

KARAKTERISASI PELET UO_2 MELALUI AUC DAN PELET UO_2 MELALUI ADU SELAMA *SINTERING*

Meniek Rachmawati dan Tri Yulianto

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-BATAN

Kawasan Puspipstek Serpong, Tangerang

ABSTRAK

KARAKTERISASI PELET UO_2 MELALUI AUC DAN PELET UO_2 MELALUI ADU SELAMA *SINTERING*. Penelitian dilakukan dengan mengompakkan serbuk UO_2 melalui AUC dan serbuk UO_2 melalui ADU dengan tekanan pengompakan 4.3 ton/cm^2 . Kinetika sintering pelet mentah hasil pengompakan, yakni pelet mentah UO_2 melalui AUC (5.80 g/cm^3) dan pelet mentah UO_2 melalui ADU (5.49 g/cm^3) dipelajari menggunakan dilatometer. Kurva dilatometer, menunjukkan penyusutan/ *shrinkage rate* terjadi lebih awal pada pelet UO_2 melalui ADU dibandingkan dengan pelet UO_2 melalui AUC. Laju dan besar penyusutan yang terjadi pada pelet UO_2 melalui ADU lebih cepat dan lebih besar dibandingkan pelet UO_2 melalui AUC. Pengamatan mikrostruktur pelet hasil dilatometer menunjukkan bahwa fraksi pori pelet UO_2 melalui AUC lebih banyak dengan ukuran yang lebih besar dibandingkan pelet UO_2 melalui ADU. Pada temperatur tinggi mekanisme sintering dipelajari menggunakan tungku sinter dengan temperatur sintering $1700 \text{ }^\circ\text{C}$ dengan laju pemanasan 250°C/j dan waktu sintering 4 jam. Hasil sintering menunjukkan bahwa kerapatan pelet sinter UO_2 melalui ADU (10.73 g/cm^3) lebih tinggi dibandingkan dengan kerapatan pelet sinter UO_2 melalui AUC (10.53 g/cm^3). Pengamatan mikrostruktur menggunakan mikroskop optik dari pelet hasil sintering menunjukkan bahwa ukuran butir pelet UO_2 melalui ADU lebih besar dibandingkan pelet UO_2 melalui AUC. Hasil penelitian menunjukkan bahwa mampu sinter serbuk UO_2 melalui AUC lebih rendah dibandingkan serbuk UO_2 melalui ADU. Hal ini terlihat pada temperatur puncak U_3O_7 serbuk UO_2 melalui ADU yang lebih rendah (161°C) dibandingkan temperatur puncak U_3O_7 serbuk UO_2 melalui AUC (174°C).

Kata Kunci : Kompaksi, *sintering*, serbuk UO_2 , ADU, AUC, TG-DTA, ukuran partikel, densitas pelet, densitas sinter, dilatometer.

ABSTRACT

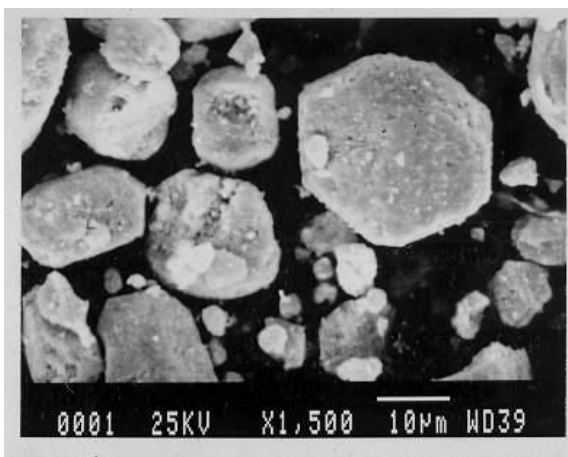
CHARACTERIZATION OF UO_2 VIA AUC PELLET AND UO_2 MELALUI ADU PELLET DURING *SINTERING*. A research has been conducted by compacting of UO_2 powder via AUC and UO_2 powder via ADU under the compaction pressure of 4.3 ton/cm^2 . The kinetical sintering of the green pellet as the result of the compaction, green pellet UO_2 melalui AUC (5.80 g/cm^3) and green pellet UO_2 via ADU (5.49 g/cm^3), has been studied using a dilatometer. The dilatometer curve shows that the shrinkage rate of UO_2 pellet via ADU occurs earlier than the shrinkage of UO_2 pellet via AUC. The speed and the size of shrinkage for UO_2 pellet via ADU is faster and greater than UO_2 pellet via AUC has. From microstructure-graph investigation as the result of the dilatometer process shows that the big size of pore fraction of UO_2 pellet via AUC is greater than UO_2 pellet via ADU has. At high temperature, the mechanism of sintering has been studied at $1700 \text{ }^\circ\text{C}$ with heating rate $250 \text{ }^\circ\text{C/j}$ and sintering time 4 hours. The results of the sintering shows that the density of UO_2 pellet via ADU

