

DISTRIBUSI PERUBAHAN SERBUK URANIUM OKSIDA DALAM DRUM PENYIMPANAN

Yusuf Nampira, Agus Jamaludin, Samiyoto

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-BATAN

Kawasan Puspiptek, Serpong, Tangerang Selatan, 15314

e-mail: ynampira@gmail.com

(Naskah diterima : 18-08-2014, Naskah disetujui: 22-09-2014)

ABSTRAK

DISTRIBUSI PERUBAHAN SERBUK URANIUM DIOKSIDA DALAM DERUM PENYIMPANAN.

Serbuk uranium dioksida telah disimpan dalam drum selama beberapa kurun waktu. Serbuk ini mengalami pertambahan berat, pertambahan berat ini kemungkinan disebabkan terjadinya kontak antara serbuk dengan udara sekitar. Bilamana spesifikasi serbuk tersebut berubah maka parameter yang digunakan untuk pembuatan pelet akan berbeda. Guna memastikan kondisi tersebut maka dilakukan penelitian tentang pola kandungan uap air dan angka banding O/U dalam UO_2 dari beberapa posisi kedalaman. Sampling serbuk uranium dilakukan secara radom pada kedalaman 10cm, 20cm, 30cm, 40cm dan 50cm. Kandungan uap air dalam serbuk dianalisis dengan metode grafimetri, sedangkan penentuan angka banding dilakukan dengan cara grafimetri dan fluoresensi sinar-X dengan memantau intensitas sinar-X $U-M\alpha$. Makin sering serbuk dalam drum penyimpanan kontak dengan udara terjadi, maka kandungan molekul air dan angka banding O/U dalam serbuk yang bersangkutan akan meningkat. Dalam waktu penyimpanan sekitar 20 tahun perubahan spesifikasi tersebut terjadi sampai pada serbuk dengan kedalaman 30 cm dari permukaan serbuk dalam *drum*.

Kata kunci: Serbuk UO_2 , atmosfer udara, molekul air, angka banding O/U

ABSTRACT

DISTRIBUTION OF CHANGES IN URANIUM DIOXIDE POWDER IN CONTAINER STORAGE

Distribution of changes In uranium dioxide powder in container storage has been done. Uranium dioxide powder was stored in drums for some period of time. The powder is put on more weight, weight gain is probably due to the contact between the powder with the air atmosphere. When the powder specification changes, the parameters used for the manufacture of pellets will be different. To ensure these conditions, conducted research on the pattern of moisture content and O/U ratio of the UO_2 powder of some depth positions in the drum. Sampling were done by radom from uranium powder at a depth of 10cm, 20cm, 30cm, 40cm and 50 cm. Moisture content in the powder was analyzed by the grafimetry method, while the comparative figure determination is done by grafimetry and X-ray fluorescence to monitor the intensity of the X-ray $U-M\alpha$. The more often the powder in contact with air storage drum occurs, the content of water molecules and the O/U ratio in the corresponding powder will increase. Within about 20 years storage specification changes occurred until the powder to a depth of 30 cm from the surface of the powder in the drum.

Keywords: UO_2 powder, air atmosphere, water molecules, O / U ratio.

PENDAHULUAN

Bahan bakar yang digunakan dalam reaktor daya sebagian besar berupa bahan bakar keramik dari uranium dioksida. Bahan bakar nuklir tersebut berbentuk pelet yang dibuat dari serbuk uranium oksida. Pelet bahan bakar tersebut dibuat melalui proses pembentukan pelet mentah. Pelet mentah dibuat dari serbuk uranium dioksida dengan proses kompaksi, dan kemudian disinter dalam atmosfer gas hidrogen sehingga diperoleh pelet sinter yang utuh dan memenuhi spesifikasi^[1,2]. Adapun beberapa parameter serbuk yang memberi efek pada proses kompaksi dan sinter dan menghasilkan keseragaman produk pelet diantaranya : mampu alir, karakteristik kompaksi, kekerasan butiran uranium dioksida, angka banding O/U dan sebagainya^[3,4,5].

