
IDENTIFIKASI FASA PELET BAHAN BAKAR U-ZrH_x HASIL PROSES *SINTER* DENGAN ATMOSFER NITROGEN

Masrukan¹, Jan Setiawan¹, Dwi Biyantoro²

¹Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-BATAN

Kawasan Puspiptek Serpong Gd.20, Tangerang Selatan, Banten 15314

²Pusat Sains dan Teknologi Akselerator-BATAN

Jl. Babarsari Yogyakarta 55281

e-mail: masrukan@batan.go.id

(Naskah diterima: 14-09-2017, Naskah direvisi: 26-10-2017, Naskah Disetujui: 29-10-2017)

ABSTRAK

IDENTIFIKASI FASA PADA PELET BAHAN BAKAR U-ZrH_x HASIL PROSES *SINTER* DENGAN ATMOSFER NITROGEN. Identifikasi fasa bahan bakar pelet U-ZrH_x hasil proses *sintering* dengan atmosfer nitrogen telah dilakukan. Proses *sintering* bertujuan untuk mendapatkan pelet yang mempunyai densitas lebih tinggi sehingga memenuhi persyaratan untuk digunakan sebagai bahan bakar *Pressurized Water Reactor* (PWR). Hasil penelitian ini dapat digunakan untuk mengetahui perubahan fasa dan densitas pelet U-ZrH_x pada berbagai konsentrasi Zr setelah dikenakan proses *sintering* pada berbagai temperatur. Bahan bakar U-ZrH_x untuk PWR dibuat berbentuk pelet dan perlu disinter untuk menaikkan densitasnya. Mula-mula dibuat pelet dari serbuk U-ZrH_x dengan komposisi Zr berturut-turut sebesar 35, 45 dan 55 %berat melalui proses pengepresan pada tekanan 509-637 MPa. Pelet U-ZrH_x mentah disinter dalam suasana gas nitrogen pada temperatur 1200 °C dan 1300 °C dengan waktu sinter dibuat tetap selama satu jam. Pelet U-ZrH_x sinter dianalisis fasanya menggunakan teknik difraksi sinar-X (XRD) dan data yang diperoleh dievaluasi menggunakan *software HighScore Plus*. Hasil pengolahan data menunjukkan terbentuknya fasa seperti fasa U(ZrH₂), UO₃, UO₂, dan Zr. Fasa UO₂, dan Zr kemudian dianalisis karakteristiknya seperti densitas, parameter kisi dan persentase beratnya. Hasil penelitian ini diharapkan diperoleh U-ZrH_x yang mempunyai densitas tinggi tanpa terbentuknya banyak fasa. Hasil pengujian densitas menunjukkan bahwa logam zirkonium dan oksida UO₂ mengalami penurunan densitas apabila temperatur *sintering* dinaikkan dari 1200 °C menjadi 1300 °C. Densitas total tertinggi diperoleh pada pelet U-55ZrH_x yang disinter pada temperatur 1200 °C yakni sebesar 8,9187 g/cm³. Dari hasil analisis komposisi menunjukkan bahwa persentase logam zirkonium maupun uranium dioksida mendekati persentase yang direncanakan apabila pelet disinter pada temperatur 1300 sedangkan parameter kisinya mengalami kenaikan. Sementara itu dari perhitungan persen berat diperoleh logam zirkonium maupun uranium dioksida mempunyai persen berat yang sesuai dengan perhitungan teoritis bila disinter pada temperatur 1300 °C.

Kata kunci: *sintering*, pelet U-ZrH_x, fasa, atmosfer, nitrogen.

