

# PENGARUH PARAMETER ANIL KUMULATIF TERHADAP JENIS DAN UKURAN *Secondary Phase Precipitate/SPP* PADUAN Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe

Sugondo

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBN)-BATAN  
Kawasan Puspipetek Serpong, Tangerang

## ABSTRAK

**PENGARUH PARAMETER ANIL KUMULATIF TERHADAP JENIS DAN UKURAN *Secondary Phase Precipitate/SPP* PADUAN Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe.** Penelitian ini bertujuan untuk menganalisis korelasi antara parameter aniling kumulatif (*Cumulative Annealing Parameter/CAP*) dengan jenis dan ukuran *Phase Precipitate/SPP* paduan Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe hasil sintesa. Ingot dibuat dengan peleburan busur tunggal. Selanjutnya sampel dianil pada temperatur 400°C, 500°C, 600°C, 700°C dan 800°C selama 2 jam. Identifikasi fasa berdasarkan pola difraksi sinar-X dan dibantu dengan data JCPDF (*Joint Committee Powder Diffraction File*). Hasil pola difraksi beserta datanya dianalisis secara manual, tidak dapat langsung sesuai dengan data JCPDF sebab adanya distorsi terutama dari SPP. Hasil analisis disimpulkan sebagai berikut: Diperoleh data bahwa perbedaan parameter aniling (CAP) menghasilkan jenis SPP yang berbeda dan SPP yang stabil dengan perubahan CAP adalah Fe<sub>2</sub>Nb. Parameter aniling kumulatif pada temperatur anil 800 °C (1073 K) pada SOCAP (Parameter pertumbuhan partikel (*Second order Cumulative Annealing Parameter/SOCAP*)), sebesar 8.41E-07m dan PGP (Parameter pertumbuhan partikel (*Particle Growth Parameter/PGP*)), sebesar 2.23E+01 baik untuk stabilisasi presipitat. Parameter aniling kumulatif pada temperatur anil antara 500 °C (773 K) pada SOCAP sebesar 2.66E-08m dan PGP sebesar 4.48E-07 sampai dengan 600 °C (873 K) pada SOCAP sebesar 2.22E-07 m dan PGP sebesar 2.41E-02 semua SPP mengalami ukuran butir maksimum, interval parameter aniling ini baik untuk stabilisasi presipitat . Untuk minimasi ukuran butir yaitu parameter aniling kumulatif pada temperatur anil 700 °C (973 K) pada SOCAP sebesar 4.63E-07m dan PGP sebesar 1.04E+00 kecuali Fe<sub>2</sub>Nb.

**Kata Kunci :** paduan Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe, peleburan busur tunggal, pola difraksi sinar-x, JCPDF, temperatur anil, parameter aniling kumulatif (*Cumulative Annealing Parameter/CAP*), Parameter pertumbuhan partikel (*Particle Growth Parameter/PGP*), Parameter aniling kumulatif orde kedua (*Second order Cumulative Annealing Parameter/SOCAP*), Fe<sub>2</sub>Nb, ZrSn<sub>2</sub>, FeSn, SnZr, NbSn<sub>2</sub>, Zr<sub>0.68</sub>Nb<sub>0.25</sub>Fe<sub>0.08</sub>, Fe<sub>2</sub>Nb<sub>0.4</sub>Zr<sub>0.6</sub>, Fe<sub>37</sub>Nb<sub>9</sub>Zr<sub>54</sub>, dan ω-Zr

## ABSTRACT

**EFFECT OF CUMMULATIF ANNEALING PARAMETER TO TYPE AND SIZE OF SECONDARY PHASE PRECIPITATE/SPP ON Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe.** The obyective of this research is to analyze of the correlation between the Cumulative Annealing Parameter (CAP) and Phase Precipitate (SPP) on Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe alloy as the product of the synthesis. The ingot

was prepared by single spark melting. The samples then anneal at temperature 400°C, 500°C, 600°C, 700°C dan 800°C for 2 hours. The phases was identified based on x-rays diffraction pattern and supported by Joint Committee Powder Diffraction File/ JCPDF. The Result of diffraction pattern with the data were analyzed by manual, it was not done by direct meet with the JCPDF data because of the distortion of the SPP. The analyzed results were concluded as follow: It was found the data that variation of the Cumulative Annealing Parameter (CAP) resulting the difference types of the Phase Precipitates (SPP) and the stable SPP with the CAP variation was  $Fe_2Nb$ . The Cumulative Annealing Parameter at the temperature of 800 °C (1073 K) on SOCAP (Second order Cumulative Annealing Parameter/SOCAP), in order of  $8.41E-07m$  dan PGP (Particle Growth Parameter/PGP), in order of  $2.23E+01$  it is good for the precipitate stabilization. The Cumulative Annealing Parameter at the temperature in between 500 °C (773 K) on SOCAP in order of  $2.66E-08m$  and PGP in order of  $4.48E-07$  to at 600 °C (873 K) on SOCAP in order of  $2.22E-07 m$  and PGP in order of  $2.41E-02$  all of the SPPs expereincethe maximum particle size, this annealing parameter interval is interval aniling parameter and is good for precipitate stabilizatio. In the purpose of minimizing particle size that was The Cumulative Annealing Parameter at the temperature of 700 °C (973 K) on SOCAP in order of  $4.63E-07m$  and PGP in order of  $1.04E+00$  excepted for  $Fe_2Nb$ .

**Keyword:** alloy Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe, single spark melting, pola difraksi sinar-x, JCPDF, annealing temperature, Cumulative Annealing Parameter/CAP, Particle Growth Parameter/PGP, Second order Cumulative Annealing Parameter/SOCAP  $Fe_2Nb$ ,  $ZrSn_2$ ,  $FeSn$ ,  $SnZr$ ,  $NbSn_2$ ,  $Zr_{0.68}Nb_{0.25}Fe_{0.08}$ ,  $Fe_2Nb_{0.4}Zr_{0.6}$ ,  $Fe_{37}Nb_9Zr_{54}$ , dan  $\omega$ -Zr

## PENDAHULUAN

Pada penelitian ini ditujukan pada perlakuan panas yang dikarakterisasi oleh parameter aniling kumulatif (*cumulative annealing parameter*/CAP,  $\Sigma A$ ) pada bahan kelongsong Zr-1%Sn-1%Nb-1%Fe. Pengembangan paduan Zr-Sn-Nb-Fe utamanya untuk kelongsong bahan bakar pada derajat bakar tinggi. Keunggulan paduan tersebut ialah: Pertama, temperatur pendingin dapat ditingkatkan; Kedua, konsentrasi litium (Li) dalam pendingin dapat lebih tinggi; Ketiga, pengurangan *creep dan growth* akibat iradiasi; Keempat, mengurangi *pick-up* hydrogen; dan Kelima, ketahanan korosinya lebih tinggi dibandingkan dengan zircaloy-2 (Zry-2) dan zircaloy-4 (Zry-4). Keunggulan itu diketahui setelah uji paska iradiasi (*post irradiation examination*/PIE) dari hasil iradiasi dengan derajat bakar (*burn-up*) 70.000 MWd/Te<sup>[1]</sup>.

