

PENGARUH ADITIF UREA DAN HMTA SERTA TEMPERATUR DAN WAKTU REDUKSI TERHADAP SPESIFIKASI KERNEL UO_2

Damunir

Pusat Teknologi Akselerator dan Proses Bahan-BATAN

Jl. Babarsari, Yogyakarta

ABSTRAK

PENGARUH ADITIF UREA DAN HMTA SERTA TEMPERATUR DAN WAKTU REDUKSI TERHADAP SPESIFIKASI KERNEL UO_2 . Pengaruh aditif urea dan heksa metilen tetra amin (HMTA) serta temperatur dan waktu reduksi terhadap spesifikasi kernel UO_2 telah dipelajari. Kernel UO_2 dibuat dengan proses total gelasi uranium (TGU). Sebagai bahan dasar digunakan uranil nitrat, urea, HMTA, polivinil alkohol (PVA) dan tetra hidro furfural (THF). Pertama kali dibuat 20 ml larutan campuran uranil nitrat 1M, urea divariasi 1-2 M, 1,6 g PVA, THF 2 M dan air. Sambil diaduk dan dipanaskan pada temperatur $70^\circ C$ selama 20 menit sampai terbentuk larutan homogen. Setelah itu, larutan didiamkan selama 2 jam pada temperatur ruangan, kemudian HMTA divariasi 1-2M dan ditambahkan serta diaduk agar terbentuk larutan sol. Untuk mendapatkan kernel UO_2 bulat seperti bola, larutan sol diteteskan kedalam larutan NH_4OH 5 M pada temperatur ruangan, menghasilkan gel, lalu direndam, dicuci dengan amonia, air panas dan dikeringkan pada temperatur $150^\circ C$ selama 4 jam, untuk menghilangkan sisa senyawa kimia yang tidak bereaksi. Setelah itu, gel dikalsinasi pada $800^\circ C$ selama 4 jam, menghasilkan kernel U_3O_8 , Kemudian kernel U_3O_8 direduksi pada temperatur $850^\circ C$ selama 2 jam dengan gas H_2 dalam medium gas N_2 pada tekanan 50 mmHg hingga dihasilkan kernel UO_2 . Juga dipelajari pengaruh temperatur dan waktu reduksi kernel U_3O_8 hasil kalsinasi gel pada kondisi yang sama. Gel yang digunakan mempunyai komposisi, $UO_2(NO_3)_2$ 1M, urea 1M, 1,6 g PVA, THF 2M dan HMTA 1M. Temperatur reduksi divariasi dari $600-850^\circ C$ dan waktu dari 1-4 jam. Spesifikasi kernel UO_2 yang meliputi kerapatan, luas muka spesifik, jari-jari pori rerata dan rasio O/U dianalisis. Hasil analisis menunjukkan bahwa pembuatan kernel UO_2 dapat dilakukan dengan proses gelasi total uranium, menggunakan uranil nitrat, urea, HMTA, PVA dan THF sebagai bahan dasar. Perubahan konsentrasi aditif urea dan HMTA serta temperatur dan waktu reduksi berpengaruh terhadap spesifikasi kernel UO_2 . Kondisi relatif baik diperoleh pada konsentrasi urea 1,8 M dan HMTA 1,8 M, temperatur reduksi $800-850^\circ C$ dan waktu reduksi 2 jam. Kernel UO_2 yang dihasilkan mempunyai mikrostruktur halus, kerapatan sebesar 58,45 - 66,70 % DT, luas muka spesifik sebesar 3,97-4,79 m^2/g , jari-jari pori rerata sebesar 16,69-24,69 Å dan rasio O/U sebesar 2,04-2,09.

Kata kunci: Aditif, gelasi total uranium, sol, gel, karakterisasi, spesifikasi dan mikrostruktur

ABSTRACT

THE INFLUENCE OF THE UREA, HMTA AS ADDITIVE, TIME AND TEMPERATURE OF REDUCTION ON UO_2 KERNEL SPECIFICATION. *The influence of the urea and HMTA as additives, time and temperature reduction on UO_2 kernel specification has been studied. UO_2 kernel was made up by total gelation process uranium (TGU). Uranyl nitrate, urea, HMTA, polyvinyl alcohol (PVA), and tetra hidrofurfural (THF), were used as base materials. First step, 20 ml mixed solution that consist of 1M uranyl nitrate, varied 1 to 2 M urea, 1.6 g PVA, 2M THF, and water. The were prepared solution then was stirred and heated up to 70°C temperature for 20 minutes to form homogenous solution. The solution then was left on room temperature for 2 hours. On that solution HMTA that varied 1 M to 2 M was added while being stirred in order to be sol solutions. The sol solution was dropped into solution of 5 M NH_4OH on room temperature to get spherical UO_2 kernel, then was soaked, washed using ammonia, hot water and dried at 150 °C for 4 hours to remove chemical compound residue that was not reacted. After that, gel was calcinated at 800°C for 4 hours, to produce that U_3O_8 kernel, then followed reduction process at 850°C for 2 hours using the H_2 and N_2 gases on 50 mmHg. The influence of time and temperature reduction on the calcinated U_3O_8 kernel at the same conditions was also studied. The composition of used gel were 1M $UO_2(NO_3)_2$, 1M urea, 1.6 g PVA, 2M THF and 1M HMTA, and temperature reduction were varied from 600 to 850°C for 1 to 4 hours. UO_2 kernel spesification were analyzed on their density, spesific surface area, means pore radius and O/U ratio. The result, showed that UO_2 could be produced by total gelation process of uranium using uranyl nitrate, urea, HMTA, PVA, and THF as constituent materials. The varied concentration of urea & HMTA, time and temperature reductions have influenced on UO_2 kernel spesification. The relative condition was achieved on the composition of 1.8 M urea, 1.8 M HMTA concentration, temperature reduction 800-850°C for 2 hours of time reduction. Resulted UO_2 kernel has fine microstructure, the density was 58.45 – 66,70 % DT, spesific surface area was 3.97- 4.79 m^2/g , mean pore radius was 16.69-24.69 Å and the O/U ratio was 2,04-2,09.*

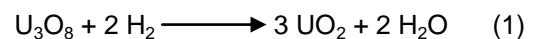
Key words: *The additive, total gelation of uranium, sol, gel, characterization, specification and microstructure*

PENDAHULUAN

Kernel UO_2 termasuk senyawa uranium keramik berbentuk bulat seperti bola kecil, digunakan sebagai partikel untuk elemen bahan bakar reaktor temperatur tinggi (*High temperature reactor*). Kernel UO_2 ini pertama kali dikembangkan oleh Jerman dengan menggunakan proses Sol-Gel yang terdiri dari proses gelas internal dan gelas eksternal. Pada tahun 1970 di *Institute Nuclear Energy Technology (INET)*, Universitas Tsinghua (Cina), dilakukan penelitian, pengembangan dan pembuatan bahan bakar kernel UO_2 berbentuk bola untuk bahan bakar reaktor temperatur tinggi (10MW), dengan memodifikasikan proses gelas internal dan gelas eksternal di atas yang disebut proses gelas total uranium (*The total gelation proses of uranium / TGU*). Proses TGU menggunakan uranil nitrat, urea, heksa metilen tetra amin (HMTA), polivinil alkohol (PVA), tetra hidro furfural (THF) atau tetra hidro furfural alkohol (THFA) sebagai bahan dasar^[1,2,3].