ABSTRACT

PHASES IDENTIFICATION OF U-ZrH_x FUEL PELLET SINTERED UNDER NITROGEN ATMOSPHERE. Phases identification of U-ZrH_x fuel pellets sintered under nitrogen atmosphere has been carried out. This sintering process is intended to obtain higher density pellets that meet the requirements for use as a fuel in pressurized water reactor (PWR). The results of this study are expected to be used for the determination of phase and density changes occurred in U-ZrH_x pellets at various Zr concentrations after sintering at various temperatures. PWR fuel from U-ZrH_x pellet needs to be sintered to increase its density. At first, pellets made from U-ZrH_x powder with Zr composition of 35, 45 and 55 wt.% through a pressing process at a pressure of 509-637 MPa. The resulted U-ZrH_x green pellets were subsequently sintered under nitrogen gas atmosphere at 1200 °C and 1300 °C for a fixed sintering time of one hour. Phase analysis of the sintered U-ZrH_x pellets was done by X-ray diffraction (XRD) technique and the data obtained were processed by using HighScore Plus software. The test results with XRD indicate the formation of phases such as U(ZrHr₂), UO₃, UO₂, and Zr. The UO₂ and Zr phases were characterized for their density, lattice parameter and percentage of weight. In this experiment it is desired to obtain U-ZrH_x with high density without the formation of many phases. Density measurement shows that the density of zirconium metal and UO₂ decreases with increasing sintering temperature (from 1200 °C to 1300 °C), while the lattice parameter increases with increasing sintering temperature. Data calculation of weight percentage for sintering at 1300 °C shows that the percentage values of the resulted zirconium metal and uranium dioxide are the closest to their theoretical calculation results.

Keywords: sintering, U-ZrH_x pellet, phase, atmosphere, nitrogen

PENDAHULUAN

Bahan bakar reaktor daya dapat berbentuk uranium oksida (UO_x), paduan logam dengan uranium oksida serta logam dengan logam hidrida. Pengembangan dan penelitian (litbang) bahan bakar nuklir di Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBBN) bertujuan untuk mendapatkan bahan bakar berdensitas tinggi. Bahan bakar yang sedang dikembangkan untuk bahan bakar reaktor nuklir adalah paduan U-ZrH_x. Tipe bahan bakar U-ZrH_x terdiri dari uranium zirkonium hidrida dan logam uranium yang terdispersi. Bahan bakar nuklir U-ZrH_x mempunyai keunggulan karena hidrogen dapat berfungsi sebagai moderator langsung dalam bahan bakar. Selain itu, reaktor nuklir memungkinkan dapat dioperasikan pada temperatur relatif tinggi hingga 750 °C dan memiliki sifat termal lebih baik dari pada bahan bakar jenis keramik[1]. Selain itu, penggunaan bahan bakar U-ZrH_x memiliki nilai ekonomis yang baik bila dibandingkan dengan jenis bahan bakar lainnya, seperti bahan bakar UO₂ keramik. Keunggulan bahan bakar uranium hidrida memiliki dampak langsung terhadap nilai ekonomis. Bahan bakar nuklir berbasis U-Zr juga dapat digunakan sebagai bahan bakar pada reaktor cepat berpendingin sodium (*Sodium Cooled Fast Reactor*, SFR). Hal ini terkait dengan siklus bahan bakar tertutup untuk menangani sejumlah kecil unsur aktinida dan mengurangi jumlah bahan bakar nuklir bekas. Bahan bakar logam U-Zr memiliki beberapa keunggulan antara lain proses fabrikasi yang sederhana, ekonomi neutron baik, konduktivitas termal yang baik, kompatibilitas antara pendingin sodium dengan bahan bakar baik dan keselamatan pasif yang melekat[2]. Dari pengalaman beberapa peneliti tentang pengoperasian SFR di seluruh dunia dapat mengindikasikan bahwa rancangan bahan bakar logam yang ada dimasa lalu tidak dapat beroperasi dengan handal pada temperatur tinggi. Namun *statement* ini dapat dibantahkan

dengan perkembangan teknologi bahan bakar nuklir yang didukung oleh pengalaman beberapa peneliti bahan bakar di dunia. Sejak tahun 1990 diketahui bahwa penggunaan bahan bakar paduan U-Zr dan U-Pu-Zr telah berjalan dan dapat diakui sebagai bahan bakar nuklir logam yang menjanjikan dalam konsep SFR. Paduan logam U-Zr kaya dengan U dan unsur Zr memiliki penampang neutron termal rendah sehingga menjadi perhatian para peneliti untuk membuat paduan U-ZrH_x sebagai bahan bakar reaktor daya rendah maupun reaktor riset. Selain itu, paduan U-Zr memiliki ketahanan korosi dan stabilitas radiasi yang sangat baik selama siklus termal[3].

