, Sugeng Rianto, Sukarsono

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir - BATAN, Kawasan Puspiptek Setu, Tangerang Selatan, Banten

sjono@batan.go.id

ABSTRAK. Telah dilakukan penelitian fabrikasi pelapisan *buffer* kernel zirkonia (ZrO₂) yang distabilkan oleh ceria (CeO₂) atau disebut juga *ceria-stabilized zirconia* (CSZ). Pada desain bahan bakar TRISO, lapisan *buffer* atau lapisan pengangga yang berdensitas rendah dimaksudkan sebagai ruang ekspansi untuk menahan dan menampung hasil fisi, serta menahan perubahan bentuk partikel. Lapisan *buffer* difabrikasi dengan metode deposisi uap kimia hasil pemecahan molekul gas asetilen dalam reaktor fluidisasi pada temperatur antara 1100 °C – 1400°C. Porositas dan ketebalan merupakan variabel kunci dalam fabrikasi lapisan *buffer*, di mana porositas dikontrol melalui kombinasi parameter-parameter seperti temperatur reaktor, laju deposisi, luas permukaan reaktor, ukuran kernel, dan laju dan komposisi gas asetilen sedangkan ketebalan dikontrol oleh parameter waktu proses deposisi. Kernel dipreparasi melalui rute larutan koloid secara prenetralisasi dan penambahan urea. Penggunaan zirkonium 1,1 mol/L dalam umpan menghasilkan kernel CSZ tersinter dengan diameter rerata 0,615 mm dan sferisitas 1,103. Beberapa parameter dalam preparasi kernel gel, misalnya konsentrasi metal dalam umpan, jumlah urea dalam umpan, tingkat prenetralisasi larutan zirkonium nitrat, dan viskositas umpan, masih perlu dioptimalkan untuk mendapatkan besaran diameter yang mendekati diameter acuan yaitu 0,5 mm dengan sferisitas sama dengan atau lebih kecil dari 1,07. Pelapisan *buffer* pada kernel CSZ tersinter menunjukkan hasil lapisan yang tidak merata dengan lapisan yang rapuh. Peralatan CVD milik PTBBN BATAN masih memerlukan perbaikan atau modifikasi agar mampu beroperasi dengan parameter-parameter proses pelapisan *buffer* sesuai acuan.

Kata kunci: Ce-stabilized Zirconia , analog, gelas eksternal, bahan bakar, RDE

ABSTRACT. Research on buffer coating of ceria-stabilized zirconia (CeO₂-Stabilized ZrO₂ or CSZ) kernels has been carried out. This buffer layer in TRISO fuel design has a low density and is intended to serve as an accommodation volume for retaining and containment of fission products as well as preserving the particle shape from changing. The buffer layer is fabricated by chemical vapor deposition of acetylene pyrolysis products in a fluidization reactor at a temperature range of 1100 °C – 1400°C. The porosity and thickness of the resulting layer are the key parameters during buffer layer fabrication, where the porosity is controlled by a combination of parameters such as reactor temperature, deposition rate, reactor surface area, kernel size, and acetylene flow rate and composition, while the resulting thickness is governed by deposition time. The kernels used for the deposition process were fabricated from colloidal solution prepared by preneutralization and addition of urea. The use of 1.1 mol/l zirconium precursors in the feed solution resulted in sintered CSZ kernels with an average diameter of 0.615 mm and an average sphericity value of 1.103. Several parameters involved in the gel microspheres preparation, such as the concentration of metal, the amount of urea added, the degree of preneutralization of the nitrate precursors solution, and the viscosity of the feed solution still need to be optimized in order to obtain sintered kernels fulfilling the reference specifications, i.e., 0.5 mm diameter and ≤ 1.07 sphericity. Results of the buffer layer process indicates inhomogeneous deposition layer with lacking strength, which may be influenced by the CVD reactor performance. It is recommended that the CVD equipment owned by PTBBN

BATAN be modified for performance improvement, so the equipment can be operated with deposition process parameters in accordance to those established by reference literatures for buffer layer process.

