

PENGARUH WAKTU OKSIDASI TERHADAP REGANGAN MIKRO PADA HASIL OKSIDASI GAGALAN PELET SINTER UO_2

Futichah⁽¹⁾ dan Ratih Langenati⁽¹⁾

1. Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBN)-BATAN
Kawasan Puspipstek, Serpong, Tangerang

ABSTRAK

PENGARUH WAKTU OKSIDASI TERHADAP REGANGAN MIKRO PADA HASIL OKSIDASI GAGALAN PELET SINTER UO_2 . Salah satu upaya penanganan dan pemanfaatan gagal pelet sinter yang telah dicoba adalah dengan mengoksidasi gagal pelet UO_2 dan mereduksi kembali pada temperatur dan waktu tertentu. Selama proses oksidasi pelet UO_2 , banyak sekali fenomena yang perlu diungkap berkaitan dengan keberhasilan atau kegagalan proses oksidasi antara lain regangan mikro yang terbentuk pada uranium oksida hasil oksidasi. Untuk mengetahui pengaruh waktu oksidasi terhadap regangan mikro hasil oksidasi gagal pelet sinter UO_2 , maka dilakukan oksidasi gagal pelet UO_2 pada temperatur $600^\circ C$ dengan variasi waktu 1, 2, 3, 4 dan 5 jam. Selanjutnya hasil oksidasi dianalisis kristalografinya dengan *X-Ray Diffraction* (XRD). Dari hasil penelitian ini diperoleh informasi bahwa waktu oksidasi gagal pelet sinter UO_2 berpengaruh terhadap nilai FWHM (*full width half maximum*). Waktu oksidasi semakin meningkat maka nilai FWHM semakin besar dengan persamaan korelasi $FWHM(deg)=0,214 P^{(0,4866)}$. Selain itu juga diperoleh data penurunan nilai regangan mikro dari kristal atau senyawa UO_2 dan waktu oksidasi yang paling efektif adalah 4 jam pada temperatur $600^\circ C$. Korelasi antara waktu oksidasi dan regangan mikro adalah $\eta=0,012 t^{(-0,8636)}$. Data hasil penelitian ini diharapkan dapat menjadi masukan dalam upaya proses pengolahan dan pemanfaatan kembali gagal pelet sinter UO_2 dari proses fabrikasi elemen bakar PHWR.

Kata kunci: Gagal pelet sinter UO_2 , oksidasi dan regangan mikro.

ABSTRACT

THE INFLUENCE OF OXIDATION SOAKING TIME ON THE MICRO-STRAIN OF OXIDATION PRODUCT OF REJECTED UO_2 SINTERED PELLET. The possibility of unexpected rejected UO_2 sintered pellet from fabrication process came from, such as crack sintered pellet, the size of pore, unacceptable pellet dimension, therefore those pellet was called rejected sintered pellet. The way to handle and re-use rejected sintered pellet was by oxidation at $600^\circ C$ in various soaking time 1, 2, 3, 4 and 5 hours. Then, the oxidation products was analyzed its crystallography by X Ray Diffraction. The result showed that soaking time had an effect on full width half maximum (FWHM) result. The increasing of soaking time gave larger FWHM result and the correlation equation was $FWHM(deg) = 0.214 t^{(0,4866)}$. Moreover, it was also informed that decreasing microstrain of crystallography or UO_2 and the most effective oxidation soaking time was at 4 hours $600^\circ C$. The correlation between soaking time and microstrain was $\eta=0,012.t^{(-0,8636)}$.

Keywords: Rejected sintered pellet UO_2 , oxidation and micro-strain.