(10.73 g/cm³) is higher than the density of UO₂ pellet via AUC (10.53 g/cm³). Microstructure-graph using optical microscope of the sintered pellet shows that particle's size of UO₂ pellet via ADU is bigger than the particle's size of UO₂ pellet via AUC. The research shows that the sinterability of UO₂ powder via AUC is lower than the sinterability of UO₂ powder via ADU. It has been shown by the peak temperature of U₃O₇ of UO₂ powder via ADU which is lower (161°C) than the peak temperature of U₃O₇ of UO₂ powder via AUC (174°C).

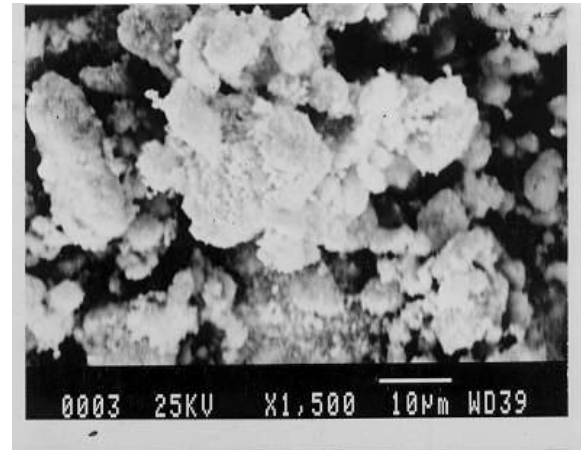
Keywords : Compaction, sintering, UO₂ powder, ADU, AUC, TG-DTA, particle size/ shape, green density, sintered density, dilatometer.

PENDAHULUAN

UO_2 adalah bahan bakar nuklir yang digunakan secara luas pada pembangkit listrik tenaga nuklir saat ini. Proses fabrikasi pelet UO_2 pada prinsipnya sama dengan proses metalurgi serbuk (P/M). UO_2 secara konvensional difabrikasi dengan proses basah melalui: ADU (Ammonium Di Uranat)^[1] dan AUC (Ammonium Uranyl Carbonate)^[2]. Akan tetapi karakteristik serbuk yang dihasilkan melalui ke dua proses tersebut berbeda.^[3,4] Perbedaan karakteristik ke dua jenis serbuk tersebut berpengaruh besar pada mampu tekan/*compressibility*, mampu kompak/*compactibility*, dan mampu sinter/*sinterability*^[5-7]. Karakteristik serbuk, khususnya ukuran dan morfologi serbuk berpengaruh pada perilaku serbuk selama proses pengompakan dan mampu sinter serbuk^[8,9]. Hasil penelitian menyebutkan bahwa partikel serbuk UO_2 ex-AUC besar dan berbentuk spheris ("*spherical*") dan terpisah satu dengan lainnya. Sedangkan partikel serbuk UO_2 ex-ADU berbentuk "*non-spherical*" dan cenderung mengaglomerasi. Fraksi halus serbuk UO_2 ex-ADU lebih banyak dibandingkan dengan serbuk UO_2 ex-AUC^[10-12].