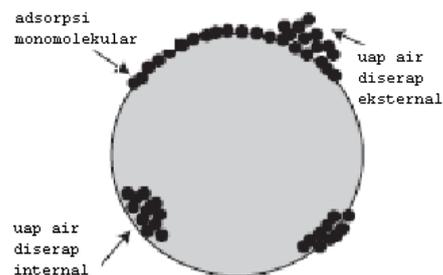
Telah terjadi penambahan berat serbuk UO_2 disimpan dalam wadah (drum) pada rentang waktu yang panjang. Besarnya perubahan ini ditentukan oleh kebolehdan serbuk tersebut kemungkinannya disebabkan oleh adanya hubungan langsung udara atau terjadinya hubungan antara serbuk yang telah menyerap partikel gas dari udara dengan serbuk disekitarnya. Perubahan spesifikasi ini kemungkinan akan menyebabkan perubahan pada proses pembentukan pelet. Perubahan ini kemungkinannya tidak hanya terjadi pada serbuk di permukaan tetapi juga terjadi pada bagian keseluruhan serbuk dalam drum. Bila kandungannya gas atau uap yang terserap dalam serbuk UO_2 signifikan mengubah spesifikasi serbuk UO_2 , hal ini akan mempengaruhi proses dan kualitas produk pelet sinter yang dihasilkan.

Bahan serbuk pada umumnya mudah menyerap uap air di udara. Kontak antara serbuk dengan udara kering, penyerapan uap air ini menghasilkan lapisan molekul tunggal, sedangkan kontak antara udara mempunyai relatif humiditas lebih besar dari 80% dengan serbuk menghasilkan multi lapisan molekul air atau

masuknya molekul air pada sistem kapiler partikel. Beberapa tipe adsorpsi air dalam serbuk, kinetikanya tergantung pada ^[6,7]:

Tingkat adsorpsi permukaan sesuai dengan perbedaan antara tekanan parsial uap air dalam udara lingkungan dan tingkat kejenuhan senyawa serbuk.

Diffusi molekul air dalam kristal, laju diffusi tergantung pada koefisien diffusi dan konsentrasi gradient air dalam kristal.



Gambar 1. Bentuk adsorpsi molekul air dalam serbuk

Bentuk serapan molekul air dalam serbuk ini ditunjukkan dalam Gambar 1. Penyerapan molekul air ini menyebabkan menurunkan reologi partikel dan kemungkinan juga menghasilkan suatu *aggregate* yang mempunyai ketahanan mekanik tinggi. Adapun kontak antara serbuk UO_2 dengan O_2 dalam udara kering akan terjadi reaksi oksidasi, melalui reaksi sebagai berikut :^[8]

Sangat cepat diffusi nukleasi dan pertumbuhan

Adanya oksigen dan air menyebabkan terbentuknya senyawa $UO_3 \cdot 2H_2O$, melalui reaksi dibawah ini :^[9]



Berkaitan dengan perubahan UO_2 tersebut di atas, maka dilakukan analisis kandungan molekul air dan O/U dalam serbuk UO_2 pada perbedaan posisi kedalaman serbuk dalam wadah tersebut terutama. Guna memperoleh gambaran pola perubahan spesifikasi serbuk UO_2 dalam drum.

TATA KERJA

Bahan dan alat yang digunakan

Bahan yang digunakan Serbuk UO_2 buatan Cameco di dalam drum dengan spesifikasi kandungan molekul air : 0,18 % berat, O/U: 2,13 (data sertifikat material). Bahan UO_2 serbuk dalam drum penyimpanan sebagai sampeldan standar U_3O_8 CRM 123-7 New Brunswick Laboratory.

Alat yang digunakan yaitu : timbangan analitik digunakan untuk menimbang berat serbuk UO_2 , oven listrik digunakan untuk menguapkan bahan mudah menguap yang teradsorpsi dalam serbuk UO_2 , tungku pemanas untuk memanaskan serbuk UO_2 dalam rangka untuk oksidasi dan Fluoresensi sinar-X digunakan untuk mengukur kandungan uranium dalam serbuk UO_2 .

