

PROSES PENGOMPAKAN DAN PENYINTERAN PELET CERMET UO₂-Zr

Tri Yulianto, Meniek Rachmawati, Ety Mutiara

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBN) - BATAN
Kawasan Puspipstek, Serpong, Tangerang Selatan, 15310

E-mail: yulianto@batan.go.id

(Naskah diterima: 4 Desember 2012, disetujui: 15 Januari 2013)

ABSTRAK

PROSES PENGOMPAKAN DAN PENYINTERAN PELET CERMET UO₂-Zr. Bahan bakar inovatif berupa pelet *cermet* UO₂-Zr dikembangkan. Kegiatan ini bertujuan untuk menaikkan derajat bakar bahan bakar *PWR* melalui perbaikan konduktivitas panas pelet UO₂ dengan penambahan sejumlah kecil logam Zr yang lebih kecil 10 % berat pada matrik UO₂. Logam Zr akan membentuk jembatan/struktur jaringan selama proses pengompakan dan mengurangi kontak antar partikel UO₂. Berdasarkan teori kesetimbangan fasa logam-logam oksida-keramik, teknik fabrikasi ini akan menghasilkan pelet UO₂ dengan jaringan/saluran logam kontinyu pada batas butir UO₂. Fabrikasi *cermet* dilakukan dengan variasi parameter pencampuran fraksi penyusun *cermet* dan pengompakan untuk menghasilkan jaringan/saluran logam kontinyu pada matrik UO₂. Selanjutnya dilakukan karakterisasi pelet *cermet* UO₂ yang meliputi pengujian visual, pengukuran dimensi, pengukuran densitas dan uji ceramografi untuk mendapatkan informasi struktur jaringan/saluran logam dalam pelet UO₂ dan komposisi pelet *cermet* yang optimal dalam proses fabrikasi. Metode fabrikasi *cermet* ini diharapkan mempunyai efektivitas yang lebih tinggi dibandingkan jalur fabrikasi pelet UO₂.

Kata kunci: fabrikasi, *cermet*, pelet UO₂ - Zr, *PWR*.

ABSTRACT

THE COMPACTION AND SINTERING OF UO₂-Zr CERMET PELLETS. An innovative fuel pellet of UO₂-Zr *cermet* has been developed to improve thermal conductivity of UO₂ pellet by adding small amount Zr metal in to UO₂ matrix below 10 % weight. Zirconium powder will serve for the creation of bridges or web structure during compaction and will effectively reduce contact between of UO₂ particles. Based on the theory of phase equilibrium of metals-metal oxides-ceramic, this fabrication technique may produce UO₂ pellets containing continuous metal channel on the grain boundary of UO₂ through sintering in a reduction atmosphere. The fabrication was done by varying process parameters of mixing and compaction. Characterisation of UO₂-Zr *cermet* pellet involved visual test, dimensional and density measurement, and ceramography test. This advanced *cermet* fabrication technology may address common issue with *cermet* fuels such as microstructure with continuous metal channel structure in the UO₂ matrix, which is more effectively than the commonly accepted microstructure involving fraction of UO₂ pellet by standard fabrication route.

Keywords: fabrication, *cermet*, UO₂-Zr pellet, *PWR*.

PENDAHULUAN

Penguasaan teknologi fabrikasi pelet UO_2 sebagai bahan bakar nuklir tipe PWR sangat penting karena ditinjau dari aspek teknologi dapat meningkatkan kemandirian dan daya saing ilmiah teknis dalam penyediaan bahan bakar nuklir. Pelet UO_2 telah digunakan pada lebih dari 85% PLTN tipe PWR selama hampir 50 tahun dan terus dilakukan peningkatan kinerjanya atau derajat bakarnya (*burn up*). Sampai saat ini pelet UO_2 telah mampu dibakar hingga mencapai 60 MWd/kg dan 110 MWd/kg di laboratorium dengan pengembangan pelet, kelongsong dan bahan struktur lainnya serta disain elemen bakar^[1]. Hal ini akan mengurangi kebutuhan bahan bakar baru maupun bahan bakar bekas per energi yang dihasilkan, kemudahan pengoperasian, meningkatkan kehandalan dan keselamatan^[1].