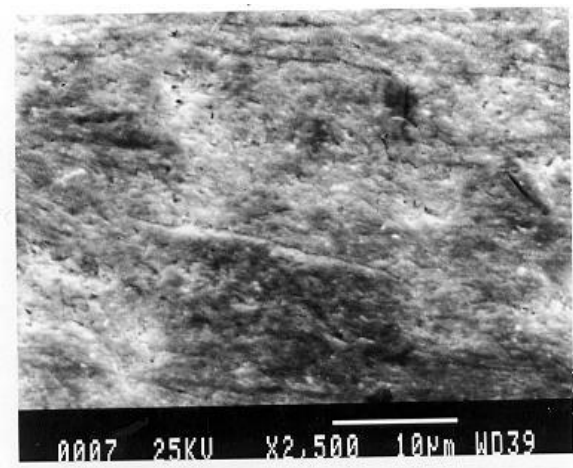
Gambar 1. Butiran serbuk UO_2 melalui AUC yang besar dan berbentuk bulat atau *spherical* dan terpisah satu sama lain



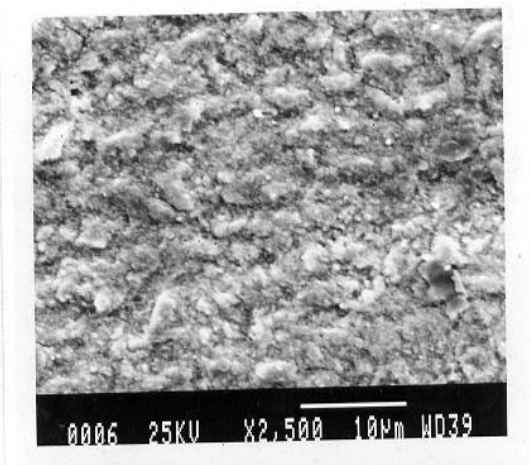
Gambar 2. Butiran serbuk UO_2 melalui ADU dengan bentuk tak beraturan, halus serta mengaglomerasi

Karakteristik tersebut memberikan konsekuensi sebagai berikut^[12]:

- Serbuk UO_2 ex-AUC lebih mudah dikompakkan untuk mendapatkan kerapatan pelet mentah yang tinggi (5.80 g/cm^2) dan lebih homogen sepanjang kompakan dibandingkan UO_2 ex-ADU (5.49 g/cm^2) Gambar 3 dan 4.
- Kontrol dimensi pelet UO_2 ex-AUC lebih mudah dibandingkan pelet UO_2 ex-ADU.



Gambar 3. Mikrostruktur pelet mentah UO_2 melalui AUC



Gambar 4. Mikrostruktur pelet mentah UO_2 melalui ADU

Di dalam penelitian ini, telah diamati karakterisasi pelet mentah UO_2 melalui ADU dan AUC selama proses sintering. Pemahaman perilaku pelet hasil pengompakan diperlukan untuk penguasaan proses sintering. Dengan demikian dapat diperoleh kondisi operasi yang dapat memberikan pelet sinter UO_2 yang memenuhi persyaratan dan informasi penting lainnya terkait dengan perbaikan proses dan produk.

Sintering merupakan salah satu tahapan proses pembuatan bahan bakar pelet UO_2 . Tujuan proses *sintering* adalah sebagai berikut^[10,13].

- Mendapatkan pellet dengan kerapatan dan mikrostruktur yang dipersyaratkan.
- Mendapatkan pellet sinter dengan geometri yang dipersyaratkan, yang mempunyai lapisan permukaan yang dapat digerinda sehingga diperoleh pellet dengan permukaan yang bebas cacat seperti retak atau *cracks* dan *chipping*.
- Mendapatkan pellet dengan komposisi yang dipersyaratkan, yakni perbandingan O/U mendekati 2.

Faktor-faktor yang membantu tercapainya tujuan diatas termasuk diantaranya pola pemasukan atau *loading* ke dalam tungku dan *their passage through the sintering*

furnace, pemilihan atmosfer sinter dan laju pemanasan, waktu sinter dan laju pendinginan.