Pada proses TGU, urea ditambahkan ke dalam larutan nitrat pada temperatur 60-90°C, sehingga terurai menjadi amonia (NH_3), kemudian NH_3 bereaksi dan menetralkan uranil nitrat membentuk senyawa kompleks uranil hidroksi nitrat " $UO_2(OH)_{0,5}(NO_3)_{1,5}$ ". Agar mudah terjadi pembentukan butiran gel bulat seperti bola, pada temperatur yang sama di tambahkan campuran PVA dan THF atau THFA, dan diaduk sampai terbentuk larutan homogen. Setelah larutan didiamkan sampai temperaturnya sama dengan temperatur ruangan ($\pm 32^\circ C$), heksa metilen tetra amin (HMTA) ditambahkan ke dalam larutan tersebut. Pada kondisi ini, HMTA terurai menjadi amonia, kemudian bereaksi dengan uranil hidroksi nitrat membentuk larutan sol. Untuk mendapatkan gel bulat seperti bola kecil, larutan sol digelasikan kedalam larutan NH_4OH sebagai medium. Dalam larutan

medium terjadi reaksi antara NH_3 dengan molekul dalam butiran gel sehingga solidifikasinya menjadi sempurna, kemudian bergerak mengikuti gerak jatuh vibrasi ke dasar kolom. Setelah gel dicuci dan dikeringkan, dikalsinasi dalam medium udara pada temperatur 800-900°C hingga dihasilkan kernel U_3O_8 . Setelah itu, kernel U_3O_8 direduksi dengan gas H_2 dalam medium N_2 pada temperatur 600-900°C, menghasilkan kernel UO_2 , seperti reaksi berikut^[4]



Kualitas kernel UO_2 di atas dipengaruhi oleh jumlah urea dan HMTA yang ditambahkan ke dalam larutan untuk membentuk larutan sol dan butiran gel serta temperatur dan waktu reduksi. Pada konsentrasi urea dan HMTA yang tidak sesuai akan menghasilkan gel tidak bulat, berbentuk pipih dan lonjong, sehingga pada temperatur tinggi, gel tersebut mudah pecah dengan menghasilkan serbuk oksida uranium, sedangkan pada konsentrasi urea dan HMTA yang sesuai akan menghasilkan gel bulat seperti bola. Demikian juga pada proses reduksi. Pada temperatur dan waktu reduksi yang sesuai akan menghasilkan kernel UO_2 bulat seperti bola yang mempunyai spesifikasi sifat fisis tinggi seperti kerapatan, luas permukaan, rasio O/U, bentuk mikroskopis butiran dan mikro struktur. Kernel UO_2 yang mempunyai spesifikasi sifat fisis yang tinggi akan mempunyai prospek yang baik sebagai elemen bahan bakar reaktor. Oleh karena itu, pada pembuatan kernel UO_2 dengan proses TGU perlu diketahui pengaruh aditif urea, HMTA serta perubahan temperatur dan waktu reduksi. Tujuan penelitian ini adalah mempelajari pengaruh aditif urea dan HMTA pada proses TGU serta temperatur dan waktu reduksi kernel U_3O_8

dengan gas H_2 dalam médium gas N_2 terhadap spesifikasi sifat fisis kernel UO_2 .

TATA KERJA

• Bahan

Urea dan heksa metilen tetra amin (*HMTA*) Merck berfungsi sebagai sumber amonia pada pembentuk sol. Tetra hidro furfural (THF) Merck berfungsi sebagai pelarut PVA dan mengatur viskositas larutan sol. Polivinil alkohol (*PVA*) Merck berfungsi sebagai reagen pembentuk gel. Larutan uranyl nitrat [$UO_2(NO_3)_2$] berfungsi sebagai pembentukan kernel oksida uranium. Gas H_2 berfungsi sebagai reduktor dan gas N_2 sebagai médium reduksi.

• Alat

Tungku pemanas kalsinator merk Heraeus untuk mengoksidasi gel menjadi kernel U_3O_8 . Tungku pemanas reduktor untuk mereduksi kernel U_3O_8 menjadi kernel UO_2 . Seperangkat alat proses gelas yang berbentuk kolom dari kaca dengan tinggi 50 cm dan diameter 6 cm, berfungsi sebagai tempat proses gelas pembuatan gel. Seperangkat alat surface areameter NOVA-1000, untuk menganalisis sifat fisis kernel UO_2 . Seperangkat mikroskop optik tipe 150 Year-zeis, untuk menganalisis bentuk morfologi dan struktur permukaan butiran kernel UO_2 dan mikroskop elektron menggunakan SEM merk Philips untuk analisis mikrostruktur kernel UO_2 .

• Cara kerja

Pembuatan kernel UO_2 dengan proses TGU, dilakukan dengan mempelajari pengaruh perubahan konsentrasi aditif urea dan HMTA serta temperatur dan waktu reduksi kernel U_3O_8 yang merupakan faktor yang berpengaruh pada spesifikasi sifat fisis kernel UO_2 yang dihasilkan.

■ Pengaruh konsentrasi Urea

Pertama kali dibuat 20 ml larutan campuran $UO_2(NO_3)_2$ 1M, urea 1 M, THF 2M 2 ml, PVA 1,6 g, dan air. Sambil diaduk dan dipanaskan pada temperatur $70^\circ C$ selama 20 menit. Setelah itu larutan didiamkan sampai temperaturnya sama dengan temperatur ruangan, 5 ml HMTA 1,8 M ditambahkan kedalam larutan dan diaduk sampai terbentuk larutan sol homogen. Untuk mendapatkan butiran gel bulat seperti bola kecil, larutan sol diteteskan kedalam kolom gelas yang mengandung NH_4OH 5 M sebagai medium. Dengan cara yang sama percobaan diulangi untuk konsentrasi urea 1,3; 1,5 ; 1,8 dan 2 M. Gel yang dihasilkan direndam dalam NH_4OH 5 M pada temperatur $60^\circ C$ selama 1 jam, lalu di cuci dengan NH_4OH 2,5 % dan air panas, kemudian dikalsinasi pada temperatur $800^\circ C$ selama 4 jam sehingga diperoleh kernel U_3O_8 , lalu direduksi dengan gas H_2 pada temperatur $850^\circ C$ selama 2 jam pada tekanan 50 mmHg.

■ Pengaruh konsentrasi HMTA

Pertama kali dibuat 20 ml larutan campuran $UO_2(NO_3)_2$ 1 M, urea 1 M, 1,6 g PVA, 2 ml THF 2M dan air. Sambil diaduk dan dipanaskan pada temperatur $70^\circ C$ selama 20 menit. Setelah larutan didiamkan sampai temperaturnya sama dengan temperatur ruangan, 5 ml HMTA 1,8 M ditambahkan kedalam larutan dan diaduk sampai terbentuk larutan sol homogen. Untuk mendapatkan butiran gel bulat seperti bola kecil, larutan sol diteteskan kedalam medium NH_4OH 5 M seperti di atas. Dengan cara yang sama percobaan diulangi untuk konsentrasi HMTA 1,3; 1,5; 1,8 dan 2 M. Butiran gel direndam, dicuci, dikalsinasi dan direduksi dengan cara seperti 3.1.

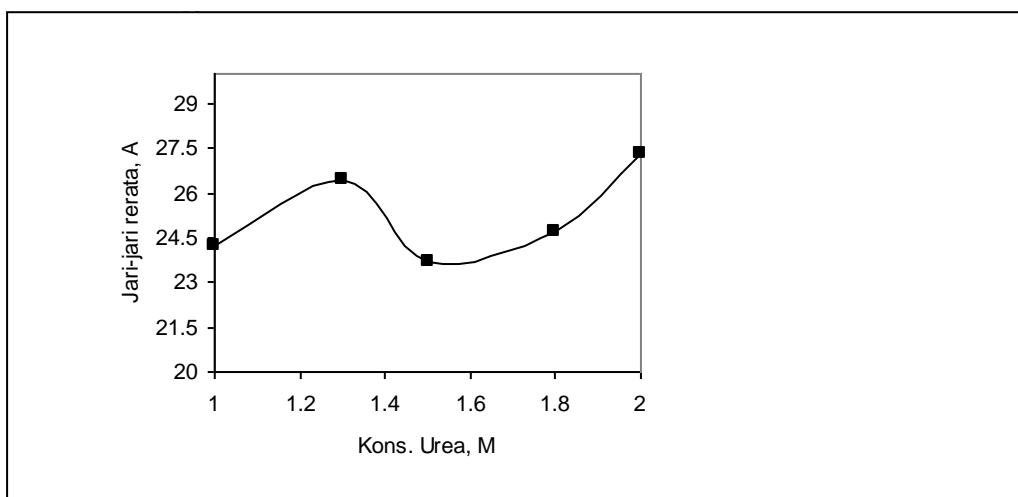
■ Pengaruh perubahan temperatur dan waktu reduksi

