

PENGARUH UNSUR Ti PADA PADUAN U-7Mo-xTi TERHADAP STRUKTUR MIKRO DAN KEKERASAN INGOT SERTA MORFOLOGI SERBUK HASIL HIDRIDING - DEHIDRIDING

Maman Kartaman A, Supardjo, Boybul, Agoeng Kadarjono

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN

Kawasan Puspiptek, Serpong, Tangerang Selatan, 15314

e-mail: makar@batan.go.id

(Naskah diterima: 30-08 2013, disetujui: 24-09-2013)

ABSTRAK

PENGARUH UNSUR Ti PADA PADUAN U-7Mo-xTi TERHADAP MORFOLOGI SERBUK HASIL HIDRIDING-DEHIDRIDING. Telah dilakukan pembuatan ingot dan serbuk U-7Mo-xTi sebagai alternatif bahan bakar tipe dispersi dengan tujuan untuk mendapatkan parameter proses pembuatan ingot yang tepat sehingga diperoleh serbuk U-Mo yang sesuai persyaratan fabrikasi bahan bakar nuklir tipe pelat. Pembuatan ingot dilakukan dengan menggunakan peleburan busur listrik, sedangkan pembuatan serbuk menggunakan metode hidriding-dehidriding yang dilakukan pada suhu dan tekanan tertentu. Penambahan unsur Ti sebesar 1; 2 dan 3% pada paduan U-7Mo dapat mempengaruhi struktur mikro dan sifat mekanik. Ingot U-7Mo-xTi hasil peleburan busur listrik selanjutnya diuji struktur mikro dan sifat mekaniknya. Serbuk hasil hidriding-dehidriding diuji menggunakan SEM (*scanning electron microscope*) untuk mengetahui morfologi serbuk seperti bentuk, ukuran dan distribusinya. Hasil pengamatan struktur mikro menunjukkan bahwa penambahan unsur titanium dapat mempengaruhi struktur butir dan serbuk U-Mo yang dihasilkan. Pada penambahan unsur Ti sebesar 3% menghasilkan struktur butir paling kecil. Kekerasan mikro ingot semakin besar dengan bertambahnya kadar Ti dalam paduan. Nilai kekerasan untuk ingot U-7Mo-xTi dengan kadar Ti sebesar 0; 1; 2 dan 3% berturut - turut adalah 240,4; 300,6; 324,4 dan 340,2 HVN. Pengujian SEM terhadap serbuk hasil hidriding-dehidriding menunjukkan patahan getas akibat penyerapan hidrogen dengan ukuran serbuk bervariasi dari ukuran halus <10 μm hingga ukuran kasar >100 μm dengan bentuk relatif bulat dan beraturan. Beberapa butir yang besar teridentifikasi adanya retak mikro sehingga pada tahapan selanjutnya yaitu *mechanical grinding/milling* mudah terfragmentasi menjadi serbuk dengan ukuran lebih kecil.

Kata kunci : Paduan U-7Mo-xTi, hidriding-dehidriding, struktur mikro, kekerasan, morfologi.

ABSTRACT

INFLUENCE OF Ti ADDITION IN U-7Mo-xTi ALLOY ON POWDER MORPHOLOGY BY HYDRIDE-DEHYDRIDE METHOD. Ingot and powder of U-7Mo-xTi have been fabricated as an alternative fuel of dispersion type. The synthesis of alloy was conducted by electric arc melting, while powder fabrication was carried out by hydride-dehydride method at a given temperature and pressure. The addition of 1, 2 and 3% of Ti can effect the microstructure and mechanical

properties. The ingot of U-7Mo-xTi was further tested and examined for the microstructure and mechanical properties. The ingot and powder of U-7Mo-xTi were examined using SEM to observe the microstructure and morphology of the powder such as shape, size and distribution. Microstructure observation indicates that grain size decrease with the addition of Ti. The addition of 3% of Ti produces the smallest grain structure. The hardness of the alloy increases with increasing Ti content. The hardness values of U-7Mo, U-7Mo-1Ti, U-7Mo-2Ti, and U-7Mo-3Ti alloys are 240.4, 300.6, 324.4, and 340.2 HVN respectively. SEM examination of the powder shows brittle fracture due to hydrogen absorption. Powder size varies from less than 10 μm to over 100 μm . The shape of powder is relatively rounded and regular. Some microcracks were identified on the coarse grains, so in the next stage, the mechanical milling, the sample was easily fragmented into powder with smaller size.

Keywords: U-7Mo-xTi alloys, hydride-dehydride, microstructure, hardness, morphology.

PENDAHULUAN

Paduan uranium berbasis U-Mo menjadi alternatif untuk dikembangkan menjadi bahan bakar reaktor riset karena mempunyai densitas cukup tinggi yaitu sekitar 16 g/cm^3 dan tampang lintang serapan neutron unsur Mo rendah, sehingga memungkinkan densitas uranium dalam bahan bakar dispersi dapat ditingkatkan menjadi lebih dari 9 gU/cm^3 ^[1]. Sebagai bahan bakar nuklir tipe dispersi, paduan ingot U-7Mo harus dibuat menjadi bentuk serbuk dengan ukuran 40 – 100 μm sekitar 75 - 85% sedangkan untuk ukuran partikel < 40 μm , maksimal 25%. Paduan U-Mo memiliki keuletan tinggi yang menyebabkan proses pembuatan serbuk sulit dilakukan dengan cara mekanik, sehingga perlu dicari alternatif metode untuk melakukan proses pembuatan serbuk tersebut. Beberapa metode yang digunakan untuk membuat ingot U-7Mo menjadi bentuk serbuk adalah *machining*, *atomization* dan *hydride-dehydride* (HD). Diantara ketiga teknik tersebut, metode HD banyak digunakan karena memiliki beberapa keuntungan diantaranya adalah serbuk yang dihasilkan sangat bersih dan bebas pengotor^[2]. Bentuk dan ukuran serbuk yang dihasilkan melalui proses HD mempunyai karakteristik tersendiri, relatif berbeda dengan metoda lainnya seperti atomisasi dan mekanik. Selain itu juga melalui metode HD bentuk