Fenomena yang terjadi di dalam proses *sintering* adalah adanya aliran massa berupa difusi. Mekanisme aliran massa/difusi yang terjadi dapat berupa difusi volume, difusi permukaan, dan difusi batas butir. Difusi ini menghasilkan densifikasi atau penyusutan/*shrinkage*, dan pertumbuhan butir/*grain growth* atau *coarsening*^[14]. Densifikasi terjadi pada tahap awal sintering, sedangkan pertumbuhan butir terjadi pada tahap akhir sintering. Mekanisme yang terjadi pada proses densifikasi adalah difusi volume sedangkan pada pertumbuhan butir adalah difusi batas butir/*grain boundary*^[15]. Mekanisme ini dapat dianalisis menggunakan dilatometer dengan mengamati parameter kinetik berupa perubahan dimensi ($\Delta L/L$) dengan temperatur dan waktu pemanasan^[15]. Mekanisme pertumbuhan butir yang terjadi dapat dianalisis menggunakan mikroskop optik atau *Scanning Electron Microscope*(SEM). Akan tetapi, karena keterbatasan temperatur dilatometer, pengamatan kinetika sintering pada temperatur tinggi diprediksi dengan mengamati pelet hasil *sintering* menggunakan tungku sinter.

TATA KERJA

Penelitian dilakukan dengan menggunakan serbuk UO_2 melalui ADU (Cameco) dan serbuk UO_2 melalui AUC (UO_2 depleksi). Ptrosedur penelitian adalah sbb.:

- Penyiapan sampel pelet mentah UO_2 Melalui ADU dan AUC, yang dikompakkan pada tekanan pengompakan $4,3 \text{ ton/cm}^2$, untuk analisis kinetika sintering pelet UO_2 melalui ADU dan AUC dengan dilatometer dengan parameter temperatur sintering $900 \text{ }^\circ\text{C}$ dengan laju pemanasan 250°C/j dan waktu sintering 4 jam.
- Pengamatan perubahan $\square L/L$ pelet UO_2 dengan temperatur dan waktu: mulai

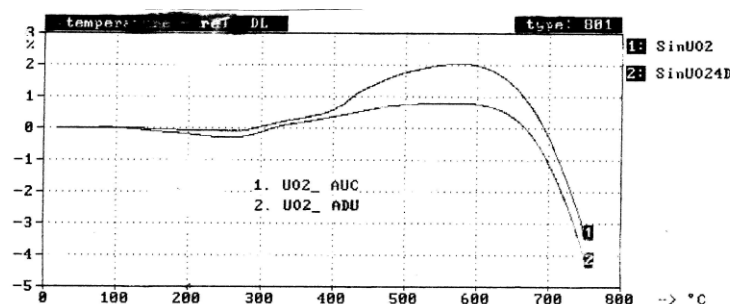
terjadinya penyusutan, besar dan kecepatan penyusutan pada kurva dilatometer.

- Pengamatan pertumbuhan butir pelet UO_2 hasil dilatometer mikrostruktur pelet sinter hasil dilatometer menggunakan mikroskop optik dan SEM.
- Sintering pelet UO_2 melalui ADU dan AUC dengan temperatur sintering 1700 oC dengan laju pemanasan 250°C/j dan waktu sintering 4 jam.
- Pengamatan pertumbuhan butir pelet UO_2 hasil sintering mikrostruktur pelet sinter hasil dilatometer menggunakan mikroskop optik dan SEM