Key words: *Ce-stabilized Zirconia , analogue, external gelation, fuel, RDE*

PENDAHULUAN

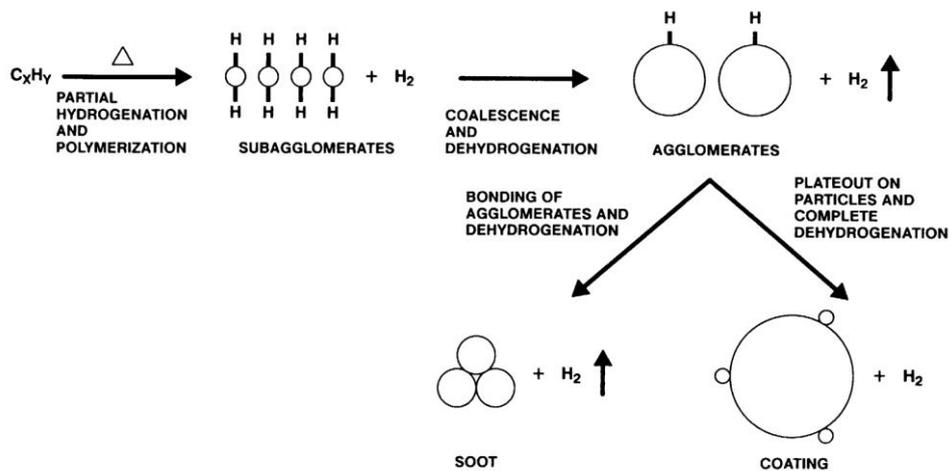
Salah satu misi BATAN yang tertuang dalam dalam Renstra BATAN tahun 2015-2019 adalah unggul di kawasan regional serta bersama-sama institusi pemerintah lainnya dalam menyejahterakan masyarakat dengan didasari peraturan perundang-undangan yang berlaku. Pada pelaksanaan perwujudan misi ini, BATAN mempertimbangkan pembangunan dan pengoperasian Reaktor Daya Eksperimental (RDE), yang dikategorikan sebagai Reaktor Daya Non Komersial (RDNK), dan menurut rencana akan dibangun di Kawasan Puspiptek Serpong, Tangerang Selatan, Banten^[1]. Jenis reaktor yang akan dibangun adalah reaktor temperatur tinggi berpendingin gas (*High Temperature Gas Cooled Reactor*, HTGR) dengan spesifikasi ukuran daya 10 MWth (setara dengan keluaran daya listrik sekitar 3 MWe)^[2] mengacu pada reaktor HTGR berdaya kecil yang telah beroperasi dengan kapasitas di bawah 300 MW(e)^[2]. Untuk keberlangsungan operasional reaktor RDE, Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir mempunyai tugas melaksanakan pelaksanaan pengembangan teknologi fabrikasi bahan bakar RDE yang meliputi penguasaan/pemahaman materi proses, proses fabrikasi dan peralatan fabrikasi bahan bakar RDE dan ini dapat diperoleh melalui eksperimen. Disain bahan bakar reaktor RDE mengacu pada disain bahan bakar reaktor HTGR tipe *pebble bed*, yaitu partikel bahan bakar dengan ukuran diameter kira-kira 1 mm, terdiri dari kernel di bagian paling dalam yang dilapisi oleh beberapa lapisan carbon dan keramik, yang dikompakkan bersama grafit membentuk *pebble*. Teras bahan bakar tipe *pebble* berisi bola-bola *pebble* (berjumlah 27000, misalnya, pada jenis teras reaktor HTR-10 China) dan pendingin helium mengalir volume celah yang terbentuk oleh tumpukan *pebble*. Teras reaktor HTGR ini dikelilingi oleh reflektor grafit dan dikungkung dalam bejana baja bertekanan^[3]. Untuk tujuan keselamatan operasional reaktor HTGR, kriteria keselamatan dari disain bahan bakar HTGR harus ditetapkan sebelumnya dan selanjutnya dilakukan penelitian dan pengembangan bahan bakar untuk mengkonfirmasi karakteristik keselamatan bahan bakar dengan kriteria yang telah ditetapkan^[4].

Dokumen *preliminary engineering design* RDE menyebutkan bahwa disain elemen bahan bakar RDE adalah *pebble* dengan diameter 6 cm yang berisi kernel UO_2

diameter 0,5 cm yang terlapis oleh lapisan terdalam sampai terluar berturut-turut 1) lapisan karbon pirolitik berporositas tinggi, 2) lapisan karbon pirolitik berdensitas tinggi, 3) lapisan silikon karbida, dan 4) lapisan karbon pirolitik densitas tinggi. Partikel-partikel terlapis ini secara merata terdistribusi dalam matriks karbon (grafit alam dan *electro-graphite*) dengan ruang bebas partikel terlapis di bagian terluar^[5].

Proses pelapisan kernel tersinter melalui empat tahap pelapisan. Lapisan pertama adalah lapisan *buffer* yang merupakan lapisan pirokarbon densitas rendah. Proses pelapisan *buffer* dilakukan pada suhu 1100 – 1400°C menggunakan bahan C₂H₂ yang diencerkan dengan gas argon. *Buffer* pirokarbon yang bersifat *porous* merupakan lapisan pertama dari kernel yang menahan dan menampung hasil fisi, serta menahan perubahan bentuk partikel. Lapisan dideposisikan pada kernel dalam tungku yang dipanaskan dengan proses yang disebut *Chemical Vapor Deposition* (CVD). Gas-gas yang mengalir dalam tungku menahan kernel sehingga kernel-kernel membentuk unggun terfluidisasi. Pada suhu tinggi gas pelapis terurai dari konstituennya dan terdeposisi pada permukaan kernel. Bahan-bahan lapisan yang dibentuk oleh proses ini digambarkan sebagai pirolitik, karena mereka dibentuk oleh dekomposisi kimia, yang disebabkan oleh panas^[6].

