

---

## PELAPISAN PERMUKAAN PELET $UO_2$ DENGAN ZIRKONIUM DIBORIDA MENGGUNAKAN METODA *SPUTTERING*

Sungkono<sup>1)</sup>, Tri Mardji Atmono<sup>2)</sup>, Dwi Priyantoro<sup>3)</sup>

<sup>1</sup>Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-BATAN

<sup>2</sup>Pusat Sains dan Teknologi Akselerator-BATAN

<sup>3</sup>Sekolah Tinggi Teknologi Nuklir-BATAN

Kawasan Puspiptek, Serpong, Tangerang Selatan, 15314

e-mail: sungkhana@gmail.com

(Naskah diterima : 22-12-2015, Naskah direvisi: 13-01-2016, Naskah disetujui: 22-01-2016)

### ABSTRAK

**PELAPISAN PERMUKAAN PELET  $UO_2$  DENGAN ZIRKONIUM DIBORIDA MENGGUNAKAN METODA *SPUTTERING*.** Pengembangan teknologi bahan bakar nuklir bertujuan untuk meningkatkan efisiensi pengoperasian Pembangkit Listrik Tenaga Nuklir (PLTN). Salah satu solusi yang diajukan adalah penggunaan bahan bakar dengan fraksi bakar (*burn up*) tinggi. Hal ini menyebabkan terjadinya peningkatan gas hasil fisi dan reaktivitas teras reaktor nuklir. Untuk mengendalikan kelebihan reaktivitas teras reaktor digunakan bahan bakar terintegrasi penyerap mampu bakar. Sehubungan dengan hal tersebut telah dibuat pelet  $UO_2$  berlapis tipis penyerap mampu bakar. Tujuan penelitian adalah untuk mendapatkan karakter lapisan zirkonium diborida pada permukaan pelet  $UO_2$  yaitu mikrostruktur, struktur kristal dan komposisi kimia. Pelapisan permukaan pelet  $UO_2$  dilakukan dengan bahan pelapis  $ZrB_2$  menggunakan metoda *sputtering*. Hasil penelitian menunjukkan bahwa mikrostruktur pelet  $UO_2 + 0,4\% Cr_2O_3$  berupa butir-butir campuran ekuiaksial dan *acicular* dengan diameter  $2,44 \mu m$ , sedangkan pelet  $UO_2 + 0,3\% Nb_2O_5$  mempunyai struktur butir berupa ekuiaksial dan batang pipih dengan diameter  $2,47 \mu m$ . Lapisan zirkonium diborida pada permukaan pelet  $UO_2 + 0,4\% Cr_2O_3$  dan pelet  $UO_2 + 0,3\% Nb_2O_5$  serupa yaitu tipis dan kompak dengan ketebalan  $2,71 \mu m$  dan  $2,82 \mu m$ . Identifikasi terhadap pola difraksi sinar-X pada pelet  $UO_2 + 0,4\% Cr_2O_3$  dan pelet  $UO_2 + 0,3\% Nb_2O_5$  menunjukkan adanya fasa  $UO_2$  dengan struktur kristal kubus dan fasa  $ZrB_2$  dengan struktur kristal heksagonal. Sementara itu, konsentrasi zirkonium dalam lapisan pelet  $UO_2 + 0,4\% Cr_2O_3$  dan pelet  $UO_2 + 0,3\% Nb_2O_5$  diperoleh masing-masing sebesar  $1,82 \mu g$  dan  $1,90 \mu g$ . Adanya unsur zirkonium membuktikan bahwa lapisan  $ZrB_2$  terbentuk pada permukaan pelet  $UO_2$ .

**Kata kunci:** Pelet  $UO_2$ , lapisan  $ZrB_2$ , *sputtering*, mikrostruktur, ketebalan, struktur kristal, komposisi kimia.

---

## ABSTRACT

**COATING ON SURFACE OF  $UO_2$  PELLETS WITH ZIRCONIUM DIBORIDE USING THE METHOD OF SPUTTERING.** Development of the nuclear fuel technology was aimed to improve nuclear power plant efficiency. One of the proposed solutions was utilization nuclear fuel with the high burn up. This leads to an increase in gas fission and nuclear reactor core reactivity. The excess reactivity of the reactor core controlled by integrated fuel burnable absorber. In connection it has made a layered thin  $UO_2$  pellets with burnable absorber. The objectives of this research was to obtain the characters of zirconium diboride layer on  $UO_2$  pellets surface i.e microstructure, crystal structure and chemical composition. The results of this experiment showed that the microstructure of  $UO_2 + 0.4\% Cr_2O_3$  pellet has equiaxial and accicular grains with a diameter of  $2.44 \mu m$ , whereas the  $UO_2 + 0.3\% Nb_2O_5$  pellets has a grain structure in the form of equiaxial and flattened rod with a diameter of  $2.47 \mu m$ . The layer of zirconium diboride on the surface of  $UO_2 + 0.4\% Cr_2O_3$  and  $UO_2 + 0.3\% Nb_2O_5$  pellets are similar namely thin and compact with a thickness of  $2.71 \mu m$  and  $2.82 \mu m$ . The identification of X-ray diffraction pattern on  $UO_2 + 0.4\% Cr_2O_3$  and  $UO_2 + 0.3\% Nb_2O_5$  pellets to exhibit there are of  $UO_2$  phase with cubical crystal structure and phase  $ZrB_2$  phase with hexagonal crystal structure. Meanwhile, zirconium concentration on the surface layer of  $UO_2 + 0.4\% Cr_2O_3$  and  $UO_2 + 0.3\% Nb_2O_5$  pellets each of  $1.82 \mu g$  and  $1.90 \mu g$ , The presence of zirconium element show that  $ZrB_2$  layer formed on the surface of  $UO_2$  pellets.