Sejalan dengan perkembangan reaktor daya yang menuntut bahan bakar dengan derajat bakar (*burn-up*) tinggi tersebut, bahan bakar UO_2 -metal cermet (*ceramic metal*) merupakan kandidat bahan bakar PWR di masa datang^[2-3]. Di dalam bahan bakar UO_2 -metal cermet, metal yang dipilih harus mempunyai konduktivitas panas yang tinggi seperti W, Mo, Cr,^[2-3] dan Al serta Zr^[1,4-5]. Konduktivitas panas logam yang tinggi akan meningkatkan pengambilan panas di dalam bahan bakar. Dengan demikian temperatur pusat bahan bakar akan lebih rendah/turun signifikan dibandingkan bahan bakar UO_2 tanpa tambahan metal^[4].

Penelitian bahan bakar cermet UO_2 -Zr yang telah dilakukan hingga saat ini adalah dengan mendispersikan keramik UO_2 pada fasa Zr yang bertindak sebagai matriks dengan fraksi metal sekitar 50% volume^[1,4-5]. Cara tersebut memungkinkan matriks logam dapat berperan sebagai pengungkung produk fisi, bahkan sampai pada penyimpanan lestari bahan bakar bekas. Pada penelitian ini akan dilakukan cara

fabrikasi bahan bakar cermet UO_2 -Zr dengan mendispersikan metal Zr ke dalam keramik UO_2 dengan fraksi metal lebih kecil 10% volume^[2]. Cara ini memungkinkan pelet bahan bakar cermet mempunyai kandungan bahan fisil yang lebih banyak dibandingkan cara fabrikasi sebelumnya. Pemilihan Zr sebagai logam tambahan didasarkan pada kekuatan mekanik pada temperatur tinggi dari Zr yang tinggi, ketahanan korosi, dan sifat netroniknya^[5].

Penelitian ini bertujuan untuk meningkatkan kinerja termik bahan bakar PWR melalui perbaikan karakteristik pelet UO_2 dengan penambahan sejumlah kecil logam Zr pada matriks UO_2 . Serbuk Zr yang ditambahkan akan membentuk jembatan/struktur jaringan selama proses penyinteran dan mengurangi difusi inter partikel UO_2 . Teknik fabrikasi ini akan menghasilkan pelet UO_2 dengan jaringan/saluran senyawa logam Zr yang kontinyu pada batas butir UO_2 ^[2-3]. Jaringan/saluran senyawa logam Zr diharapkan dapat menurunkan *gradient* temperatur dari pusat ke permukaan pelet bahan bakar. Di dalam penelitian ini akan dilakukan metode fabrikasi pelet cermet UO_2 -Zr melalui pengompakan dingin dan penyinteran (*cold pressing and sintering*)^[6].

Pengompakan adalah proses pengubahan serbuk menjadi kompak dengan sifat-sifat tertentu, salah satunya adalah kerapatan / densitas. Pada proses pengompakan, respon serbuk terhadap *compaction stress* tidaklah sama akan tetapi tergantung karakteristik serbuk dan bahan pelumas yang ditambahkan. Kualitas pelet terutama ditentukan oleh karakteristik serbuk UO_2 awal yang digunakan sedangkan pelumas berperan dalam mengurangi friksi antar partikel dan friksi antara partikel dengan dinding cetakan (*dies*). Selain itu, dengan adanya pelumas maka laju alir serbuk pada saat pengisian cetakan akan meningkat.

Pada proses penyinteran, ada dua kinetika utama yang terjadi. Tahap awal penyinteran berupa proses densifikasi dan pada tahap akhir adalah pertumbuhan butir. Mekanisme yang terjadi pada kedua tahapan tersebut adalah proses difusi. Salah satu *driving force* dari proses difusi adalah energi aktivasi yang akan menentukan mampu sinter serbuk UO₂. Hasil penelitian menyatakan bahwa serbuk dengan mampu sinter yang baik adalah serbuk yang tersusun dari partikel yang agak lunak (*fairly soft particles*) dengan ukuran partikel yang sangat halus yang mempunyai luas permukaan partikel yang besar. Mampu sinter juga akan ditentukan oleh ukuran dan tingkat kesempurnaan permukaan dan internal kristal penyusun serbuk.