PENDAHULUAN

Salah satu kegiatan Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBN)-BATAN adalah melaksanakan pengembangan teknologi produksi bahan bakar reaktor daya. Kegiatan ini dilakukan dengan tujuan untuk mendukung *Landmark* BATAN, bidang energi, terutama ditujukan guna menguasai teknologi produksi bahan bakar reaktor bertekanan berpendingin air berat (*Pressurized Heavy Water Reactor-PHWR*) tipe CANDU^[1]. Bahan bakar PHWR adalah uranium alam dalam bentuk pelet keramik UO_2 disusun dalam pipa kelongsong yang terbuat dari logam paduan zirkaloi-2, kemudian kedua ujung kelongsong ditutup dengan tutup ujung (*end cap*) dari logam yang sejenis. Beberapa kelongsong yang sudah berisi pelet-pelet UO_2 kemudian dirakit menjadi satu bundel elemen bakar. Beberapa bundel elemen bakar siap dioperasikan dalam teras reaktor PHWR.

• Proses pembuatan pelet (Peletisasi)

Serbuk uranium oksida atau UO_2 alam yang telah melewati uji kendali kualitas dikompakan dengan tekanan tertentu menjadi pelet mentah (*green pellet*) berbentuk silinder. Pelet mentah kemudian disinter dalam tungku pada temperatur, waktu dan atmosfer tertentu menjadi pelet sinter. Pelet hasil sinter disempurnakan dengan penggerindaan (*grinding*) sehingga membentuk pelet akhir dengan dimensi yang sesuai dengan spesifikasi yang ditetapkan. Pelet tersebut selanjutnya dilakukan uji kualitas antara lain pengamatan visual, kekasaran permukaan, berat, dimensi (panjang dan diameter), densitas, angka perbandingan O/U, mikrostruktur, kelembaban, kandungan F dan Cl serta pengotor. Seluruh rangkaian proses ini sering disebut sebagai tahapan proses peletisasi. Dalam proses peletisasi kemungkinan terjadinya kegagalan tidak dapat dihindari, misalnya pelet sinter yang dihasilkan retak, berpori dengan ukuran terlalu besar, ukuran diameter dan tinggi pelet

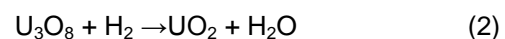
yang tidak sesuai dengan spesifikasi yang diijinkan, maka pelet tersebut dikelompokkan sebagai gagal pelet. Produk pelet gagal ini semakin lama semakin banyak, oleh karena itu perlu diupayakan untuk menangani dan memanfaatkan gagal pelet sinter tersebut. Salah satu bidang di PTBN yang melaksanakan kegiatan pengembangan teknologi produksi bahan bakar PHWR (CANDU) serta menangani dan memanfaatkan gagal pelet sinter adalah Bidang Bahan Bakar Nuklir (B3N).

• Proses oksidasi reduksi gagal pelet sinter UO_2

Salah satu upaya untuk penanganan dan pemanfaatan gagal pelet sinter adalah melalui proses oksidasi reduksi pada temperatur dan waktu tertentu. Proses oksidasi reduksi perlu dilakukan agar pelet sinter UO_2 yang mempunyai densitas dan kekerasan tinggi dapat menjadi serbuk UO_2 kembali sehingga dapat digunakan lagi sebagai serbuk awal. Proses awal adalah proses oksidasi yaitu proses pemanasan gagal pelet sinter UO_2 dalam tungku dengan atmosfer udara, mengakibatkan pelet UO_2 berubah menjadi serbuk U_3O_8 , dengan reaksi sebagai berikut:



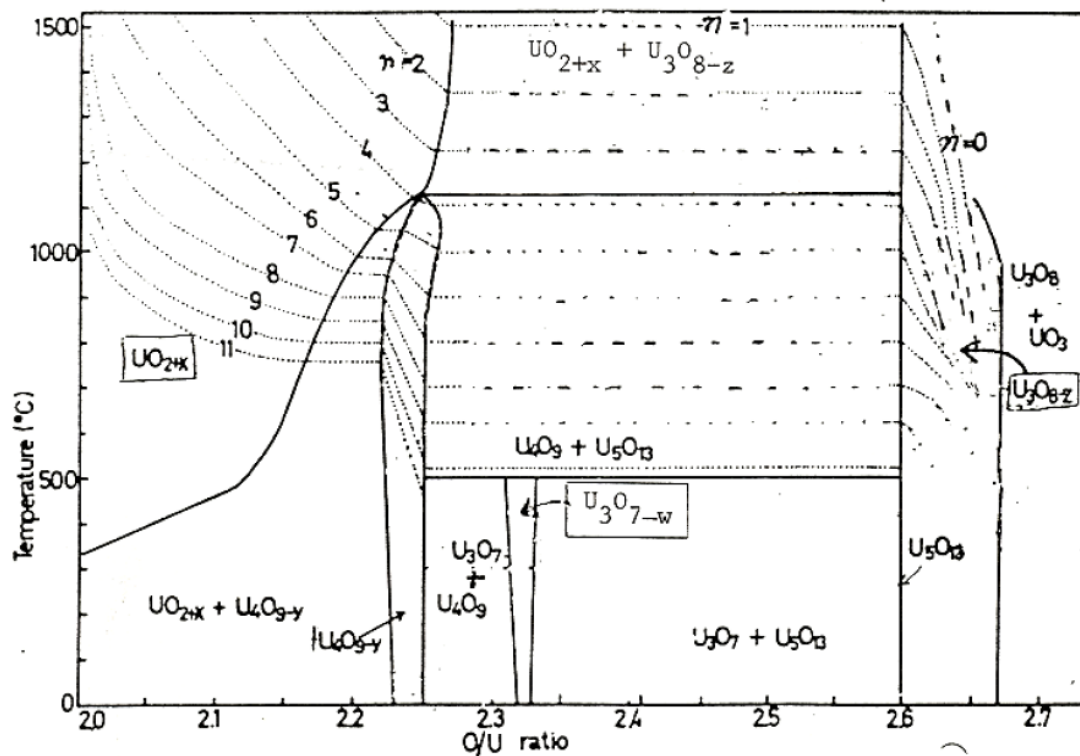
Kemudian dilanjutkan dengan proses reduksi yaitu pemanasan dalam tungku dengan atmosfer hidrogen, mengubah U_3O_8 menjadi serbuk UO_2 , dengan reaksi seperti di bawah ini^[2,3]. Serbuk UO_2 yang diperoleh bila sudah memenuhi spesifikasi yang ditetapkan maka serbuk tersebut siap digunakan kembali menjadi campuran serbuk umpan pelet mentah.



Hal-hal yang mempengaruhi proses oksidasi tersebut antara lain adalah temperatur dan waktu pemanasan. Secara umum, semakin tinggi temperatur atau semakin lama waktu pemanasan maka kebolehdian proses oksidasi terjadi semakin

tinggi, seperti terlihat pada diagram fasa (Gambar 1) di bawah ini. Diagram fasa uranium-oksigen tersebut menunjukkan pengaruh temperatur terhadap rasio O/U pada rentang temperatur 100°C sampai dengan 1500°C . Pada temperatur antara 100°C - 400°C , adanya oksigen menyebabkan perubahan stokiometri uranium oksida menjadi uranium oksida lainnya, antara lain

$\text{U}_4\text{O}_9 + \text{U}_3\text{O}_7$, U_3O_{7-w} , $\text{U}_3\text{O}_7 + \text{U}_5\text{O}_3$. Perubahan-perubahan oksida uranium tersebut dipengaruhi oleh waktu pemanasan. Sedangkan pada rentang temperatur 500°C sampai dengan 1000°C terbentuk fasa $\text{U}_4\text{O}_9 + \text{U}_5\text{O}_{13}$ dan hampir mendekati fasa U_3O_8 . Demikian pula sebaliknya perubahan dari U_3O_8 menjadi UO_2 , dipengaruhi oleh temperatur dan waktu pemanasan^[2,4].