dan ukuran serbuk dapat dikendalikan sesuai yang diinginkan, akan tetapi ukuran serbuk yang dihasilkan cenderung halus sehingga perlu penanganan khusus supaya tidak teroksidasi^[2].

Molibdenum memiliki derajat kelarutan padat γU yang tinggi. Pada suhu di bawah 560°C fasa metastabil $\gamma\text{-UMo}$ terdekomposisi menjadi fasa αU dan $\gamma'(\text{U}_2\text{Mo})$ ^[3]. Walaupun fasa γU paduan UMo memiliki unjuk kerja yang baik selama iradiasi, tetapi sebagai bahan bakar dispersi U-Mo/Al terlihat bahwa selama proses iradiasi terbentuk pori yang besar yang menyebabkan lapisan/*layer* hasil interaksi antara partikel bahan bakar U-Mo dan matriks Al menjadi tidak stabil^[4]. Pertumbuhan *layer* hasil interaksi menyebabkan temperatur bahan bakar naik karena konduktivitas panas lebih rendah dari pada matriks. Selain itu *layer* hasil interaksi memiliki densitas lebih rendah daripada densitas rerata reaktan, sehingga pertumbuhan *layer* menyebabkan terjadinya *swelling* bahan bakar yang cukup signifikan. Untuk menstabilkan sifat paduan U-Mo dapat dilakukan dengan beberapa cara diantaranya menambahkan unsur logam ke dalam paduan UMo (Si, Ti, Zr, dll) atau menggunakan bahan matriks yang berbeda seperti serbuk Mg atau campuran Al dan Si. Peneliti lain melaporkan bahwa penambahan unsur Zr, Si dan Ti dapat

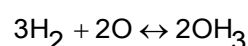
menurunkan *interaction layer* dari disersan U-Mo hasil atomisasi dengan matrik Al^[5].

Pada penelitian ini, paduan U-7Mo-xTi yang dibuat dengan teknik peleburan busur listrik, kemudian dibuat menjadi serbuk menggunakan metode HD yang dilanjutkan dengan *mechanical milling*. Penambahan unsur ketiga seperti Si, Ti dan Zr pada paduan biner U-7Mo adalah untuk meningkatkan kegetasan paduan sehingga lebih mudah dalam pembuatan serbuk^[6,7]. Dalam usaha untuk mengetahui sifat-sifat dari ingot maupun serbuk tersebut perlu dilakukan karakterisasi. Karakterisasi yang dilakukan meliputi pengamatan morfologi menggunakan *Scanning Electron Microscope* (SEM) dan pengujian kekerasan mikro. Pengamatan menggunakan SEM dilakukan dengan berkas elektron sekunder dan tegangan tinggi hingga 25,0 kV sehingga menghasilkan resolusi tinggi, gambar lebih jelas dan detail. Morfologi serbuk yang akan diamati meliputi ukuran, bentuk dan distribusi partikel. Selain itu juga akan diamati morfologi permukaan partikel dan identifikasi adanya mekanisme penggetasan akibat hidriding seperti bentuk permukaan, *micro crack* dan perambatan retak.

TATA KERJA

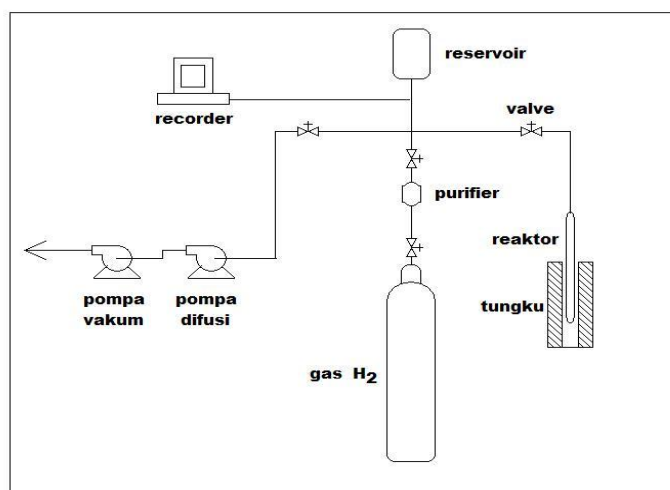
Pembuatan ingot U-7Mo-xTi (x=1, 2 dan 3%) dengan teknik peleburan busur listrik dalam media gas argon. Peleburan dilakukan secara berulang sebanyak 3 kali peleburan untuk menghasilkan ingot U-7Mo-xTi yang homogen. Pembuatan serbuk U-7Mo-xTi dari ingot paduan U-7Mo-xTi menggunakan metode *hydride-dehydride*. Sebelum dilakukan proses *hydride-dehydride*, ingot hasil peleburan terlebih dahulu mengalami perlakuan awal yaitu *degreasing* dan *pikling* dengan tujuan menghilangkan oksida pada permukaan. Proses *hydride – dehydride* ingot paduan U-Mo dilakukan menggunakan alat yang

ditunjukkan seperti pada Gambar 1. Hidriding dilakukan pada suhu 350 °C dan divakum hingga tekanan 0,001 mbar, lalu dialiri dengan gas hidrogen hingga mencapai tekanan 1000 mbar. Setelah pengisian hidrogen selesai selanjutnya tungku dimatikan dan secara perlahan suhu turun hingga mencapai suhu ruangan. Selama proses tersebut diharapkan terjadi penyerapan hidrogen dan reaksi dengan logam uranium membentuk senyawa dengan persamaan berikut.