Mekanisme dekomposisi kimia dan deposisi senyawa karbon oleh panas dapat digambarkan sebagai molekul gas hidrokarbon yang mengalami dehidrogenasi. Molekul-molekul tersebut oleh panas terdekomposisi membentuk nukleus-nukleus calon partikel yang selanjutnya bergabung membentuk aglomerat. Selagi gas terdekomposisi dan membentuk aglomerat dan melewati partikel yang terfluidisasi, kontak antara kernel yang tersirkulasi dan glomerat menyebabkan ablomerat terdeposisi di permukaan kernel. Aglomerat selanjutnya mengalami kehilangan ikatan hidrogen dan terjadi fenomena migrasi permukaan membentuk lapisan yang solid. Bagian aglomerat yang tidak terdeposisi di permukaan kernel akan saling mengikat dan membentuk jelaga karbon. Aglomerat dengan diameter lebih besar dan waktu deposisi yang singkat akan memberikan lapisan dengan densitas rendah dan porositas tinggi, sedangkan aglomerat dengan diameter kecil akan menghasilkan lapisan yang padat berdensitas tinggi dan berporositas rendah. Secara skematik mekanisme proses dekomposisi dan deposisi gas hidrokarbon ditunjukkan pada Gambar 1^[7].



Gambar 1. Skema mekanisme proses dekomposisi dan deposisi gas hidrokarbon oleh panas^[7]

Kernel yang disiapkan untuk pelapisan TRISO difabrikasi melalui proses basah yang dikenal dengan proses sol-gel. Untuk menghindari paparan radiasi dan kompleksitas dalam penanganan bahan uranium karena sifatnya yang radioaktif, pada penelitian ini digunakan bahan pengganti uranium yang tidak radioaktif. Bahan pengganti ini sering disebut juga bahan *surrogate*. Pemilihan bahan *surrogate* didasarkan pada kemiripan sifat-sifat termal, mekanik dan struktur kristal dengan bahan UO_2 dan mempertimbangkan kemudahan dalam metode sintesisnya^[8]. Penggunaan bahan pengganti ini juga pada akhirnya akan mengurangi biaya pengelolaan limbah proses fabrikasi^[9] dan memberi keleluasaan dalam penggunaan peralatan karakterisasi. Pada penelitian ini bahan yang digunakan sebagai bahan pengganti UO_2 adalah zirkonia (ZrO_2) yang distabilkan oleh ceria (CeO_2).

Pada penggunaan zirkonium dioksida sebagai bahan *surrogate* UO_2 sesuai dengan tujuan dari penelitian ini perlu dilakukan penambahan bahan doping untuk menyetabilkan fasa zirkonium dioksida pada suhu tinggi mengingat proses pelapisan TRISO berjalan pada rentang suhu $1250^\circ C - 1500^\circ C$ ^[10].

Pada penelitian ini dilakukan fabrikasi kernel *surrogate* ZrO_2 yang distabilkan dengan CeO_2 atau disebut juga *Ce-stabilized* ZrO_2 yang memenuhi persyaratan spesifikasi untuk proses fabrikasi bahan bakar selanjutnya yaitu pelapisan TRISO yang diawali dengan pelapisan pelapisan *buffer* (karbon pirolitik berdensitas rendah). Sasaran dari penelitian ini adalah produk kernel *surrogate* *Ce-stabilized* ZrO_2 yang

memenuhi persyaratan spesifikasi kernel bahan bakar RDE yang didasarkan pada spesifikasi bahan bakar reaktor HTR-Modul design Jerman, yaitu diameter 5 mm dan sferisitas (D_{max}/D_{min}) $\sim 1,07$ ^[11]. Spesifikasi kernel bahan bakar RDE desain Jerman diperlihatkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Spesifikasi kernel bahan bakar 170 MWth MODUL dan karakteristik hasil fabrikasi kernel LEU Jerman^[12].

FUEL KERNEL	SPECIFICATION	AS-MANUFACTURED
Material	UO ₂	UO ₂
Enrichment	8.0±0.1 wt%	
Diameter	480-520 µm	500±11 µm
Sphericity	≥10.4 g/cm ³	<1.07

Lapisan buffer, khususnya, memiliki fungsi sebagai^[13]:

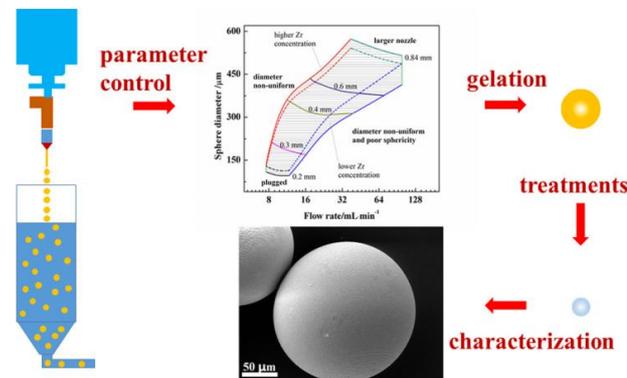
- ruang untuk menampung produk gas-gas hasil fisi
- ruang untuk mengakomodasi swelling kernel
- media atenuasi produk fisi

METODOLOGI

Preparasi kernel CeO₂-stabilized ZrO₂ (CSZ)