Di dalam penelitian ini akan dilakukan metode fabrikasi *cermet* melalui *cold pressing and sintering* menggunakan peralatan yang ada di Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir - BATAN. Selain penambahan logam Zr dapat menaikkan konduktifitas, diharapkan juga dapat memberikan pengaruh positif dalam pemenuhan persyaratan lain dari pelet UO₂ saat fabrikasinya seperti kerapatan dan ukuran butir UO₂. Penelitian ini dibatasi pada pengaruh penambahan logam zirkonium dalam proses pengompakan dan penyinteran pelet *cermet* UO₂-Zr .

Hasil penelitian ini diharapkan dapat menjadi pilihan proses fabrikasi bahan bakar maju untuk reaktor PWR disamping meningkatkan kemandirian dan daya saing ilmiah teknis dalam penyediaan bahan bakar nuklir maju dalam rangka mendukung opsi PLTN.

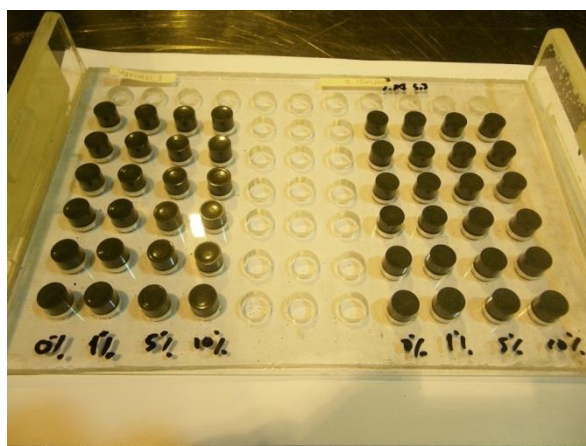
TATA KERJA

Fabrikasi *cermet* dilakukan dengan mencampurkan serbuk Zr dan serbuk UO₂

dengan variasi fraksi serbuk Zr 0, 1, 5 dan 10% berat. Serbuk Zr yang digunakan berdiameter 100 mikron dengan bentuk bola yang seragam dan serbuk UO₂ yang digunakan mempunyai distribusi ukuran 150-800 µm. Campuran tersebut dikompakan dengan variasi tekanan pengompakan 5, 5,5 dan 6 MP (*Mechanical Pressure*) menggunakan mesin kompaksi yang ada di PTBN-BATAN. Pelet mentah UO₂-Zr selanjutnya disinter pada temperatur sinter 1700 °C dengan laju pemanasan 250 °C per jam dan waktu penyinteran 3 jam menggunakan tungku sinter yang ada di PTBN-BATAN. Selanjutnya dilakukan karakterisasi pelet *cermet* UO₂ yang meliputi pengujian visual, pengukuran dimensi, pengukuran kerapatan/densitas dan uji ceramografi untuk mendapatkan informasi struktur mikro pelet *cermet* UO₂-Zr. Data dimensi pelet diperoleh dengan cara mengukur tinggi dan diameter pelet menggunakan jangka sorong. Pengukuran kerapatan pelet dilakukan dengan cara membagi hasil pengukuran berat pelet menggunakan timbangan analitik dengan hasil perhitungan volume berdasarkan pengukuran dimensi. Untuk memperoleh informasi struktur mikro pelet mentah dan pelet sinter *cermet* UO₂-Zr digunakan mikroskop optik dengan perbesaran 100x untuk penambahan Zr sebesar 0% dan 5%.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil pengompakan serbuk UO₂-Zr menjadi pelet mentah *cermet* UO₂-Zr dengan variasi tekanan 5-6 MP ditunjukkan pada Gambar 1 dan Gambar 2. Gambar 1 memperlihatkan tampilan fisik pelet mentah dan Gambar 2 merupakan grafik yang memperlihatkan hubungan antara kerapatan pelet mentah *cermet* dengan prosentase penambahan logam Zr.