Faktor utama metalurgi yang berkorelasi dengan ketahanan korosi zirkaloi ialah ukuran dan distribusi partikel fasa kedua

dan dengan residual strain<sup>[2]</sup>. Unsur pepaduan dalam partikel fasa kedua adalah (Fe,Cr,Ni) mempunyai kelarutan lebih kecil atau sepadan dengan level impuritas (khususnya untuk Fe) yang ditemukan dalam zirconium murni bukan paduan. Dalam paduan unsur utama pepaduan pasti ada sehingga pada temperatur tertentu pasti terbentuk presipitat fasa kedua. Di daerah fasa- $\beta$  yaitu di atas 950 °C unsur-unsur transisi Fe, Cr, Ni terlarut dalam matrik<sup>[3]</sup>. Keadaan demikian karena untuk mempertahankan super-saturasi larutan padat setelah perlakuan *quenching*. Untuk mengurangi terbentuknya inti presipitat berukuran mikroskopik maka diperlukan laju *quenching* dalam order  $1\ 500\ Ks^{-1}$ , keadaan ini jauh lebih tinggi dibandingkan dengan *quenching* dalam proses komersial dalam order  $50\ ks^{-1}$ .

Rute fabrikasi modern melibatkan langkah *quenching* cepat dalam fabrikasinya yang menghasilkan distribusi ukuran

presipitat tertentu. Berawal dari distribusi partikel fasa kedua (SPP) hasil *quenching* selanjutnya ukurannya meningkat dengan meningkatnya perlakuan termo-mekanik pada material tersebut<sup>[4]</sup>. Penentuan dan pengaturan parameter fabrikasi menjadi penting karena menentukan distribusi ukuran presipitat.

Semua langkah aniling ditentukan oleh temperatur dan waktu dimana temperatur tersebut diberlakukan. Kombinasi kedua variable ini terbukti penting dalam manufaktur bahan kualitas tinggi yang reproduisibel untuk kelongsong dan struktur bundle bahan bakar nuklir. Parameter tersebut diperkenalkan oleh Steinberg et. Al. pada tahun 1984<sup>[4]</sup> yang disebut parameter aniling akumulasi (*Cumulated Annealing Parameter/CAP*) yaitu jumlah perlakuan panas dalam  $\alpha$ -Zr selama fabrikasi. Parameter ini digunakan sebagai *Growing Function* bentuk sigmoidal yang mempunyai formula umum

$$\ln k' = \ln \left[ \frac{a-y}{y-b} \right] = kx \quad \dots\dots\dots 1$$

Formula tersebut untuk melukiskan bentuk kurva sigmoidal kekuatan luluh,  $R_{p0}$ , versus temperatur dan waktu dalam bentuk

$$\ln k' = \ln \left[ \frac{R_{p0.2}^{max} - R_{p0.2}}{R_{p0.2} - R_{p0.2}^{min}} \right] = kx \quad \dots\dots\dots 2$$

Dimana  $A = t \exp \left( -\frac{Q}{RT} \right) = k$ . Temperatur aktivasi,  $Q/R$ , telah ditentukan sebesar 40 000 K dari hukum Arrhenius yaitu plot antara  $k$  versus  $1/T$ .

Jika lebih dari satu langkah aniling, kekuatan luluh akhir adalah jumlah dari setiap langkah temperatur dan waktu,  $i$ , diformulasikan sebagai berikut:

$$A = \sum (t_i \exp \left( -\frac{Q}{RT} \right)) \quad \dots\dots\dots 3$$

Dimana  $t_i$  adalah waktu efektif langkah aniling,  $t_i$ , pada temperature,  $T_i$ . Parameter ini disebut Parameter- $A$  atau Parameter  $-\Sigma A$ .

Konsep ini sukses dipakai untuk menjelaskan dependensi sifat mekanik atau sifat metalografis kelongsong zirkaloi, seperti kekuatan luluh dan rekristalisasi. Tetapi perlu diketahui bahwa CAP tidak secara intrinsik menjelaskan secara langsung proses fisik seperti pertumbuhan butir dan korosi. Saat ini parameter aniling diterima dan dipakai oleh fabrikator dan peneliti dalam komunitas zirconium<sup>[5]</sup>. Keuntungan konsep ini ialah terutama sebagai alat enjinerung untuk proses kontinyu pada material berkualitas.

CAP sangat baik berkorelasi dengan ketebalan oksida dan laju korosi<sup>[6]</sup>. Dalam metalurgi fisik CAP mempunyai indikasi berkorelasi dengan pertumbuhan kolektif SPP. Korelasi tersebut ialah ketergantungan laju korosi dengan diameter rerata presipitat, diperoleh data bahwa masing-masing reaktor mempunyai CAP yang karakteristik. Sebagai contoh adalah ukuran presipitat dapat diperkecil dengan aniling paduan pada daerah beta dan bermanfaat pada reaktor BWR tetapi tidak untuk sitem PWR. Perlu diketahui bahwa laju korosi tidak hanya dipengaruhi oleh CAP tetapi oleh faktor yang lain yaitu tekstur, residual stress, Q-rasio dan kondisi kelongsong.

Investigasi rinci pertumbuhan presipitat dalam zirkaloi dengan berbagai perlakuan panas menyatakan bahwa modifikasi aniling parameter disarankan terutama pemanasan waktu pendek. Improvisasi CAP ialah *Particle Growth Parameter (PGP)*. Parameter ini memformulasikan perlakuan panas dengan ukuran rerata presipitat dalam paduan zirkaloi.