**Keywords:**  $UO_2$  pellet,  $ZrB_2$  layer, sputtering, microstructure, thickness, crystal structure, chemical composition.

## PENDAHULUAN

Pengembangan teknologi bahan bakar nuklir saat ini ditujukan untuk meningkatkan daya saing ekonomi dalam pengoperasian Pembangkit Listrik Tenaga Nuklir (PLTN) terhadap Pembangkit Listrik dengan bahan bakar fosil seperti batubara. Salah satu solusi yang diajukan adalah menaikkan fraksi bakar (*burn up*) dari bahan bakar nuklir hingga 45 – 50 GWd/MTU untuk reaktor tipe PWR (*Pressurized Water Reactors*)<sup>[1]</sup>. Pelet uranium dioksida ( $\text{UO}_2$ ) digunakan sebagai bahan bakar untuk PLTN tipe PWR (*Pressurized Water Reactors*). Uranium dioksida mempunyai konduktivitas termal rendah dan semakin menurun seiring dengan bertambah tingginya temperatur<sup>[2]</sup>. Pada saat operasi daya tinggi, temperatur titik tengah pelet menjadi sangat tinggi dan menyebabkan terjadinya pemuaihan atau *swelling* sehingga jarak antara pelet dan kelongsong bahan bakar semakin kecil. Selain itu, kenaikan *burn up* tersebut dapat memberikan dampak terhadap meningkatnya produk gas hasil fisi, seperti gas Xenon (Xe) dan Krypton (Kr) ke dalam interior batang bahan bakar. Kondisi ini menyebabkan terjadinya kenaikan tekanan internal pada elemen bakar nuklir yang memungkinkan terjadinya interaksi pelet - kelongsong dan interaksi mekanik pelet dan kelongsong<sup>[3]</sup>. Sementara itu, kenaikan fraksi bakar bahan bakar nuklir juga menyebabkan terjadinya kenaikan temperatur, waktu tinggal (*life time*), perubahan dimensi, laju korosi dan menurunkan ketangguhan material struktur bahan bakar nuklir<sup>[3]</sup>. Saat pengoperasian pada daya tinggi, pelet mengalami pemuaihan termal dimana bagian tengah pelet mempunyai temperatur tinggi dan bagian dinding luarnya mempunyai temperatur rendah sehingga menyebabkan terjadi tegangan termal (*thermal stress*). Kondisi tersebut akan memberikan dampak untuk terjadinya retak dan relokasi pelet serta terjadi pertumbuhan butiran dalam mikrostruktur bahan bakar. Dalam rangka

mengatasi adanya perubahan bentuk mikrostruktur pelet dan kenaikan jumlah produk fisi maka telah dilakukan berbagai upaya modifikasi seperti penambahan dopan pada pelet  $\text{UO}_2$ <sup>[4,5]</sup>.

Penambahan dopan seperti  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  atau  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  ke dalam pelet  $\text{UO}_2$  akan memberikan dampak terhadap pembesaran ukuran butir, kenaikan densitas bahan bakar, dan penurunan kekerasan pelet  $\text{UO}_2$ <sup>[4,5]</sup>. Ukuran butir yang besar cenderung akan memperpanjang jalan difusi gas-gas produk fisi ke batas butir sehingga dapat mengurangi pelepasan gas fisi dan menurunkan kekerasan pelet  $\text{UO}_2$ . Kenaikan densitas bahan bakar akan menempatkan lebih banyak massa  $\text{U}^{235}$  per *assembly* bahan bakar. Pelunakan pelet bahan bakar dapat menyebabkan terjadinya kenaikan laju *creep* dan penurunan kekuatan luluh sehingga dapat meminimalkan intensitas interaksi mekanik pelet-kelongsong selama operasi normal reaktor dan resiko kegagalan kelongsong. Dopan juga memberikan efek terhadap sifat termofisika bahan bakar  $\text{UO}_2$ , seperti kapasitas panas, ekspansi termal dan konduktivitas termal<sup>[4,5]</sup>. Sehubungan hal konduktivitas panas, Etty Mutiara dalam penelitiannya telah mendapatkan bahwa penambahan dopan  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  sebanyak 0,7% berat akan memberikan ukuran butir dan densitas pelet sinter  $\text{UO}_2$  + dopan yang maksimal yaitu sebesar 75  $\mu\text{m}$  dan 99%TD (*true density*)<sup>[4]</sup>. Sementara itu, Futichah mendapatkan fakta bahwa penambahan dopan  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  ke dalam pelet  $\text{UO}_2$  dapat memperbesar ukuran butir sehingga kebolehdjian terjadinya pengurangan pelepasan gas hasil fisi dari pelet  $\text{UO}_2$  bertambah besar<sup>[5]</sup>.