Bagian terpenting dari metode sintesis ZrO₂ berdensitas tinggi secara sol-gel adalah preparasi larutan koloid sol yang mengandung partikel ZrO₂ (dan CeO₂ sebagai penyetabil) nanodispersi. Pada tahun 2018 telah dilakukan penelitian preparasi kernel CSZ dengan kontrol koloid menggunakan metode dekomposisi urea. Pada metode ini, urea sebagai reagen presipitasi terdekomposisi secara perlahan oleh pemanasan dan menghasilkan anion CO₃²⁻ dan OH⁻ secara serentak diikuti dengan proses presipitasi homogen di keseluruhan larutan. Hal ini akan berbeda jika reagen dicampurkan secara langsung ke dalam larutan, di mana hanya sedikit kontrol secara kimia sehingga menyebabkan terjadinya lokalisasi dan gradien konsentrasi dalam larutan^[14]. Pemanfaatan urea pada riset dan pengembangan fabrikasi kernel *surrogate* ZrO₂ terstabilkan oleh CeO₂ secara gelas eksternal telah dilakukan di Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University, China ^[15] dan menunjukkan hasil yang memuaskan. Beberapa kekurangan dari metode ini adalah bahwa kontrol reaksi yang sulit dilakukan sehingga pada banyak kasus menghasilkan larutan koloid yang mendekati suspensi. Oleh karena itu, pada tahun 2019 preparasi larutan koloid untuk

umpan fabrikasi kernel CSZ menggunakan metode presipitasi-peptisasi, yaitu pembentukan presipitat oleh penambahan larutan amonia dan pemecahan presipitat (peptisasi) oleh pengadukan.



Gambar 2. Tahap-tahap kegiatan pada fabrikasi kernel tersinter *Ce-stabilized* ZrO₂ beserta karakterisasi produk^[16]

Gambar 2 menunjukkan tahap-tahap kegiatan pada preparasi kernel CSZ yang diawali dengan penyiapan larutan yang mengandung campuran Zr+Ce nitrat dalam larutan umpan untuk selanjutnya dilakukan proses pembentukan *droplet* dengan kontrol parameter seperti laju alir umpan, frekuensi getaran *nozzle*, jarak area udara, inspeksi visual hasil *droplet* untuk pemeriksaan homogenitas, waktu pematangan (*aging*). Kernel selanjutnya dikenakan proses *heat treatment*, yaitu perlakuan panas pada proses pengeringan, kalsinasi dan sintering. Kernel tersinter selanjutnya dikarakterisasi meliputi pengukuran diameter kernel tersinter, sferisitas kernel tersinter

Pelapisan *Buffer* Kernel *Ce-stabilized* ZrO₂ (CSZ)

Kernel tersinter disortir menggunakan ayakan *sieveing* untuk mendapatkan kernel dengan ukuran diameter antara 0,45 mm dan 0,62 mm. Kernel sejumlah 2,5 gram dipisahkan sebagai umpan proses pelapisan *buffer* untuk proses batch dengan setting parameter tertentu seperti rasio komposisi gas pelapis dan gas inert (argon), laju aliran gas, suhu operasi dekomposisi dan deposisi, dan waktu dekomposisi dan deposisi.

PROSEDUR EKSPERIMEN

Bahan dan Alat

Bahan yang digunakan pada penelitian ini mencakup bahan prekursor Zr(NO₃)₄ dan Ce(NO₃)₃.6H₂O, bahan aditif PVA dan THFA, bahan untuk mengkonversi sol menjadi gel yaitu NH₃ dan larutan NH₄OH, dan bahan pencuci seperti air demineral dan isopropil alkohol. Peralatan yang dibutuhkan dalam eksperimen meliputi gelas beker, neraca, pengaduk, pemanas, pH meter, termometer, perangkat kolom gelas eksternal, oven, tungku kalsinasi-sintering, peralatan CVD, dan peralatan pengukur diameter dan sferisitas.

Langkah kerja

Pada penyiapan umpan, sejumlah 0.4675 mol Zr(NO₃)₄ dilarutkan dalam 250 ml air demineral pada suhu 80°C. Larutan diprenetralisasi dengan larutan amonia kira-kira 25—30% dari jumlah stokiometrinya. Dengan menjaga kondisi larutan tetap teraduk, presipitat yang terbentuk akan segera terpecah dan terdispersi membentuk larutan koloid. Selanjutnya ditambahkan 0.082 mol Ce(NO₃)₃.6H₂O sehingga diperoleh larutan 2,2 mol Zr+Ce/l. Larutan campuran Zr(NO₃)₄ dan Ce(NO₃)₃.6H₂O dipanaskan pada suhu 50°C dan ditambahkan urea secara perlahan. Perbandingan mol urea yang ditambahkan terhadap jumlah mol campuran Zr+Ce adalah sekitar 1. Pada sol ditambahkan larutan PVA dan THFA untuk mengatur viskositas pada 45 - 55 mPa s.

Sebelum proses pembentukan droplet dan gelasi, untuk menghilangkan gelembung-gelembung kecil dan udara yang terlarut, larutan umpan harus disiapkan sehari sebelum proses pembentukan *droplet/casting* dan disimpan selama 1 malam.