Bahan bakar U-ZrH_x dibuat dari serbuk U-ZrH_x melalui teknik metalurgi serbuk, dimana serbuk U-ZrH_x dipadatkan untuk membentuk pelet dan selanjutnya dikenakan dengan proses *sintering*. Proses pengepresan atau pemadatan adalah suatu teknik untuk memasukkan serbuk ke dalam bentuk yang diinginkan. Ada beberapa teknik pengompakan yaitu pengompakan dingin (*cold compaction*) dan pengompakan panas (*hot compaction*)[4]. Pengompakan serbuk U-ZrH_x dilakukan untuk membuat serbuk U-ZrH_x menempel satu dengan lainnya sebelum diperbaiki ikatannya melalui proses *sintering*. Dalam proses pembuatan paduan dengan teknik metalurgi serbuk, ikatan antar serbuk merupakan hasil *interlocking* antara permukaan, interaksi gaya adhesi dan kohesi serta berbagai difusi di permukaan[4]. Keuntungan dari sifat fisik dari produk yang dibuat dengan teknik metalurgi serbuk adalah densitas, dimana besaran densitas menunjukkan rasio massa terhadap volume. Densitas teoritis dapat dihitung dengan menggunakan rumus persamaan 1 [5,6].

$$\rho_c = \rho_m \cdot U_{fm} + \rho_p \cdot U_{fp} \quad (1)$$

dengan ρ_c = paduan densitas; ρ_m = densitas bahan utama (matriks); u_{fm} = fraksi volume

matriks; ρ_p = fraksi volume matriks dan u_p = fraksi volume bahan paduan.

Pembuatan bahan bakar U-ZrH_x dimulai dari pembuatan serbuk U-ZrH_x yang dilanjutkan dengan pembuatan pelet dan dilakukan karakterisasi setiap produk sampai produk akhir dari proses *sintering*. Karakterisasi dilakukan untuk mendapatkan pelet yang memiliki karakter yang lebih baik sehingga diperoleh bahan bakar yang sempurna sesuai dengan spesifikasi dan persyaratan yang telah ditetapkan[7]. Proses *sintering* bertujuan untuk mendapatkan pelet yang memiliki densitas lebih tinggi sehingga memenuhi persyaratan untuk digunakan sebagai bahan bakar pada *Pressurized Water Reactor* (PWR). Bahan bakar U-ZrH_x yang disinter dapat mencapai densitas tinggi selama proses *sintering* karena terjadi reaksi antara partikel untuk saling mendekat dan membuat ikatan bersama serta porositas bahan bakar berkurang yang menyebabkan kerapatan bahan bakar menjadi lebih tinggi.

Densitas dan porositas dari U-ZrH_x merupakan dua parameter yang saling mempengaruhi, dimana densitas bahan yang mempunyai porositas tinggi akan lebih rendah dibandingkan dengan bahan yang mempunyai porositas rendah, demikian pula sebaliknya[6]. Proses *sintering* merupakan satu tahap dalam proses sintesis bahan bakar U-ZrH_x dan merupakan tahap yang sangat penting. Proses perlakuan panas terhadap serbuk atau padatan di bawah temperatur titik leleh atau pada temperatur pelunakan dari unsur utamanya dapat meningkatkan kekuatan. Proses *sintering* dilakukan di dalam tungku sinter dengan atmosfer *inert* (gas nitrogen atau argon) untuk mencegah pengaruh oksida dari tungku sinter. Area kontak merupakan area ketidakstabilan yang menghasilkan efek kristalisasi. Istilah *sintering* digunakan untuk mengekspresikan fenomena yang terjadi pada produk berbahan baku serbuk, baik logam maupun non logam. Proses *sintering* biasanya digunakan pada sampel uji yang diproses pada temperatur tinggi. Kumpulan