Penggunaan bahan bakar dengan *burn up* tinggi menyebabkan terjadinya kenaikan reaktivitas teras reaktor daya tipe PWR. Salah satu usaha untuk mengendalikan kelebihan reaktivitas teras reaktor adalah pemakaian bahan bakar nuklir berlapis penyerap dapat bakar hidropobik. Bahan bakar terintegrasi penyerap mampu

bakar atau (*Integrated Fuel Burnable Absorber/IFBA*) tersebut berupa pelet  $UO_2$  yang permukaannya berlapis tipis zirkonium diborida ( $ZrB_2$ )<sup>[6,7,8]</sup>. Zirkonium diborida digunakan sebagai material penyerap neutron dapat bakar karena memenuhi kriteria IFBA yaitu mempunyai tampang lintang serapan neutron termal rendah, sifat fisika dan mekanik yang baik, ketahanan aus dan korosi tinggi serta kompatibel dengan bahan bakar<sup>[7,8]</sup>. Apabila pelet  $UO_2$  berlapis zirkonium diborida diiradiasi dalam teras reaktor maka boron dalam lapisan akan terurai menjadi lithium dan helium.<sup>[8]</sup> Selanjutnya helium dilepaskan ke dalam plenum di batang bahan bakar. Kondisi ini menyebabkan tekanan tambahan dalam batang bahan bakar karena generasi helium selama iradiasi, dibandingkan dengan batang bahan bakar standar.

Salah satu metode yang digunakan untuk pelapisan pelet  $UO_2$  dengan  $ZrB_2$  adalah metode *sputtering*. Mekanisme proses *sputtering* terdiri dari beberapa tahapan, yaitu ion-ion dipercepat pada target, kemudian beberapa atom permukaan keluar dari permukaan target, dan atom-atom tersebut mengalir sehingga membentuk awan elektron di sekitar substrat yang selanjutnya atom-atom tersebut terdeposit membentuk lapisan tipis pada permukaan substrat (pelet  $UO_2$ ).<sup>[9]</sup> Oleh karena lapisan IFBA yang terbentuk tipis maka kandungan boron dalam lapisan rendah sehingga kebolehdan menyerap neutron termal rendah dan hal ini tidak merugikan secara ekonomi neutron termal dalam teras reaktor tipe PWR. Di lain pihak, apabila lapisan IFBA relatif tebal maka semakin banyak unsur boron yang terkandung dalam lapisan. Padahal boron berfungsi sebagai penyerap neutron termal yang dibutuhkan untuk berlangsungnya reaksi fisi di teras reaktor PWR.<sup>[10]</sup> Apabila terjadi hal demikian maka sangat merugikan secara ekonomi neutron dan hal ini tidak diinginkan. Sehubungan hal tersebut maka pada pelet  $UO_2$  direkomendasikan lapisan

IFBA dengan ketebalan 2 sampai dengan 6  $\mu m$ .<sup>[6]</sup>

Pada pembangkit listrik tenaga nuklir yang menggunakan bahan bakar dengan fraksi bakar tinggi maka akan dihasilkan reaktivitas dalam teras reaktor yang lebih besar selama awal dari siklus bahan bakar. Reaktivitas tersebut harus dikendalikan dengan cara menggunakan bahan penyerap yang terintegrasi bahan bakar (IFBA)<sup>[10,11]</sup>. Sehubungan hal tersebut, maka dalam rangka penguasaan teknologi IFBA dilakukan pelapisan permukaan pelet  $UO_2$  dengan bahan pelapis  $ZrB_2$  menggunakan metoda *sputtering*. Penelitian ini mempunyai tujuan untuk mendapatkan karakter lapisan  $ZrB_2$  yaitu mikrostruktur, struktur kristal, dan komposisi kimianya. Hipotesa penelitian yang diajukan adalah ukuran butir dalam mikrostruktur  $UO_2$  dan parameter proses *sputtering* seperti tegangan bias, dan waktu *sputtering* diduga mempengaruhi ketebalan lapisan  $ZrB_2$  pada permukaan pelet  $UO_2$ . Semetara itu, ukuran dan bentuk butir dalam mikrostruktur  $UO_2$  dipengaruhi oleh kandungan dopan yang ditambahkan ke dalam pelet  $UO_2$ .

## METODOLOGI

Pelapisan permukaan pelet  $UO_2$  dengan  $ZrB_2$  menggunakan metoda *sputtering*<sup>[9]</sup>. Bahan yang digunakan dalam penelitian adalah pelet  $UO_2$ +dopan 0,4%  $Cr_2O_3$  sinter, pelet  $UO_2$ +dopan 0,3%  $Nb_2O_5$  sinter, serbuk zirkonium diborida, zinc stearat, lem konduktif perak, gas Argon, resin acryfic dan pengeras, kertas ampelas, pasta intan, dan bahan etsa . Peralatan yang digunakan dalam penelitian adalah penekan hidrolik dan cetakan, mesin RF Sputtering, mesin accutom, mesin gerinda dan poles, mikroskop optik, difraktometer sinar-X (XRD) dan *X-ray fluorescence* (XRF)

Target dibuat dari serbuk  $ZrB_2$  dicampur 0,8% berat Zinc-stearat sampai homogen. Campuran  $ZrB_2$  dan Zinc-stearat tersebut dimasukkan ke dalam cetakan dengan diameter sebesar 75 mm, kemudian

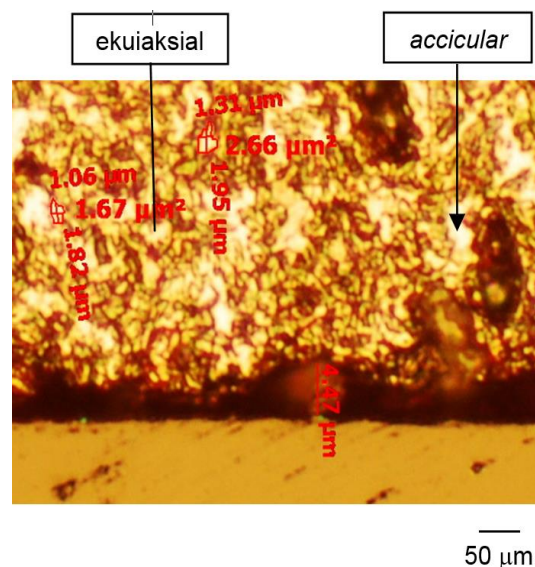
ditekan menggunakan penekan hidrolis hingga 9.000 lbf dan ditahan selama 15 menit. Produknya diperoleh berupa kompakan  $ZrB_2$ +zinc stearat dengan diameter 75 mm dan tebal 4 mm, selanjutnya kompakan tersebut dipanaskan dalam tungku dengan temperatur 1.700 °C selama 30 menit dengan pendinginan lambat sehingga diperoleh target  $ZrB_2$  [12].