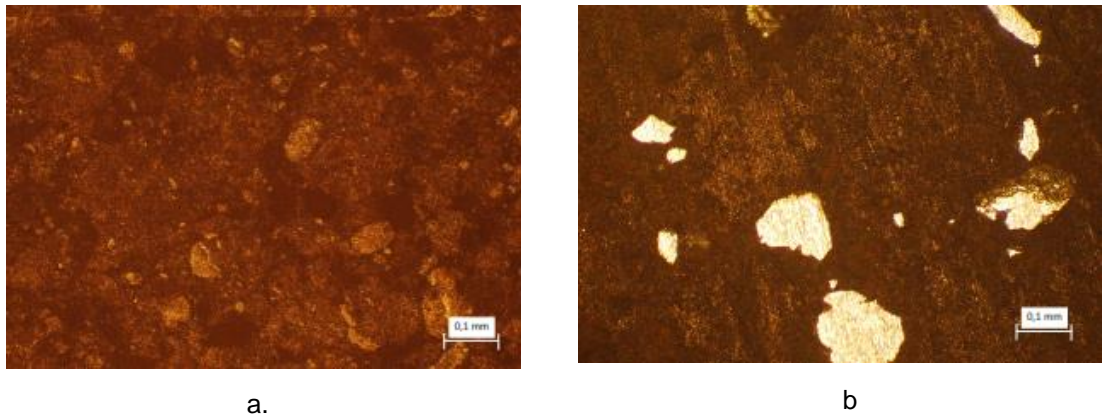


Gambar 1. Pelet mentah *cermet* UO_2 -Zr hasil proses pengompakan dengan tekanan 5-6 MP

Pada Gambar 2 terlihat bahwa tekanan 6 MP memberikan kerapatan pelet mentah UO_2 -Zr rata-rata relatif lebih tinggi dibandingkan tekanan yang lain. Hal itu terjadi pada setiap prosentase penambahan Zr yang berada dalam rentang 5,7550-5,9610 g/cm^3 , dan selanjutnya pelet mentah dengan tekanan 6 MP ini yang dipilih untuk dilakukan penyinteran.

Pada Gambar 2 dapat dijelaskan *cermet* yang bertambah dengan fraksi zirkonium yang semakin tinggi. Hal ini dapat menjelaskan peran serbuk zirkonium dalam proses pengompakan serbuk *cermet* UO_2 -Zr. Telah dijelaskan bahwa pada proses pengompakan, respon serbuk terhadap *compaction stress* tidaklah sama akan tetapi tergantung karakteristik serbuk dan bahan pelumas yang ditambahkan. Selain karakteristik serbuk UO_2 yang akan menentukan kualitas pelet mentah, bahan pelumas pun memegang peranan penting. Serbuk zirkonium dapat berperan sebagai pelumas pada proses pengompakan. Hal ini mengingat sifatnya sebagai logam yang

lebih lunak dibandingkan dengan sifat keramik UO_2 . Serbuk zirkonium sebagai pelumas berperan dalam mengurangi friksi antar partikel dan friksi antara partikel dengan dinding cetakan (*dies*). Selain itu, dengan adanya pelumas maka laju alir serbuk saat pengisian cetakan akan meningkat. Dengan demikian campuran serbuk UO_2 -Zr mempunyai mampu alir yang lebih baik dibandingkan dengan serbuk UO_2 itu sendiri, sebagaimana yang diperlihatkan oleh Gambar 2. Gambar 2 menunjukkan kecenderungan bertambahnya kerapatan pelet mentah dengan bertambahnya fraksi serbuk zirkonium dalam UO_2 . Hal yang sama terjadi juga pada tekanan yang lebih besar. Berkurangnya friksi antar partikel dan friksi antar partikel dengan dinding dies akan memberikan *apparent density* yang lebih tinggi dan memberikan kerapatan pelet mentah UO_2 -Zr yang lebih tinggi dibandingkan pelet UO_2 . Struktur mikro pelet mentah *cermet* ini ditampilkan oleh Gambar 3.



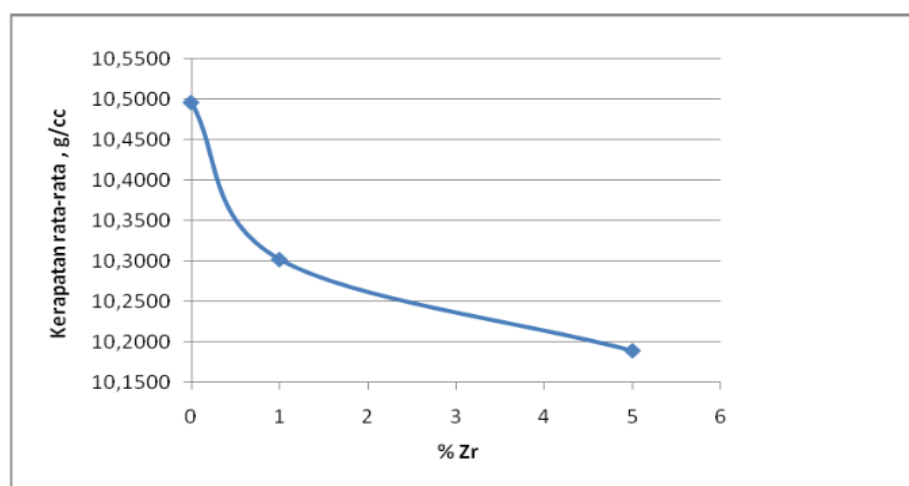
Gambar 3. Strukturmikro pelet mentah *cermet* UO₂-Zr dengan penambahan Zr sebesar (a) 0% dan (b) 5%.