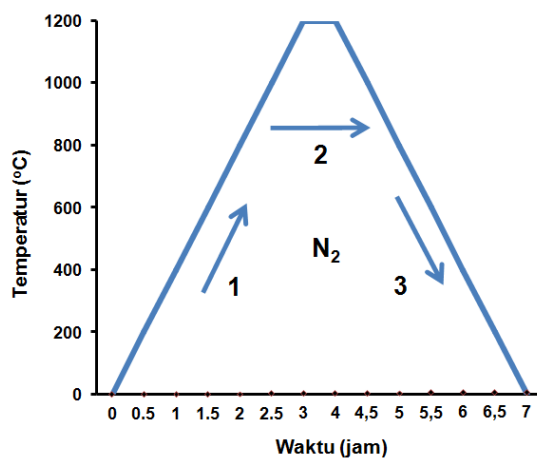
partikel dengan ukuran beberapa mikron dengan diameter lebih kecil dipanaskan sampai temperatur antara $\frac{1}{2}$ hingga $\frac{3}{4}$ dari titik leburnya, berada dalam orde menit selama proses perlakuan ini partikel disatukan[7]. Proses *sintering* dipengaruhi oleh beberapa faktor seperti temperatur, waktu, dan luas permukaan serbuk[8]. Proses *sintering* dilakukan pada temperatur 1200 °C dan 1300 °C dan waktu *sintering* diperahankan tetap selama 1 (satu) jam. Pemilihan temperatur *sintering* didasarkan kepada keadaan temperatur bahan yang berada pada temperatur di bawah titik lelehnya. Proses *sintering* akan menghasilkan pelet sinter dengan densitas tinggi dan hal ini menyebabkan terjadinya perubahan fasa sebagai akibat hasil interaksi antara uranium dengan zirkonium akibat pemanasan pada temperatur 1200 °C dan 1300 °C.

Hasil penelitian ini dapat digunakan untuk mengetahui perubahan fasa dan densitas pelet U-ZrH_x pada berbagai konsentrasi Zr setelah mengalami proses *sintering* pada temperatur 1200°C dan 1300°C. Apabila perubahan konsentrasi Zr dan dampak perlakuan *sintering* diketahui, maka parameter-parameter optimal untuk perancangan suatu bahan bakar berbentuk pelet dapat ditentukan sehingga pada akhirnya diperoleh bahan bakar yang mempunyai densitas tinggi dengan karakteristik yang cukup baik.

METODOLOGI

Pelet U-ZrH_x dibuat dari paduan serbuk U-35ZrH_x, U-45ZrH_x dan U-55ZrH_x yang dipadatkan menggunakan mesin *press* pada tekanan antara 509-637 MPa. Serbuk U-ZrH_x diperoleh dari proses *hidriding* ingot paduan U-Zr. Proses *hidriding* dilakukan pada temperatur 350 °C dengan tekanan *vaccum* sebesar 10⁻³ torr. Hasil pengepresan diperoleh pelet U-35ZrH_x, U-45ZrH_x dan U-55ZrH_x dengan diameter 10 mm dan tinggi 9 mm. Pelet U-ZrH_x tersebut selanjutnya

dimasukkan ke dalam tungku sinter yang dapat beroperasi maksimum hingga temperatur 1400 °C, kemudian gas N₂ dimasukkan ke dalam tungku untuk mengusir oksigen yang ada di dalam tungku. Gas N₂ dialirkan sekitar ½ jam, selanjutnya tungku sinter dioperasikan hingga mencapai temperatur yang diinginkan yaitu sebesar 1200 °C dan 1300 °C selama 1 jam. Selama proses *sintering*, gas N₂ tetap mengalir ke dalam tungku untuk mendorong oksigen yang berada di dalam tungku dengan tujuan mencegah kontak antara oksigen dengan hidrogen yang dapat menyebabkan ledakan. Proses *sintering* selesai, pelet dikeluarkan dari dalam tungku sinter dan dilakukan karakterisasi fasa dengan menggunakan difraksi sinar-X (XRD), sedangkan analisis kristalografi menggunakan program *High Score Plus*. Skema proses *sintering* ditampilkan pada Gambar 1.