Bahan bakar yang akan dilapisi  $ZrB_2$  adalah pelet  $UO_2$ +dopan 0,4%  $Cr_2O_3$  sinter dan pelet  $UO_2$ +dopan 0,3%  $Nb_2O_5$  sinter masing-masing dengan diameter 10 mm dan tinggi 6 mm. Proses pelapisan pelet  $UO_2$  dengan  $ZrB_2$  menggunakan mesin RF *Sputtering*, dengan kondisi operasi yaitu tegangan bias (anoda) 875 volt, jarak antar pelet dan target tertentu (skala 477), tekanan  $2.10^{-5}$  mbar, dan proses sputtering ditahan hingga 90 menit untuk mendapatkan ketebalan lapisan  $ZrB_2$  tertentu, Pelet  $UO_2$  berlapis tipis  $ZrB_2$  setelah dingin dilepas dari pemegang spesimen. Selanjutnya dilakukan karakterisasi terhadap lapisan tipis  $ZrB_2$  pada permukaan pelet  $UO_2$  dengan tahapan sebagai berikut (1) pelet berlapis  $ZrB_2$  dipotong dengan mesin *accutom* menjadi 3 (tiga) bagian masing-masing untuk sampel metalografi dan kekerasan, sampel uji XRD dan sampel uji XRF; (2) sampel metalografi dibingkai dengan resin acryfic dan pengeras, kemudian diampelas dengan kertas ampelas grit 320 hingga 1.200 untuk mendapatkan sampel dengan permukaan rata dan bebas goresan, selanjutnya dipoles dengan pasta intan untuk mendapatkan permukaan rata dan mengkilap, dan berikutnya dietsa; (3) pengamatan dan analisis mikrostruktur sampel menggunakan mikroskop optik; (4) pengujian struktur kristal dan fasa yang ada dalam lapisan menggunakan XRD; dan (5) pengujian komposisi kimia unsur-unsur penyusun lapisan menggunakan XRF [13]. Data yang diperoleh dari karakterisasi lapisan  $ZrB_2$  dianalisis untuk mengetahui karakter lapisan  $ZrB_2$  yaitu ketebalan lapisan, struktur kristal dan perubahan fasa, serta komposisi kimia lapisan.

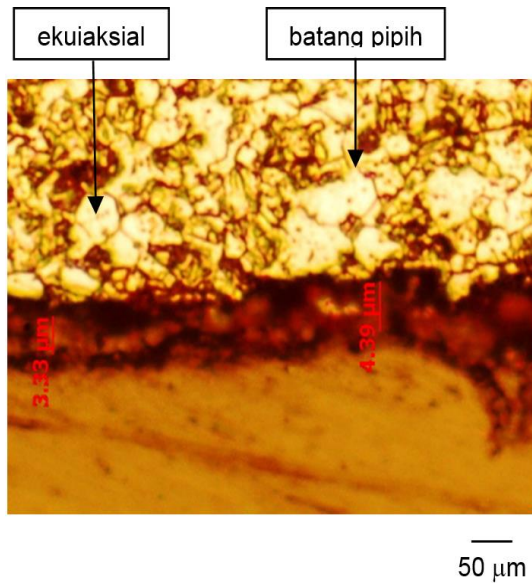
## HASIL DAN PEMBAHASAN

### a. Mikrostruktur

Mikrostruktur lapisan permukaan pelet  $UO_2$  yang dilapisi  $ZrB_2$  ditunjukkan pada Gambar 1. Pada Gambar 1 (a) memperlihatkan mikrostruktur lapisan  $ZrB_2$  pada permukaan pelet  $UO_2$ +dopan 0,4%  $Cr_2O_3$  sinter, sedangkan Gambar 1 (b) menunjukkan mikrostruktur lapisan  $ZrB_2$  pada permukaan pelet  $UO_2$ +dopan 0,3%  $Nb_2O_5$  sinter. Pada Gambar 1 (a) terlihat bahwa mikrostruktur pelet  $UO_2$ +dopan 0,4%  $Cr_2O_3$  mempunyai butir campuran ekuiaksial dan *accicular* dengan diameter butir rerata 2,44  $\mu m$ . Selain itu, pada Gambar 1 (a) nampak lapisan kompak yang melekat kuat pada permukaan pelet  $UO_2$ +dopan 0,4%  $Cr_2O_3$  sinter. Sementara itu, Gambar 1 (b) menunjukkan bahwa mikrostruktur pelet  $UO_2$ +dopan 0,3%  $Nb_2O_5$  sinter yang mempunyai butir campuran ekuiaksial dan batang pipih dengan diameter butir rerata 2,47  $\mu m$ . Lapisan yang terbentuk pada permukaan  $UO_2$ +dopan 0,3%  $Nb_2O_5$  sinter dengan ketebalan tidak seragam. Lapisan tersebut merupakan produk dari proses *sputtering* material target ( $ZrB_2$ ), dimana awan elektron yang terjadi di sekitar substrat (pelet  $UO_2$ ) selanjutnya terdeposit dan membentuk lapisan tipis pada permukaan substrat (pelet  $UO_2$ ) [8].



