

PEMBENTUKAN *SINGLE PHASE* PADUAN U7Mo.xTi DENGAN TEKNIK PELEBURAN MENGGUNAKAN TUNGKU BUSUR LISTRIK

Supardjo⁽¹⁾, Agoeng. K.⁽¹⁾ dan Wisnu Ari Adi⁽²⁾

1. Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBN) – BATAN
E-mail : suparjo@batan.go.id.
2. Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN) – BATAN
(Naskah diterima : 31-8-2010, disetujui : 30-9-2010)

ABSTRAK

PEMBENTUKAN *SINGLE PHASE* PADUAN U7Mo.xTi DENGAN TEKNIK PELEBURAN MENGGUNAKAN TUNGKU BUSUR LISTRIK. Telah dilakukan karakterisasi paduan U-7Mo-xTi ($x = 1, 2,$ dan 3% berat) hasil sintesis dengan peleburan menggunakan tungku busur listrik dalam rangka mendapatkan paduan yang sesuai untuk bahan bakar nuklir. Paduan U-7Mo-xTi yang terjadi diuji dengan menggunakan difraksi sinar-x, dan pola difraksi yang diperoleh dianalisis dengan menggunakan program Rietan. Hasil *refinement* dari pola difraksi sinar-x menunjukkan bahwa struktur yang terbentuk pada sistem ini adalah solid solution molybdenum dan titanium ke dalam struktur bcc uranium. Komposisi paduan U-7Mo-xTi hasil peleburan relatif bersesuaian dengan komposisi stoikiometrinya. Paduan U-7Mo-xTi dengan perbedaan kadar Ti pola difraksi yang terbentuk memiliki puncak-puncak pada sudut difraksi yang sama, dan makin tinggi kadar Ti intensitasnya menurun. Senyawa yang terbentuk pada proses peleburan U-7Mo-1Ti, U-7Mo-2Ti, dan U-7Mo-3Ti berturut-turut adalah : $U_{0.80}Mo_{0.16}Ti_{0.04}$, $U_{0.77}Mo_{0.15}Ti_{0.08}$, dan $U_{0.73}Mo_{0.14}Ti_{0.13}$. Penambahan atom Ti ke dalam paduan UMo, mengakibatkan volume unit sel semakin kecil, ukuran kristalit semakin kecil tetapi kerapatan atomiknya semakin besar.

Kata kunci : Paduan U-7Mo-xTi, peleburan, struktural.

ABSTRACT

FORMATION OF *SINGLE PHASE* U7Mo.xTi ALLOY USING ELECTRIC ARC FURNACE METHODE. Characterization of U-7Mo-xTi ($x = 1, 2,$ and 3% by weight) has been carried alloy of the synthesis products with electric arc furnace using in order to obtain an appropriate alloy for nuclear fuel. Results refinement of x-ray diffraction pattern shows that the structures formed in this system is a solid solution of titanium molybdenum and uranium into the bcc structure. The composition of U-7Mo-xTi alloy fusion results are relatively consistent with the composition its stoichiometry. The U-7Mo-xTi alloy with different levels of Ti diffraction pattern that is formed has the same peak diffraction at the same angle, and the higher the Ti content decreased in intensity. Compounds formed in the process of smelting U-7Mo-1Ti, U-7Mo-2Ti, and U-3Ti-7Mo a row is: $U_{0.80}Mo_{0.16}Ti_{0.04}$, $U_{0.77}Mo_{0.15}Ti_{0.08}$, dan $U_{0.73}Mo_{0.14}Ti_{0.13}$. Addition of Ti atoms into the UMo alloy, resulting in the smaller volume of the unit cell, the smaller the size and the bigger atomic density.

Keywords: U7Mo-xZr alloy, melting, structural.

PENDAHULUAN

Penelitian paduan uranium berbasis UMo merupakan pengembangan bahan bakar reaktor riset dengan uranium pengayaan rendah (<20%U²³⁵). Pengembangan bahan bakar berbasis UMo yang sedang dikembangkan oleh para peneliti di dunia dibuat ke dalam bentuk bahan bakar dispersi dan monolitik^[1]. Pemilihan paduan berbasis UMo sebagai bahan bakar diantaranya adalah: tampang lintang serapan neutron logam Mo rendah dan olah ulang gagal proses produksi atau pasca iradiasi mudah. Selain sifat-sifat tersebut, paduan uranium memiliki berat jenis yang cukup tinggi sehingga kandungan uranium dapat lebih banyak dan sekaligus densitas uranium dalam bahan bakar dispersi maupun monolitik dapat ditingkatkan. Peningkatan densitas uranium di dalam bahan bakar diharapkan dapat mengkompensasi penggunaan uranium pengayaan rendah sehingga jumlah U²³⁵ minimal sama dengan penggunaan uranium pengayaan tinggi.