Pertama kali, gel hasil proses TGU yang mempunyai komposisi, $UO_2(NO_3)_2$ 1M, urea 1,8 M, 1,6 g PVA, THF 2 M dan HMTA 1,8 M, dikalsinasikan pada temperatur $800^\circ C$ selama 4 jam dalam medium udara, menghasilkan kernel U_3O_8 . Setelah itu, kernel U_3O_8 dimasukkan kedalam cawan platina dan diletakkan di atas plat *inconel*, kemudian dimasukkan ke dalam tungku reduktor. Udara di dalamnya dikeluarkan dengan mengalirkan gas N_2 , lalu alat dihidupkan sampai $600^\circ C$, kemudian kernel U_3O_8 direduksi dengan gas H_2 pada tekanan 50 mmHg selama 2 jam. Selama proses reduksi terjadi reaksi antara kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam medium gas N_2 , menghasilkan kernel UO_2 . Dengan cara yang sama, percobaan diulangi pada 700, 750, 800 dan $850^\circ C$. Juga dipelajari pengaruh waktu reduksi kernel U_3O_8 dengan gas H_2 selama 1, 2, 3 dan 4 jam pada temperatur $850^\circ C$ dan tekanan 50 mmHg.

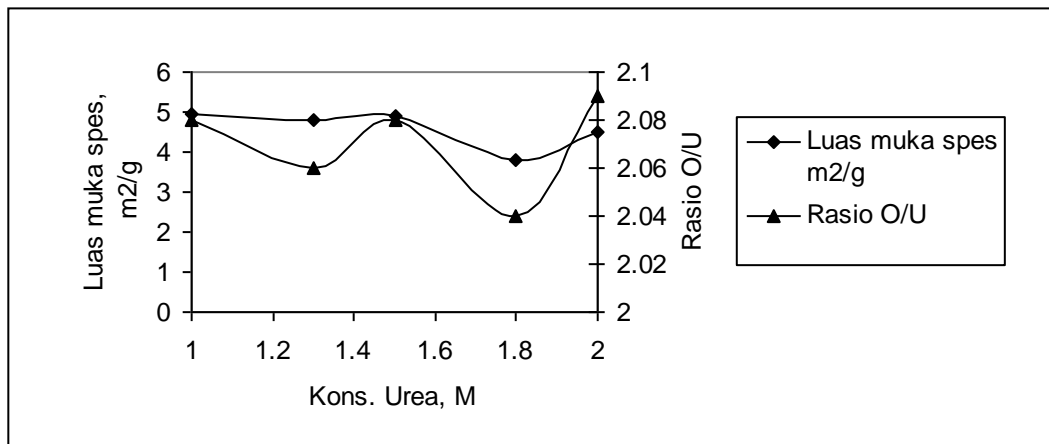
Kernel UO_2 hasil reduksi pada masing-masing temperatur dan waktu reduksi di atas dikarakterisasi kerapatannya dengan menggunakan piknometer dan larutan CCl_4 , rasio O/U dengan metode gravimetri, luas muka spesifik dan jari-jari rerata dengan surface areameter NOVA-1000 dan diameter butiran kernel UO_2 dengan mikroskop optik (MO) pada pembesaran 50 X dan mikrostruktur kernel UO_2 dengan SEM pada pembesaran 1000X.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada Tabel 1 (Lampiran) dan Gambar 1a dan b ditunjukkan pengaruh perubahan konsentrasi urea pada proses TGU terhadap perubahan luas muka spesifik, jari-jari pori rerata dan rasio O/U kernel UO_2 hasil reduksi kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam medium gas N_2 pada temperatur $850^\circ C$, tekanan 50 mmHg selama 2 jam.



Gambar 1a. Pengaruh konsentrasi urea terhadap jari-jari pori rerata kernel UO_2

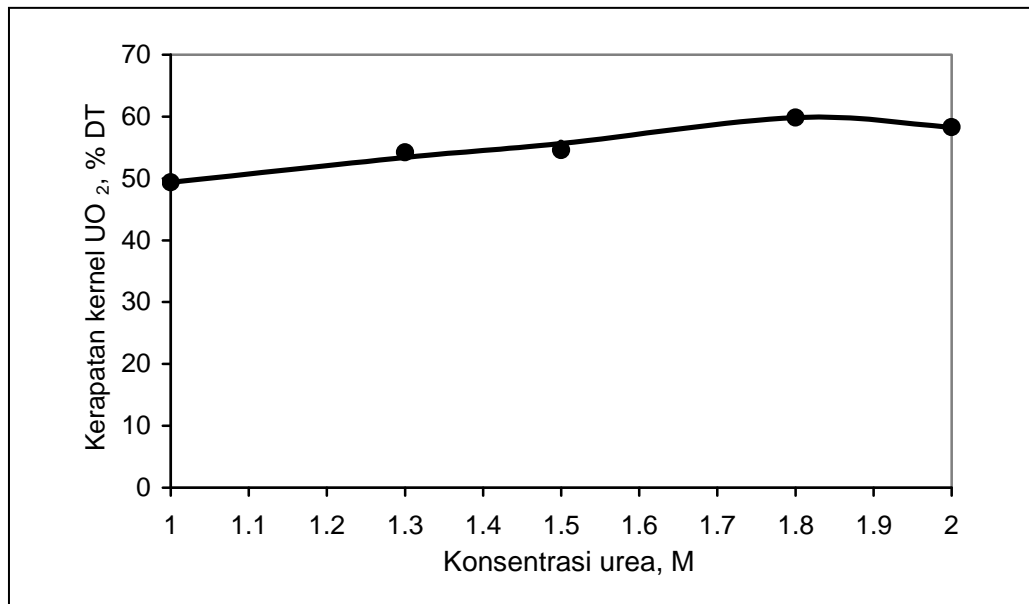


Gambar 1b. Pengaruh konsentrasi urea terhadap luas muka spesifik dan rasio O/U kernel UO₂

Terlihat bahwa perubahan konsentrasi urea 1-2 M pada proses TGU berpengaruh pada spesifikasi sifat fisis kernel UO₂. Kernel UO₂ tersebut mempunyai rasio O/U sebesar 2,04-2,09 dan luas muka spesifik dengan perbedaan kumulatif relatif kecil yaitu sebesar 3,85 %. Sedangkan jari-jari pori rerata pada kernel UO₂ mempunyai perbedaan yang signifikan. Pada konsentrasi urea, 1-1,3 M terjadi kenaikan jari-jari pori rerata dari 24,20 sampai 26,45 Å dan pada konsentrasi urea, 1,3 -1,8 M terjadi penurunan jari-jari rerata dari 26,45 Å sampai 24,69Å. Setelah itu, jari-jari pori reratanya naik kembali pada konsentrasi urea, 1,8-2M dari 24,69 Å menjadi 27,31 Å. Hal ini menunjukkan bahwa pada proses kalsinasi dan reduksi terjadi reaksi kimia dalam padatan dengan

menghasilkan gas CO₂, CO, NO₂ dan H₂O, kemudian keluar melalui permukaan padatan dengan membentuk pori-pori permukaan yang berbeda. Jika dikonversi jari-jari rerata pada kernel UO₂ sebesar 23,69-27,31Å kedalam diameter pori, menghasilkan diameter pori sebesar 47,38 Å-54,62 Å, diameter pori ini terletak dalam interval standar diameter pori sedang (*meso pore*) antara 5-500 Å⁽⁵⁾. Perbedaan analisis spesifikasi sifat fisis di atas akan berpengaruh pada perubahan kerapatan kernel UO₂ seperti pada Gambar 2.

Pada Gambar 2 ditunjukkan pengaruh konsentrasi urea pada proses TGU terhadap perubahan kerapatan kernel UO₂. Kerapatan kernel UO₂ ditentukan dari perbandingan densitas kernel UO₂ hasil analisis (Da) terhadap densitas UO₂ teoritis (DT) seperti persamaan 2.