Setelah penyerapan gas hidrogen, maka paduan U-Mo didehidriding pada suhu 500°C untuk melepaskan hidrogen. Proses *hydride-dehydride* dilakukan secara berulang hingga diperoleh serbuk U-Mo sesuai persyaratan fabrikasi elemen bakar nuklir dan bebas dari kadar hidrogen terserap.

Serbuk U-Mo yang dihasilkan selanjutnya dikarakterisasi yang meliputi pengamatan morfologi serbuk menggunakan SEM, dan pengujian kekerasan ingot. Pengamatan morfologi partikel menggunakan SEM adalah untuk mengetahui karakteristik dari serbuk U-Mo yang meliputi ukuran, bentuk dan distribusinya. Pengujian SEM dilakukan menggunakan sinar elektron sekunder atau *secondary electron image* (SEI) dengan tegangan 25,0 kV dan *working distance* 39 mm serta perbesaran dari 100 sampai 5000 kali. Perbesaran kecil yaitu sekitar 100 – 500 kali untuk melihat distribusi dan bentuk partikel secara keseluruhan sedangkan untuk perbesaran 1500 – 5000 kali untuk melihat lebih detail permukaan individual partikel dan melihat retak halus akibat hidriding. Dengan menggunakan SEI ini maka diperoleh gambar morfologi partikel secara jelas dan rinci yang dapat dikaitkan dengan parameter proses HD dan juga berpengaruh terhadap keberhasilan fabrikasi bahan bakar nuklir.



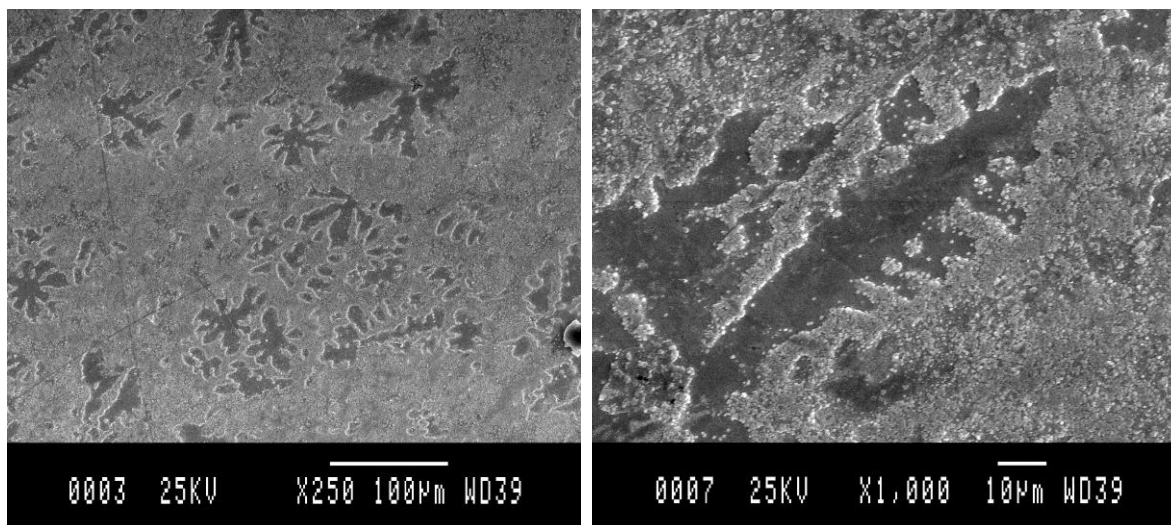
Gambar 1. Skema alat hidriding – dehidriding