Proses penyinteran pelet mentah dilakukan pada temperatur 1700 °C dengan atmosfir hidrogen, laju pemanasan 250 °C per jam dan waktu penyinteran 3 jam. Pelet hasil sinter secara visual diperlihatkan pada Gambar 4. Pelet sinter dengan fraksi serbuk

zirconium 10% tidak terukur kerapatannya karena pelet sinter pecah/hancur. Gambar 5 memperlihatkan hubungan antara kerapatan pelet sinter UO₂ dengan prosentase penambahan Zr.



Gambar 4. Foto pelet sinter *cermet* UO₂-Zr.



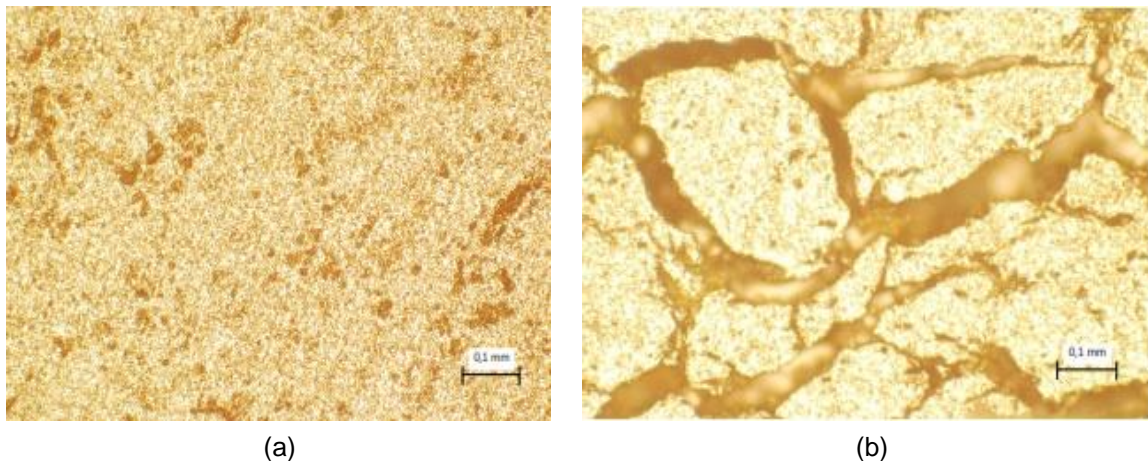
Gambar 5. Grafik hubungan antara prosentase Zr yang ditambahkan terhadap kerapatan pelet sinter *cermet* $\text{UO}_2\text{-Zr}$.

Pada grafik tersebut terlihat bahwa dengan bertambahnya prosentase serbuk Zr dalam pelet cermet, kerapatan pelet sinter semakin berkurang tetapi masih memenuhi persyaratan pelet sinter yaitu 10,4966; 10,3022 dan 10,1894 g/cm^3 . Hal ini dapat dijelaskan melalui fenomena penyinteran. Sebagaimana telah dijelaskan sebelumnya bahwa pada proses penyinteran ada dua kinetika utama yang terjadi yaitu proses densifikasi dan pertumbuhan butir melalui mekanisme difusi. Salah satu *driving force* dari proses difusi adalah energy aktivasi yang akan menentukan mampu sinter serbuk UO_2 . Hasil penelitian mampu sinter serbuk UO_2 sebelumnya menyebutkan, bahwa serbuk dengan mampu sinter yang baik adalah serbuk yang tersusun dari partikel yang agak lunak (*fairly soft particles*) dengan ukuran partikel yang sangat halus yang mempunyai luas permukaan partikel yang besar.