(a)



(b)

Gambar 1. Mikrostruktur lapisan ZrB2 pada permukaan pelet  $UO_2$ .

- (a) Dopan 0,4%  $Cr_2O_3$   
(b) Dopan 0,3%  $Nb_2O_5$

Berdasarkan Gambar 1, atom-atom ZrB2 lebih sulit memasuki permukaan pelet  $UO_2$  + dopan 0,4%  $Cr_2O_3$  sinter yang mempunyai struktur butir dengan ukuran lebih kecil dibandingkan struktur butir pada permukaan pelet  $UO_2$  + dopan 0,3%  $Nb_2O_5$  sinter. Hal ini disebabkan atom-atom ZrB2 lebih mudah berdifusi ke dalam butir yang relatif besar dan terdeposit menjadi lapisan IFBA. Semakin besar ukuran butir dalam mikrostruktur pelet maka semakin tebal lapisan ZrB2 yang terbentuk. Apabila dilihat dari permukaan lapisan terlihat bahwa lapisan ZrB2 pada permukaan pelet  $UO_2$  + dopan 0,4%  $Cr_2O_3$  sinter lebih rata dan kompak dibandingkan permukaan lapisan pelet  $UO_2$  + dopan 0,3%  $Nb_2O_5$  sinter. Hal ini disebabkan pelet  $UO_2$  + dopan 0,4%  $Cr_2O_3$  sinter mempunyai struktur butir lebih seragam dan ukuran butirnya relatif kecil sehingga laju difusi atom-atom ZrB2 rendah dan membutuhkan tekanan lebih tinggi dibandingkan struktur dan ukuran butir permukaan pelet  $UO_2$  + dopan 0,3%  $Nb_2O_5$  sinter.

Tabel 1 menunjukkan ketebalan lapisan pada permukaan pelet  $UO_2$  dan diameter butir dalam mikrostruktur pelet

$UO_2$ . Pada Tabel 1 terlihat bahwa ketebalan lapisan pada permukaan pelet  $UO_2$  + 0,3%  $Cr_2O_3$  adalah  $2,71 \pm 0,19 \mu m$ , sedangkan ketebalan lapisan pada permukaan pelet  $UO_2$  + 0,3%  $Nb_2O_5$  adalah  $2,82 \pm 0,18 \mu m$ . Sementara itu, diameter butir dalam mikrostruktur pelet  $UO_2$  + 0,4%  $Cr_2O_3$  adalah  $2,44 \pm 0,17 \mu m$  dan pelet  $UO_2$  + 0,3%  $Nb_2O_5$  adalah  $2,47 \pm 0,20 \mu m$ . Ketebalan lapisan bahan ZrB2 baik pada permukaan pelet  $UO_2$  + 0,4%  $Cr_2O_3$  dan pelet  $UO_2$  + 0,3%  $Nb_2O_5$  masih dalam rentang lapisan IFBA yang direkomendasikan yaitu 2 – 6  $\mu m$ <sup>[6]</sup>.

Tabel 1. Ketebalan lapisan dan diameter butir pelet  $UO_2$

Sampel	Ketebalan lapisan $\mu m$	Diameter butir $\mu m$
$UO_2$ + 0,4% $Cr_2O_3$ sinter	$2,71 \pm 0,19$	$2,44 \pm 0,17$
$UO_2$ + 0,3% $Nb_2O_5$ sinter	$2,82 \pm 0,18$	$2,47 \pm 0,20$

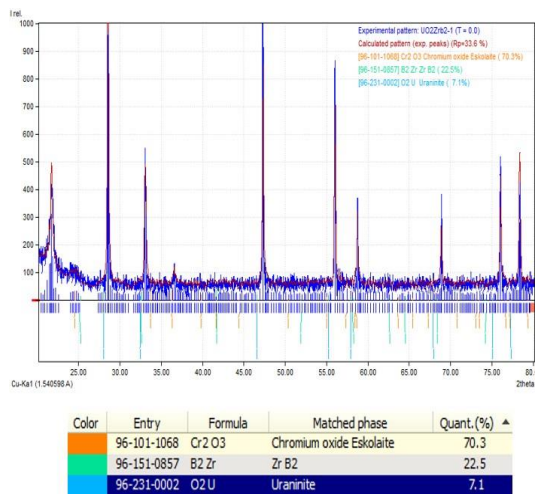
### b. Kristalografi

Karakterisasi kristalografi dilakukan terhadap lapisan permukaan pellet  $UO_2$  dengan menggunakan difraktometer sinar-X dimaksudkan untuk mengetahui struktur kristal dan fasa-fasa yang terbentuk dalam proses pelapisan pelet dengan metode *sputtering*. Hasil pengujian XRD terhadap sampel pelet  $UO_2$  + 0,4%  $Cr_2O_3$  dan pelet  $UO_2$  + 0,3%  $Nb_2O_5$  berupa grafik dengan puncak-puncak spektrum pada sudut tertentu, kemudian pola difraksi yang diperoleh dilakukan pencocokan kurva terhadap basis data pola difraksi COD (*Crystallography Open Database*).