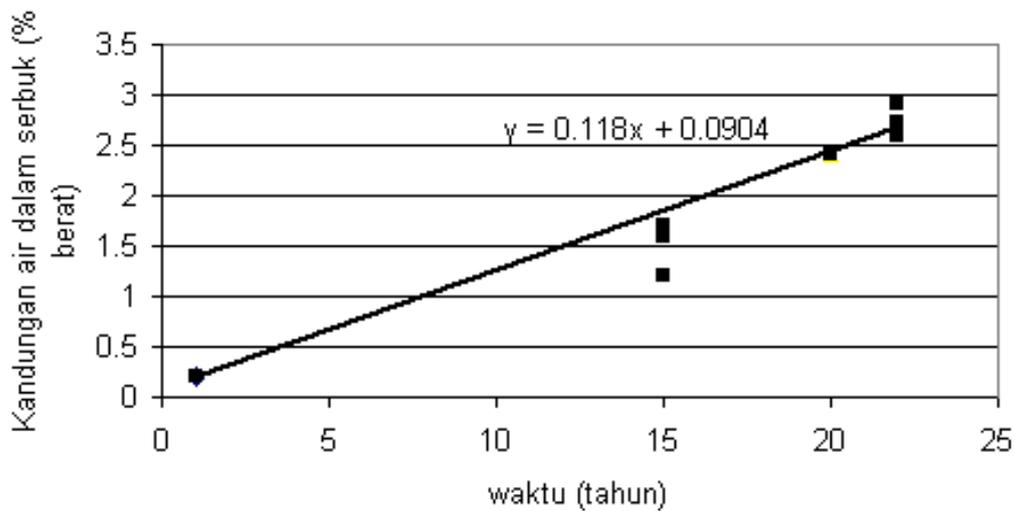
Langkah kerja

Serbuk UO_2 permukaan dalam drum pada waktu yang berbeda diambil sebagai sampel dengan perbedaan waktu penyimpanan, ditentukan kandungan air dengan penimbangan serbuk awak dan berat serbuk setelah mengalami pemanasan sampel pada $110^\circ C$ selama 4 jam. Sampel serbuk UO_2 diambil dari dalam drum menggunakan metode random pada kedalaman 10cm, 20cm, 30cm, 40cm, 50

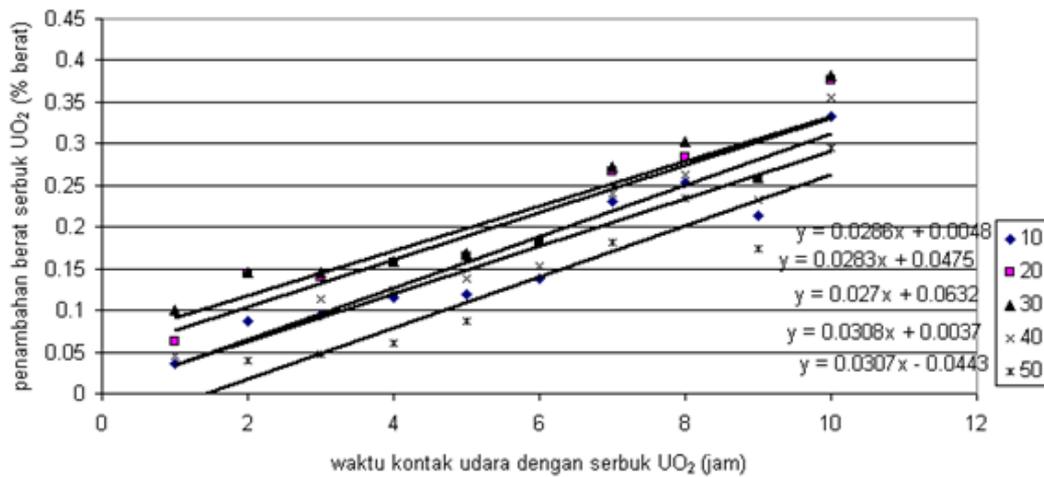
cm dari serbuk permukaan dalam drum yang berbeda. Kandungan uap air dan bahan mudah menguap ditentukan dengan menimbang berat sampel sebelum dan sesudah pemanasan $120^\circ C$ selama 4 jam. Angka banding U/O setiap sampel ditentukan dengan metode grafimetri sampel dipanaskan pada $500^\circ C$ setelah didinginkan ditimbang, kemudian dipanaskan hingga temperatur $900^\circ C$ setelah dingin ditimbang. Angka banding O/U sampel juga ditentukan melalui pengukuran kandungan uranium menggunakan fluoresensi sinar-x.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Selama penyimpanan serbuk uranium dioksida dalam drum mengalami peningkatan berat secara signifikan, keadaan ini ditunjukkan dalam Gambar 2. Peningkatan berat serbuk tersebut seiring dengan makin lamanya waktu penyimpanan dan seringnya tutup drum dibuka untuk pengambilan serbuk, hal ini disebabkan oleh seringnya terjadi kontak antara udara yang mengandung uap air dengan serbuk permukaan di dalam drum. Laju adsorpsi uap air oleh serbuk UO_2 dari berbagai sampel serbuk UO_2 yang diambil dari berbagai kedalaman drum mempunyai nilai sama, yaitu antara 0,027% sampai dengan 0,030 % berat serbuk/jam. Keadaan ini ditunjukkan dalam Gambar 3.