Pembuatan paduan berbasis UMo dapat dilakukan dengan metode peleburan seperti *arc melt* (tungku busur listrik) dan teknologi induksi. Peleburan campuran logam uranium dengan pepadu menggunakan *arc melt* dilakukan di dalam tungku busur listrik bermedia gas argon. Fungsi gas argon dalam peleburan ini dimaksudkan agar selama proses peleburan hanya terjadi reaksi antara uranium dan unsur pepadu tanpa dipengaruhi oleh unsur yang lain. Pada saat awal proses peleburan, elektroda di dekatkan dengan campuran uranium dan pepadu sehingga membentuk loncatan api dan terjadi pencairan dan terjadi reaksi antara uranium dengan pepadu dan antar pepadu (apabila jenis pepadu lebih dari satu unsur). Pada proses peleburan terjadi pecairan tetapi tidak sampai pada bagian dasar wadah peleburan karena dapat merusak wadah peleburan dan menyebabkan terjadinya impuritas. Setiap

saat peleburan tidak semua benda kerja mencair, sehingga agar hasil peleburan homogen, maka peleburan dilakukan berulang-ulang^[2].

Fasa paduan UMo (uranium molibdenum) telah lama dipertimbangkan sebagai fasa bahan bakar reaktor riset, dalam bentuk bahan bakar dispersi dengan matriks serbuk Al. Unjuk kerja hasil uji iradiasi bahan bakar dispersi UMo-Al, khususnya kandungan Mo antara 6 – 10 % mendorong penelitian bahan bakar tersebut untuk menggantikan bahan bakar U₃Si₂Al^[3]. Paduan UMo memiliki berat jenis sekitar 16,4 g/cm³, tahan terhadap korosi, tampang lintang serapan neutron rendah^[...]. Namun, paduan ini bersifat ulet (*ductile*). Sifat ulet paduan UMo menyebabkan proses pembuatan paduan ini sulit dilakukan dengan cara mekanik, hal ini merupakan suatu tantangan dan perlu pemilihan teknik yang tepat.

Penelitian dan pengembangan bahan bakar reaktor riset berbasis UMo dengan pengayaan uranium < 20% U²³⁵ merupakan program internasional dalam rangka mendapatkan bahan bakar baru yang memiliki densitas uranium >8 gU/cm³ sesuai program *Reduced Enrichment Research and Test Reactor (RERTR)*^[4,5]. Menggunakan paduan UMo sebagai bahan bakar dispersi, densitas uranium dapat ditingkatkan hingga > 8 gU/cm³, namun selama perlakuan panas/iradiasi di dalam reaktor, *swelling* bahan bakar UMo-Al lebih tinggi dibandingkan dengan bahan bakar U₃Si₂-Al^[6]. Oleh karena itu perlu dilakukan penelitian lanjut dengan memadu UMo dengan logam lain agar diperoleh paduan baru yang memiliki karakteristik lebih baik dibanding dengan U₃Si₂-Al/UMo-Al.

Swelling bahan bahan bakar UMo-Al yang terjadi pada perlakuan panas/iradiasi kemungkinan disebabkan terjadinya interaksi antara UMo dan Al membentuk fasa baru di batas butir dengan densitas rendah. Untuk

menanggulangi perihail tersebut, maka pada penelitian ini dilakukan pembuatan paduan UMo_xTi. Penambahan unsur Ti di dalam paduan UMo dimaksudkan untuk penstabil terjadinya interaksi layer/lapisan antara UMo dan matriks Al. Perlakuan panas pada γ UMoTi adalah fasa γ U yang metastabil, dan pada konsentrasi Mo dan Ti yang tinggi membentuk endapan (U,Mo)₂Ti di batas butir^[7].