Tabel 1 adalah kumpulan aniling parameter dengan definisi matematis yang umum digunakan dalam literatur, wilayah

penggunaan dan dengan nilai konstan. Perbedaan nilai tersebut  $Q/R$  masing-masing 31.818 K, 40.000 K, 32.000 K dan 18.700 K adalah digunakan pada parameter yang berbeda. Untuk tujuan

praktis perbedaan ini memberikan nilai numerik yang signifikan, yang ditunjukkan dalam contoh pada 750 °C, 2 h aniling. Sebagai komparasi juga ditunjukkan bahwa PGP dan ABB parameter-A memberikan nilai yang komparatif pada step aniling yang sama.

Tabel 1: Formula parameter aniling kumulatif<sup>[7]</sup>

	Parameter-A		PGP, <i>Particle Growth Parameter</i>	SOCAP, <i>Second order Cumulative Annealing Parameter</i>
	ABB	Siemens KWU		
Formula	$A = \sum(t_i \exp(-\frac{Q}{RT}))$	$A = \sum(t_i \exp(-\frac{Q}{RT}))$	$A = \sum(t_i \exp(-\frac{Q}{RT})) \cdot 10^{-14} h$	$D^3 - D^3 = \frac{kt}{T^3} \exp(-\frac{Q}{RT})$ $k = 1,1 \times 10^{-11} m^3 s^{-1} K^2$ $D = diam. presip$
Suhu Aktivasi	$\frac{Q}{R} = 31.818K$	$\frac{Q}{R} = 40.000K$	$\frac{Q}{R} = 32.000K$	$\frac{Q}{R} = 18.700K$
Relevansi	korosi	sifat mekanik dan rekristalisasi	korosi dan pertumbuhan presipitat	Pertumbuhan presipitat
Penerapan	$\beta$ -quenching	Pengerjaan dingin dan $\beta$ -quenching	$\beta$ -quenching, partikel awal teridentifikasi	Semua langkah aniling
Contoh, 750 °C, 2 jam	$6,2 \times 10^{-14} h$	$2,1 \times 10^{-17} h$	5,25	
Nilai tipikal PWR BWR	$10^{-13} h$ $10^{-13} h$	$40 \times 10^{-14} h$ $1 \times 10^{-14} h$	8 1	$2 \times 10^{-21} m^3$ $4 \times 10^{-22} m^3$

PGP parameter berbeda dengan parameter-A dalam modifikasi temperatur aktivasi ( $Q/R = 32.000K$ ) dengan memperhatikan keterlibatan mekanisme fisiko-kimia. PGP adalah merupakan parameter empiris yang disesuaikan dengan data eksperimental. Fakta ini menjelaskan kinetik pertumbuhan presipitat pada populasi partikel presipitat dengan menggunakan fungsi pertumbuhan matematik tidak

menggunakan hukum fisika dasar. Keunggulan PGP ialah lebih akurasi dalam penerapan untuk bahan di BWR yaitu waktu pendek (*short-term*) dan aniling cepat kontinyu selama fabrikasi. Parameter aniling serupa juga digunakan untuk menjelaskan perilaku korosi yang digunakan oleh ABB,

menggunakan energy aktivasi sebesar 63 kcal/mol ( $Q/R = 31.818 K$ )<sup>[7]</sup>.

Konsep fisika dasar untuk menjelaskan pertumbuhan presipitat adalah konsep difusi pertumbuhan presipitat yang terkontrol pada kondisi yang setimbang (Ostwald ripening) diterapkan pada fasa padat paduan zirconium. Konsep ini sukses diterapkan pada zirkaloi yang disertai teori-LWS<sup>[8]</sup> dan menghasilkan parameter aniling kumulatif orde kedua (*Second Order Cumulative Annealing Parameter/SOCAP*). Jika kinetic order kedua proses pertumbuhan terpenuhi maka distribusi ukuran butir presipitat secara langsung dapat dihitung dan dapat dibandingkan dengan nilai yang terukur. Model tersebut memerlukan konstanta kinetik  $k$  dan energy aktivasi ( $Q/R = 18,700 K$ ) untuk proses pertumbuhan.

• **Pengaruh *quenching* pada ukuran presipitat.**

Ukuran presipitat fasa kedua (SPP) sangat berpengaruh pada korosi. Ukuran presipitat pada bahan tergantung pada laju *quenching* dari daerah- $\beta$  dan proses berikutnya dan temperatur aniling di daerah- $\alpha$ . Ketergantungan laju *quenching* telah dilakukan pada percobaan *out-of-pile* dan di dalam reaktor<sup>(9)</sup>. Beberapa lot tabung kelongsong zircaloy-4 di *quenching* dengan dengan berbagai macam kondisi. Beberapa kemudian dianil selama 8  $h$  pada 750 °C ( $A = 8,4 \times 10^{-17} h$ ) untuk mendapatkan ukuran presipitat besar. Sampel yang hanya mengalami perlakuan *quenching* mengalami laju korosi lebih tinggi dibandingkan dengan

sampel yang diberi perlakuan *quenching* dilanjutkan aniling pada 750 °C selama 8  $h$ . Berdasarkan fakta tersebut, ketergantungan laju korosi terhadap perlakuan *quenching* kemungkinan besar disebabkan oleh besarnya ukuran partikel. Semakin besar laju *quenching*, semakin kecil ukuran partikel dan semakin kecil ukuran partikel semakin lambat laju korosi. Distribusi ukuran partikel juga berpengaruh pada laju korosi. Kelongsong yang difabrikasi dengan perolan panas dan dingin akan menghasilkan ukuran partikel relatif kecil dan berdistribusi homogen, sehingga perlakuan *quenching* tidak signifikan pengaruhnya. Walaupun demikian perlakuan *quenching* direkomendasikan dalam fabrikasi kelongsong untuk memperoleh ukuran dan distribusi partikel presipitat yang baik.