Gambar 2. Pengaruh konsentrasi urea pada proses TGU terhadap kerapatan kernel UO_2

Catatan :

Densitas kernel UO_2 hasil analisis (Da)

$$1. \text{ Kerapatan kernel } \text{UO}_2 = \frac{\text{Densitas kernel } \text{UO}_2 \text{ hasil analisis (Da)}}{\text{Densitas Teoritis } \text{UO}_2} \times 100 \% \quad (2)$$

Densitas Teoritis UO_2

$$2. \text{ Densitas teoritis } \text{UO}_2 \text{ sebesar } 10,96 \text{ g/mL}$$

Terlihat pada Gambar 2, perubahan kerapatan kernel UO_2 dipengaruhi oleh konsentrasi urea. Pertama kali urea tersebut ditambahkan kedalam larutan uranil nitrat 1 M pada temperatur 70°C dan terurai menjadi amonia. Kemudian amonia hasil penguraian urea bersama dengan amonia hasil penguraian HMTA 1,8 M bereaksi dengan uranium dan PVA membentuk larutan sol. Setelah itu larutan sol digelasikan dalam medium NH_4OH 5 M menghasilkan gel bulat seperti bola kecil, kemudian kalsinasi pada temperatur 800°C selama 4 jam menghasilkan kernel U_3O_8 , dan direduksi dengan gas H_2 dalam medium N_2 pada temperatur 850°C , tekanan 50 mmHg selama 2 jam menghasilkan kernel UO_2 .

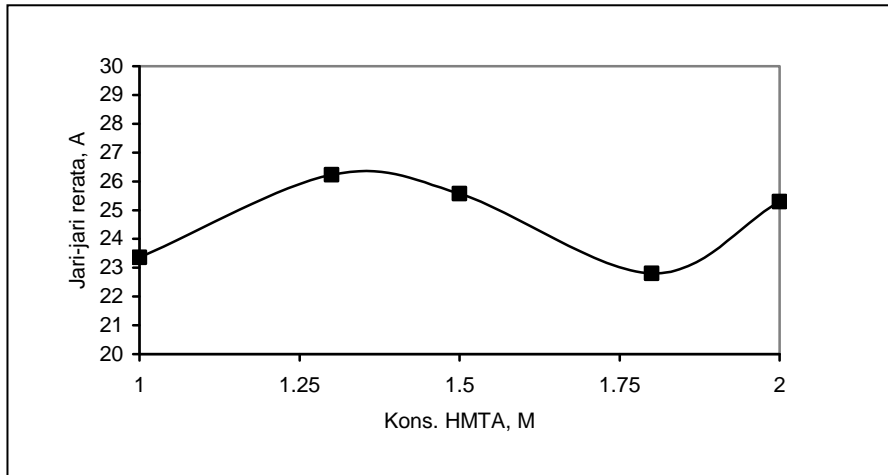
Amonia hasil penguraian urea di atas akan mempengaruhi solidifikasi dan kerapatan kernel UO_2 . Semakin besar konsentrasi urea yang ditambahkan

kedalam larutan uranil nitrat, semakin besar amonia yang dihasilkan, sehingga gel yang dihasilkan pada proses TGU semakin sempurna dan terjadi kenaikan kerapatan kernel UO_2 . Pada konsentrasi urea sebesar 1; 1,3; 1,5; 1,8 M akan terjadi kenaikan kerapatan kernel UO_2 , berturut-turut dari 49,36; 54,2; 54,56 dan 59,85% DT. Sedangkan pada konsentrasi urea 2 M, menghasilkan kelebihan amonia, sehingga dalam larutan sol tidak semua amonia tersebut bereaksi dengan uranium dan PVA. Pada proses TGU, gel yang dihasilkan mengandung kelebihan amonia, sehingga pada proses kalsinasi dan reduksi pada temperatur tinggi, gelnya mudah pecah dengan menghasilkan kernel U_3O_8 dan kernel UO_2 berpori, akibatnya terjadi penurunan kerapatan kernel UO_2 yang dihasilkan menjadi 58,30 % DT. Dari hasil analisis di atas dapat ditentukan kondisi

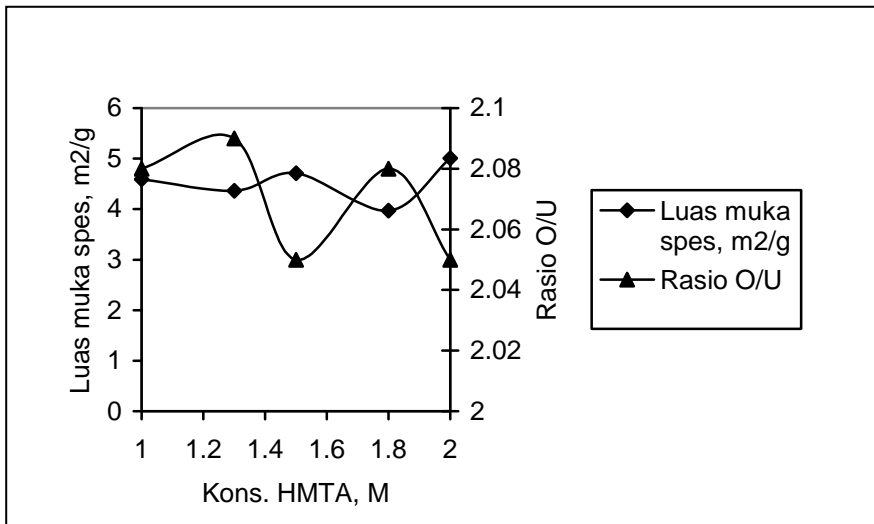
yang relatif baik yaitu pada konsentrasi urea 1,8M dan kernel UO_2 dihasilkan mempunyai kerapatan sebesar 59,85 %DT, luas muka spesifik sebesar $3,79 \text{ m}^2/\text{g}$, jari-jari pori rerata sebesar $24,69 \text{ \AA}$ dan rasio O/U sebesar 2,04.

konsentrasi HMTA yang ditambahkan ke dalam larutan sol pada temperatur ruangan terhadap perubahan luas muka spesifik, jari-jari pori rerata dan rasio O/U kernel hasil reduksi kernel U_3O_8 pada temperatur 850°C selama 2 jam.

Pada Tabel 2 (Lampiran) dan Gambar 3a-b ditunjukkan pengaruh



Gambar 3a. Data pengaruh konsentrasi HMTA terhadap , jari-jari pori rerata kernel UO_2

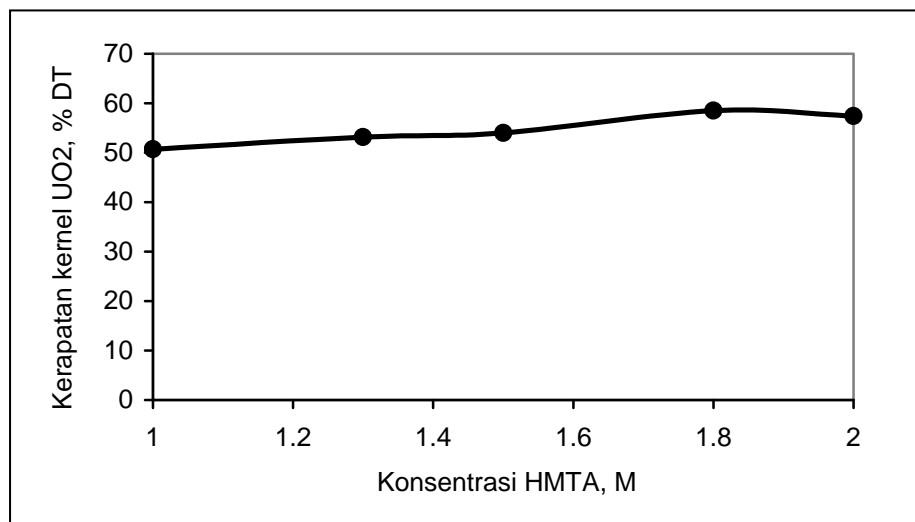


Gambar 3b. Data pengaruh konsentrasi HMTA terhadap luas muka spesifik dan rasio O/U kernel UO_2