Gambar 1. Diagram fasa hubungan antara temperatur pemanasan terhadap O/u ratio

• Pengujian hasil proses oksidasi

Untuk mengetahui perubahan yang mungkin terjadi pada struktur kristal senyawa uranium oksida hasil oksidasi, maka diperlukan uji kristalografi menggunakan *X-Ray Diffraction* (Difraksi sinar X-XRD). Salah satu tujuan uji kristalografi adalah untuk menganalisis regangan mikro (*microstrain*) pada sistem kristalografi senyawa uranium hasil oksidasi. Pengujian regangan mikro pada kristal hasil

oksidasi gagal pelet UO_2 penting dilakukan karena data yang diperoleh menunjukkan keberhasilan dalam proses perapuhan pelet UO_2 sehingga mudah menjadi serbuk U_3O_8 . Profil puncak dari pola difraksi sinar-X umumnya melebar dengan adanya regangan mikro akibat regangan elastis pada sistem kristal^[5].

Untuk menentukan regangan mikro tersebut maka dibutuhkan luasan penuh setengah maksimum (*full width half maximum*) atau biasa disingkat FWHM. Difraksi sinar X dapat menganalisa FWHM dari keluaran antara intensitas terhadap sudut difraksi (2θ), sehingga dapat ditulis persamaan dalam kaitan dengan sudut Bragg^[5,6,7], sebagai berikut :

$$B \cos \theta = \frac{0.94\lambda}{\sigma} + \eta \sin \theta, \quad (3)$$

Dengan : B = luasan penuh setengah maksimum/FWHM, λ = panjang gelombang (unsur Cu = 0,154056 nm); θ = sudut difraksi, σ = ukuran partikel dan η adalah regangan mikro^[7] atau dihubungkan dengan FWHM, maka persamaannya adalah :

$$\eta = -2\Delta d/d \quad (4)$$

$$\eta = (n \sum \sin \theta B \cos \theta - \sum \sin \theta \sum B \cos \theta) / (n \sum (\sin^2 \theta) - (\sum \sin \theta)^2). \quad (5)$$

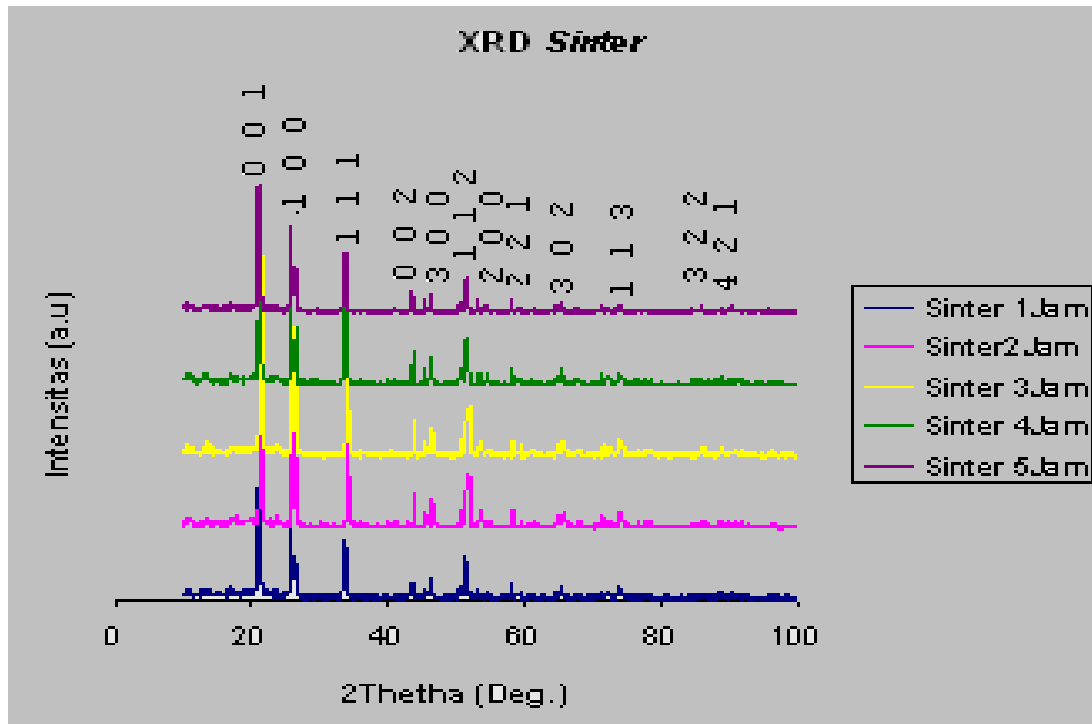
Dari uraian di atas maka dalam penelitian ini dicoba untuk diajukan hipotesis bahwa dengan adanya peningkatan waktu oksidasi maka akan meningkatkan regangan mikro dari hasil oksidasi gagal pelet sinter UO_2 . Variasi waktu dan temperatur saat proses oksidasi merupakan faktor yang mempengaruhi hasil oksidasi seperti tegangan sisa mikro yang terbentuk pada kisi-kisi kristal uranium oksida (U_3O_8). Penelitian ini dilakukan dengan tujuan untuk mengetahui pengaruh perubahan variasi waktu (oksidasi) 1, 2, 3, 4 dan 5 jam pada temperatur 600 °C terhadap regangan mikro yang terbentuk pada kristal senyawa hasil oksidasi gagal pelet sinter UO_2 . Data hasil penelitian ini diharapkan dapat menjadi masukan dalam upaya proses pengolahan dan pemanfaatan kembali gagal pelet sinter UO_2 dari proses fabrikasi elemen bakar PHWR.