HASIL DAN PEMBAHASAN

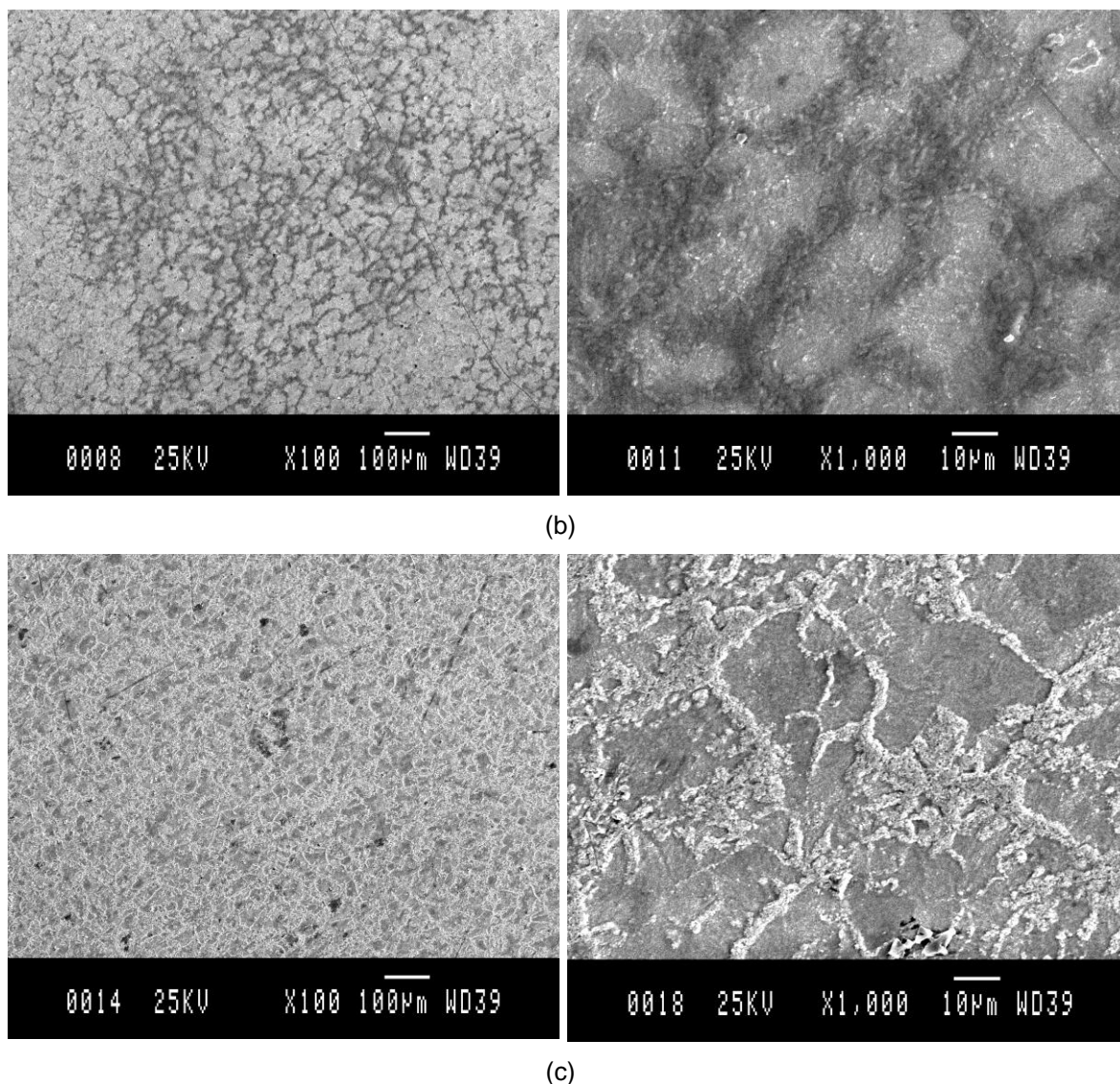
Struktur mikro dan kekerasan mikro ingot U-7Mo-xTi

Hasil peleburan logam U, Mo dan Ti diperoleh paduan berbentuk ingot dengan struktur mikro seperti pada Gambar 2. Secara keseluruhan struktur mikro yang dihasilkan terdiri dari matrik α U dengan bentuk butir homogen dan fasa Mo_2U pada batas butir. Gambar 2.a memperlihatkan struktur mikro dengan struktur butir dendrit sedangkan pada Gambar 2.b dan 2.c memperlihatkan struktur mikro dengan

struktur butir berbentuk granular dengan ukuran lebih halus dibanding struktur butir pada Gambar 2.a. Penambahan unsur Ti pada ingot U-7Mo dapat memperhalus struktur butir yang dihasilkan dan berpengaruh juga terhadap sifat mekanis termasuk kekerasan ingot. Semakin tinggi kadar unsur Ti yang ditambahkan pada paduan U-Mo maka struktur butir yang dihasilkan semakin halus. Pada saat pembekuan berlangsung, unsur Ti dapat menghasilkan dan memicu inti-inti baru sehingga paduan memiliki struktur butir lebih halus.



(a)



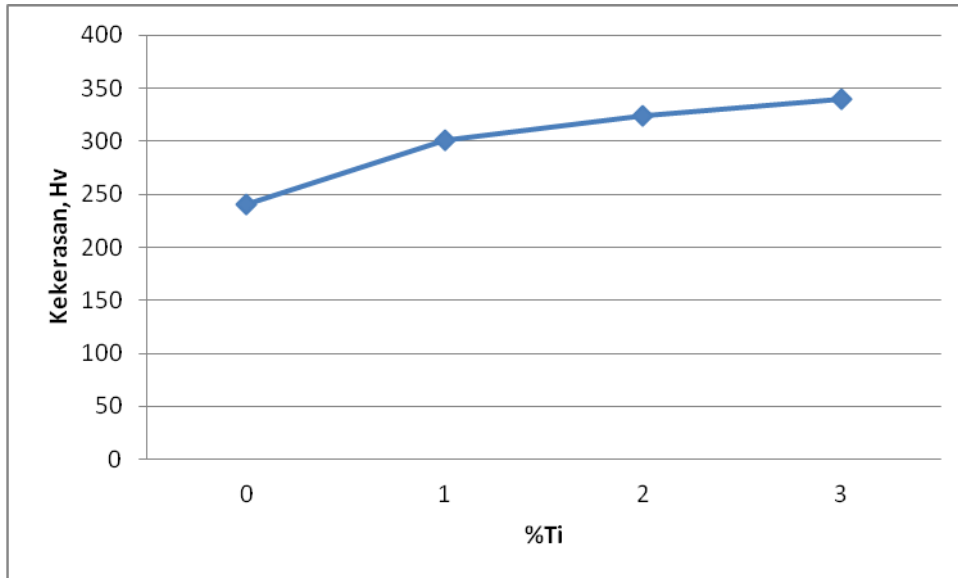
Gambar 2. Struktur mikro ingot U-7Mo-xTi. a) 1% Ti, b) 2%Ti, c) 3%Ti.