Pada penelitian sebelumnya telah berhasil disintesis paduan U7Mo-xZr dengan $x = 1, 2,$ dan 3% berat Zr^[8]. Hasil *refinement* dari pola difraksi sinar-x menunjukkan bahwa struktur yang terbentuk pada sistem ini adalah *solid solution* molybdenum dan zirkonium ke dalam struktur bcc (*body center cubic*) uranium. Tingkat kepadatan dari komposisi $x = 3 \%$ berat Zr meningkat, sehingga pada komposisi $x = 3 \%$ berat Zr ini secara makro dalam aplikasi praktis dapat meningkatkan tingkat muat uranium di dalam *meat* pelat elemen bakar dengan uranium pengayaan rendah^[8]. Pada penelitian ini akan dikembangkan bahan bakar dispersi UMo-Ti dengan memvariasikan kandungan titanium. Namun pembuatan *single phase* paduan sistem UMo-Ti tidak mudah, sehingga tujuan penelitian ini adalah untuk mendapatkan *single phase* paduan sistem UMo-Ti yang memiliki kerapatan tinggi. Dengan kerapatan paduan yang tinggi, maka secara teoritis jumlah uranium yang dapat ditampung meningkat pula, sehingga berpeluang untuk digunakan sebagai bahan bakar dengan densitas uranium tinggi

Oleh karena itu signifikansi keberhasilan kegiatan ini, akan diwujudkan dalam bentuk pengembangan bahan bakar

paduan UMoZr yang secara teoritis memiliki densitas uranium tinggi, akan menaikkan nilai keekonomian, baik ditinjau dari sudut operasi reaktor, biaya produksi bahan bakar, biaya rekoveri uranium dan sebagainya.

Tujuan penelitian ini adalah untuk mendapatkan paduan UMoTi yang memiliki sifat sesuai bahan bakar dispersi untuk reaktor riset dengan densitas uranium $>8\text{gU/cm}^3$.

BAHAN DAN TATA KERJA

Sintesis ingot paduan U7Mo-xTi dengan $x = 1, 2,$ dan 3% berat, dilakukan dengan teknik peleburan menggunakan tungku busur listrik. Agar diperoleh ingot paduan U7Mo-xTi yang homogen, pada penelitian ini peleburan dilakukan dengan 5 kali pengulangan menggunakan arus listrik 150 A ^[8]. Peleburan dilakukan berulang-ulang menggunakan media gas iner agar diperoleh ingot paduan yang homogen dan selama proses peleburan tidak terjadi reaksi dengan unsur-unsur di lingkungannya selain unsur pemadu. Pembuatan paduan UMo dengan komposisi U-7%Mo, yaitu 93% berat Uranium ditambahkan 7% berat Molibdenum, kemudian campuran U-7%Mo dibuat komposisi U-7%Mo-x%Ti, dengan $x = 1, 2,$ dan 3% berat Ti. Sebelum penimbangan komposisi campuran antara U, Mo dan Ti, terlebih dahulu ketiga unsur tersebut dilakukan analisis kadar dan unsur kemurniannya. Dari hasil analisis kemudian dilakukan perhitungan dan penimbangan untuk setiap paduan U7Mo-xTi seperti dituangkan pada Tabel 1.

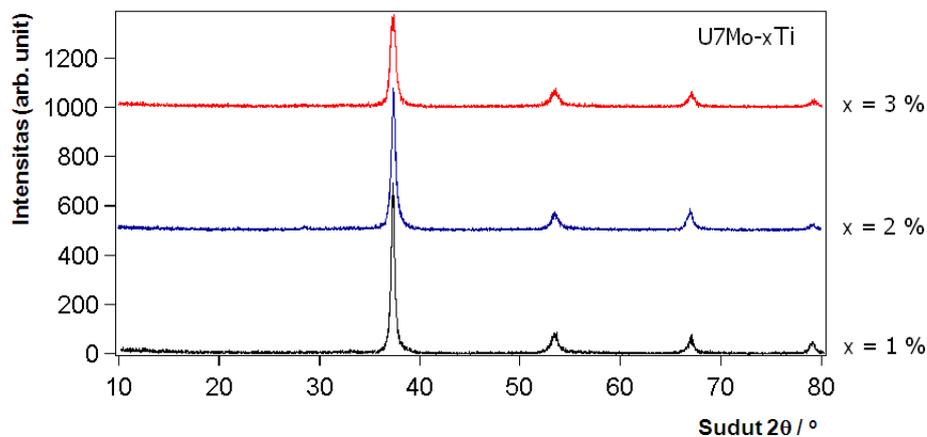
Tabel 1. Hasil penimbangan serbuk U, Mo, dan Ti pada setiap kadar Ti.