Contoh lain yang dijelaskan pada proses manufaktur kelongsong PWR untuk peningkatan ketahanan korosi<sup>(11)</sup>. Komposisi kelongsong ditambahi pepadu 1–5% dari kelompok Sn, Fe, Cr, dan Ni. Penambahan ini untuk peningkatan korosi dan kesetimbangan SPP dalam matrik, berapa kelarutan padat di dalam larutan. Langkah pertama bahan kelongsong diekstrusi kemudian diantara perolan dingin diberi perlakuan panas pada temperatur 650 °C hingga 790 °C. Waktu perlakuan panas dikarakterisasi oleh parameter aniling(CAP) dan nilainya harus melebihi  $10^{-14} h$  dengan aktivasi energi 6500 cal/mole, yang berarti waktu anil pada 700 °C paling cepat 10,3  $h$ . Untuk menambah ukuran dan densitas SPP diberi perlakuan panas pada 540–650 °C sebelum tahap perolan akhir. Nilai optimum CAP disebutkan  $10^{-17} h$ , sesuai dengan waktu aniling 7,1  $h$  pada 700 dengan ( $Q/R$ ) = 40 000  $K$ .

Tabel 2. Contoh nilai PGP dari suatu langkah proses fabrikasi<sup>[10]</sup>

Zry-4			ELS (Extra Low Sn)		
Kode	Langkah Proses	PGP	Kode	Langkah Proses	PGP
-	$\beta$ -Tempa	0,0	-	$\beta$ -Tempa	0,0
1	$\beta$ - <i>Quench</i>	0,0	A	$\beta$ - <i>Quench</i>	0,0
2	$\alpha$ -Tempa	0,6	B	$\alpha$ -Tempa	0,6
3	$\alpha$ -Tempa	1,2	-	-	-
4	$\alpha$ -Anil	7,4	C	$\alpha$ -Anil	6,0
-	-	-	D	Ekstrusi awal	6,1
5	Co-Ekstrusi	7,5	E	Co-Ekstrusi	6,2
6	$\alpha$ -Anil	7,8	F	$\alpha$ -Anil	6,4
7	Deformasi dingin	7,8	G	Deformasi dingin	6,4
-	$\alpha$ -Anil	-	-	$\alpha$ -Anil	-
8	Deformasi dingin	9,8	H	Deformasi dingin	8,4
-	$\alpha$ -Anil	-	-	$\alpha$ -Anil	-
-	Deformasi dingin	-	-	Deformasi dingin	-
9	Anil pembebasan tegangan	12,7	I	Anil pembebasan tegangan	11,5

## TATA KERJA

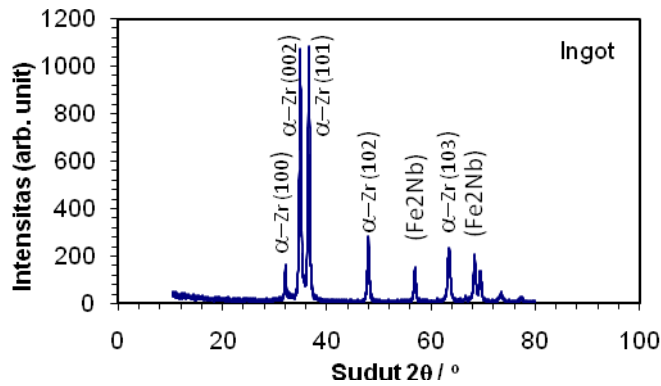
Disiapkan serbuk sampel paduan (Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe). Serbuk Zr, Sn, Nb, Fe masing-masing ditimbang hingga komposisi Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe. Dicampur dalam mesin pencampur selama 150 menit, selanjutnya dibuat pelet dengan ukuran tinggi 10 mm  $\times$  diameter 10 mm pada tekanan 1,2 ton/cm<sup>2</sup>. Hasil pengepresan ini disebut pelet mentah. seberat 5 g pelet mentah dilebur dengan busur listrik dalam krusibel tembaga dalam kondisi atmosfer gas argon. Tekanan ruang bakar tungku 2 psi dan arus busur 50 A. Hasil leburan adalah paduan Zr-Sn-Nb-Fe berbentuk ingot. Ingot dipanaskan pada temperatur 1100°C selama 2 jam dan didinginkan cepat (*quenching*)

dalam air. Setelah pendinginan cepat, ingot dipotong dengan pisau intan (*diamond blade*) dengan ukuran sekitar 5 $\times$ 2 $\times$ 10 mm. Selanjutnya potongan ingot dianil pada temperatur 400°C, 500°C, 600°C, 700°C dan 800°C selama 2 jam.

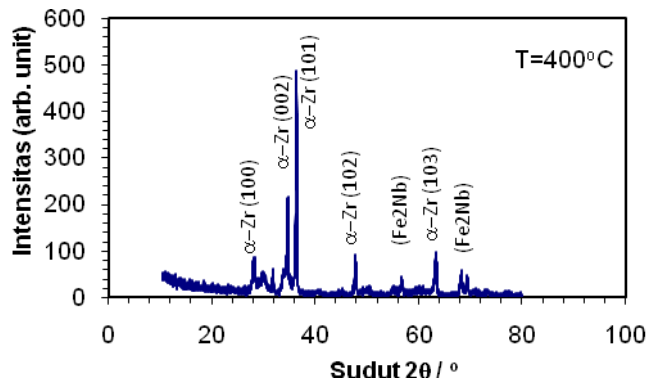
Kemudian sampel dipoles sampai grid 1200 mesh untuk menghilangkan oksida yang terjadi selama proses anil berlangsung. Sampel dianalisis dengan alat JEOL,DX-GERP-12 pada kondisi operasi sebagai berikut: Tube: Cu, Filter: Ni, Tegangan: 36 KV, Arus: 20 MA, Speed: 2<sup>o</sup>/menit guna pembuatan difraktogram. Hasil pola difraksi dapat dicocokkan dengan data yang ada di JCPDF (*Joint Committee Powder Diffraction File*) maka diperoleh jenis kristal dari suatu unsur atau senyawa tertentu.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

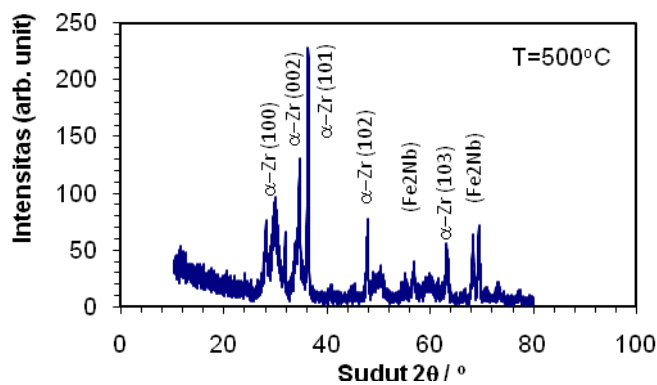
### • Korelasi parameter aniling kumulatif dengan jenis presipitat