Gambar 1. Skema proses *sintering*[9]

Keterangan :

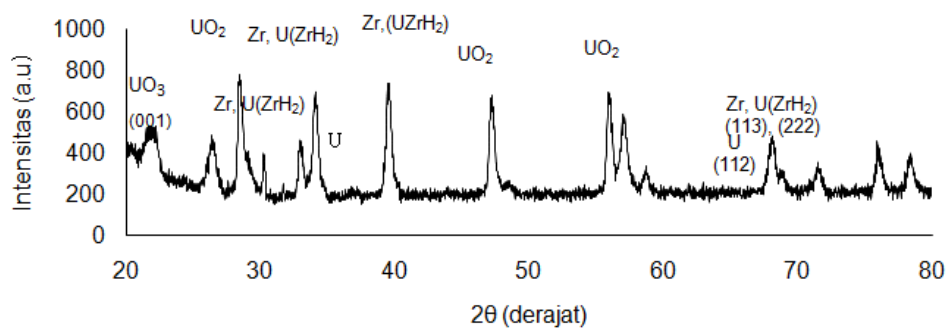
1. Gas N₂ masuk selama temperatur dari temperatur kamar hingga temperatur *sintering* (dalam contoh 1200 °C).

2. gas N₂ masuk selama temperatur *sintering* (dalam contoh 1200 °C).
3. gas N₂ masuk selama temperatur turun dari 1200 °C hingga temperatur kamar.

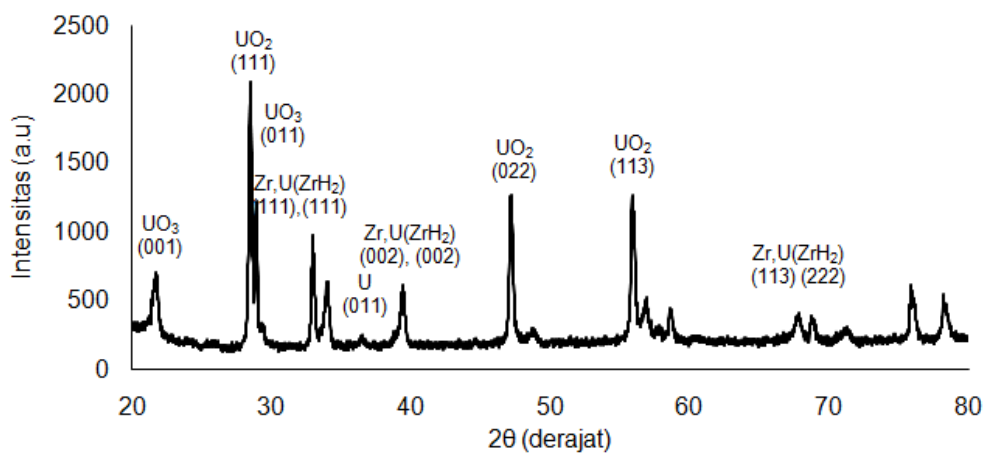
HASIL DAN PEMBAHASAN

a. Analisis Fasa

Hasil analisis difraksi sinar-X pelet sinter ditunjukkan pada Gambar 2 sampai dengan 4, dan Tabel 1 dalam Lampiran. Hasil karakterisasi menunjukkan diperoleh adanya fasa U(ZrH₂) yang merupakan fasa utama dalam paduan U-35ZrH_x, U-45ZrH_x dan U-55ZrH_x. Selain itu, terdapat pula senyawa oksida UO₃ dan UO₂ yang merupakan hasil reaksi antara pelet paduan U-35ZrH_x, U-45ZrH_x dan U-55ZrH_x dengan oksigen. Oksida UO₃ adalah senyawa yang tidak stabil dan akan berubah menjadi oksida uranium U₃O₈ yang lebih stabil[10]. Proses *sintering* juga menghasilkan oksida UO₂ dan merupakan hasil reaksi antara logam U dengan oksigen. Senyawa oksida UO₂ merupakan hasil proses *sintering* pelet U-35ZrH_x, U-45ZrH_x dan U-55ZrH_x yang dilakukan pada temperatur 1200 °C dan 1300 °C. Selain oksida uranium, proses *sintering* juga menghasilkan logam Zr yang merupakan pelepasan dari senyawa U-ZrH_x. Logam Zr terdapat dalam pelet U-35ZrH, U-45ZrH_x dan U-55ZrH_x yang disinter pada temperatur pada temperatur 1200 °C dan 1300 °C seperti ditunjukkan pada Gambar 2 hingga 4. Terlihat bahwa pada temperatur tinggi 1200 °C dan 1300 °C, ikatan antara Zr dengan logam U serta hidrogen terputus. Hal ini berarti bahwa energi yang dibutuhkan untuk melepaskan kedua ikatan tersebut telah terlampaui.