Larutan umpan untuk untuk proses pembentukan *droplet* diumpankan dari tangki umpan ke *vibrating nozzle* dengan udara tekan yang tetap melalui pipa kecil. Aliran laminar yang dihasilkan dari *vibrating nozzle* akan menghasilkan *droplet* yang seragam. Tegangan permukaan akan menyebabkan *droplet* dengan bentuk bulat pada udara atmosfer sebelum masuk dalam atmosfer ammonia untuk proses pre-solidifikasi. Dari hasil pre-solidifikasi partikel-partikel spheris akan ditampung pada tabung yang berisi ammonium hidroksida.

Tabel 2. Parameter optimum operasi untuk proses *casting*

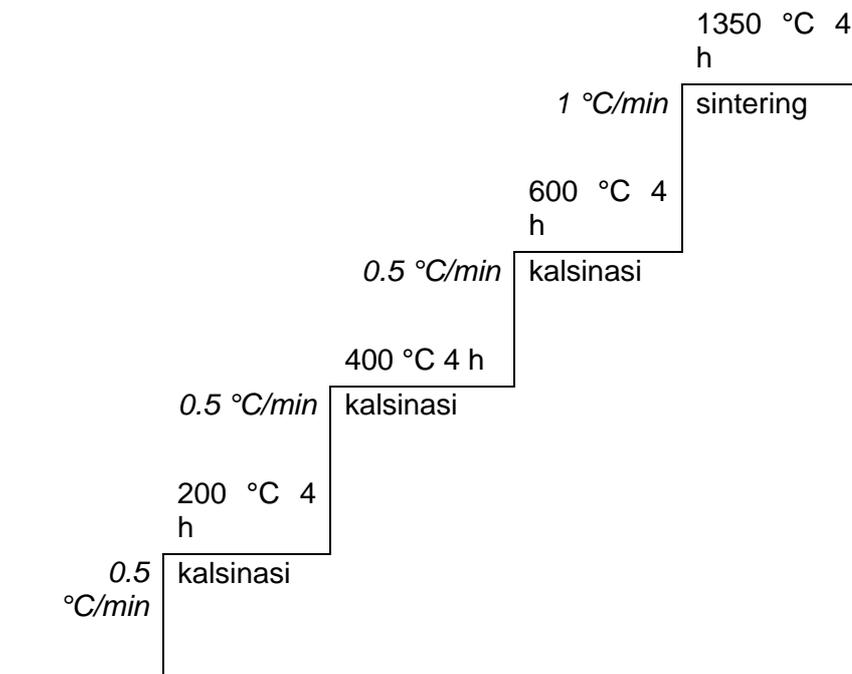
Parameter operasi untuk proses casting		
<i>Larutan casting</i>	Udara tekan umpan	0.35 ± 0.1 bar
	Suhu	room temperature
	Laju alir	31.5 ± 0.5 ml/min
<i>Falling Distance</i>	Atmosphere udara	35 ± 1 cm
	Atmosphere NH ₃	5 cm
Gas NH ₃	Tekanan umpan	1.2 ± 0.1 bar
	Laju alir	500 ± 50 l/h at 20 °C
<i>Precipitation Bath</i>	konsentrasi	THFA : 10 – 30 g/l NH ₄ OH : ~14 mol/l
	Suhu	20 ± 10 °C
<i>Vibration System</i>	Frekuensi	100 ± 3 Hz
<i>Nozzle System</i>	Diameter	1000 ± 50 μm
	Jumlah	1

Kernel hasil proses gelas selanjutnya dikenakan proses *aging*, *washing* dan *drying*. Proses *aging* merupakan penyempurnaan reaksi konversi sol menjadi gel di seluruh bagian kernel. Mikrosfir gel yang diperoleh dikenakan proses *aging* atau pematangan dalam bejana berputar menggunakan larutan amonia jenuh 32% selama 2 jam. Dalam proses ini, reaksi gelas terus berlanjut sampai selesai ke pusat mikrosfer. Proses selanjutnya adalah mencuci dengan larutan amonia encer untuk menghilangkan garam (amonium nitrat) dan pada saat yang sama untuk menghindari reeptisasi mikrosfer gel. Selanjutnya dilakukan dua kali pencucian dengan larutan amonia encer, masing-masing selama 15 menit. Sebagai produk samping akan terbentuk amonium nitrat yang tertinggal dalam cairan larutan amonia yang kemudian dihilangkan dengan pencucian menggunakan air demineral sebanyak delapan kali atau lebih pencucian. Konduktivitas listrik dari air limbah diukur. Pencucian dengan air dianggap cukup ketika angka di bawah 20 μS/cm terpenuhi. Mikrosfer yang telah dicuci dengan air kemudian dikenai 4 kali 30 menit pengeringan *dewatering* dengan isopropil alkohol (IPA). Pencucian isopropil alkohol dimaksudkan untuk menghilangkan air dan amonium nitrat yang tersisa dan aditif polimer lainnya pada permukaan mikrosfer. Pencucian dengan IPA bertujuan untuk menghilangkan kandungan air pada kernel. Proses pencucian ini melalui 2 tahap dengan *recycled* IPA (komposisi air 80 – 150 g/l)

dan 2 tahap pencucian dengan IPA murni (komposisi air ≤ 1 g/ l). Setiap tahap berlangsung selama 15 menit dalam keadaan temperatur ruangan dan waktu *dripping* 10 menit. Mikrosfer gel dikeringkan pada suhu 80°C selama 8 jam untuk memungkinkan sebagian besar IPA di permukaan dan bagian dalam kernel menguap perlahan. Selanjutnya, mikrosfer dipanaskan hingga 90 dan 120°C pada laju 0,5°C / menit selama 4 jam pada setiap suhu.