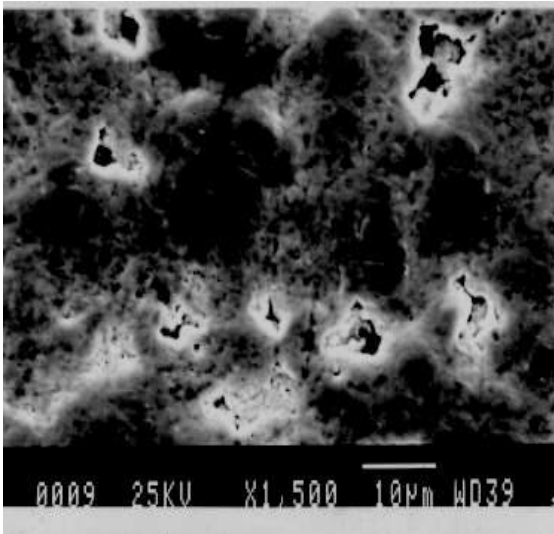
HASIL DAN PEMBAHASAN

Dari kurva dilatometer, penyusutan terjadi lebih awal pada pelet UO_2 melalui ADU dibandingkan dengan pelet UO_2 melalui AUC. Laju dan besar penyusutan yang terjadi pada pelet UO_2 melalui ADU lebih cepat dan lebih besar dibandingkan pelet UO_2 melalui AUC. Hasil penelitian sebelumnya menyebutkan bahwa densifikasi pelet UO_2 yang disinter pada temperatur 1100^oC terjadi pada kisaran temperatur 650^oC sampai 900^oC dan pertumbuhan butir dominan terjadi pada kisaran temperatur 900^oC sampai 1100^oC^[16]. Hasil tersebut menguatkan hasil pengamatan temperatur dimana densifikasi terjadi secara signifikan, yakni pada sekitar temperatur 650^oC pada penelitian ini (Gambar 5). Demikian

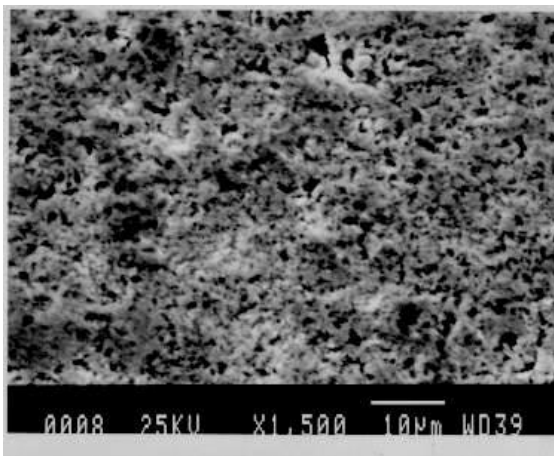
pula dengan tahap akhir proses sintering, yakni pertumbuhan butir, yang belum signifikan terjadi pada temperatur 800^oC (Gambar 6 dan 7). Dari Gambar 6 juga terlihat bahwa pori relatif besar terjadi pada pelet UO_2 melalui AUC dibandingkan dengan pelet UO_2 melalui ADU (Gambar 7). Hal ini memberikan indikasi bahwa kerapatan pelet sinter UO_2 melalui AUC lebih rendah dibandingkan kerapatan pelet sinter UO_2 melalui ADU. Dikatakan bahwa mampu sinter/*sinterability* serbuk UO_2 melalui AUC lebih rendah dibandingkan dengan serbuk UO_2 melalui ADU. Hal ini diperkuat dengan kerapatan pelet hasil sintering menggunakan tungku sinter, yakni kerapatan pelet sinter UO_2 melalui AUC (10.53 g/cm³) yang lebih rendah dibandingkan kerapatan pelet sinter UO_2 melalui ADU (10.73 g/cm³) (Gambar 8). Fakta ini menunjukkan bahwa meskipun *compactibility* dan *compressibility* serbuk UO_2 melalui AUC lebih baik dibandingkan serbuk UO_2 melalui ADU, yang ditunjukkan dengan kerapatan pelet mentah UO_2 melalui AUC yang lebih tinggi (5.80 g/cm²) dibandingkan kerapatan pelet mentah UO_2 melalui AUC (5.49 g/cm²)^[12], tetapi karena mampu sinter serbuk UO_2 melalui AUC yang lebih rendah dibandingkan dengan serbuk UO_2 melalui ADU memberikan kerapatan pelet sinter UO_2 melalui AUC (10.53 g/cm³) yang lebih rendah dibandingkan kerapatan pelet sinter UO_2 melalui ADU (10.73 g/cm³).