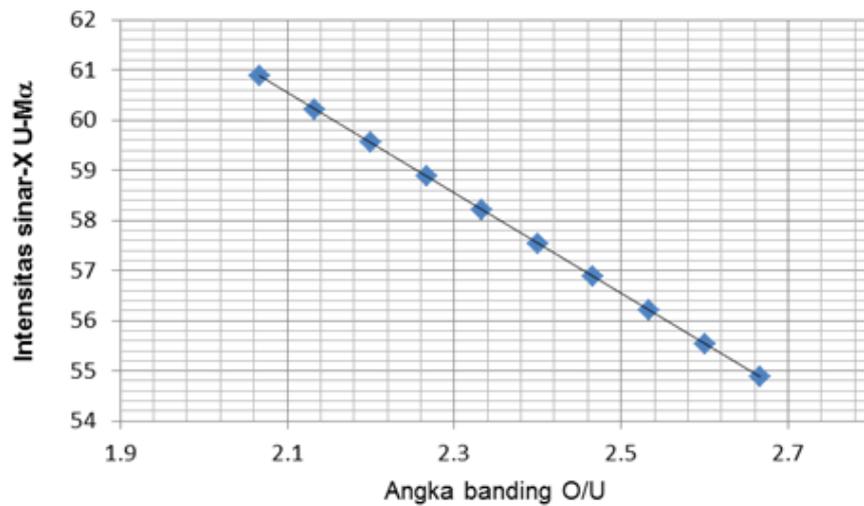
Gambar 2. Laju perubahan kandungan air dalam massa penyimpanan



Gambar 3 . Laju penyerapan uap air dalam udara oleh serbuk UO₂

Angka banding O/U ditentukan dengan cara menimbang sampel serbuk uranium oksida dan mengukur kandungan uranium dalam sampel. Analisis O/U dilakukan dengan cara membandingkan kandungan uranium dalam sampel dengan kandungan uranium dalam suatu kurva