Terlihat bahwa pada konsentrasi HMTA 1-2 M, kernel UO_2 yang dihasilkan mempunyai rasio O/U sebesar 2,05-2,09, luas muka spesifiknya mirip satu sama lain dengan perbedaan kumulatif sebesar 1,59 %, sedangkan jari-jari pori rerata pada kernel UO_2 mempunyai perbedaan yang signifikan. Pada konsentrasi HMTA 1-1,3 M terjadi kenaikan jari-jari pori-pori rerata dari 23,36Å sampai 26,23Å dan pada konsentrasi HMTA 1,3-1,8 M terjadi penurunan jari-jari pori rerata dari 26,23 Å sampai 22,80 Å. Setelah itu, jari jari pori reratanya naik kembali pada konsentrasi HMTA 1,8-2 M dari 22,80 Å sampai 25,29Å. Perubahan jari-jari pori tersebut menunjukkan bahwa selama proses

kalsinasi maupun reduksi juga terjadi reaksi kimia dalam padatan dengan menghasilkan gas CO_2 , CO, NO_2 dan H_2O , kemudian keluar melalui permukaan padatan dengan menghasilkan pori-pori yang berbeda. Konversi jari-jari pori rerata pada kernel UO_2 dari 22,80-26,23 Å menghasilkan diameter sebesar 45,60-52,46 Å, diameter ini juga terletak dalam selang interval standar meso pori seperti pada Tabel 1 (lampiran).

Perbedaan analisis spesifikasi sifat fisis di atas akan berpengaruh pada perubahan kerapatan kernel UO_2 (Gambar 4). Pada Gambar 4 ditunjukkan pengaruh konsentrasi HMTA terhadap kernel UO_2 .



Gambar 4. Pengaruh konsentrasi HMTA pada proses TGU terhadap kerapatan kernel UO_2

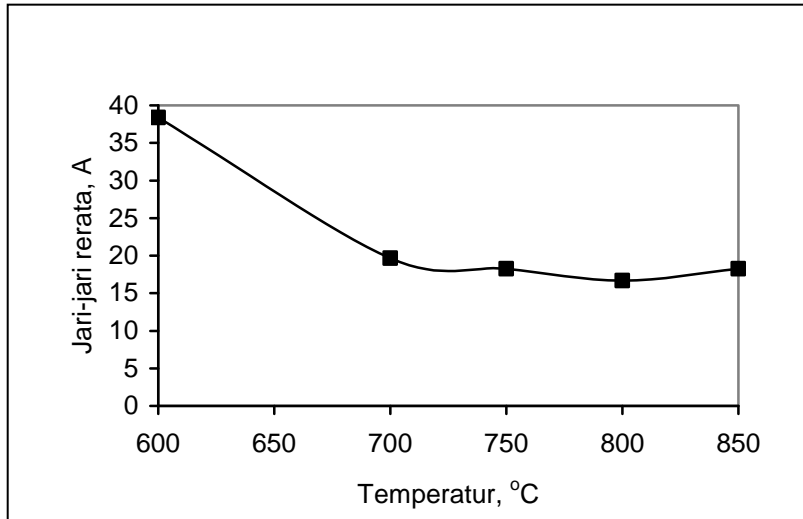
Pada proses TGU dihasilkan gel yang mengandung kelebihan amonia, sehingga pada proses kalsinasi dan reduksi di atas pada temperatur tinggi, gel mudah pecah dengan menghasilkan kernel U_3O_8 dan kernel UO_2 berpori, akibatnya terjadi penurunan kerapatan kernel UO_2 yang dihasilkan menjadi 57,39 %DT. Dari hasil

analisis di atas diperoleh kondisi relatif baik pada konsentrasi HMTA 1,8 M, kernel UO_2 yang dihasilkan mempunyai kerapatan sebesar 58,49 % DT, luas muka spesifik sebesar 3,97 m^2/g , jari-jari pori rerata sebesar 22,80 Å dan rasio O/U sebesar 2,08. Menurut Kim.Yeoku et al^[6], konsentrasi urea dan HMTA pada proses

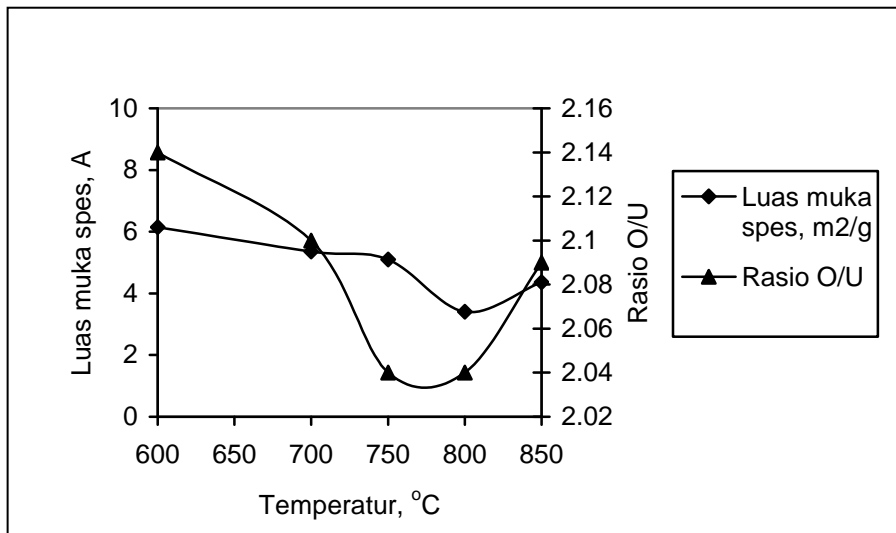
TGU paling baik adalah 2 M, mirip dengan hasil analisis seperti di atas.

Pada Tabel 3 (lampiran) dan Gambar 5a-b ditunjukkan pengaruh temperatur reduksi kernel U_3O_8 dengan gas

H_2 dalam medium gas N_2 pada tekanan 50 mmHg selama 2 jam terhadap luas muka spesifik, jari-jari pori rerata dan rasio O/U kernel UO_2 .



Gambar 5a. Data pengaruh temperatur reduksi kernel U_3O_8 terhadap jari-jari pori rerata kernel UO_2



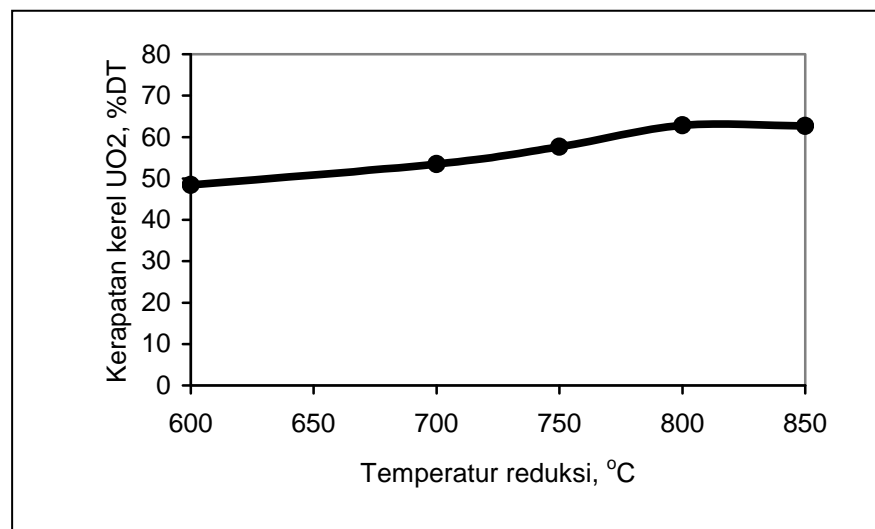
Gambar 5b. Data pengaruh temperatur reduksi kernel U_3O_8 terhadap luas muka spesifik, dan rasio O/U kernel UO_2

Terlihat bahwa perubahan temperatur reduksi kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam medium gas N_2 pada temperatur 600-800°C, tekanan 50 mmHg selama 2 jam terjadi penurunan luas muka spesifik, jari-jari pori rerata dan rasio O/U kernel UO_2 . Hal ini menunjukkan bahwa pada temperatur tersebut terjadi perubahan struktur kristal kernel UO_2 diikuti penyusutan pori-pori permukaan padatan. Sebaliknya pada temperatur 850°C terjadi

kenaikan luas muka spesifik, jari-jari pori rerata dan rasio O/U kernel UO_2 . Pada

kondisi ini terjadi pembesaran volume pori dipermukaan padatan, sehingga jumlah pori-porinya bertambah serta terjadi reoksidasi antara kernel UO_2 dengan oksigen hasil penguraian senyawa kimia dalam padatan. Perubahan sifat di atas akan berpengaruh pada kerapatan kernel UO_2 seperti terlihat pada Gambar 3.