Gambar 5. Dari kurva dilatometer, penyusutan terjadi lebih awal pada pelet UO_2 melalui ADU dibandingkan dengan pelet UO_2 melalui AUC. Laju dan besa penyusutan yang terjadi pada pelet UO_2 melalui ADU lebih cepat dan lebih besar dibandingkan pelet UO_2 melalui AUC



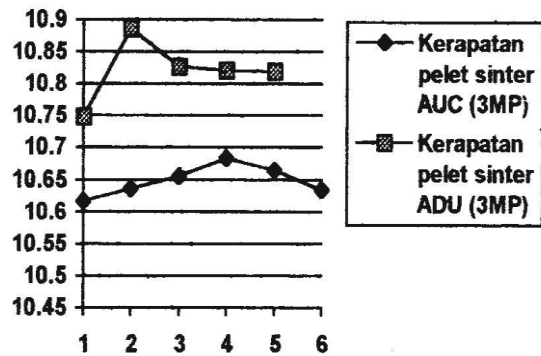
Gambar 6. Mikrostruktur pelet UO_2 melalui AUC hasil karakterisasi dilatometer pada temperatur $800^\circ C$



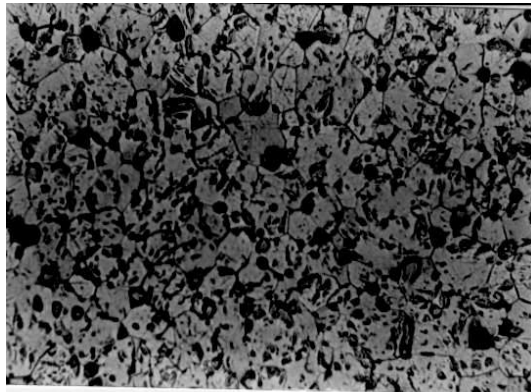
Gambar 7. Mikrostruktur pelet UO_2 melalui ADU hasil karakterisasi dilatometer pada temperatur $800^\circ C$

Mampu sinter/*sinterability* serbuk UO_2 melalui AUC lebih rendah dibandingkan dengan serbuk UO_2 melalui ADU juga dapat dilihat dari mikrostruktur pelet sinter UO_2

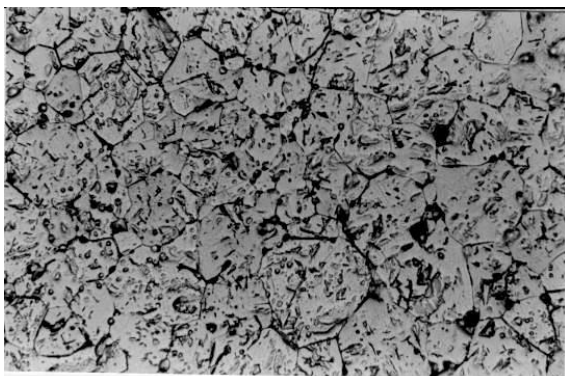
melalui AUC , yang mempunyai ukuran butir yang lebih kecil (Gambar 9) dibandingkan dengan ukuran butir pelet sinter UO_2 melalui ADU (Gambar 10).



Gambar 8. Kerapatan pelet sinter serbuk UO_2 melalui AUC yang lebih rendah dibandingkan dengan kerapatan pelet sinter serbuk UO_2 melalui ADU



Gambar 9. Mikrostruktur pelet $UO_2 - AUC$ hasil penyinteran pada temperatur *sintering* $1700^\circ C$ dengan laju pemanasan $250^\circ C/j$ dan waktu *sintering* 4 jam.