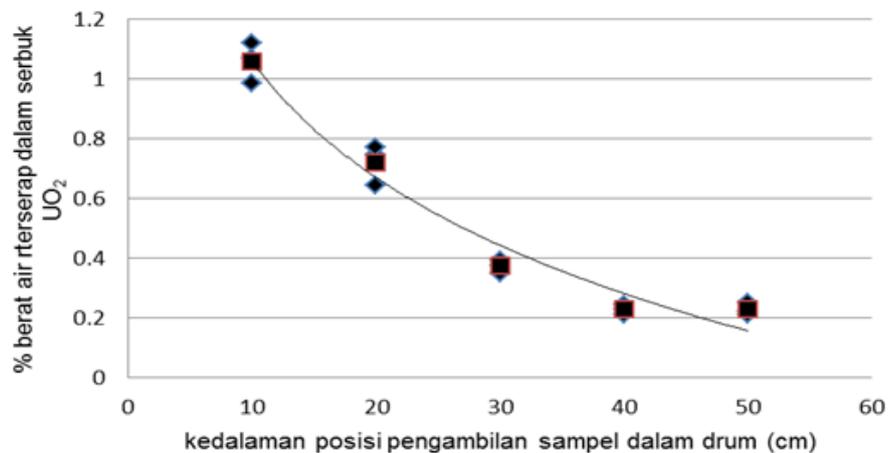
hubungan antara angka banding O/U dengan kandungan uranium dalam standar. Kandungan uranium disetarakan dengan intensitas sinar-X karakteristik U-M α yang diperoleh dari pengukuran. Adapun hubungan tersebut ditunjukkan pada Gambar 4.



Gambar 4. Hubungan antara intensitas uranium dengan nilai O/U

Kontak antara udara dengan serbuk UO_2 menyebabkan terjadinya adsorpsi gas dan uap yang dikandung dalam udara ke dalam serbuk UO_2 . Pada awalnya adsorpsi uap air oleh serbuk UO_2 merupakan adsorpsi tunggal pada permukaan semakin lama terjadi penumpukan molekul air pada permukaan, dan diikuti dengan proses difusi molekul air melalui pori-pori ke dalam serbuk. Penumpukan molekul air pada permukaan serbuk mengalami perpindahan melalui kontak permukaan antar serbuk sehingga molekul air pada serbuk yang satu berpindah ke serbuk lainnya. Melalui mekanisme ini

terjadinya perpindahan molekul air pada serbuk di lapisan bawahnya. Sebagian dari molekul air tersebut akan mengalami proses difusi ke dalam serbuk. Melalui mekanisme tersebut maka semakin dalam serbuk berada dalam drum akan mengandung molekul air makin kecil. Kandungan air dalam serbuk UO_2 permukaan sekitar 1.06 % berat, pada kedalaman 30 cm sekitar 0,22 % berat, sedangkan kandungan air dalam serbuk dekat dengan serbuk di permukaan relatif lebih besar dari pada serbuk dibawahnya. Hal ini ditunjukkan dalam Gambar 5



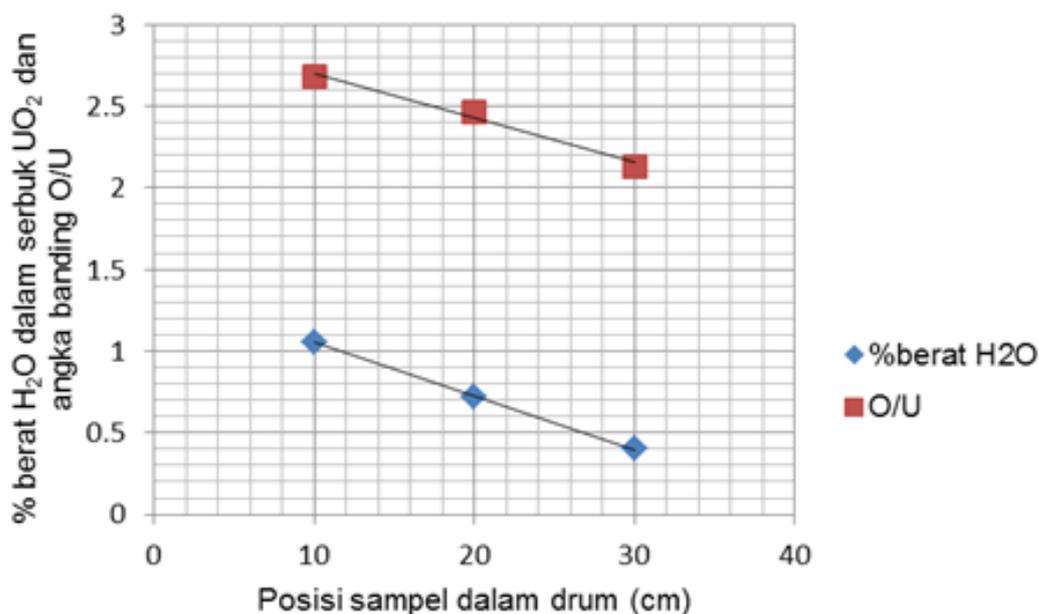
Gambar 5. Kandungan molekul air dalam serbuk UO_2 pada berbagai kedalaman dalam drum penyimpanan