Kekerasan ingot U-7Mo-xTi diuji menggunakan metode vickers. Penambahan unsur Ti dalam paduan U-7Mo dapat mempengaruhi nilai kekerasannya. Hasil uji kekerasan mikro ingot U-7Mo-xTi ditunjukkan pada Gambar 3. Semakin tinggi kadar Ti maka semakin tinggi pula nilai kekerasannya. Nilai kekerasan untuk ingot U-7Mo-xTi dengan kadar Ti 0; 1; 2 dan 3% berturut - turut adalah 240,4; 300,6; 324,4 dan 340,2 Hv. Peningkatan kekerasan karena disebabkan oleh larutan padat molibdenum dan titanium serta adanya efek penghalusan butir oleh unsur titanium. Untuk

peningkatan kekuatan karena larutan padat terjadi karena larut padat atom Mo dan Ti ke dalam kisi kristal α U cenderung mengakibatkan distorsi parameter kisi yang berakibat menimbulkan medan tegangan disekitar atom yang larut. Kondisi seperti ini berperan menghambat pergerakan dislokasi. Paduan U-Mo-xTi ini juga berpotensi menghasilkan fasa kedua yaitu Mo_2U . Fasa kedua tersebut berkontribusi pula untuk menghambat pergerakan dislokasi. Ukuran butir kecil memiliki banyak batas butir dan batas butir tersebut menjadi penghambat dislokasi sehingga bahan menjadi lebih kuat.

Batas butir bertindak sebagai penghalang dislokasi slip (*slip dislocation*) yang menyebabkan dislokasi menumpuk pada bidang slip (*slip plane*) dibelakang batas butir. Dislokasi yang mencoba melewati dari

butir yang satu ke butir yang berdekatan mengalami perubahan arah gerakan dan menyebabkan misorientasi kristal (*crystallographic misorientation*)^[8].