Gambar 2 menunjukkan bahwa pola difraksi pelet  $UO_2$  + 0,4%  $Cr_2O_3$  berlapis tipis yang dianalisis dengan basis data pola difraksi COD. Pada Gambar 2 terlihat adanya fasa  $UO_2$  yang mempunyai struktur kristal kubik dengan parameter kisi sebesar  $a = 5,51 \text{ \AA}$  sesuai referensi COD#2310001. Selain itu juga diketemukan adanya fasa  $ZrB_2$  yang mempunyai struktur kristal heksagonal dengan parameter kisi  $a = 3,17 \text{ \AA}$

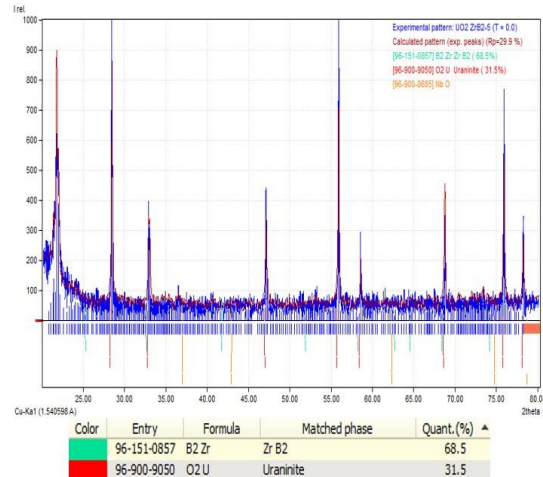


dan  $c = 3,53 \text{ \AA}$  sesuai dengan referensi COD#1510857. Selain itu, ditemukan juga fasa  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  dengan struktur kristal trigonal yang mempunyai parameter kisi  $a = 4,91 \text{ \AA}$  dan  $c = 13,46 \text{ \AA}$  sesuai dengan referensi COD#9015778. Dengan demikian, analisis data XRD menggunakan basis data COD membuktikan bahwa lapisan tipis  $\text{ZrB}_2$  terbentuk pada permukaan pelet  $\text{UO}_2 + 0,4\% \text{ Cr}_2\text{O}_3$  sinter.



Gambar 2. Pola difraksi pelet  $\text{UO}_2 + 0,4\% \text{ Cr}_2\text{O}_3$  berlapis tipis.

Gambar 3 menunjukkan bahwa pola difraksi pelet  $\text{UO}_2 + 0,3\% \text{ Nb}_2\text{O}_5$  berlapis tipis yang dianalisis dengan basis data pola difraksi COD. Pada Gambar 3 diketahui adanya fasa  $\text{UO}_2$  dengan struktur kristal kubik yang mempunyai parameter kisi  $a = 5,51 \text{ \AA}$  sesuai referensi COD#2310001. Selain itu, ditemukan adanya fasa  $\text{ZrB}_2$  dengan struktur kristal heksagonal yang mempunyai parameter kisi  $a = 3,17 \text{ \AA}$  dan  $c = 3,53 \text{ \AA}$  sesuai referensi COD#1510857. Analisis dengan basis data COD juga menemukan adanya fasa  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  yang mempunyai struktur kristal trigonal dengan parameter kisi  $a = 4,91 \text{ \AA}$  dan  $c = 13,46 \text{ \AA}$  sesuai referensi COD#9015778. Dengan demikian, analisis data XRD menggunakan basis data COD dapat membuktikan bahwa lapisan  $\text{ZrB}_2$  terbentuk pada permukaan pelet  $\text{UO}_2 + 0,3\% \text{ Nb}_2\text{O}_5$ .

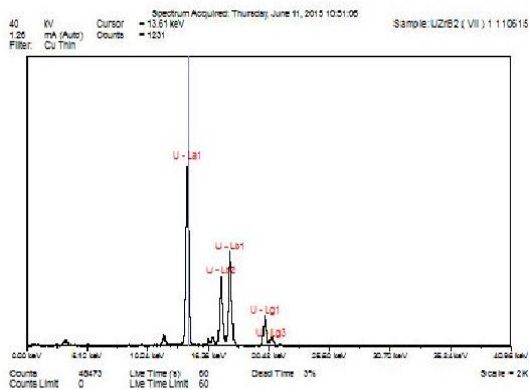


Gambar 3. Pola difraksi pelet  $\text{UO}_2 + 0,3\% \text{ Nb}_2\text{O}_5$  berlapis tipis.