d. Kalsinasi-Sintering

Kalsinasi berjalan pada suhu 200, 400 and 600°C dengan laju pemanasan 0,5°C/menit dan waktu tahan 4 jam di masing-masing temperatur dan selanjutnya didinginkan sampai suhu ruang. Sampel yang telah dikalsinasi dan didinginkan selanjutnya disinter dengan laju pemanasan 1°C/menit sampai suhu 1350°C dengan waktu tahan 4 jam, seperti ditunjukkan pada skema Gambar 3.



Gambar 3. Profil temperatur kalsinasi dan sintering

Pada kernel tersinter CeO₂-*stabilized* ZrO₂ dilakukan karakterisasi:

1. *Sieving*
2. Pengukuran diameter, sferisitas dan densitas

e. Pelapisan buffer kernel CSZ tersinter

Sebanyak kira-kira 2,5 gram kernel CSZ tersinter disiapkan untuk 1 batch proses pelapisan buffer (Gambar 4). Peralatan CVD dioperasikan dengan suhu 1250°C dengan laju asetilen 2,5 l/menit dan laju gas argon 1 L/menit dengan komposisi 70% asetilen dan 30% argon. Sampel kernel per batch dimasukkan ke tabung CVD pada kondisi suhu reaktor CVD pada 1250°C. Reaksi deposisi lapisan buffer untuk salah satu batch dilaksanakan selama 30 menit. Untuk sampel yang lain menggunakan variasi waktu deposisi dan perbandingan komposisi asetilen dan argon. Setelah proses deposisi dianggap selesai, aliran gas reaktan dihentikan dan digantikan dengan gas argon, sementara sampel kernel tetap dalam kondisi terfluidisasi sampai proses pendinginan selesai.



Gambar 4. Preparasi dan proses pelapisan buffer

Pada kernel terlapis buffer dilakukan karakterisasi: pengukuran diameter dan ketebalan lapisan buffer.

HASIL DAN PEMBAHASAN

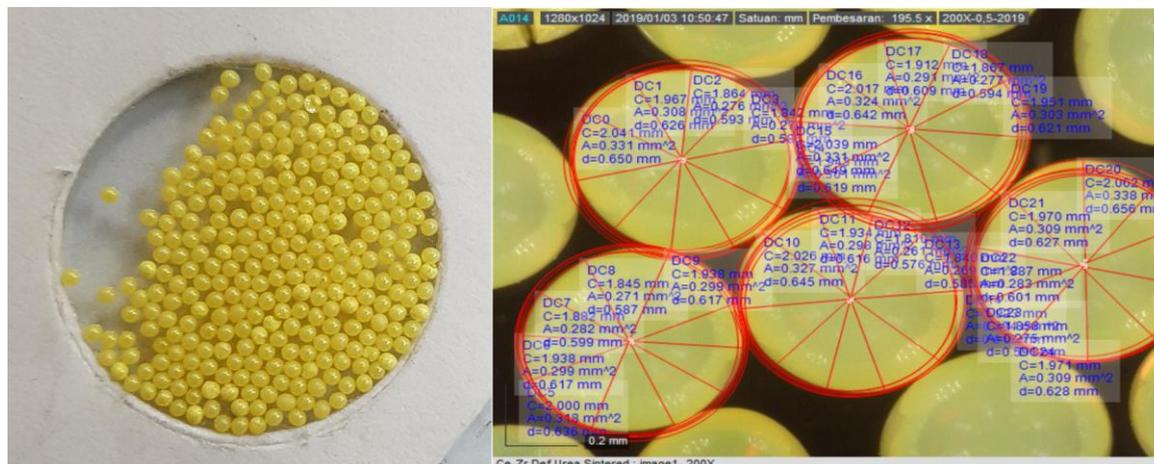
Penyiapan larutan umpan, pembentukan *droplet*, *aging-washing-drying*

Larutan umpan disiapkan dengan kontrol parameter pada tahap penetasan (*droplet formation*) serta *aging-washing-drying* disajikan pada tabel berikut:

Tabel 3. Kondisi preparasi umpan (*broth*)