Zirkonium yang bersifat lebih lunak dengan ukuran yang lebih kecil dari serbuk UO_2 dapat menghambat proses difusi pada penyinteran, baik difusi kekosongan pada

tahap densifikasi maupun difusi batas butir pada tahap pertumbuhan butir. Dengan demikian kecepatan difusi kekosongan maupun difusi batas butir pada pellet sinter cermet $\text{UO}_2\text{-Zr}$ lebih rendah dibandingkan kecepatan difusi kekosongan maupun difusi batas butir pelet UO_2 . Disamping itu, kerapatan teoritis serbuk logam Zr lebih rendah dibandingkan dengan kerapatan serbuk keramik UO_2 . Dengan demikian maka kerapatan pelet sinter cermet $\text{UO}_2\text{-Zr}$ lebih rendah dibanding kerapatan pelet sinter UO_2 dan dengan semakin banyak kandungan Zr maka kerapatan pelet sinter *cermet* $\text{UO}_2\text{-Zr}$ akan semakin rendah.

Struktur mikro pelet sinter *cermet* ditampilkan pada Gambar 6. Pengamatan struktur mikro terhadap pelet sinter $\text{UO}_2\text{-Zr}$ sebagaimana yang ditampilkan pada Gambar 6 menunjukkan bahwa terbentuknya jaringan yang diduga adalah senyawa logam Zr yang sifatnya kontinyu dan diharapkan dapat menaikkan konduktivitas panas pelet UO_2 sehingga dapat mengurangi *gradient* temperatur dari pusat ke permukaan pelet saat iradiasi.



Gambar 6. Struktur mikro pelet sinter *cermet* UO₂-Zr dengan penambahan Zr sebesar (a) 0% dan(b) 5%.

SIMPULAN

Penambahan zirkonium dapat memperbaiki karakteristik serbuk selama proses pengompakan. Semakin tinggi % Zr akan memberikan kerapatan pelet mentah yang semakin tinggi. Penambahan % Zr akan mengurangi kerapatan pelet sinter tetapi masih memenuhi persyaratan pelet sinter. Prosentase penambahan Zr lebih besar dari 5% akan menghasilkan pelet sinter yang tidak memenuhi persyaratan.

SARAN

Untuk memastikan bahwa jaringan kontinyu yang terbentuk pada pelet *cermet* UO₂-Zr adalah jaringan logam Zr dan memastikan konduktivitas panas pelet sinter berjaringan Zr ini lebih tinggi dibandingkan konduktivitas pelet sinter UO₂ disarankan untuk melakukan penelitian lebih lanjut tentang hal ini. Peralatan yang diperlukan untuk pengamatan jaringan logam Zr pada pelet *cermet* UO₂-Zr adalah SEM, WDX dan XRD sedangkan peralatan untuk pengamatan konduktivitas panas pelet adalah alat pengukur konduktivitas panas. Selain itu perlu dikaji lebih lanjut untuk penentuan prosentase penambahan

Zr yang optimal dalam memperoleh pelet *cermet* UO₂-Zr dengan jaringan logam Zr yang kontinyu.

DAFTAR PUSTAKA

1. IAEA-TECDOC-1374, 2003.
2. Song K.W., Jeon K.L., Jang Y.K., Park J.H. and Koo Y.H. (2009). *Progress In Nuclear Fuel Technology In Korea*. Nuclear Engineering And Technology, Vol.41 No.4 p.493-520.
3. Song K.W., Jeong Y.H., Kim K. S., Bang J.G., Chun T.Y., Kim H.K. and Song K.N. (2008). *High Burner Fuel Technology In Korea*. Nuclear Engineering And Technology, Vol.40 No.1 p.21-36.
4. McDeavitt Sean M., Downar T. J., Solomon A. A., Revankar S. T., Hash M. C., Hebden A.S. (2002). *Thoria-based Cermet Nuclear Fuel: Cermet Fabrication And Behavior Estimates*. Proceedings of ICONE10: 10th International Conference on Nuclear Engineering, ICONE10 – 22317 p.1-9, Arlington, VA..

-
5. Totemeier Aaron R. , McDeavitt Sean M. (2009). *Powder metallurgical fabrication of zirconium matrix cermet nuclear fuels*. J Mater Sci, 44:5494–5500.
 6. Burks D.E., Wachs D.M., Werner J.E. and Howe S.D. (2007). *An Overview of Current and Past W-UO₂ Cermet Fuel Fabrication Technology*. Proceedings of Space Nuclear Conference 2007, paper 2027 p.207-216, Boston, Massachusetts.