Pada Gambar 6 ditunjukkan pengaruh temperatur reduksi kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam medium gas N_2 pada tekanan 50 mmHg selama 2 jam terhadap kerapatan kernel UO_2 .



Gambar 6. Pengaruh temperatur reduksi kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam medium gas N_2 pada tekanan 50 mmHg selama 2 jam terhadap kerapatan kernel UO_2 .

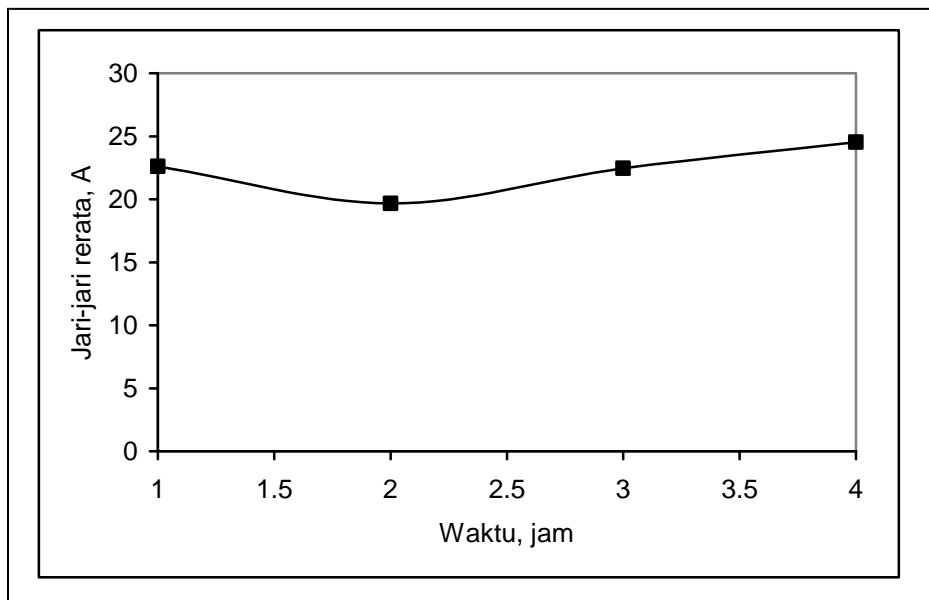
Terlihat pada Gambar 6, bahwa reduksi kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam medium gas N_2 , pada temperatur 600-800°C, tekanan 50 mmHg selama 2 jam menghasilkan kernel UO_2 dengan kerapatan berbeda. Perubahan kerapatan kernel UO_2 tersebut dipengaruhi oleh temperatur reduksi. Pada temperatur reduksi sebesar 600-800°C, senyawa kimia

dalam padatan terurai menjadi gas CO , CO_2 , NO_2 dan H_2O , kemudian keluar dari padatan dengan membentuk pori-pori permukaan berbeda. Pada reduksi kernel U_3O_8 pada temperatur 600°C pada kondisi yang sama, menghasilkan kernel UO_2 yang mempunyai pori-pori relatif besar, kemudian menyusut kembali pada temperatur 700, 750 dan 800 dan 850°C. Perubahan pori-pori padatan

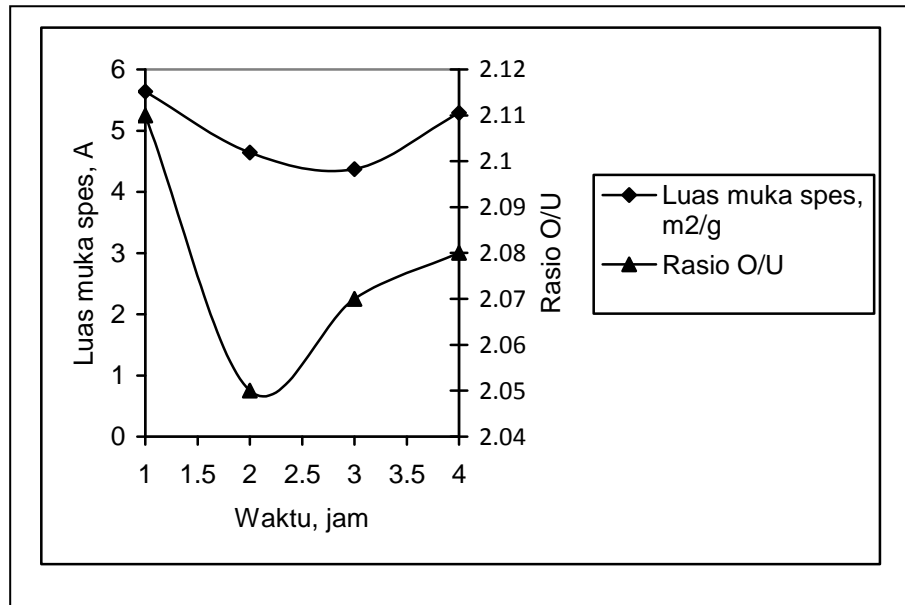
tersebut akan mempengaruhi perubahan kerapatan kernel UO_2 yang dihasilkan. Hasil analisis menunjukkan bahwa pada temperatur reduksi dari 600, 700, 750 800 dan 800 °C terjadi kenaikan kerapatan kernel UO_2 , berturut turut dari 48,45% DT; 53,47%DT, 57,66 DT; dan 62,86 %D dan 62,68 % DT. Kernel UO_2 yang dihasilkan pada temperatur 850°C mempunyai kerapatan mirip dengan kerapatan kernel UO_2 hasil reduksi pada temperatur 800°C.

Pada kondisi ini, reaksi antara kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam medium gas N_2 pada tekanan 50 mmHg selama 2 jam relatif sempurna dan kernel UO_2 yang dihasilkan stabil.

Pada Tabel 4 (lampiran) dan Gambar 7a-b ditunjukkan pengaruh waktu reduksi kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam medium gas N_2 pada temperatur 850 °C terhadap luas muka spesifik, jari-jari pori rerata dan rasio O/U kernel UO_2 .



Gambar 7a. Pengaruh waktu reduksi kernel U_3O_8 terhadap jari-jari pori rerata kernel UO_2



Gambar 7b. Pengaruh waktu reduksi kernel U_3O_8 terhadap luas muka spesifik, dan rasio O/U kernel UO_2

Terlihat bahwa perubahan waktu reduksi kernel U_3O_8 selama 1-3 jam terjadi penurunan luas muka spesifik, jari-jari pori dan rasio O/U kernel UO_2 . Sebaliknya pada waktu reduksi selama 3-4 jam terjadi kenaikan luas muka spesifik, jari-jari pori merata dan rasio O/U pada kernel UO_2 . Hal ini menunjukkan bahwa selama proses reduksi terjadi pembesaran volume pori dipermukaan padatan sehingga jumlah porinya bertambah dan terjadi reoksidasi antara kernel UO_2 dengan oksigen hasil penguraian senyawa kimia dalam padatan. Perubahan sifat fisis di atas akan berpengaruh pada kerapatan kernel UO_2 seperti pada Gambar 8.