Kode: Ce-Zr- Deficient-Urea		
No	Parameter	
1	Zr = 0.85 x 0.55 mol/250 ml = 0.4675 mol/250 ml	339.24 g/mol = 158.594 gr
2	Ce = 0.15 x 0.55 mol/250 ml = 0.082 mol/250 ml	434.22 g/mol = 35.823 gr
3	Mol Urea/mol (Zr+Ce) = 1	60.056 g/mol = 33.03 gr
4	NH ₄ OH pre-neutralization	25 ml (NH ₄ OH 32%)
5	THFA	50 ml
6	PVA 8 wt%	200 ml
7	Total PVA dalam broth	32 g/L
8	ABM	250 ml
9	Total Broth	500 ml
10	Viskositas	51.6 cP
11	Kecepatan aliran umpan	24.8 ml/min
12	Konsentrasi Zr dalam broth	1.1 mol/L
13	pH broth	0.64
14	Densitas broth	1.2097 g/cm ³

Karakterisasi kernel *Ce-stabilized Zirconia* tersinter



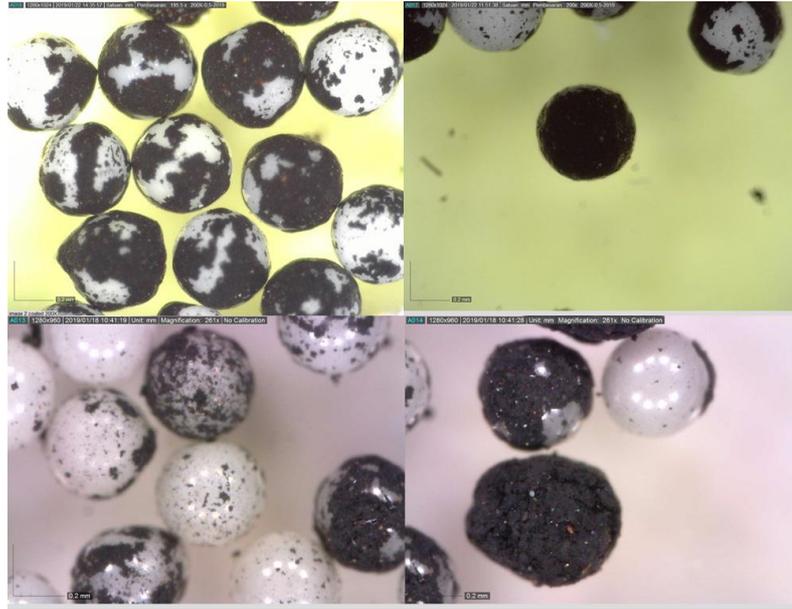
Gambar 5. Kernel CSZ tersinter dengan preparasi koloid presipitasi-peptisasi

Gambar 5 menunjukkan hasil pengukuran diameter kernel produk sinter dari preparasi koloid presipitasi-peptisasi dan konsentrasi Zr dalam umpan 1.1 mol/L menunjukkan besaran diameter rerata 0,615 mm dengan sferisitas rerata 1,103.

Secara umum sebagian produk kernel tersinter tersebut memiliki keutuhan yang cukup baik meski masih ditemukan beberapa bagian kernel yang pecah akibat perlakuan panas kalsinasi dan sintering. Beberapa parameter dalam preparasi kernel gel, misalnya konsentrasi metal dalam umpan, jumlah urea dalam umpan, tingkat prenetralisasi larutan zirkonium nitrat, dan viskositas umpan, masih perlu dioptimalkan untuk mendapatkan besaran diameter yang mendekati diameter acuan yaitu 0,5 mm dengan sferisitas sama dengan atau lebih kecil dari 1,07. Diameter kernel tersinter, misalnya, dipengaruhi oleh parameter konsentrasi metal dalam larutan umpan, di mana konsentrasi yang lebih besar menghasilkan diameter yang lebih besar. Pada penelitian ini konsentrasi mol zirkonium 1,1 mol/liter umpan menghasilkan kernel dengan rerata 0,615 mm. Oleh karenanya, untuk mendapatkan diameter kernel tersinter 0,500 mm diperlukan beberapa eksperimen dengan konsentrasi zirkonium dalam umpan yang lebih kecil dari 1,1 mol/liter.

Proses pelapisan buffer dan karakterisasi

Dari 4 batch sampel yang disiapkan, pada pelaksanaan proses pelapisan hanya pada pelaksanaan batch pertama yang menyisakan kernel terlapis sekitar 30% dari jumlah kernel yang disiapkan, atau dengan kata lain bahwa sekitar 70% kernel tertinggal dalam sistim reaktor CVD. Tiga batch proses berikutnya setelah proses pelapisan selama 30 menit tidak menyisakan kernel terlapis, atau dengan kata lain semua kernel tertinggal dalam sistim reaktor CVD. Evaluasi terhadap fenomena tertinggalnya sampel kernel selama proses pelapisan buffer merupakan indikator bahwa peralatan CVD masih perlu dilakukan perbaikan komponen. Hasil kernel terlapis buffer ditunjukkan pada Gambar 6.



Gambar 6. Hasil kernel terlapis buffer

Seperti ditunjukkan pada Gambar 6, deposisi lapisan buffer tidak merata di semua sampel kernel meski ada sebagian kecil dari keseluruhan kernel yang keseluruhan permukaannya terlapis buffer, namun hasil deposisi dengan ketebalan yang tidak merata yang dapat diamati secara visual. Beberapa kemungkinan dari fenomena ini adalah bahwa tidak semua kernel terfluidisasi dan lapisan buffer yang terdeposisi tidak mengandung partikel lapisan yang halus.