Uap air dalam udara diserap oleh serbuk UO_2 , molekul air terikat dalam serbuk UO_2 menyebabkan terjadinya pertumbuhan butir UO_2 , dan diikuti masuknya O_2 yang terlarut dalam uap air pada struktur UO_2 . Peristiwa tersebut memungkinkan terjadinya reaksi oksidasi pada serbuk UO_2 . Reaksi O_2 terlarut dalam air dengan serbuk UO_2 merupakan suatu reaksi oksidasi



yang berlangsung cepat. Seperti data adsorpsi molekul air pada serbuk yang ditunjukkan pada Gambar 6 serbuk pada permukaan atas hingga kedalaman 10 cm. Serbuk yang berada pada daerah kedalaman antara 10 cm sampai dengan 30 cm lebih kecil kontak dengan udara, semakin dalam keberadaan serbuk dalam drum kebolehdijadian interaksi tersebut sangat kecil.

Penyerapan molekul air di daerah ini melalui kontak antar permukaan serbuk. Hal ini terjadi setelah serbuk UO_2 yang berada di atasnya jenuh mengadsorpsi molekul air. Molekul air yang teradsorpsi sebagian akan terdifusi kedalam serbuk dan terdifusi melalui celah diantara serbuk dalam drum. Bagian molekul air yang didifusikan diantara serbuk akan diadsorpsi oleh serbuk di bawahnya, sehingga kontak secara langsung udara dengan serbuk pada bagian lebih dalam drum makin kecil. Oleh sebab itu perubahan kandungan air dan angka banding O/U dalam serbuk dan sangat bergantung pada kecepatan difusi molekul air dari serbuk UO_2 di permukaan drum. Keadaan ini ditunjukkan nilai angka banding O/U dalam serbuk uranium oksida pada serbuk bagian dalam drum lebih kecil dibandingkan dengan angka banding O/U pada serbuk permukaan (Gambar 5)



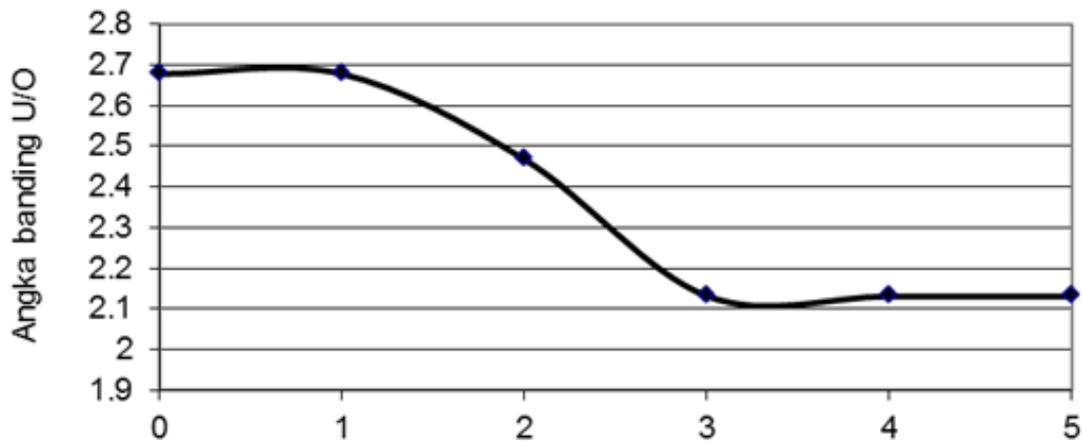
Gambar 6. Nilai angka banding O/U dan % berat kandungan H_2O dalam serbuk pada beberapa posisi