Paduan	Berat, g.				
	U	Mo	Ti	Penimbangan	Hitungan
U7Mo-xTi, x = 1	15,1163	1,1371	0,1643	16,4177	16,4176
U7Mo-xTi, x = 2	14,9653	1,1257	0,3284	16,4193	16,4178
U7Mo-xTi, x = 3	14,9937	1,1279	0,4986	16,6206	16,6205

Kualitas dan kuantitas fasa-fasa yang ada di dalam sampel diukur menggunakan alat *x-ray diffractometer (XRD)*. Pengukuran pola difraksi sampel dilakukan dengan berkas sinar-x dari *tube anode Cu* dengan panjang gelombang, $\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$, *mode: continuous-scan*, *step size* : $0,02^\circ$, dan *time per step* : 0,5 detik. Profil difraksi sinar-x dianalisis menggunakan perangkat lunak program RIETAN (*Rietveld Analysis*) 1996 [9].

HASIL DAN PEMBAHASAN

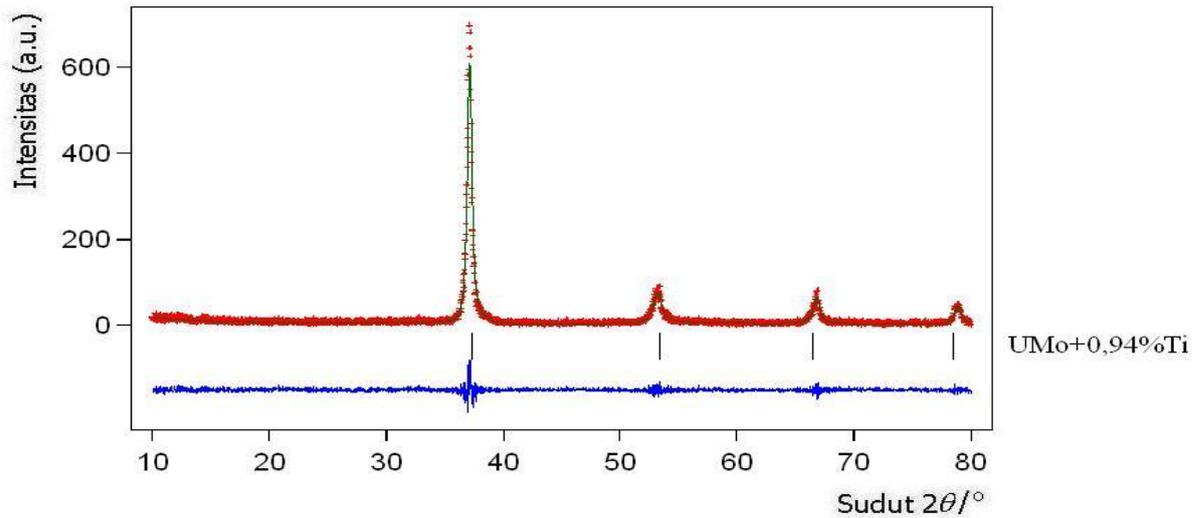
Ingot paduan U7Mo-xTi dengan variasi kadar Ti ($x = 1, 2$ dan 3%) berat (hasil peleburan dalam tungku busur listrik) berbasis pada senyawa empiris uranium-gamma ($\gamma\text{-U}$). Pola difraksi sinar-x terhadap sampel U-7Mo-xTi dengan perbedaan kadar Ti masing-masing U7Mo-1Ti, U7Mo-2Ti, dan U7Mo-3Ti ditunjukkan pada Gambar 1.



Gambar 1. Pola difraksi sinar-x sampel UMo-xTi.

Pada Gambar 1 terlihat bahwa semua ingot paduan terbentuk puncak-puncak yang dapat diduga memiliki fasa yang sama. Selain itu dapat diasumsikan bahwa penambahan atau adanya substitusi unsur Mo dan Ti tidak membentuk fasa lain/asing, sehingga dapat dikatakan bahwa substitusi Mo dan Ti ke dalam U pada sistem $\gamma\text{-U}$ telah terbentuk

dengan baik. Namun demikian pengaruh penambahan atau substitusi Mo dan Ti ini terhadap struktur kristal perlu dianalisis lebih lanjut. Hasil *refinement* pola difraksi sinar-x paduan U-7Mo-1Ti, U-7Mo-2Ti, dan U-7Mo-3Ti ditunjukkan pada Gambar 2, sedangkan identifikasi fasa merujuk pada hasil penelitian Wyckoff [10].