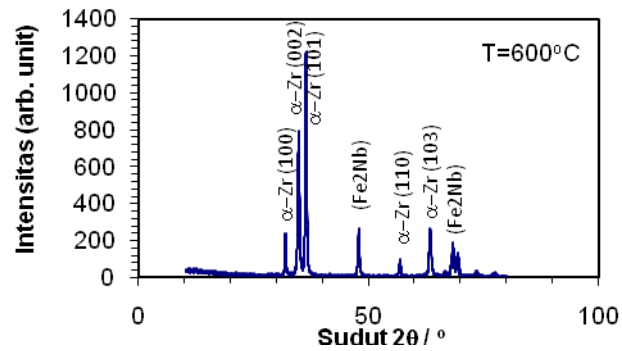
Gambar 1: Pola difraksi paduan (Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe) ingot



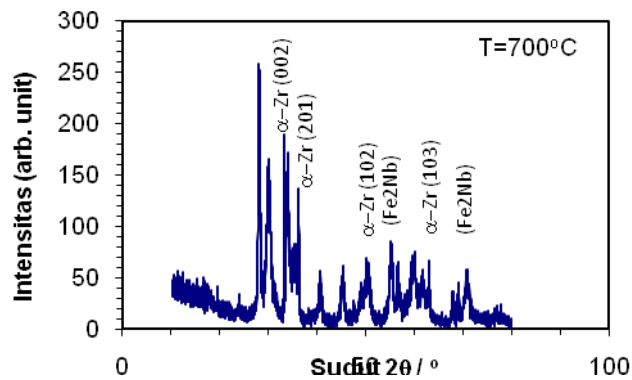
Gambar 2: Pola difraksi paduan (Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe) dianil pada 400 °C, 2 jam



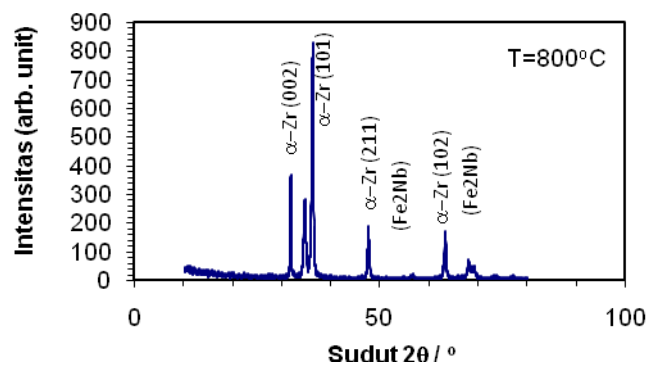
Gambar 3: Pola difraksi paduan (Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe) dianil pada 500 °C, 2 jam



Gambar-4: Pola difraksi paduan (Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe) dianil pada 600 °C, 2 jam



Gambar 5: Pola difraksi paduan (Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe) dianil pada 700 °C, 2 jam



Gambar 6: Pola difraksi paduan (Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe) dianil pada 800 °C, 2 jam



Tabel 3. Hasil perhitungan parameter aniling kumulatif (*Cumulative Annealing Parameter/CAP*).

Suhu, K	Parameter Aniling Kumulatif				
	ABB( <i>h</i> )	Siemens KWU( <i>h</i> )	PGP	SOCAP( <i>m</i> <sup>3</sup> )	SOCAP( <i>m</i> )
673	5.87E-21	3.08E-26	4.48E-07	1.88E-23	2.66E-08
773	2.66E-18	6.73E-23	2.10E-04	6.86E-22	8.82E-08
873	2.97E-16	2.52E-20	2.41E-02	1.10E-20	2.22E-07
973	1.26E-14	2.80E-18	1.04E+00	9.90E-20	4.63E-07
1073	2.65E-13	1.29E-16	2.23E+01	5.94E-19	8.41E-07

Keterangan: ABB= **ABB**, formerly **ASEA Brown Boveri**, is a **Swiss-Swedish multinational corporation** headquartered in **Zürich**, Switzerland, operating mainly in the **power** and **automation** technology areas , KWU= Krafwerk Union , PGP= *Particle Growth Parameter* , SOCAP= *Second Order Cumulative Annealing Parameter*

Perbedaan kelarutan di fasa-β dan fasa-α dapat diterangkan dengan teori zona Brillouin (Brillouin zone)<sup>(11)</sup>. Pada fasa-α terjadi tumpang tindih permukaan Fermi sedangkan pada fasa-β tidak terjadi. Tidak adanya presipitat yang lain karena sebagian besar pepadu menjadi larutan padat di dalam ingot paduan. Sesuai hukum tersebut bentuk kristalnya SPP adalah heksagonal sesuai dengan kristal matrik α-Zr.

Setelah bahan dianil pada temperatur 400 °C (673 K) dengan parameter aniling Tabel-3 dan Tabel-4 sedangkan spektrum difraksi sinar-X pada Gambar-2, diperoleh fasa α-Zr dengan bentuk kristal heksagonal yang memiliki jarak kisi, *a*=3.232 dan *c*=5.147 sebagai referensi JCPDF # 05-0665. Populasi SPP meningkat dengan drastis. Ditemukan kristal-kristal SPP sebagai berikut: Fe<sub>2</sub>Nb berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi *a*=1.8215 dan *c*=7.877 sebagai referensi JCPDF#15-0316; ZrSn<sub>2</sub> berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi *a*=9.573, *b* = 5.644 dan *c*=9.927 sebagai referensi JCPDF # 06-0316; NbSn<sub>2</sub> berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi *a*=19.0876, *b* = 5.645 dan *c*=9.852 sebagai referensi JCPDF # 19-0876; SnZr berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi *a*=7.433, *b* = 5.822 dan *c*=5.157 sebagai

referensi JCPDF # 10-0218; FeSn berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi *a*=5.302, dan *c*=4.449 sebagai referensi JCPDF # 09-0212; Fe<sub>2</sub>Nb<sub>0,4</sub>Zr<sub>0,6</sub> berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi *a*=4.927, dan 24.162 sebagai referensi JCPDF # 23-0303; Zr<sub>0,68</sub>Nb<sub>0,25</sub>Fe<sub>0,08</sub> berbentuk kristal belum ditentukan sebagai referensi JCPDF # 17-0509.