Kandungan uap air dalam serbuk UO_2 pada kedalaman lebih dari 30 cm relatif tetap pada nilai antara 0,2 sampai dengan 0,25. Hal ini menunjukkan bahwa difusi molekul air tersebut melalui celah antar

serbuk pada serbuk UO_2 pada posisi ini sangat kecil. Sesuai dengan kejadian tersebut di atas maka spesifikasi serbuk UO_2 dalam drum penyimpanan ditunjukkan dalam Gambar 7, yaitu semakin jauh posisi serbuk

UO₂ dari titik kontak udara dengan serbuk UO₂ menyebabkan proses difusi molekul air dan O₂ melalui celah antar serbuk makin dominan, akan tetapi jumlah molekul air yang didifusikan sangat tergantung kecepatan pencapaian kondisi jenuh molekul air yang diadsorpsi oleh serbuk UO₂. Sehubungan dengan hal tersebut maka kandungan molekul air dan angka banding O/U semakin

kecil. Hasil tersebut menunjukkan bahwa serbuk UO₂ pada permukaan telah mengalami oksidasi dengan angka banding O/U disekitar 2,66 hal tersebut menunjukkan bahwa UO₂ tersebut telah berubah menjadi U₃O₈ sedangkan serbuk pada kedalaman 30 cm dari permukaan angka banding O/U dalam serbuk sekitar 2,13.



Gambar 7. Hubungan antara nilai O/U dengan posisi sampling serbuk UO₂

SIMPULAN

Dari hasil percobaan maka dapat disimpulkan bahwa semakin sering serbuk dalam drum penyimpanan akan menyebabkan molekul gas yang terkandung di dalam udara diadsorpsi oleh serbuk UO₂. Serapan udara tersebut mengubah spesifikasi kandungan uap air dan angka banding O/U. Tingkat kandungan molekul air dan angka banding O/U dalam serbuk sebanding dengan kebolehjadian serbuk tersebut berhubungan dengan udara. Dalam waktu penyimpanan sekitar 20 tahun telah terjadi perubahan spesifikasi serbuk dipermukaan sampai kedalaman 30 cm, sedangkan serbuk di kedalaman lebih dari 30 cm dari permukaan serbuk dalam drum belum mengalami perubahan.

DAFTAR PUSTAKA

- [1]. Anonymous, Oxide Fuels Complex. Nuclear fuel manufacture in one of the most advanced manufacturing plants in the world, Westinghouse, Springfields Fuels Ltd, SalwickPreston, Lancashire, UK page 2-5.
- [2]. MP.Odeychuk, S.A. Sirenko, (2014). *Preparation of Pellets From Uranium Dioxide Without Binder*, *Fuctional Materials* 21, No 3, page 329-332
- [3]. Aurică Barbu, Mihai Ovidiu Cojocaru, (2013). *The Cold Pressing behavior of Uranium Dioxide and Triuranium Octooxide Mixed Powders*, U.P.B. Sci. Bull., Series B, Vol. 75, Iss. 4, page 221-230.
- [4]. Mahmoud R. Ghavi (2013). *Nuclear Fuel Cycle Reactor Fuel Design and Fabrication*, Center of Nuclear Studies, SPSU, page 1-33

-
- [5]. Komuyer,L dan Affolter,C (29 September 2005). *Absorption evaporation kinetics of water vapour on highly hygroscopic powder*, Powder Technology, Vol 157, 4th French Meeting on Powder Science and Technology, issues 1-3, page 67-71.
- [6]. Ali Nakhodachi, (Januari 2005). *An Overview of the Effect of Moisture on Compaction and Compression*, Pharmaceutical Technology, Page 50-58
- [7]. Brett, Gary T (2005). *Surface Oxidation Study of Uranium Dioxide under Wet and Dry Condition*, Departement of the air force, air University, Air Force Institute of Technology, Ohio, Page 7-12
- [8]. Delegard, C.H., Schemidt, A.J.(2005). *Uranium Metal Behaviour in Water, Sludge and Grout Matrices*, Pacific Northwest National Laboratory, Richland, Washington, Page 2.1-2.2.