Gambar 2. *Refinement* pola difraksi sinar-x sampel U7Mo-1Ti

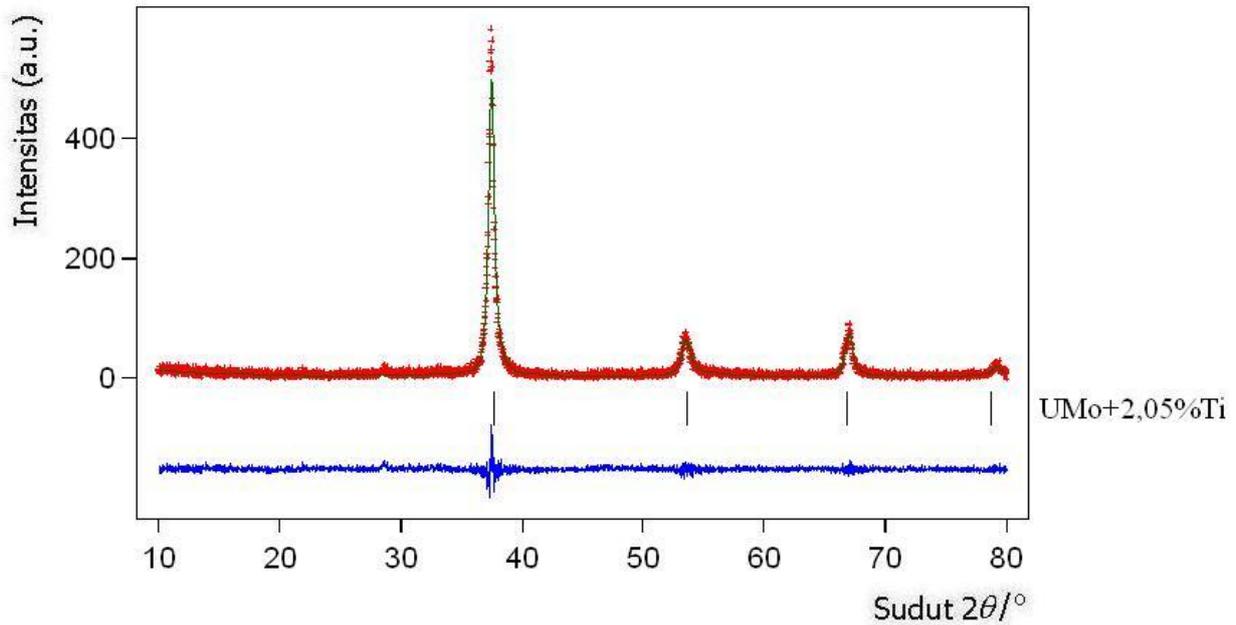
Pada Gambar 2, hasil *refinement* ini menghasilkan kualitas *fitting* sangat baik dengan faktor R yang sangat kecil juga. Faktor R merupakan *criteria of fit* dan faktor

S adalah *goodness of fit* yang bernilai sangat kecil seperti yang ditunjukkan pada Tabel 2. Menurut Izumi, nilai S yang diperkenankan maksimum 1,3^[9].

Tabel 2. *Criteria* (factor R) and *goodness of fit* (S) paduan U-7Mo-1Ti.

Fasa γ -U (referensi Wyckoff [10])							
Grup ruang (space group) : I m -3 m (229)							
Sistem kristal : Cubic							
Parameter kisi :							
$a = b = c = 3.4601(2) \text{ \AA}$, $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$							
$V = 41,424(6) \text{ \AA}^3$ dan $\rho = 17,86709 \text{ gr.cm}^{-3}$							
Factor R		$R_{wp} = 4,61$		$R_p = 3,57$		$S = 1,24$	
		$R_l = 2,14$		$R_F = 2,19$			
Atom	neq	g	n	x	y	z	B
U	2	0,900(3)	1,800	0,0	0,0	0,0	1,0
Mo	2	0,089(1)	0,178	0,0	0,0	0,0	1,0
Ti	2	0,007(8)	0,014	0,0	0,0	0,0	1,0

Hasil *refinement* pola difraksi sinar-x paduan U-7Mo-2Ti ditunjukkan pada Gambar. 3



Gambar 3. *Refinement* pola difraksi sinar-x sampel U-7Mo-2Ti

Hasil *refinement* pada Gambar 4, menghasilkan kualitas *fitting* yang sangat baik dengan faktor R yang sangat kecil. Faktor R

merupakan *criteria of fit* dan faktor S adalah *goodness of fit* yang bernilai sangat kecil seperti yang ditunjukkan pada Tabel 4

Tabel 4. *Criteria* (factor R) and *goodness of fit* (S) paduan U-7Mo-3Ti.