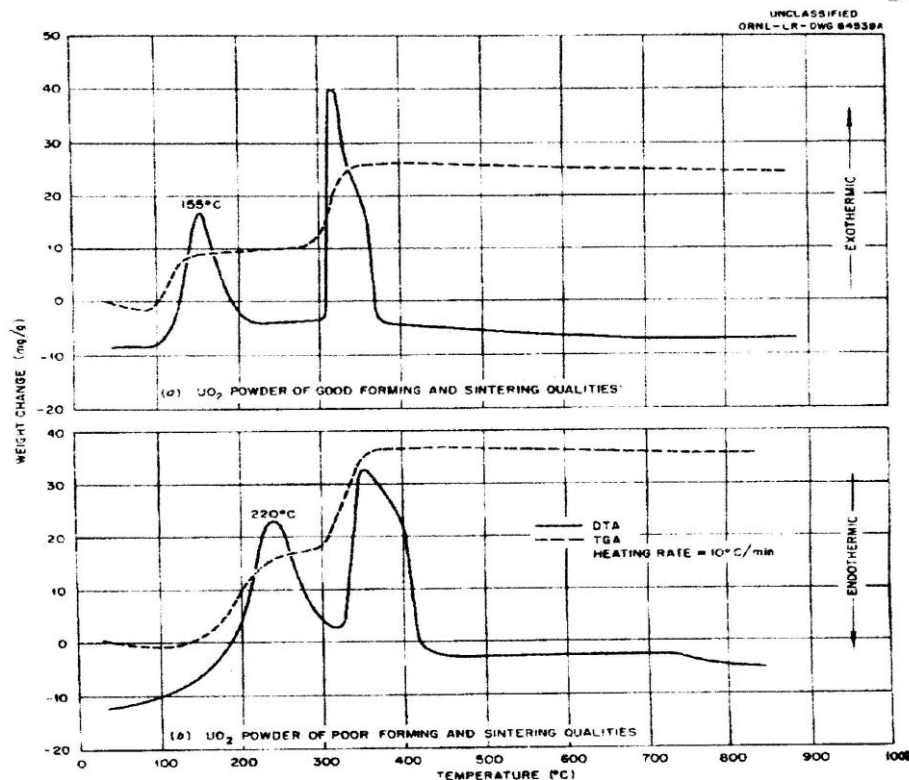


Gambar 10. Mikrostruktur pelet UO_2 – AUC hasil penyinteran pada temperatur *sintering* 1700 °C dengan laju pemanasan 250°C/j dan waktu *sintering* 4 jam.

Mampu sinter/*sinterability* serbuk UO_2 melalui AUC yang lebih rendah dibandingkan dengan serbuk UO_2 melalui ADU dapat dijelaskan berikut ini. Salah satu “*driving force*” dari proses *sintering* adalah energi aktivasi material. 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^[13]. Mampu sinter juga akan ditentukan oleh ukuran dan

tingkat kesempurnaan baik internal maupun permukaan dari suatu kristal penyusun serbuk^[17]. Untuk serbuk yang berbeda, karakteristiknya juga berbeda. Akibatnya parameter *sintering*nya juga berbeda.

Mampu sinter atau keaktifan (“*activeness*”) direfleksikan dengan laju dan temperatur yang mana laju maksimum oksidasi UO_2 , U_3O_7 , U_3O_8 akan karakteristik untuk serbuk yang berbeda-beda. Mampu sinter serbuk UO_2 yang bagus akan mempunyai pola “*Differential Thermal Analysis*” yang menunjukkan temperatur yang mana laju oksidasi maksimum akan ditunjukkan dengan puncak U_3O_7 antara 155°C sampai 180°C^[13]. Apabila temperatur puncak tersebut lebih tinggi 180°C, maka mampu sinter serbuk tersebut semakin menurun. Pola karakteristik “*Thermogravimetri – Differential Thermal Analysis*” (TG-DTA) dapat dilihat pada Gambar 11. Karakteristik keaktifan serbuk UO_2 melalui AUC yang lebih tinggi dibandingkan serbuk UO_2 melalui AUC ditunjukkan dengan puncak U_3O_7 pada temperatur yang lebih tinggi (174°C) dibandingkan dengan serbuk UO_2 melalui AUC (161°C).



Gambar 11. Pola TG – DTA yang menunjukkan temperatur puncak U3O7 sebagai indikator mampu sinter

SIMPULAN

Mampu sinter serbuk UO_2 melalui ADU lebih tinggi dibandingkan mampu sinter serbuk UO_2 melalui AUC. Hal ini dapat dilihat dari:

Kurva dilatometer, penyusutan terjadi lebih awal pada pelet UO_2 melalui ADU dibandingkan dengan pelet UO_2 melalui AUC. Laju dan besar penyusutan yang terjadi pada pelet UO_2 melalui ADU lebih cepat dan lebih besar dibandingkan pelet UO_2 melalui AUC.