TATA KERJA

Bahan yang digunakan adalah gagal pelet sinter uranium oksida hasil kegiatan pembuatan pelet sinter yang ada di HR-05 Instalasi Elemen Bakar Eksperimental (IEBE). Pelet-pelet tersebut selanjutnya dioksidasi dalam tungku dengan atmosfer udara pada temperatur 600 °C dengan laju pemanasan sekitar 3°C/menit dan variasi waktu pemanasan 1, 2, 3, 4 dan 5 jam . Serbuk hasil oksidasi diperiksa menggunakan XRD untuk mendapatkan pola difraksi pada masing-masing variasi waktu oksidasi. Data pola difraksi yang diperoleh selanjutnya diolah dan dianalisis regangan mikro kristal yang terjadi.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil pengujian kristalografi dengan XRD ditampilkan pada Gambar 2 yaitu pola difraksi gagal pelet UO_2 hasil oksidasi pada temperatur 600°C dengan waktu pemanasan 1, 2, 3, 4 dan 5 jam. Untuk menganalisis regangan mikro (η) dengan menggunakan persamaan 3 diperlukan FWHM yang diperoleh dari hubungan kurva antara intensitas dan sudut difraksi (2θ). Pada Tabel 1 dan Gambar 3 untuk waktu oksidasi 1 jam diperoleh FWHM terbesar pada puncak ke 5 pada sudut difraksi (2θ) 51,45 yaitu bidang (112) dengan nilai FWHM 0,542(deg) atau $9,455E-3$ (rad), dengan panjang gelombang Cu sebesar 0,154056 nm. Hal ini berlaku pula pada waktu oksidasi yang lain yaitu untuk 2 jam, 3 jam, 4 jam dan 5 jam. Dari Tabel 1 dan Gambar 3 tersebut, ditunjukkan pula bahwa semakin besar sudut difraksi (2θ) maupun semakin lama waktu oksidasi, maka semakin besar pula nilai FWHM yang dicapai, dengan persamaan korelasi FWHM (deg) = $0,2149 P^{(0,4866)}$.