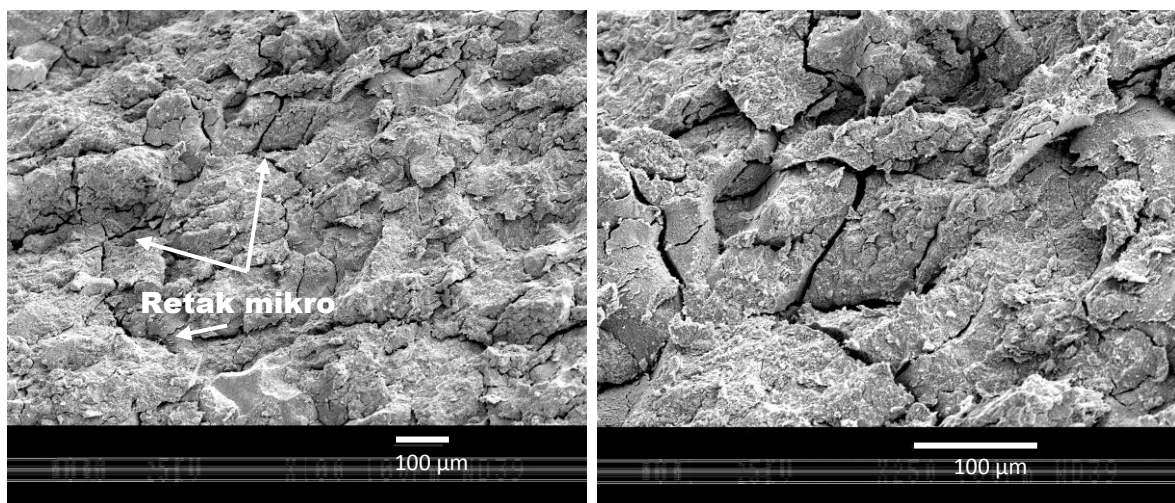


Gambar 3. Kekerasan Ingot U-7Mo-xTi

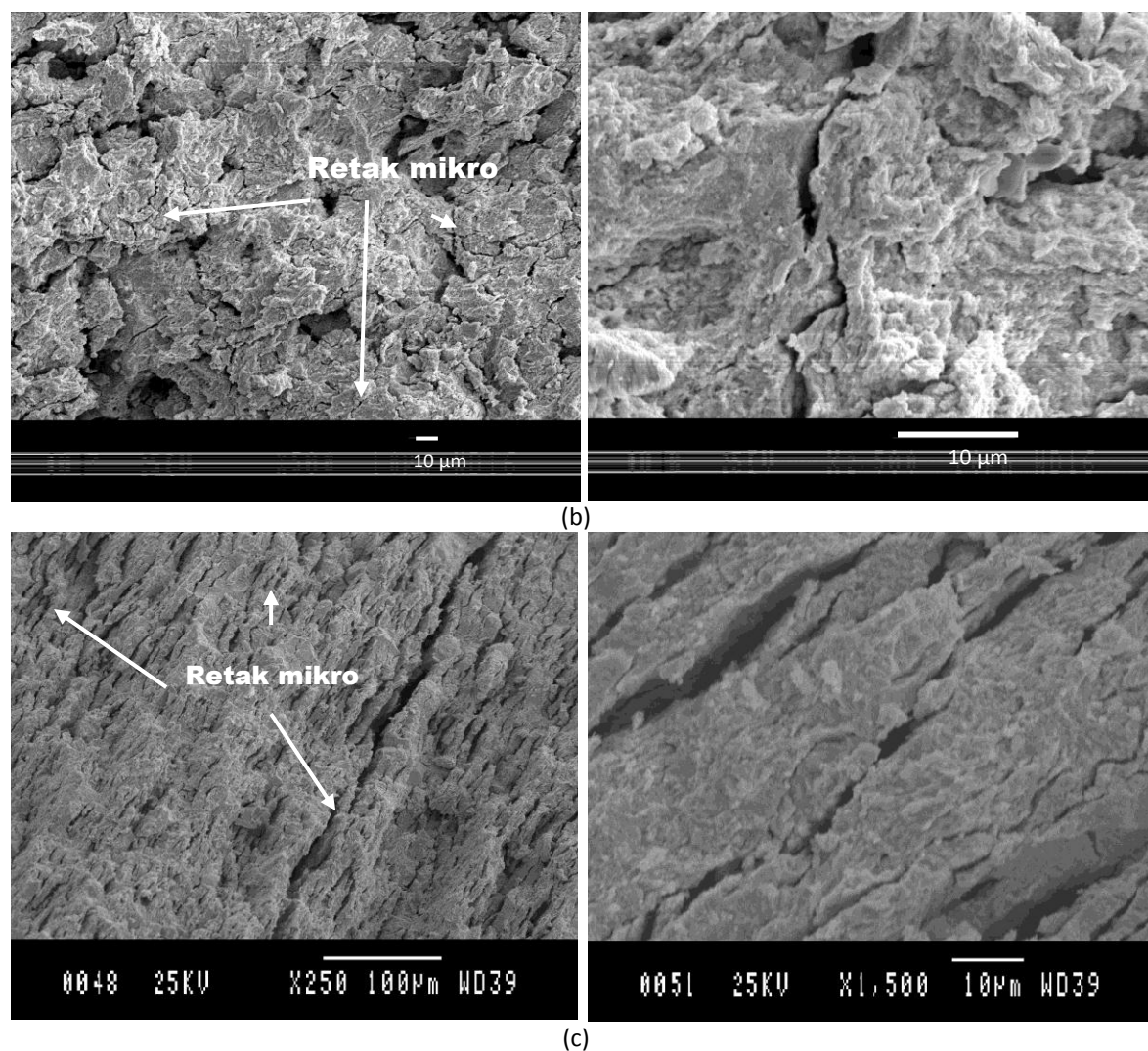
Mikrograf paduan U-7Mo-xTi setelah HD

Gambar 4.a sampai 4.c merupakan serbuk hasil HD sebelum proses *mechanical milling*. Metode HD mampu menghasilkan fragmentasi padatan sampel. Retakan-retakan yang terdapat pada paduan menunjukkan adanya penyerapan gas

hidrogen dan telah terjadi reaksi antara gas hidrogen dengan logam tersebut. Perubahan tekanan gas H₂ dari 1000 mbar menjadi 0,1 mbar menunjukkan telah terjadi penyerapan hidrogen dan reaksi antara gas hidrogen dengan paduan logam. Retakan cenderung menjalar sepanjang batas butir.



(a)



Gambar 4. Mikrograf paduan U-7Mo-xTi Setelah Hidriding-Dehidriding
a) U-7Mo-1Ti, b) U-7Mo-2Ti, c) U-7Mo-3Ti.

Pada Gambar 4.a dan 4.b menghasilkan pola retakan *intergranular* dengan bentuk cenderung equiaxial. Hal ini sesuai dengan struktur mikro ingot pada bagian tengah yang berbentuk equiaxial, sedangkan pada Gambar 4.c menghasilkan pola retakan yang memanjang atau *lamelar*. Hal ini dapat disebabkan pengambilan foto pada daerah tepi dimana pada daerah tersebut mempunyai struktur mikro ingot U-7Mo-xTi memanjang. Pola retakan *intergranular* baik struktur butir equiaxial maupun lamelar disebabkan oleh penyerapan hidrogen. Pada suhu tinggi yaitu sekitar 300 °C uranium sebagai logam reaktif akan bereaksi dengan hidrogen