Selanjutnya bahan dianil pada temperatur 500 °C (773 K) dengan parameter aniling Tabel-3 dan Tabel-4 sedangkan spektrum difraksi sinar-X pada Gambar-3, diperoleh fasa α-Zr dengan bentuk kristal heksagonal yang memiliki jarak kisi, *a*=3.232 dan *c*=5.147 sebagai referensi JCPDF # 05-0665. Populasi SPP masih banyak dan berkurang satu senyawa yaitu ZrSn<sub>2</sub>. Ditemukan kristal-kristal SPP sebagai berikut: Fe<sub>2</sub>Nb berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi *a*=1.8215 dan *c*=7.877 sebagai referensi JCPDF#15-0316; NbSn<sub>2</sub> berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi *a*=19.0876, *b* = 5.645 dan *c*=9.852 sebagai referensi JCPDF # 19-0876; SnZr berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi *a*=7.433, *b* = 5.822 dan *c*=5.157 sebagai referensi JCPDF # 10-0218; FeSn berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi *a*=5.302, dan *c*=4.449 sebagai referensi JCPDF #

09-0212;  $\text{Fe}_2\text{Nb}_{0.4}\text{Zr}_{0.6}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=4.927$ , dan  $24.162$  sebagai referensi JCPDF # 23-0303;  $\text{Zr}_{0.68}\text{Nb}_{0.25}\text{Fe}_{0.08}$  berbentuk kristal belum ditentukan sebagai referensi JCPDF # 17-0509.

Dari bahan yang dianil pada  $600\text{ }^\circ\text{C}$  ( $873\text{ K}$ ) dengan parameter aniling Tabel-3 dan Tabel 4 sedangkan spektrum difraksi sinar  $X$  pada Gambar-4, diperoleh fasa  $\alpha$ -Zr dengan bentuk kristal heksagonal yang memiliki jarak kisi,  $a=3.232$  dan  $c=5.147$  sebagai referensi JCPDF # 05-0665. Populasi SPP masih banyak dan berkurang dua senyawa yaitu SnZr dan  $\text{Fe}_2\text{Nb}_{0.4}\text{Zr}_{0.6}$ . Ditemukan kristal-kristal SPP sebagai berikut:  $\text{ZrSn}_2$  berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=9.573$ ,  $b = 5.644$  dan  $c=9.927$  sebagai referensi JCPDF # 06-0316;  $\text{Fe}_2\text{Nb}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=1.8215$  dan  $c=7.877$  sebagai referensi JCPDF#15-0316;  $\text{NbSn}_2$  berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=19.0876$ ,  $b = 5.645$  dan  $c=9.852$  sebagai referensi JCPDF # 19-0876;  $\text{FeSn}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=5.302$ , dan  $c=4.449$  sebagai referensi JCPDF # 09-0212;  $\text{Zr}_{0.68}\text{Nb}_{0.25}\text{Fe}_{0.08}$  bentuk kristal belum ditentukan sebagai referensi JCPDF # 17-0509.

Pada bahan yang dianil pada  $700\text{ }^\circ\text{C}$  ( $973\text{ K}$ ) dengan parameter aniling Tabel-3 dan Tabel 4 sedangkan spektrum difraksi sinar  $X$  pada Gambar-5, diperoleh fasa  $\alpha$ -Zr dengan bentuk kristal heksagonal yang memiliki jarak kisi,  $a=3.232$  dan  $c=5.147$  sebagai referensi JCPDF # 05-0665 dan  $\omega$ -Zr dengan bentuk kristal heksagonal yang memiliki jarak kisi,  $a=5.039$  dan  $c=3.136$  sebagai referensi JCPDF # 09-0212. Ada perubahan fasa yaitu terbentuknya fasa  $\omega$ -Zr dan perubahan pada jenis populasi SPP. Ditemukan kristal-kristal SPP sebagai berikut:

$\text{ZrSn}_2$  berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=9.573$ ,  $b = 5.644$  dan  $c=9.927$  sebagai referensi JCPDF # 06-0316;  $\text{FeSn}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=5.302$ , dan  $c=4.449$  sebagai referensi JCPDF # 09-0212;  $\text{Fe}_2\text{Nb}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=1.8215$  dan  $c=7.877$  sebagai referensi JCPDF#15-0316;  $\text{FeZr}_2$  berbentuk kristal tetragonal dengan jarak kisi  $a=6.385$  dan  $c=5.596$  sebagai referensi JCPDF#25-0420;  $\text{NbSn}_2$  berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=19.0876$ ,  $b = 5.645$  dan  $c=9.852$  sebagai referensi JCPDF # 19-0876;  $\text{Fe}_{37}\text{Nb}_9\text{Zr}_{54}$  bentuk kristal belum ditentukan sebagai referensi JCPDF # 46-1095.

Bahan dianil mendekati daerah  $\beta$ -Zr pada  $800\text{ }^\circ\text{C}$  ( $673\text{ K}$ ) dengan parameter aniling Tabel-3 dan Tabel-4 sedangkan spektrum difraksi sinar  $X$  pada Gambar-6, diperoleh fasa  $\alpha$ -Zr dengan bentuk kristal heksagonal yang memiliki jarak kisi,  $a=3.232$  dan  $c=5.147$  sebagai referensi JCPDF # 05-0665. Ada perubahan fasa yaitu hilangnya fasa  $\omega$ -Zr dan hilangnya beberapa jenis populasi SPP. Ditemukan kristal-kristal SPP sebagai berikut:  $\text{FeSn}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=5.302$ , dan  $c=4.449$  sebagai referensi JCPDF # 09-0212;  $\text{Fe}_2\text{Nb}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=1.8215$  dan  $c=7.877$  sebagai referensi JCPDF#15-0316;  $\text{NbSn}_2$  berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=19.0876$ ,  $b = 5.645$  dan  $c=9.852$  sebagai referensi JCPDF # 19-0876.

Berdasarkan penjelasan di atas diperoleh data bahwa perbedaan parameter aniling (CAP) menghasilkan jenis SPP yang berbeda. Ada SPP yang stabil dengan perubahan CAP yaitu  $\text{Fe}_2\text{Nb}$ , untuk itu yang dilabel pada Gambar-1 s/d Gambar-6 adalah puncak-puncak  $\text{Fe}_2\text{Nb}$ .