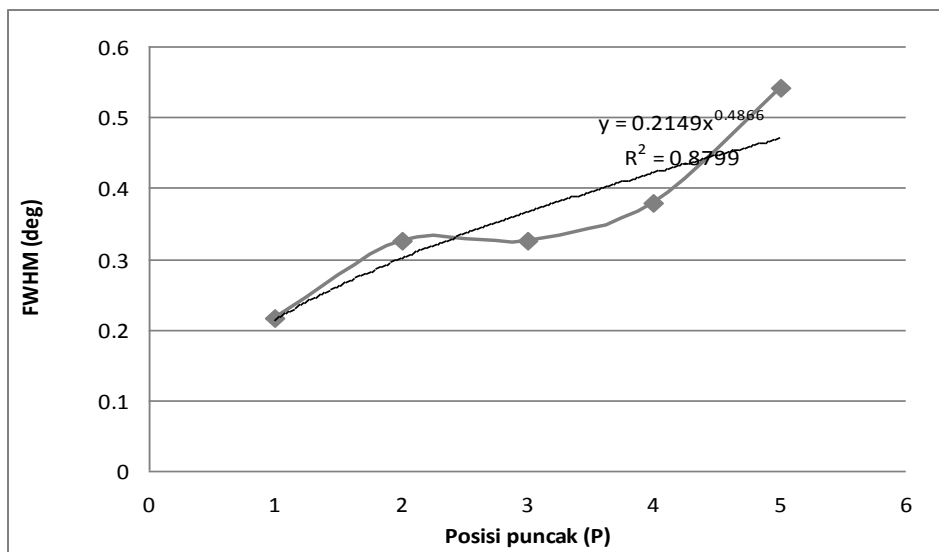
Gambar 2. Pola difraksi hasil oksidasi gagal pelet sinter

Nilai FWHM ini menunjukkan kondisi fisik sistem kristal dalam bahan, pada umumnya apabila FWHM terjadi pelebaran maka hal ini mengindikasikan terjadinya cacat kristal atau ketidaksempurnaan kristal. Cacat kristal dapat berupa adanya kekosongan atom pada kristal, substitusi atom dengan ukuran atau diameter atom yang lebih besar atau lebih kecil, interstisi atom ke dalam sistem kristal, atau lainnya yang semuanya itu mengakibatkan deformasi elastis akibat adanya regangan mikro dalam sistem

kristal^[6,8]. Peristiwa pelebaran FWHM pada hasil oksidasi gagal pelet sinter, kemungkinan besar adalah diakibatkan oleh adanya penambahan unsur oksigen dalam keramik pelet UO_2 . Keramik UO_2 yang semula berstruktur kubus pusat muka-FCC setelah mengalami peristiwa oksidasi, maka komposisi unsur oksigen dalam keramik semakin tinggi. Peningkatan unsur oksigen ini seiring dengan karakteristik UO_2 yang mengalami transformasi kristal penyusunnya, yaitu terjadinya perubahan struktur kristal FCC menjadi bentuk kristal ortorombik^[4,6].

Tabel 1. Analisis ukuran *microstrain* (η) hasil oksidasi gagal pelet sinter UO_2 dengan waktu pemanasan 1 jam pada temperatur $600^\circ C$

Puncak	FWHM (B) (deg)	B (rad)	2θ	θ	$\cos \theta$	$\sin^2\theta$ (x^2)	$\sin \theta \cos \theta$ (x)y	B cos θ ((y))	$(B \cos \theta)^2$ (y^2)	$\sin \theta B \cos \theta$ ((xy))
1	0,217	3,785E-3	21,16	10,58	0,9830	0,0337	0,1835	3,721E-3	1,385E-5	6,829E-4
2	0,325	5,669E-3	25,77	12,885	0,97485	0,0497	0,22285	5,527E-3	3,055E-5	1,231E-4
3	0,325	5,669E-3	33,68	16,84	0,9572	0,0838	0,2895	5,427E-3	2,945E-5	15,71E-4
4	0,379	6,611E-3	43,38	21,69	0,9293	0,1364	0,3694	6,144E-3	3,775E-5	22,69E-4
5	0,542	9,455E-3	51,45	25,725	0,9010	0,3036	1,0653	20,819E-3	11,16E-5	57,55E-4
Σ						1,1348	$\Sigma=$ 2,130545	$\Sigma=$ 41,637E-3	$\Sigma=$ 43,3E-5	$\Sigma=$ 11,51E-3



Gambar 3. Pengaruh posisi puncak (2θ) terhadap FWHM untuk hasil oksidasi gagal pelet sinter UO_2 dengan lama pemanasan 1 jam pada temperatur $600^\circ C$