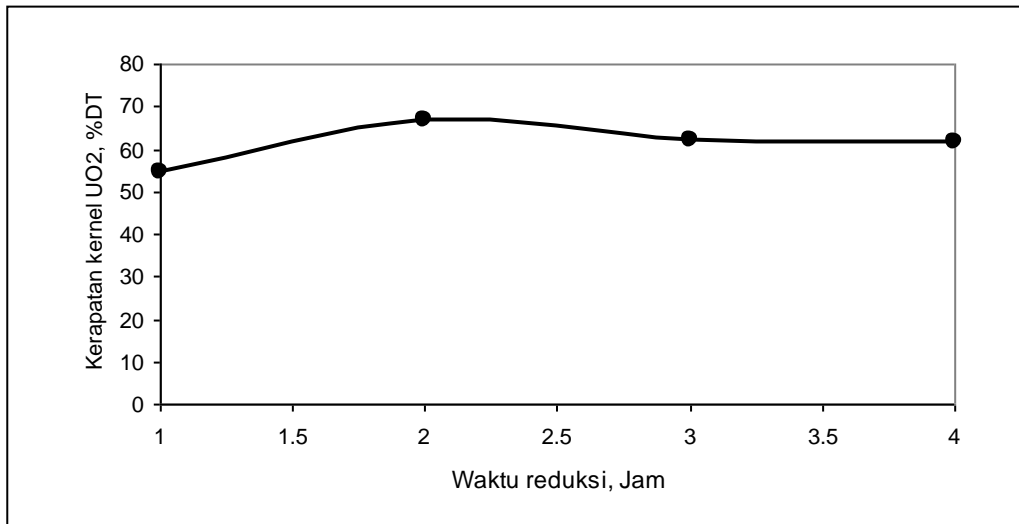
Pada Gambar 8 ditunjukkan pengaruh waktu reduksi kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam medium gas N_2 pada temperatur 850°C , tekanan 50 mmHg terhadap kerapatan kernel UO_2 . Terlihat pada Gambar 8, reduksi kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam medium gas N_2 pada temperatur 850°C , tekanan 50 mmHg selama 1-2 jam menghasilkan kernel UO_2 diikuti kenaikan kerapatannya. Seperti telah diterangkan pada Gambar 6 bahwa reduksi kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam medium

gas N_2 pada temperatur 850°C , senyawa kimia dalam padatan terurai menjadi gas-gas CO , CO_2 , NO_2 dan H_2O , kemudian keluar melalui permukaan padatan dengan membentuk pori-pori berbeda. Pada waktu reduksi selama 1 jam, gas-gas hasil

penguraian senyawa kimia seperti di atas keluar melalui permukaan padatan dengan membentuk pori relatif besar. Pada kondisi ini, belum terjadi penyusutan pori-pori padatan sehingga pori-porinya relatif besar dan karapatan kernel UO_2 yang dihasilkan sebesar 53,47 %DT. Pada waktu reduksi selama 2 jam pada kondisi yang sama, proses reduksi relatif sempurna dan terjadi penyusutan pori-pori permukaan padatan menjadi lebih kecil, sehingga kerapatan kernel UO_2 naik menjadi 66,70 %DT. Sedangkan pada waktu reduksi di atas 2 jam terjadi pembesaran volume pori permukaan (*Swelling*) sehingga jumlah pori-porinya bertambah besar. Pertambahan jumlah pori-pori padatan selama reduksi 3 jam lebih kecil dibandingkan dengan waktu reduksi selama 4 jam, akibatnya terjadi penurunan kerapatan kernel UO_2 yang dihasilkan. Penurunan kerapatan kernel UO_2 yang dihasilkan pada waktu reduksi selama

3 jam sebesar 62,23 %DT dan waktu reduksi 4 jam sebesar 61,86 %DT. Abdel-Halim et al⁽⁷⁾, mempelajari pengaruh temperatur dan waktu reduksi kernel U_3O_8 hasil proses

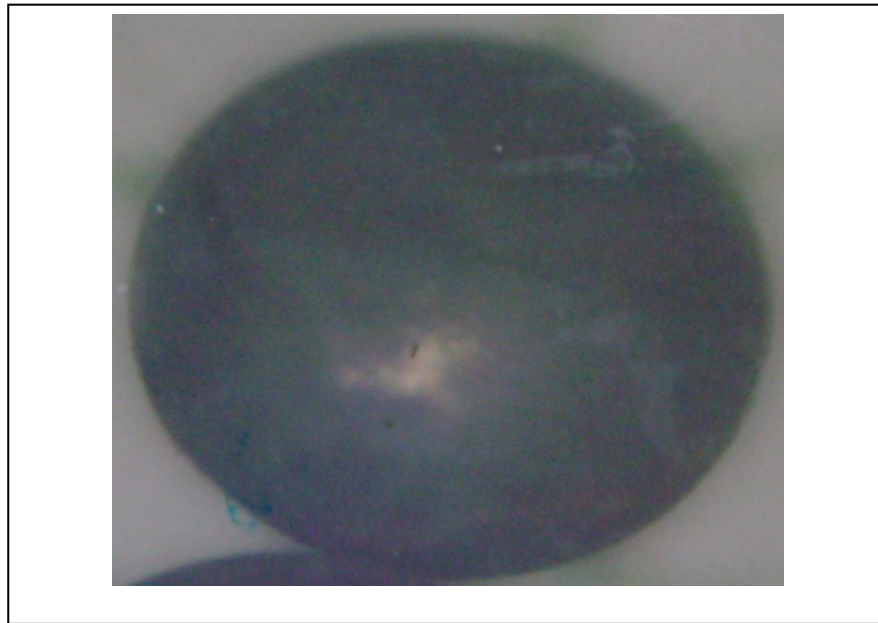
gelasi internal yang menggunakan uranil nitrat, urea dan HMTA sebagai larutan umpan gelasi, diperoleh hasil bahwa kondisi reduksi kernel oksida uranium paling baik adalah pada temperatur $800^\circ C$ selama 2 jam, juga mirip dengan analisis tersebut di atas.



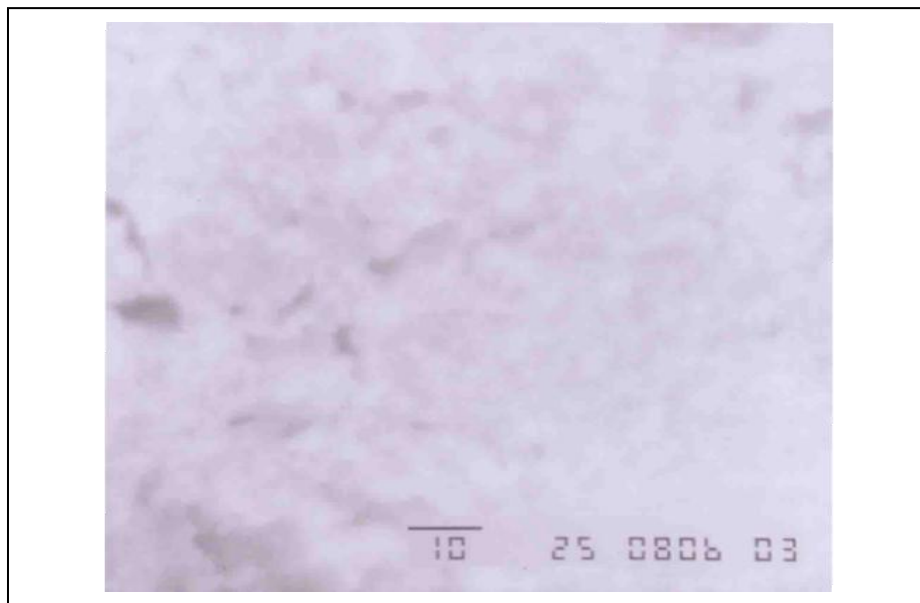
Gambar 8. Pengaruh waktu reduksi kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam medium gas N_2 pada temperatur $850^\circ C$ tekanan 50 mmHg terhadap kerapatan kernel UO_2

Pada Gambar 9 ditunjukkan bentuk permukaan butiran dan mikrostruktur kernel UO_2 hasil reduksi kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam medium gas N_2 pada temperatur $850^\circ C$, tekanan 50 mmHg selama 2 jam. Pada Gambar 9 dapat dilihat bentuk mikroskopis butiran dan mikrostruktur permukaan kernel UO_2 hasil reduksi kernel U_3O_8 tersebut yang diamati dengan mikroskop optik pada pembesaran 50 X (Gambar 9.1) dan bentuk mikrostruktur permukaan kernel UO_2 yang diamati dengan SEM pada pembesaran 1000X (Gambar 9.2). Terlihat pada Gambar 9.1, bentuk mikroskopis permukaan adalah bulat seperti bola berwarna hitam, dan pada Gambar 9.2 bentuk struktur mikro

permukaan kernel UO_2 relatif halus, tetapi terdapat sedikit pori-pori di permukaan padatan. Pori-pori permukaan tersebut terbentuk dari hasil penguraian senyawa kimia yang keluar melalui pori-pori padatan. Setelah itu, pori-pori itu menyusut kembali selama pemanasan pada temperatur tinggi pada proses reduksi. Pori kernel UO_2 tersebut dapat tertutup kembali dengan proses sintering pada $1500-1800^\circ C$ atau lebih dalam medium gas argon atau campuran H_2 dengan Argon, sehingga spesifikasinya dapat ditingkatkan ke derajat murni nuklir untuk dapat digunakan sebagai elemen bahan bakar reaktor temperatur tinggi.