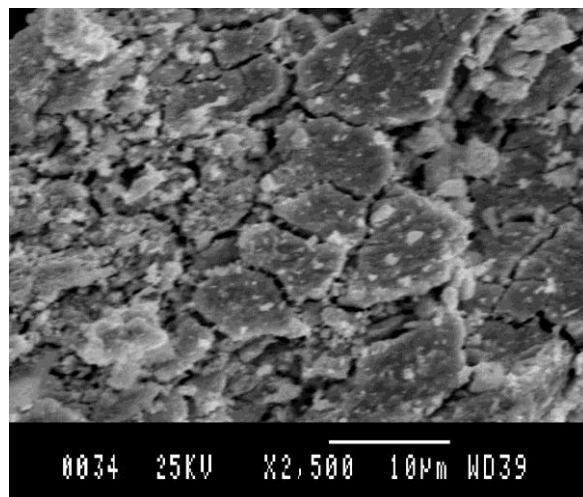
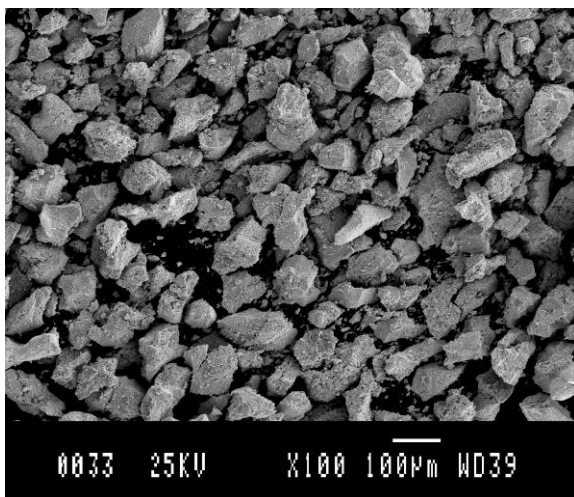
membentuk *uranium hydride* (UH_3) pada batas butir. *Uranium hydride* ini mempunyai sifat getas dan densitas lebih rendah dibanding densitas uranium (10.9 Vs 19.0 g/cm^3). *Uranium hydride* pada batas butir menyebabkan paduan uranium menjadi getas dan mudah dibuat serbuk dengan *mechanical milling* atau *crushing*^[2].

Mikrograf partikel U-7Mo-xTi setelah *mechanical milling*

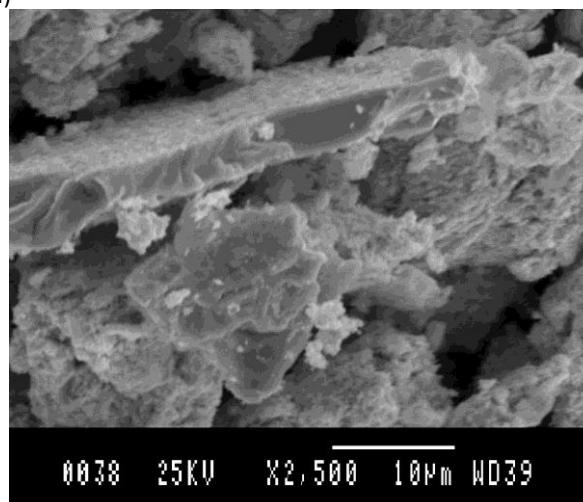
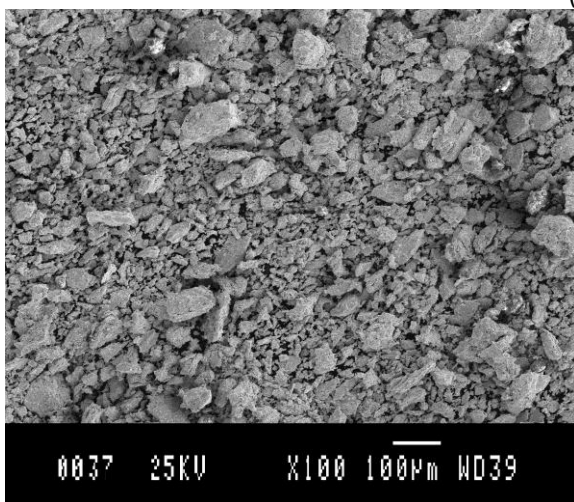
Bentuk serbuk U-7Mo-xTi yang diamati menggunakan SEM ditunjukkan pada Gambar 5.a sampai 5.c. Bentuk dan ukuran serbuk yang dihasilkan tidak

seragam. Sebagian besar serbuk memiliki bentuk lebih beraturan dan cenderung equiaxial, meskipun beberapa serbuk yang lainnya ditemukan mempunyai bentuk *accicular* dan *flake*. Ukuran partikel sangat bervariasi dari ukuran halus hingga relatif besar. Ukuran serbuk yang halus < 10 μm sedangkan yang kasar > 100 μm . Pada partikel dengan ukuran cukup besar terlihat retakan-retakan mikro yang dengan proses *mechanical milling* lebih lanjut dapat dengan mudah terfragmentasi menjadi ukuran lebih kecil. Menurut Supardjo, bentuk serbuk U-Mo yang dihasilkan dapat berpengaruh terhadap kualitas fabrikasi bahan bakar diantaranya adalah homogenisasi serbuk