Fasa UMo-xTi (referensi Wyckoff [10])							
Grup ruang (space group) : I m -3 m (229)							
Sistem kristal : Cubic							
Parameter kisi :							
$a = b = c = 3.441(1) \text{ \AA}$, $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$							
$V = 40,78(2) \text{ \AA}^3$ dan $\rho = 18,15034 \text{ gr.cm}^{-3}$							
Factor R		$R_{wp} = 8,17$		$R_p = 5,01$		S = 1,22	
		$R_I = 7,37$		$R_F = 4,29$			
Atom	neq	g	n	x	y	z	B
U	2	0,676(1)	1,352	0,0	0,0	0,0	1,0
Mo	2	0,268(7)	0,536	0,0	0,0	0,0	1,0
Ti	2	0,028(1)	0,056	0,0	0,0	0,0	1,0

Berdasarkan hasil refinement dari pola difraksi sinar-x menunjukkan bahwa telah terjadi pembentukan *single phase* paduan U-7Mo-1Ti, U-7Mo-2Ti dan U-7Mo-

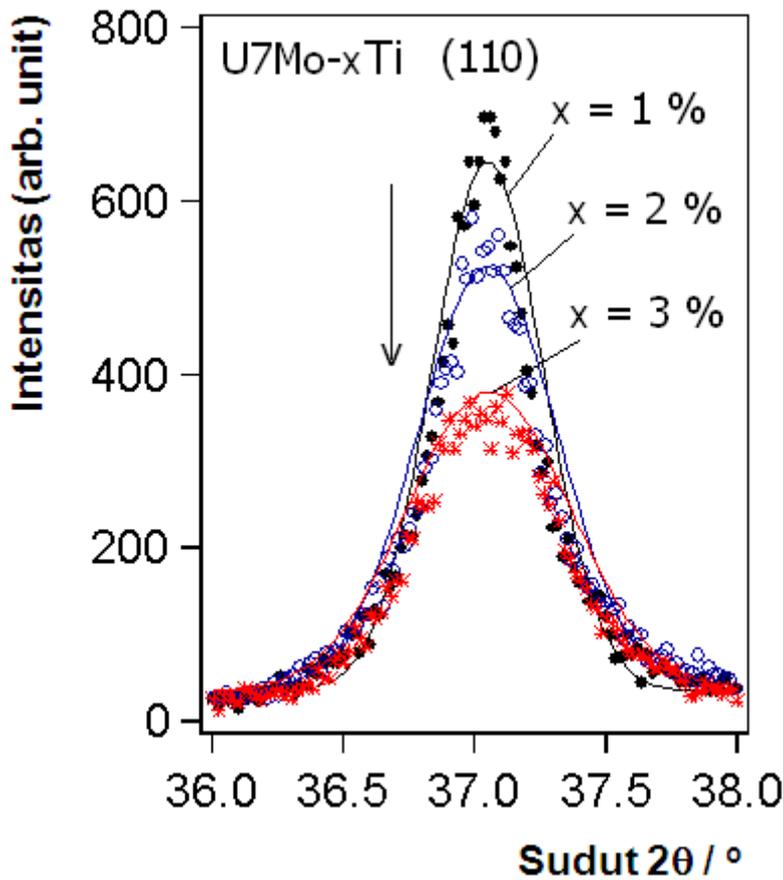
3Ti melalui proses *solid solution*. Hasil distribusi kationik pada masing-masing paduan ditunjukkan pada Tabel 5.

Tabel 5. Distribusi kationik pada paduan U-7Mo-xTi.

Sampel	Distribusi kationik		
	Fasa γ -Uranium		
	U	Mo	Ti
U-7Mo-1Ti			
Content (at %)	80,44	15,46	4,10
Content (wt %)	91,94	7,12	0,94
Composition	$U_{0,80}Mo_{0,16}Ti_{0,04}$		
U-7Mo-2Ti			
Content (at %)	76,71	14,68	8,61
Content (wt %)	90,93	7,01	2,05
Composition	$U_{0,77}Mo_{0,15}Ti_{0,08}$		
U-7Mo-3Ti			
Content (at %)	73,13	14,19	12,68
Content (wt %)	89,84	7,03	3,13
Composition	$U_{0,73}Mo_{0,14}Ti_{0,13}$		