• Korelasi parameter aniling kumulatif dengan ukuran presipitat

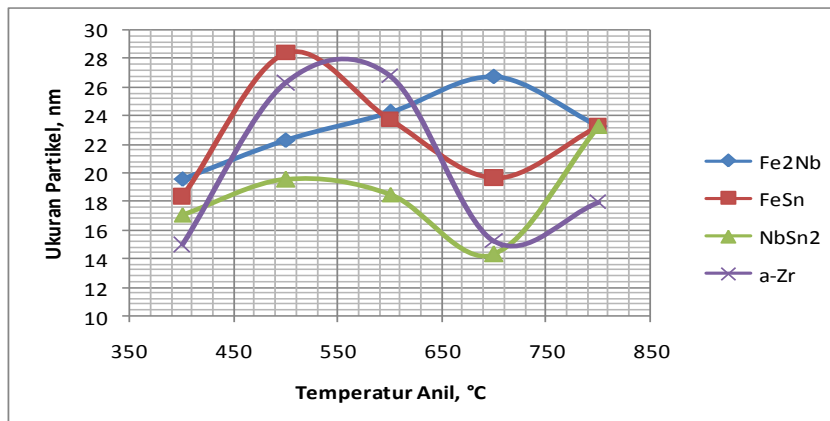
Tabel 4 : Korelasi antara ukuran partikel dengan parameter aniling kumulatif

Suhu, K	Ukuran partikel, Å, presipitat Fe <sub>2</sub> Nb	PGP	SOCAP( <i>m</i> )
673	19.5733	4.48E-07	2.66E-08
773	22.3284	2.10E-04	8.82E-08
873	24.2401	2.41E-02	2.22E-07
973	26.7571	1.04E+00	4.63E-07
1073	23.3339	2.23E+01	8.41E-07

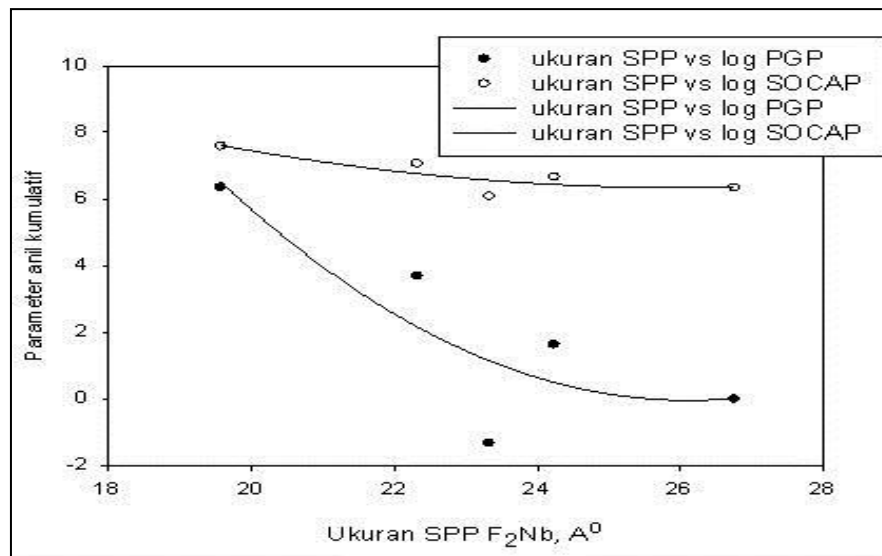
PGP, *Particle Growth Parameter*  
 SOCAP, *Second order Cumulative Annealing Parameter*

Perubahan ukuran partikel akibat perubahan temperatur anil kumulatif (CAP) dapat dilihat pada Tabel-3 dan Tabel-4. Ukuran partikel tergantung pada temperatur anil kumulatif (CAP). Untuk SPP Fe<sub>2</sub>Nb menjadi lebih besar seiring dengan kenaikan temperatur anil kumulatif (CAP) dan mencapai maksimum pada SOCAP sebesar 4.63E-07 *m* dan PGP sebesar 1.04E+00 yaitu pada temperatur 700 °C dengan ukuran butir sebesar 26,7671 nm. Pada temperatur 800 °C dengan SOCAP sebesar 8.41E-07*m* dan PGP sebesar 2.23E+01 ukuran SPP Fe<sub>2</sub>Nb menjadi lebih kecil yaitu sebesar 23,

3339 nm. Pada temperatur mendekati daerah fasa-β mengalami pelarutan sesuai dengan diagram fasa paduan Zircaloy. Ukuran partikel FeSn terlihat fluktuatif sekali dengan temperatur anil kumulatif (CAP) dapat dibandingkan antara Tabel-3 dengan Gambar-7 dan mencapai maksimum pada temperatur anil 500 °C pada SOCAP sebesar 2.66E-08*m* dan PGP sebesar 4.48E-07 dengan ukuran SPP sebesar 28,4199 nm, selanjutnya turun dengan kenaikan temperatur anil dan naik lagi pada temperatur anil 800 °C (1073) pada SOCAP sebesar 8.41E-07*m*



Gambar 7: Prediksi ukuran partikel paduan Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe dianil pada temperatur 400 °C, 500 °C, 600 °C, 700 °C, 800 °C, selama 2 jam<sup>(12)</sup>.



Gambar 8: Korelasi antara ukuran partikel dengan parameter aniling kumulatif dan PGP sebesar  $2.23E+01$  dengan ukuran partikel sebesar 23,3339 nm

Jelas bahwa pertumbuhan partikel FeSn terjadi pada temperatur anil  $500\text{ }^{\circ}\text{C}$  (773 K) pada SOCAP sebesar  $2.66E-08\text{ m}$  dan PGP sebesar  $4.48E-07$ . Ukuran partikel NbSn<sub>2</sub> maksimum pada temperatur anil  $800\text{ }^{\circ}\text{C}$  yaitu sebesar 23,3339 nm. Jadi jelas pertumbuhan partikel NbSn<sub>2</sub> pada temperatur anil  $800\text{ }^{\circ}\text{C}$  (1073 K) pada SOCAP sebesar  $8.41E-07\text{ m}$  dan PGP sebesar  $2.23E+01$  dengan ukuran partikel.