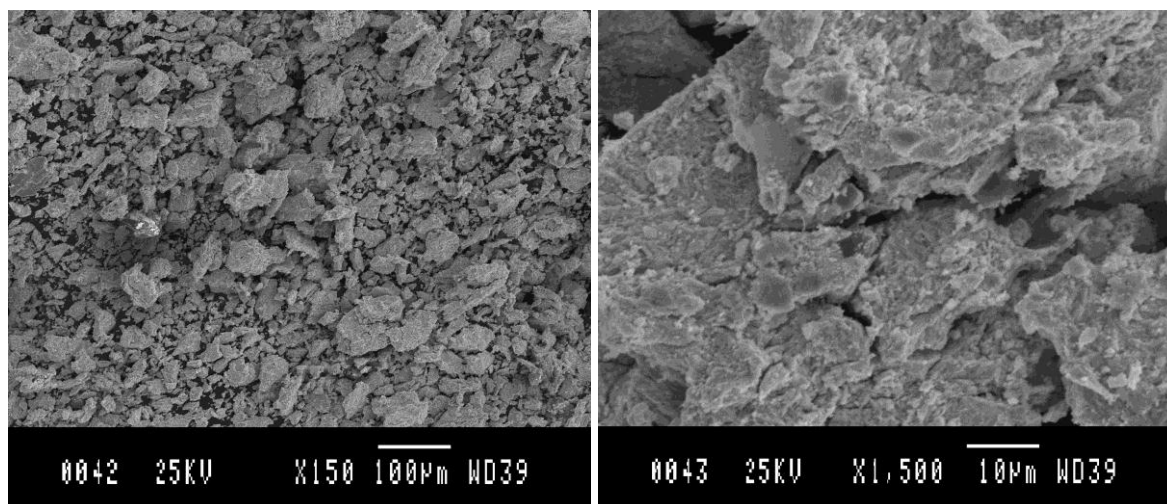
U-Mo dan matrik, kuat ikat, porositas, tebal kelongsong PEB dan kemampuan muat uranium dalam bahan bakar^[8]. Serbuk hasil *hydride-dehydride* yang dilanjutkan dengan *mechanical milling* mempunyai bentuk cenderung tidak beraturan seperti ditunjukkan pada Gambar 5.a sampai 5.c. Penambahan unsur titanium sebesar 1, 2 dan 3% tidak secara signifikan mempengaruhi bentuk butir akan tetapi mempengaruhi ukuran serbuk yang dihasilkan. Penambahan unsur titanium sebesar 3% menghasilkan ukuran butir relatif paling kecil dimana ukuran butir lebih halus akan mempunyai luas kontak lebih besar.



(a)



(b)



(c)

Gambar 5. Morfologi serbuk paduan U-7Mo-xTi setelah proses milling
a) U-7Mo-1Ti, b) U-7Mo-2Ti, c) U-7Mo-3Ti.

SIMPULAN

Struktur mikro ingot U-7Mo-xTi hasil peleburan adalah larutan padat molibdenum dan titanium dengan struktur butir cukup homogen dan relatif bulat meskipun untuk ingot pada kadar unsur Ti sebesar 1% terdapat struktur dendrit. Kekerasan ingot meningkat seiring dengan peningkatan kadar titanium. Kekerasan paling besar dicapai pada penambahan titanium sebesar 3%. Metode HD pada suhu 350°C dan tekanan 1000 mbar dapat menggetaskan ingot U-7Mo-xTi dengan bentuk patahan terdiri dari patah *transgranular* dan *intergranular*. Bentuk dan ukuran serbuk yang dihasilkan bervariasi dari ukuran halus hingga kasar. Beberapa butir yang besar teridentifikasi adanya retak mikro sehingga pada tahapan selanjutnya yaitu *mechanical grinding/milling* mudah terfragmentasi menjadi serbuk dengan ukuran lebih kecil yang diperoleh pada paduan dengan kadar titanium sebesar 3%.

UCAPAN TERIMAKASIH

Penulis mengucapkan terimakasih kepada PTBN dan RISTEK yang telah memberikan dukungan fasilitas dan dana

sehingga penelitian ini terlaksana dengan baik. Selain itu juga penulis ucapkan banyak terimakasih kepada rekan-rekan di PTBN khususnya yang telah membantu dalam pengambilan data menggunakan SEM yaitu Bapak Junaedi dan Ibu Sri Ismarwanti.

DAFTAR PUSTAKA

- [1]. Supardjo, Boybul, Kadarjono, Agoeng. Ariadi, Wisnu. (2010). Analisis struktur dan komposisi fase paduan U-7%Mo-x%Zr (x=1, 2, 3% berat) hasil proses peleburan. Jurnal Teknologi Bahan Nuklir. Vol.6 No. 2 : 71-134.
- [2]. Clark, C.R. Meyer, M.K. (1998). Fuel Powder Production From Ductile Uranium Alloys. International Meeting On Reduced Enrichment For Research And Test Reactors. Sao Paulo, Brazil.
- [3]. Creasy, J.T. (2011). Thermal Properties Of Uranium-Molybdenum Alloys : Phase Decomposition Effects Of Heat Treatments. Thesis of Nuclear Engineering, Texas A&M University.
- [4]. Leenaers, A. et.al. (2004). Post-irradiation examination on uranium-7wt% molybdenum atomized dispersion

-
- fuel. Journal of nuclear materials 335 : 39-47.
- [5]. Park, Jong Man. et.al. (2007). Phase Stability of U-Mo-Ti Alloys and Interdiffusion Behaviors of U-Mo-Ti/Al-Si. International Meeting On Reduced Enrichment For Research and Test Reactors. Prague, Czech Republic. Olivares, L. Martin, J. Lisboa and Pesenti, H. (2008). Powder Production of Uranium – Molybdenum – Metal Alloys Applying Hydride – Dehydride Methodology. RERTR 2008-30 th International Meeting On Reduced Enrichment For Research And test Reactors. Hamilton Crowne Plaza Hotel, Washington DC, USA.
- [6]. Mirandau, M. Arico, S. Rosenbusch, M. Ortiz, M. Balart, S and Gribaudo, L. (2009). Characterization of the interaction layer grown by interdiffusion between U-7Mo and Al A356 alloy at 550 and 340°C. Jurnal of Nuclear Materials 384 : 268-273.
- [7]. Supardjo dan Ghoib Widodo. (2007). Kajian Pengaruh Bentuk Butir Serbuk U-Mo dalam Fabrikasi Bahan Bakar Dispersi UMo-Al Tipe Pelat. Urania Vol.13 No. 4 : 147 – 190.