Pada Tabel 5 terlihat bahwa paduan U-7Mo-1Ti, U-7Mo-2Ti, dan U-7Mo-3Ti telah terbentuk, dengan komposisi mendekati komposisi yang diharapkan. Selain terbentuk *single phase* paduan UMo-xTi ($x = 1, 2, \text{ dan } 3$ % berat), hal lain yang sangat menarik untuk

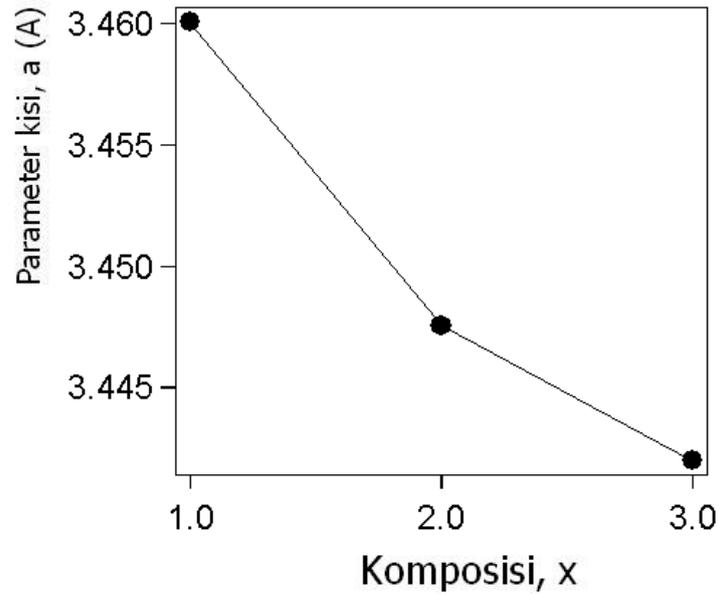
dikaji adalah terjadinya perubahan ukuran kristalit seiring dengan penambahan kandungan Ti ke dalam paduan UMo yang ditandai dengan menurunnya puncak bidang (110) seperti yang ditunjukkan pada Gambar 5.



Gambar 5. Profil puncak bidang (001) pada paduan system U-7Mo-xTi

Berdasarkan *teorema Scherer* menunjukkan bahwa pelebaran FWHM (lebar setengah puncak maksimum) berbanding terbalik dengan ukuran kristalinitnya. Dengan demikian dapat dikatakan bahwa dengan penambahan atom Ti ke dalam paduan UMo, ukuran kristalinitnya semakin kecil. Fenomena ini dapat

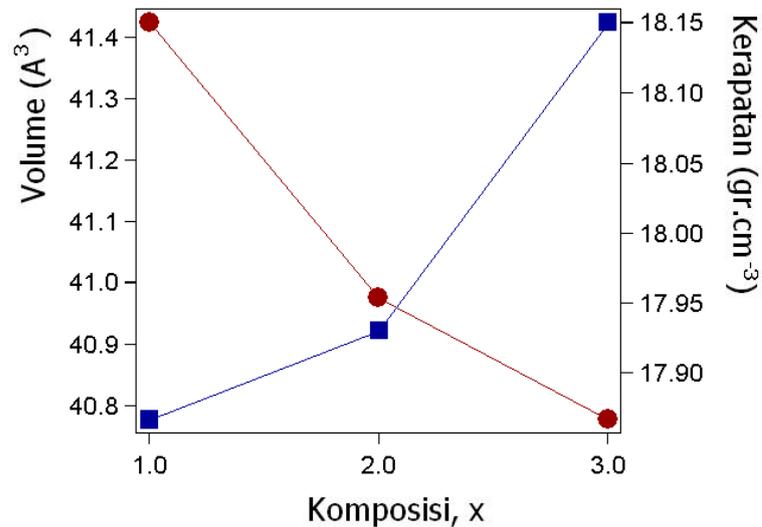
dijelaskan dengan pendekatan analisa perubahan parameter kisi dan volume unit sel. Tampak bahwa nilai parameter kisi berubah, seiring dengan meningkatnya kandungan Ti pada paduan U-7Mo seperti yang ditunjukkan pada Gambar 6.



Gambar 7. Perubahan volume unit sel dan kerapatan atomik paduan U-7Mo-xTi.