Pada Tabel 2 dan Gambar 4 menunjukkan nilai regangan mikro (η) dari hasil oksidasi gagal pelet sinter UO_2 dengan variasi waktu pemanasan. Jika diamati dari Tabel 2 diketahui bahwa pelet sinter dengan waktu oksidasi 1 jam memiliki regangan mikro (η) sebesar 0,010589852, selanjutnya pada waktu 2 jam dan 3 jam nilai regangan mikro (η) menurun menjadi 0,007032053 dan 0,007141207. Pada waktu oksidasi 4 dan 5 jam, nilai regangan mikro (η) mengalami penurunan yang cukup tinggi yaitu hingga 0,002716821 dan 0,002811999. Nilai regangan mikro pada waktu oksidasi 4 jam sedikit lebih rendah dari pada waktu oksidasi 5 jam, maka perlakuan oksidasi selama 4 jam

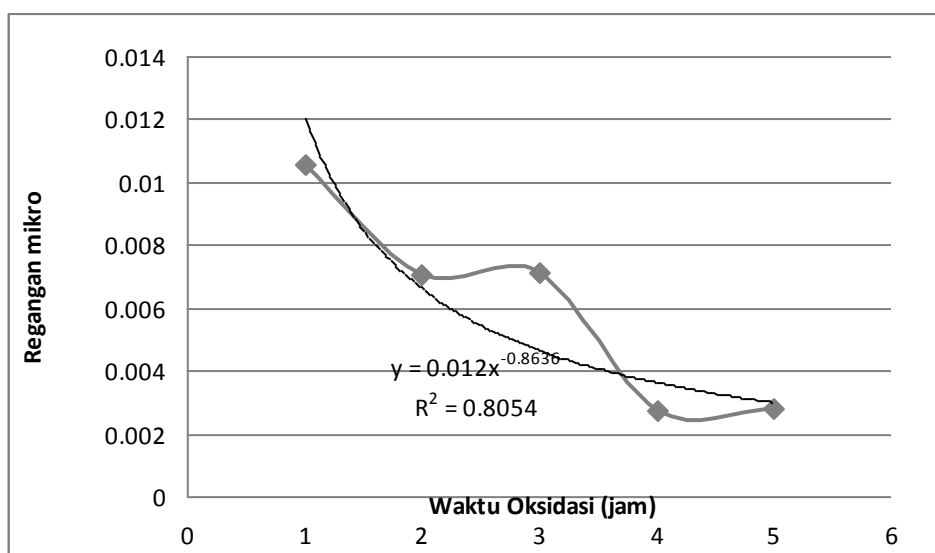
pada temperatur $600^\circ C$ adalah sudah cukup efektif. Yang dimaksud dengan efektif di sini adalah waktu yang diperlukan untuk proses perapuhan dan pembentukan uranium oksida dengan struktur yang stabil secara termik. Persamaan korelasi antara temperatur oksidasi dan regangan mikro yang terbentuk adalah $\eta = 0,012 t^{-0,8636}$. Jika ditinjau dari peristiwa proses oksidasi, maka unsur oksigen yang masuk dalam keramik UO_2 dengan semakin lama waktu oksidasi maka jumlah oksigen semakin bertambah. Penurunan regangan mikro ini disebabkan oleh interstisi atom oksigen yang berdiameter 0,120 nm (lebih kecil dari atom uranium yang berdiameter 0,276 nm) ke dalam FCC

sehingga pada awalnya terjadi dilatasi kisi, tetapi dengan adanya temperatur pemanasan 600°C maka pada peristiwa berikutnya struktur FCC mengubah diri menjadi struktur ortorombik dan atom oksigen menempati posisinya. Akibat dari atom oksigen yang sudah menempati posisinya maka sistem kristalografi tidak terganggu dan selanjutnya terjadi penurunan regangan mikro. Peningkatan jumlah atom oksigen dalam senyawa UO₂ mengakibatkan bidang gelincir yang padat dengan atom oksigen akan mudah bergerak^[6]. Dengan kata lain secara makro hal ini membantu proses pergelinciran

dislokasi dalam bahan, sehingga pelet UO₂ mudah terdeformasi dengan sendirinya, atau mudah rapuh akibat pergerakan cacat-cacat mikro ke permukaan pelet pada bidang gelincir yang padat dengan atom oksigen. Dengan demikian dapat dikatakan bahwa semakin lama waktu oksidasi maka semakin menurunkan regangan mikro dalam senyawa UO₂ yang berakibat semakin mudahnya pelet UO₂ terdeformasi atau merekah kemudian hancur dan menjadi serbuk U₃O₈.