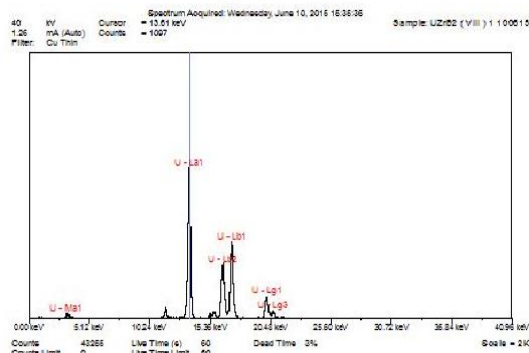
### c. Komposisi Kimia

Komposisi kimia unsur penyusun lapisan yang terdapat pada permukaan sampel pelet  $\text{UO}_2$  dapat diketahui dengan menggunakan peralatan alat XRF (X-Ray Fluorescence). Pengujian XRF dilakukan dengan 2 metode yaitu kualitatif dan kuantitatif. Metode kualitatif digunakan untuk mengetahui jenis unsur yang terdapat pada suatu sampel, sedangkan metode kuantitatif untuk menentukan konsentrasi unsur yang terdapat pada sampel. Metode kuantitatif memerlukan sampel standar yang sudah diketahui konsentrasinya untuk melihat spektrum standar yang selanjutnya dibandingkan dengan sampel uji. Hasil pengujian sampel pelet  $\text{UO}_2 + 0,4\% \text{ Cr}_2\text{O}_3$  berlapis tipis ditunjukkan pada Gambar 4, sedangkan pelet  $\text{UO}_2 + 0,3\% \text{ Nb}_2\text{O}_5$  berlapis tipis ditunjukkan pada Gambar 5. Pada Gambar 4 dan 5 terlihat bahwa beberapa puncak spektrum yang dominan, yaitu puncak spektrum unsur uranium dengan energi  $K\alpha$  yaitu  $13,61 \text{ keV}$ , sedangkan puncak spektrum unsur zirkonium dengan energi  $K\alpha$  yaitu  $15,776 \text{ keV}$ . Unsur boron tidak dapat diidentifikasi secara kualitatif oleh peralatan XRF. Dengan demikian secara kualitatif diketahui bahwa adanya unsur Zr menunjukkan bahwa lapisan tipis yang terbentuk baik pada permukaan pelet  $\text{UO}_2 + 0,4\% \text{ Cr}_2\text{O}_3$  maupun pelet  $\text{UO}_2 + 0,3\% \text{ Nb}_2\text{O}_5$  adalah  $\text{ZrB}_2$ .

Metode kuantitatif digunakan untuk menentukan dan mengetahui konsentrasi unsur-unsur penyusun lapisan tipis pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$ , dalam hal ini unsur Zr. Oleh karena lapisan yang terdapat pada permukaan pelet  $\text{UO}_2 + 0,4\% \text{Cr}_2\text{O}_3$  dan pelet  $\text{UO}_2 + 0,3\% \text{Nb}_2\text{O}_5$  sangat tipis yaitu sekitar 2 – 3  $\mu\text{m}$  maka dalam penentuan konsentrasi Zr digunakan sampel standar UZr sebesar 20 ppm.



Gambar 4 Spektrum sampel pelet  $\text{UO}_2 + 0,4\% \text{Cr}_2\text{O}_3$  berlapis tipis.



Gambar 5. Spektrum sampel pelet  $\text{UO}_2 + 0,3\% \text{Nb}_2\text{O}_5$  berlapis tipis.

Dari spektrum sampel standar dapat ditentukan energi dan intensitas unsur zirkonium untuk mengetahui *net peak* dan konsentrasi standar. Selanjutnya, dengan metode perbandingan dapat diketahui konsentrasi unsur zirkonium pada lapisan permukaan pelet  $\text{UO}_2$ . Nilai *net peak* dan konsentrasi unsur zirkonium yang diperoleh pada lapisan permukaan pelet  $\text{UO}_2 + 0,4\% \text{Cr}_2\text{O}_3$  dan pelet  $\text{UO}_2 + 0,3\% \text{Nb}_2\text{O}_5$  ditunjukkan pada Tabel 2. Dari Tabel 2 diketahui bahwa konsentrasi rerata unsur

zirkonium pada sampel pelet  $\text{UO}_2 + 0,4\% \text{Cr}_2\text{O}_3$  berlapis tipis adalah 1,82  $\mu\text{g}$  dan sampel pelet  $\text{UO}_2 + 0,3\% \text{Nb}_2\text{O}_5$  berlapis tipis adalah 1,90  $\mu\text{g}$ . Hasil metode kuantitatif ini menguatkan fakta bahwa lapisan ZrB2 terbentuk pada permukaan pelet  $\text{UO}_2 + 0,4\% \text{Cr}_2\text{O}_3$  dan  $\text{UO}_2 + 0,3\% \text{Nb}_2\text{O}_5$ .

Tabel 2. Konsentrasi unsur zirkonium dalam lapisan pelet  $\text{UO}_2$

Sampel	Konsentrasi Zr ( $\mu\text{g}$ )
Pelet $\text{UO}_2 + 0,4\% \text{Cr}_2\text{O}_3$ berlapis tipis	1,82 $\pm$ 0,37
Pelet $\text{UO}_2 + 0,3\% \text{Nb}_2\text{O}_5$ berlapis tipis	1,90 $\pm$ 0,49

Berdasarkan bahasan mikrostruktur pelet  $\text{UO}_2 + 0,4\% \text{Cr}_2\text{O}_3$  dan pelet  $\text{UO}_2 + 0,3\% \text{Nb}_2\text{O}_5$ , struktur kristal dan komposisi kimia lapisan tipis pada permukaan pelet  $\text{UO}_2 + 0,4\% \text{Cr}_2\text{O}_3$  dan pelet  $\text{UO}_2 + 0,3\% \text{Nb}_2\text{O}_5$  diketahui bahwa jenis dan kandungan dopan yang ditambahkan mempengaruhi struktur butir dalam mikrostrukturnya. Struktur butir dalam mikrostruktur dari permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan 0,4%  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  sinter lebih seragam dengan ukuran butir relatif kecil sehingga laju difusi atom-atom ZrB2 lambat dan membutuhkan tekanan lebih tinggi dibandingkan dengan struktur dan ukuran butir permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan 0,3%  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  sinter. Hal ini menyebabkan pada kondisi proses *sputtering* yang sama, ketebalan lapisan ZrB2 pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan 0,4%  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  sinter lebih tipis dibandingkan ketebalan lapisan pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan 0,3%  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  sinter. Lapisan tipis yang terbentuk baik pada permukaan  $\text{UO}_2$  + dopan 0,4%  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  sinter maupun pada permukaan pelet  $\text{UO}_2$  + dopan 0,3%  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  sinter adalah ZrB2 yang dibuktikan dengan adanya fasa ZrB2 dengan struktur kristal heksagonal dari hasil pengujian XRD dan adanya unsur Zr secara kualitatif dan kuantitatif dari hasil pengujian lapisan dengan XRF.