Pada  $\alpha\text{-Zr}$  pada Gambar-7 bukan gambaran ukuran butir tetapi merupakan gambaran ukuran sub-butir (*sub-grain*). Pada parameter aniling kumulatif di temperatur anil antara  $500\text{ }^{\circ}\text{C}$  (773 K) mempunyai SOCAP sebesar  $2.66E-08\text{ m}$  dan PGP sebesar  $4.48E-07$  sampai dengan  $600\text{ }^{\circ}\text{C}$  (873 K) mempunyai SOCAP sebesar  $2.22E-07\text{ m}$  dan PGP sebesar  $2.41E-02$  terlihat maksimum. Pada temperatur ini terjadi proses pemulihan dan pembentukan inti dan selanjutnya daerah pertumbuhan butir. Artinya sub-butir lenyap akibat pertumbuhan butir.

Korelasi antara ukuran partikel dengan parameter aniling kumulatif dapat dilihat pada Gambar-8. Parameter aniling kumulatif pada temperatur anil  $800\text{ }^{\circ}\text{C}$  (1073 K) pada SOCAP

sebesar  $8.41E-07\text{ m}$  dan PGP sebesar  $2.23E+01$  ukuran SPP sama, terlihat ada kesetimbangan pengintian dan pertumbuhan butir. Jadi parameter aniling kumulatif pada temperatur anil  $800\text{ }^{\circ}\text{C}$  (1073 K) pada SOCAP sebesar  $8.41E-07\text{ m}$  dan PGP sebesar  $2.23E+01$  baik untuk stabilisasi presipitat. Tidak seperti halnya dengan parameter aniling kumulatif pada temperatur anil antara  $500\text{ }^{\circ}\text{C}$  (773 K) memiliki SOCAP sebesar  $2.66E-08\text{ m}$  dan PGP sebesar  $4.48E-07$  sampai dengan  $600\text{ }^{\circ}\text{C}$  (873 K) memiliki SOCAP sebesar  $2.22E-07\text{ m}$  dan PGP sebesar  $2.41E-02$  semua SPP mengalami ukuran butir maksimum. Jadi interval aniling parameter kumulatif ini baik untuk stabilisasi presipitat. Sedangkan untuk minimasi ukuran butir yaitu parameter aniling kumulatif pada temperatur anil  $700\text{ }^{\circ}\text{C}$  (973 K) mempunyai SOCAP sebesar  $4.63E-07\text{ m}$  dan PGP sebesar  $1.04E+00$  kecuali Fe<sub>2</sub>Nb.

## SIMPULAN

Diperoleh data bahwa perbedaan parameter aniling (CAP) menghasilkan jenis SPP yang berbeda dan SPP yang stabil dengan perubahan CAP adalah Fe<sub>2</sub>Nb. Parameter aniling kumulatif pada temperatur

anil 800 °C (1073 K) pada SOCAP sebesar  $8.41E-07m$  dan PGP sebesar  $2.23E+01$  baik untuk stabilisasi presipitat. Parameter aniling kumulatif pada temperatur anil antara 500 °C (773 K) pada SOCAP sebesar  $2.66E-08m$  dan PGP sebesar  $4.48E-07$  sampai dengan 600 °C (873 K) pada SOCAP sebesar  $2.22E-07 m$  dan PGP sebesar  $2.41E-02$  semua SPP mengalami ukuran butir maksimum, interval aniling parameter ini baik untuk stabilisasi presipitat . Untuk minimasi ukuran butir yaitu parameter aniling kumulatif pada temperatur anil 700 °C (973 K) pada SOCAP sebesar  $4.63E-07m$  dan PGP sebesar  $1.04E+00$  kecuali  $Fe_2Nb$ .

#### DAFTAR PUSTAKA

1. BANERJEE, S., Better Materials for Nuclear Energy, IAEA Scientific Forum, 27-9-2005
2. GARZAROLLI, F., et. al., Progress in the Knowledge of Nodular Corrsion, Zirconium in Nuclear Industry: 7<sup>th</sup> Int. Symp., ASTM-STP-939, Van Swam L.F.P., ASTM, Conshohocken, PA, 1987, pp 417-430.
3. LEMAIGNAN, C., MOTTA, A.T., "Matertial Science and Technology, Vol. 10B, Chapter 7, "Zirconium in Nuclear Application", Nuclear Materials, Part 2, Verlag Chemie Weinheim, 1983, p11.
4. STEINBERG E, et.al., Analitical Approaches and Experimental Verification to Describe the Influence of Cold Work and Heat Treatment on the Mechanical Properties of Zircaloy Cladding Tube, Zirconium in the Nuclear Industry: 6<sup>th</sup> 7<sup>th</sup> Int. Symp., ASTM-STP-824, Adamson R.B., et, al. ASTM, 1987, pp 106-122.
5. CHARQUET, D., STEINBERG., E, MILLET, Y., "Influence of Variation in Early Fabrication Steps on Corrosion, Mechanical Properties, and Structure of Zircaloy-4 Products", Zirconium in the Nuclear Industry: 7<sup>th</sup> Int. Symp., ASTM-STP-939, 1987, pp 431-447.
6. WEIDINGER, H. G., LETTAU, H., Advanced Material and Fabrication Technology for LWR Fuel", IAEA SM 288/27, Viena, 1986.
7. ANDERSSON, T., RHORVALDSSON, T., WILSON, A., WARDLEY, A. M., "Improvements in Water Reactor Fuel Technology and Utilization", Proceedings of the IAEA-Symposium, Stockholm, Sweden, IAEA, Viena, 1987, pp 434-449.
8. KAHLWEIT, M., et. al., "Ostwald rippening of precipitates, Proceedings of the 2<sup>nd</sup> Acta/Scripta Metallurgica Conf., 1983, pp 61-69.
9. GARZAROLLI, F., BROY, Y., BUSCH, R. A., "Comparison of the Long Time Corrosion Behaviour of Certain Zirconium Alloys in PWR, BWR and Laboratory Tests", Zirconium in Nuclear Industry, 11<sup>th</sup> Int. Symp., Garmisch-Partenkirchen, ASTM-STP-1295, 1986, pp 850-863.
10. HERB, B., RUHMANN, H., AND KONIG, A., "Process Investigation of Precipitate Growth in Zirconium Alloys, in SABOL,G.P. and MOAN,G.D."Zirconium in the Nuclear Industry": Twelfth International Symposium, ASTM STP 1354, astm, pa, 2000, pp 482-504.
11. RUDLING, P., A Nuclear Fuel Element For a Pressurized Water Reactor and a Method For Manufacturing the Same, WO 95/00955, 1994.