Tabel 2. Nilai *microstrain* hasil oksidasi gagal pelet sinter UO₂ dengan variasi waktu oksidasi pada temperatur 600°C

Waktu oksidasi, Jam	Regangan mikro, η
1	0,010589852
2	0,007032053
3	0,007141207
4	0,002716821
5	0,002811999



Gambar 4. Pengaruh waktu oksidasi gagal pelet sinter UO₂ terhadap regangan mikro sistem kristal yang terbentuk.

SIMPULAN

Dari hasil pembahasan dan analisis regangan mikro, dapat disimpulkan sebagai berikut :

Waktu oksidasi gagal pelet sinter UO_2 berpengaruh terhadap nilai FWHM. Waktu oksidasi semakin meningkat maka nilai FWHM semakin besar dengan persamaan korelasi $FWHM(deg)=0,214 P^{(0,4866)}$. Hal ini disebabkan oleh adanya cacat kristal atau ketidak sempurnaan dalam kristal yaitu dengan meningkatnya unsur oksigen dalam kristal atau senyawa.

Waktu oksidasi gagal pelet sinter UO_2 berpengaruh terhadap nilai regangan mikro (*microstrain*) dalam sistem kristal. Semakin lama proses oksidasi semakin menurunkan nilai regangan mikro dari kristal atau senyawa UO_2 , waktu oksidasi yang paling efektif adalah 4 jam pada temperatur $600^\circ C$. Korelasi peningkatan waktu oksidasi dan penurunan regangan mikro adalah $\eta = 0,012 t^{(-0,8636)}$.

UCAPAN TERIMAKASIH

Ucapan terimakasih kami tunjukkan kepada Ibu Rachma, Bapak Mahpudin, Bapak Wisnu dan Bapak Josep yang telah membantu menyelesaikan kegiatan penelitian, serta pihak-pihak terkait yang tidak dapat kami sebutkan satu per satu.

DAFTAR PUSTAKA

1. Rencana Strategis Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-BATAN 2006-2010.
2. PETER TAYLOR. " *Thermodynamic and Kinetic Aspects of UO_2 Fuel Oxidation in Air at 400-2000K*. " *Jurnal Nuclear Materials*". Tahun 2005, hlm. 206-212.
3. SIGIT, N.Y. " Karakteristik Hasil Proses Oksidasi-Reduksi Siklus 1 Uranium Oksida". Puspitex, Serpong Tangerang, tahun 2006.
4. OLANDER. " *Mechanistic Interpretations of UO_2 Oxidation*". *Journal of Nuclear Materials*, Elsevier Science Limited, tahun 1998, hlm. 252, 121-130.
5. HIDAYATI. " Cacat Kisi Pada Uranium Dioksida". Hasil Studi Program Doktor dan Magister, Batan, Jakarta, tahun 1993.
6. DARMA SETIAWAN, H, IRZAMAN, SISWADI, HIKAM, M. " Analisis Struktur Kristal Dan *Full Width Half Maximum* (FWHM) Dengan Metode *Rietveld* (Studi Kasus: Kalsit ($CaCO_3$))". KFI. Edisi 11 No.2, tahun 2000, hlm. 41-43.
7. IRZAMAN, Y. DARVINA, ARIFIN P, BUDIMAN M, DAN BARMAWI M. " *Lattice Constants Analysis of Tantalum Oxide Doped Lead Zirconium Titanate Ceramic by Delphi Program*". *Indonesian Journal of Physics*. Edisi 16 Vol 2, tahun 2004, hlm. 47-52.