Pada hasil pelapisan buffer belum dapat dilakukan pengukuran ketebalan lapisan mengingat hasil lapisan bersifat rapuh sehingga tidak dimungkinkan dilakukan mounting tanpa mengalami perubahan bentuk.

KESIMPULAN

Pada kegiatan penelitian fabrikasi kernel *surrogate* zirkonia beserta proses pelapisan buffer di tahun 2018 ini, kesimpulan yang dapat diambil antara lain:

1. Kernel ZrO₂ yang distabilkan oleh cerium dapat difabrikasi secara gelas eksternal melalui jalur penyiapan koloid sol menggunakan rute presipitasi dan peptisasi.
2. Pada penelitian ini, kernel dengan diameter sekitar 0,615 mm diperoleh dari umpan dengan konsentrasi Zr 1,1 mol/L untuk penggunaan jarum penetes dengan diameter dalam 1 mm.
3. Hasil eksperimen pelapisan buffer dengan peralatan CVD milik PTBBN BATAN masih belum dikatakan berhasil sesuai dengan spesifikasi acuan. Beberapa bagian

porsi kernel sekitar 30% tertinggal dalam reaktor CVD, sedangkan hasil lapisan juga masih secara visual tidak merata dengan tidak halus. Dengan hasil yang demikian, karakterisasi pengukuran densitas dan ketebalan lapisan *buffer* tidak lakukan.

4. Peralatan CVD masih perlu ditingkatkan kinerjanya melalui perbaikan atau modifikasi sehingga mampu dioperasikan sesuai parameter-parameter acuan sesuai literatur.

DAFTAR PUSTAKA

- [1]. BATAN, Cetak Biru Pembangunan Reaktor Daya Eksperimental (RDE) 2014 – 2020. 2014, BATAN.
- [2]. IAEA, *Advances in Small Modular Reactor Technology Developments*. 2014, IAEA: Vienna, Austria.
- [3]. Yan, X.L., 3. Very high-temperature reactor, in *Handbook of Generation IV Nuclear Reactors*. 2016, Woodhead Publishing. p. 55-90.
- [4]. Sawa, K., S. Suzuki, and S. Shiozawa, *Safety criteria and quality control of HTTR fuel*. Nuclear Engineering and Design, 2001. **208**(3): p. 305-313.
- [5]. BATAN, *The Document of Preparation of Preliminary Engineering Design of the Experimental Power Reactor, General Design Features of the RDE*. 2015, BATAN: Jakarta.
- [6]. IAEA, *High Temperature Gas Cooled Reactor Fuels and Materials*. IAEA TECDOC Series. 2010, Vienna: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY.
- [7]. ATOMICS, G., *MHTGR Fuel Process and Quality Control Description*, DOE-HTGR-90257. 1991, San Diego, California GENERAL ATOMICS.
- [8]. Choi, K., et al., *Densification of nano-CeO₂ ceramics as nuclear oxide surrogate by spark plasma sintering*. Journal of Nuclear Materials, 2010. **404**(3): p. 210-216.
- [9]. Dunwoody, J.T., et al. *Optimization of sintering parameters for nitride transmutation fuels*. in *Ceramics in Nuclear and Alternative Energy Applications - 30th International Conference on Advanced Ceramics and Composites*. 2006. Cocoa Beach, FL, United States.
- [10]. Kim, J.-G., et al., *A Study on the CVD Deposition for SiC-TRISO Coated Fuel Material Fabrication*. J. Korean Ceram. Soc, 2007. **44**(3): p. 169-0.

- [11]. Petti, D.A., et al., Key Differences in the Fabrication, Irradiation and Safety Testing of U.S. and German TRISO-coated Particle Fuel and Their Implications on Fuel Performance. INEEL/EXT-02-00300. 2002, Bechtel Idaho: Idaho National Engineering and Environmental Laboratory.
- [12]. Haoa, S.C., et al., *Preparation of ZrO₂ Micro Beads by Sol-Gel Method*. Key Engineering Materials 2012. **512-515**: p. 269-274.
- [13]. Wichner, R.P. and W.P. Barthold, *Evaluation of MHTGR Fuel Reliability*. 1992, Oak Ridge National Laboratory: Knoxville.
- [14]. Djuričić, B. and S. Pickering, *Nanostructured cerium oxide: preparation and properties of weakly-agglomerated powders*. Journal of the European Ceramic Society, 1999. **19**(11): p. 1925-1934.
- [15]. Wang, G.G., et al., Preparation of Small Size Ceria Stabilized Zirconia Microspheres by External Gelation: Effect of Vibration Frequency. Key Engineering Materials, 2016. **697**: p. 364-367.
- [16]. Wang, G., et al., Preparation of ceria-stabilized zirconia microspheres by external gelation: size control. Journal of Sol-Gel Science and Technology, 2016. **78**(3): p. 514–522.