Frakasi pori yang lebih banyak dengan ukuran yang lebih besar pada mikrostruktur pelet UO_2 melalui AUC hasil dilatometer dibandingkan pelet UO_2 melalui ADU

Kerapatan pelet UO_2 melalui ADU (10.73 g/cm^3) hasil sintering (kondisi: temperatur sintering 1700°C dengan laju pemanasan 250°C/j dan waktu sintering 4 jam) yang lebih tinggi dibandingkan dengan kerapatan UO_2 melalui AUC (10.53 g/cm^3).

Pada pengamatan mikrostruktur pelet hasil sintering, ukuran butir pelet sinter UO_2 melalui ADU lebih besar dengan fraksi pori yang lebih sedikit dibandingkan pelet sinter UO_2 melalui AUC.

Pola *Differential Thermal Analysis* yang menunjukkan puncak U_3O_7 yang dimiliki serbuk UO_2 melalui ADU pada temperatur yang lebih rendah (161°C) dibandingkan dengan serbuk UO_2 melalui AUC (174°C).

DAFTAR PUSTAKA

1. I.J., HASTING, AECL, "Report Report", CRNL – 2, (1983).
2. V. MATHIEU, Trans. Am., "Nuclear Society", 28, 327 (1978).
3. C.S. CHOI, J.H. PARK, E.H. KIN. H.S. Shin and I.S. Chang, "Journal of Nuclear Materials", 153, 148 (1988).
4. LARS HALLDAHL, *ibid.*, 126, 170 (1984).

5. Y.W. LEE AND M.S. YANG, *ibid.*, 178, 217 (1991).
6. H.S. KIM, Y.W. LEE AND S.H. NA, *J.KOR.SOc.*28, 458 (1996).
7. K.W. SONG, K.S. KIM, K.W. KANG, Y.H. Jung, *ibid.*, 31, 335 (1999).
8. S.H. Na et al., 2000 KNS Autumn Mtg., Korea Nuclear Society (2000).
9. JOEL S. HIRSHHORN, "*Introduction to Powder Metallurgy*", 1st ed., p.46, American Powder Metallurgy Institute, USA, (1996).
10. H.S. KIM et al., "*Ball – milling Effect on the Sinterability of the UO_2 ex-AUC Powder*", *Journal of the Korean Nuclear Society*, Volume 26, Number 2, June 1994.
11. M. RACHMAWATI, "Karakterisasi Proses Pengompakan pada Peletisasi Serbuk UO_2 ", *Prosiding Presentasi Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir.*, PEBN-BATAN., Jakarta, 18-19 Maret 1996.
12. M. RACHMAWATI, T.T. SAPUTRA, D. KISWORO, "Karakterisasi dan Komposisi Serbuk UO_2 dari Proses ADU dan AUC selama Proses Pengompakan". *Prosiding Presentasi Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir VI*, P2TBDU – BATAN Jakarta 7-8 Nopember 2001.
13. SANG HO NA et al, "*Effect of Ball - mill Treatment on Powder Characteristics, Compaction and Sintering Behaviors of ex-AUC and ex-ADU Powder*", *Journal of the Korean Nuclear Society*, volume 34, Number 1, pp.60-67, February, 2002.
14. Belle, J, *Uranium Dioxide: Property and Nuclear Application*, Atomic Energy Commission, Washington D.C, 1961, P.234.
15. Randall M. German, *Powder Metallurgy Science*, Metal Powder Industries Federation, New Jersey, 1984, p.161.
16. DIAN ANGRAINI, A.B. GINTING, S. AMINI, M. RACHMAWATI, MARTOYO, "Analisis Mekanisme Kinetika *Sintering* Pelet UO_2 dengan Dilatome ter dan Mikroskop Optik", *Prosiding Presentasi Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir III* PEBN-BATAN Jakarta, 4-5 Nopember 1997.
17. A.J. TAYLOR, "*Characterisation of Uranium Dioxide Powder for Sintering*", *Meeting on Characterisation of Uranium Dioxide*, United Atomic Energy Commission, Oak Ridge National Laboratory, December 12-13, 1961.