Gambar 9.1. Bentuk permukaan mikroskopis kernel UO_2



Gambar 9.2. Bentuk mikrostruktur permukaan mikroskopis kernel UO_2

Di antara tahapan pembuatan bahan bakar reaktor temperatur tinggi adalah pembuatan kernel UO_2 sinter. Menurut Teddy et al⁽⁸⁾, salah satu persyaratan senyawa UO_2 (serbuk atau kernel) hasil reduksi untuk dapat digunakan sebagai bahan dasar pembuatan UO_2 sinter dan bahan bakar UO_2 adalah mempunyai densitas sebesar 40-75 %DT, luas muka spesifik 3-7 m^2/g dan rasio O/U 2,05-2,1. Pada percobaan di atas terlihat bahwa kernel UO_2 yang dihasilkan mempunyai mikrostruktur permukaan halus, kerapatan sebesar 58,45 - 66,70 % DT, luas muka spesifik sebesar 3,97-4,79 m^2/g , jari-jari pori rerata sebesar 16,69-24,69 Å dan rasio O/U sebesar 2,04-2,09, yang dihasilkan pada konsentrasi urea 1,8 M dan HMTA 1,8 M, temperatur reduksi 800-850°C dan waktu reduksi 2 jam, mirip dengan laporan di atas. Maka dapat dipahami bahwa proses TGU dapat digunakan sebagai metode alternatif untuk pembuatan kernel UO_2 . Kernel uranium oksida yang dihasilkan memenuhi persyaratan sebagai bahan dasar untuk pembuatan bahan bakar nuklir terutama untuk bahan bakar reaktor temperatur tinggi.

SIMPULAN

Dari hasil percobaan dan pembahasan di atas, dapat disimpulkan bahwa proses gelas total uranium (TGU) dapat digunakan sebagai metode alternatif untuk pembuatan kernel UO_2 , menggunakan $UO_2(NO_3)_2$, urea, HMTA, PVA dan THF sebagai bahan dasar serta NH_4OH sebagai larutan medium. Perubahan konsentrasi aditif urea dan HMTA serta temperatur dan waktu reduksi berpengaruh terhadap spesifikasi kernel UO_2 . Kondisi relatif baik (optimum) diperoleh pada konsentrasi urea 1,8 M dan HMTA 1,8 M, temperatur reduksi 800-850°C dan waktu reduksi 2 jam. Kernel UO_2 yang dihasilkan mempunyai mikrostruktur permukaan halus,

kerapatan sebesar 58,48-66,70 %DT, luas muka spesifik sebesar 3,97-4,79 m^2/g , jari-jari pori rerata sebesar 16,69-24,69 Å dan rasio O/U sebesar 2,04-2,09.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan banyak terima kasih kepada Staf Bidang Kimia dan Teknologi Proses Bahan-PTAPB yang telah banyak membantu hingga penelitian ini dapat diselesaikan.

DAFTAR PUSTAKA

1. ION SUE., NICHOLLS DAVID., MATZE RENGIS and MATZNER DIETER, " *Pebble Bed Modular Reactor the First Generation IV Reactor to be Constructed,*" Word nuclear association annual symposium (2003) 1-16.
2. KITAMURA N, WATARUMI K., SATA K, "(Nuclear fuel industries Ltd, Naka Ibaki Japan); SAWA K., SHIOZAWA S and TANAK T (Japan Atomic Energy Research Inst., Oari, Ibaki Japan)" Present status initial core fuel fabrication for HTR", Article in IAEA-TECDOC-988: Vienna (2003) 373 -383.
3. FU XIAOMING, LIANG TONGIANG, TANG YAPING, XU ZHICHANG AND TANG CHUBE, " *Preparation of UO_2 Kernel for HTR-10 Fuel Element,* Journal of Nuclear Science and Technology, Vol 41, 9 (2004) 943-948.
4. DAMUNIR, "Kajian Pengaruh aditif urea dan heksa metilen tetra amin pada proses pengendapan gelas total uranium terhadap sifat kimia gel Poli (uranat-vinil alkohol)", Prosiding PPI-PDIPTN Pustek Akselerator dan Proses Bahan-BATAN (2007) 74-81.

5. GREGG, S. J., SING, K.S.W., "Adsorption, Surface area and Porosity" Second edition, Academic Press Ins. (London) Ltd (1982) 25 - 150.
6. KIM YEOKU., JEONG KYUNG CHAI., OH SEUNG CHUL., CHO MOONSUNG., NA SANG HO., LEE YOUN WOO., CHANG WHA., "A Basic Study on Spherical UO_2 kernel Preparation Using the Sol-Gel Method", Journal of the Korean ceramic society, Vol 42, 9 (2005) 1-13
7. ABDEL- HALIM, A.S., AFIFIC, Y. K and EL-ADHAM. K.A., " Fabrication of UO_2 Microsphere by Hydrolysis Process", Powder Metallurgy International, Vol 19, 5 (1987) 22- 26
8. TEDDY S. GRON., VIRGENIA B. CARES., HERBERL L. LERNER., " Solid State Communications", Pergamon Press, Great Britain, vol.5, (1964) 349-352.

LAMPIRAN

Tabel 1. Data pengaruh konsentrasi urea terhadap luas muka spesifik, jari-jari pori rerata dan rasio O/U kernel UO_2

Urea (M)	Luas muka spesifik (m^2/g)	Jari-jari rerata (Å)	Rasio O/U
1,0	4,94	24,20	2,08
1,3	4,81	26,45	2,06
1,5	4,89	23,69	2,08
1,8	3,79	24,69	2,04
2,0	4,50	27,31	2,09

Tabel 2. Data pengaruh konsentrasi HMTA terhadap luas muka spesifik, jari-jari pori rerata dan rasio O/U kernel UO_2

HMTA (M)	Luas muka spesifik (m^2/g)	Jari-jari pori rerata (Å)	Rasio O/U
1,0	4,59	23,36	2,08
1,3	4,36	26,23	2,09
1,5	4,71	25,57	2,05
1,8	3,97	22,80	2,08
2,0	5,01	25,29	2,05

Tabel 3. Data pengaruh temperatur reduksi kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam médium gas N_2 pada tekanan 50 mmHg terhadap luas muka spesifik, jari - jari pori rerata dan rasio O/U kernel UO_2

Temperatur Reduksi ($^{\circ}C$)	Luas muka spesifik (m^2/g)	Jari-jari pori rerata (Å)	Rasio O/U
600	6,15	38,38	2,14
700	5,36	19,66	2,10
750	5,10	18,24	2,04
800	3,41	16,69	2,04
850	4,36	18,24	2,09

Tabel 4. Data pengaruh waktu reduksi kernel U_3O_8 dengan gas H_2 dalam medium gas N_2 pada temperatur 850 $^{\circ}C$ dan tekanan 50 mmHg terhadap luas muka spesifik, jari-jari pori rerata dan rasio O/U kernel UO_2

Waktu (jam)	Luas muka spesifik (m^2/g)	Jari-jari pori rerata (Å)	Rasio O/U
1	5,64	22,61	2,11
2	4,64	19,66	2,05
3	4,37	22,46	2,07
4	5,29	24,54	2,08