Pada Gambar 6 tampak bahwa peningkatan jumlah kandungan Ti ke dalam atom U pada paduan UMo-xTi dengan variasi $x = 1, 2,$ dan 3% berat dapat memperkecil nilai parameter kisinya. Hal ini sangat relevan karena dengan penambahan atom Mo dan Ti dengan jari-jari atomik jauh lebih kecil dibandingkan atom U disamping itu jari-jari

kovalennya juga jauh lebih pendek dibandingkan dengan atom U, akan mengakibatkan terjadinya penurunan jarak antar kisi atom. Hal ini akan mengakibatkan terjadinya perubahan volume unit sel dan kerapatan atomiknya seperti yang ditunjukkan pada Gambar 7.



Gambar 7. Perubahan volume unit sel dan kerapatan atomik paduan U-7Mo-xTi

Pada Gambar 7 ditunjukkan bahwa semakin meningkat penambahan jumlah atom

Ti, semakin kecil volume unit sel dan semakin besar kerapatan atomiknya. Hasil ini juga

sangat relevan dimana apabila volume unit sel menurun sedangkan jumlah atom dalam satu unit sel tetap, sehingga mengakibatkan kerapatan atomiknya semakin meningkat.

Berdasarkan hasil analisa ini dapat dikatakan bahwa dengan berkurangnya volume unit sel diduga sangat memungkinkan sekali ukuran kristalit yang terbentuk juga akan semakin kecil. Dengan demikian dapat disimpulkan bahwa telah berhasil dilakukan sintesis *single phase* paduan system UMo-xTi (x = 1, 2, dan 3 % berat) dengan ukuran kristalit yang semakin mengecil.

SIMPULAN

Hasil uji dengan XRD menunjukkan bahwa perbedaan unsur Ti di dalam paduan U-7Mo-xTi tidak merubah fasa yang terbentuk, puncak-puncaknya terbentuk pada sudut difraksi yang sama, dan makin tinggi kadar Ti intensitasnya menurun. Senyawa yang terbentuk pada proses peleburan U-7Mo-1Ti, U-7Mo-2Ti, dan U-7Mo-3Ti berturut-turut adalah : $U_{0.80}Mo_{0.16}Ti_{0.04}$, $U_{0.77}Mo_{0.15}Ti_{0.08}$, dan $U_{0.73}Mo_{0.14}Ti_{0.13}$. Penambahan atom Ti ke dalam paduan UMo, mengakibatkan volume unit sel semakin kecil, ukuran kristalitnya semakin kecil dan kerapatan atomiknya semakin besar.

DAFTAR PUSTAKA

1. Clark, C.R. et.al,(2004, March 21 to 24). Update On U-Mo Monolithic and Disprson Fuel Development. ENS RRFM Munchen, Germany.
2. Supardjo. (1993). Karakterisasi Paduan U₃Si₂ pada daerah komposisi antara 6,62 s.d.7,63 %Si. Tesis Program Magister, Institut Teknologi bandung.
3. Durazzo, M. et.al (2010, March 21 – 25). Powdering Ductile U-Mo Alloys For Nuclear Dispersion Fuel”, RRFM, Marrakech, Marocco.
4. Hamy, JM.et.al.(2002, March 17 to 20). Status as of March 2002 of The UMo Development Program. 6th International Topical meeting on Research Reactor Fuel Management, Belgium.
5. Cornen,M. et.al (2008). About the Effects of Si and/or Ti Additions On the UMo/Al Interactions. RRFM, Hamburg, Germany.
6. Supardjo, Masrukan (Juni 2008). Pembuatan dan Karakterisasi Paduan UMo sebagai Kandidat Bahan Bakar Nuklir Tipe Dispersi. Jurnal TEKNOLOGI BAHAN NUKLIR, ISSN 1907-2635, Vol. 4 No. 2.
7. Olivares, L, et.al (2007, September 23 – 27). Nuclear Fuel Development Based on UMo Alloys under Irradiation Evaluation of LEU U₃Si₂ - 4,8 gU/cm³ Test Fuel. The RERTR-2007 International Meeting on RERTR, Prague, Czech Republic.
8. Supardjo, dkk(2010). Analisis struktur dan Komposisi Fasa Paduan U7Mo.xZr (x = 1, 2, dan 3 % berat) Hasil Proses Peleburan. Jurnal Teknologi Bahan Nuklir.
9. Izumi, F.(1996 June 22). A Rietveld-Refinement Program RIETAN-94 for Angle-Dispersive X-Ray and Neutron Powder Diffraction. National Institute for Research in Inorganic Materials 1-1 Namiki, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan.
10. WYCKOFF R. W. G. (1963). Second edition. Interscience Publishers, New York, New York Body centered cubic, bcc, structure, Crystal Structures 1, 7-83.