## SIMPULAN

Pelapisan permukaan bahan bakar nuklir dengan zirkonium diborida ( $ZrB_2$ ) menggunakan metoda *sputtering* telah berhasil dilakukan pada pelet  $UO_2 + 0,4\%$   $Cr_2O_3$  sinter dan pelet  $UO_2 + 0,3\%$   $Nb_2O_5$  sinter. Karakter lapisan zirkonium diborida pada permukaan pelet  $UO_2 + 0,4\%$   $Cr_2O_3$  sinter pelet  $UO_2 + 0,3\%$   $Nb_2O_5$  sinter serupa yaitu tipis dan kompak dengan ketebalan rerata masing-masing  $2,71 \mu m$  dan  $2,82 \mu m$ . Mikrostruktur pelet  $UO_2 + 0,4\%$   $Cr_2O_3$  sinter berupa butir-butir campuran ekuiaksial dan *acicular* dengan diameter butir rerata  $2,44 \mu m$ , sedangkan pelet  $UO_2 + 0,3\%$   $Nb_2O_5$  sinter mempunyai struktur butir berupa ekuiaksial dan batang pipih dengan diameter butir  $2,47 \mu m$ . Identifikasi terhadap pola difraksi sinar-X pada sampel pelet  $UO_2 + Cr_2O_3$  berlapis tipis dan sampel pelet  $UO_2 + Nb_2O_5$  berlapis tipis menunjukkan bahwa secara kualitatif terdapat fasa  $UO_2$  dengan struktur kristal kubus dan fasa  $ZrB_2$  dengan struktur kristal heksagonal. Sementara itu, data XRF pada lapisan permukaan pelet  $UO_2 + Cr_2O_3$  sinter dan pelet  $UO_2 + Nb_2O_5$  sinter secara kuantitatif mengandung unsur zirkonium dengan konsentrasi rerata masing-masing  $1,82 \mu g$  dan  $1,90 \mu g$ . Adanya unsur zirkonium baik secara kualitatif maupun kuantitatif membuktikan bahwa lapisan  $ZrB_2$  terbentuk pada permukaan pelet  $UO_2$ .

## UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Dr. Jan Setiawan, Drs. Yusuf Nampira, Edi Indarto, Ade Mahpudin, dan Isfandi yang telah membantu pelaksanaan karakterisasi lapisan  $ZrB_2$  pada permukaan pelet  $UO_2$ .

## DAFTAR PUSTAKA

- [1] P. R. Rudling, et al., (2008). *High Burnup Fuel Issues*, Journal. Nuclear. Engineering and Technology., 40 (1), page. 1-8.
- [2] R. Jovani-Abril, (2014). *Synthesis and Characterization of Nanocrystalline  $UO_2$  Ceramics*, Dissertation, Universidad de Santiago de Compostela, Spain , page. 171-179
- [3] V. Peres, L. Favergeon, M. Andrieu, J. C. Palussiere, J. Baland, C. Delafoy, M. Pijolat, (2012). *High Temperature Chromium Volatilization from  $Cr_2O_3$  Powder and  $Cr_2O_3$ -Doped  $UO_2$  Pellets in Reducing Atmospheres*, Journal of Nuclear Materials, 423, page. 93-101.
- [4] Mutiara, E., T. Yulianto, (2013). Efek Penambahan Dopan Terhadap Karakteristik Pelet  $UO_2$  Sinter, Jurnal Daur Bahan Bakar ,Urania, Vol. 19 (2), Hal. 84-91.
- [5] Futichah, T. Yulianto, (2013). Pembesaran Ukuran Butir  $UO_2$  Dengan Penambahan Dopan Untuk Mengurangi Pelepasan Gas Fisi, Jurnal Teknologi Bahan Nuklir , Vol. 9 (1), Hal. 1-11.
- [6] K. C. Radford, (1988). *Coating a Nuclear Fuel with a Burnable Poison*, US Patent EP 0137675 B1.
- [7] Rhee, Y. W., D. J. Kim, I. H. Nam, J. H. Kim, J. S. Oh, J. H. Yang, K. S. Kim, (2012). *Fabrication of Boron-containing Burnable Absorber Fuel Pellet*, Tran. of the Korean Nuclear Society Spring Meeting, Jeju, Korea.
- [8] Sungkono, T. Yulianto, (2015). Karakterisasi Zirkonium Diborida Sebagai Bahan Lapisan Penyerap Mampu Bakar Pada Pelet  $UO_2$ , Jurnal Teknologi Bahan Nuklir , Vol.11 (1), Hal. 1-12.
- [9] Ge, L., (2014). *Processing of Uranium Dioxide Nuclear Fuel Pellets Using Spark plasma Sputtering*, Dissertation, University of Florida.
- [10] C. Sironen, (2014). *Neutronic Characteristics of Using Zirconium Diboride and Gadolinium in a Westinghouse 17x17 Fuel Assembly*,

- 
- Dissertation No. 1509920,, University of South Carolina
- [11] H. H. Durmazucar and G. Gunduz, (2000). *Boron Coating on Boron Nitride Coated Nuclear Fuels by Chemical Vapor Deposition*, Journal of Nuclear. Mater. 282 , page. 239-244.
- [12] P. Liu, P. Zhang, X. Pang, Q. Wang, T. Liu, (2012). *A Study on Fabrication Technique of ZrB<sub>2</sub> Target*, Procedia Engineering, 27, page. 1305-1312.
- [13] L. Tengdelius, (2013). *Growth and Characterization of ZrB<sub>2</sub> Thin Films*, Thesis No. 1614, Linkoping University, Sweden.