(a)

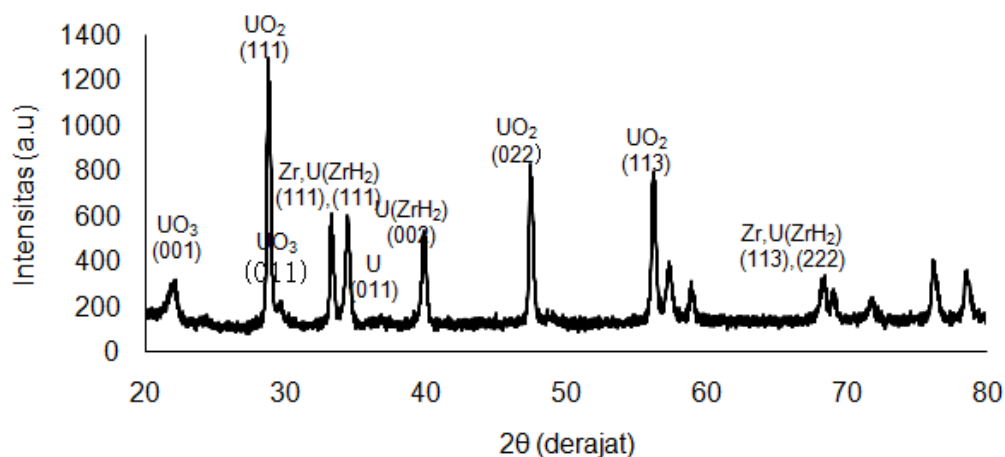


(b)

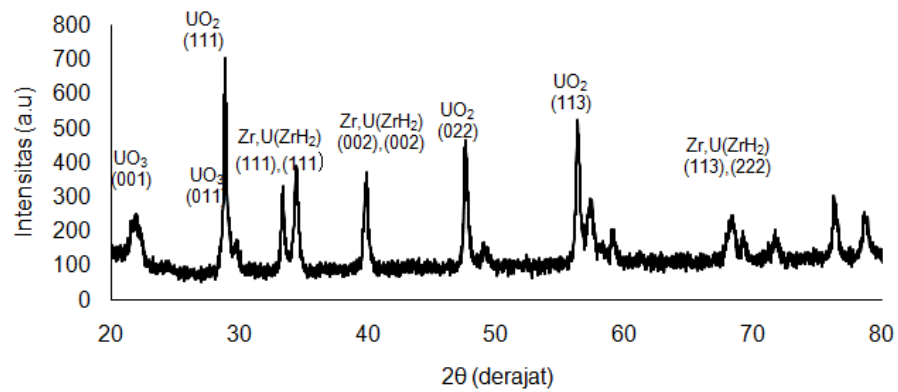
Gambar 2. Pola difraksi pelet sinter paduan U-35ZrH_x

(a). 1200 °C

(b). 1300 °C



(a)

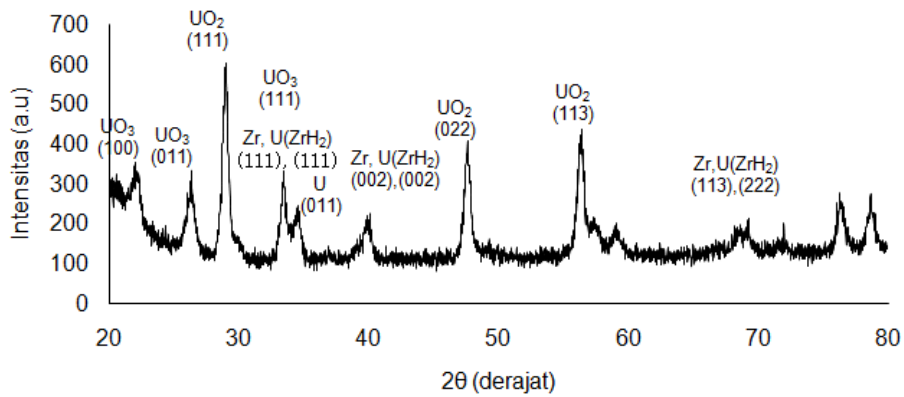


(b)

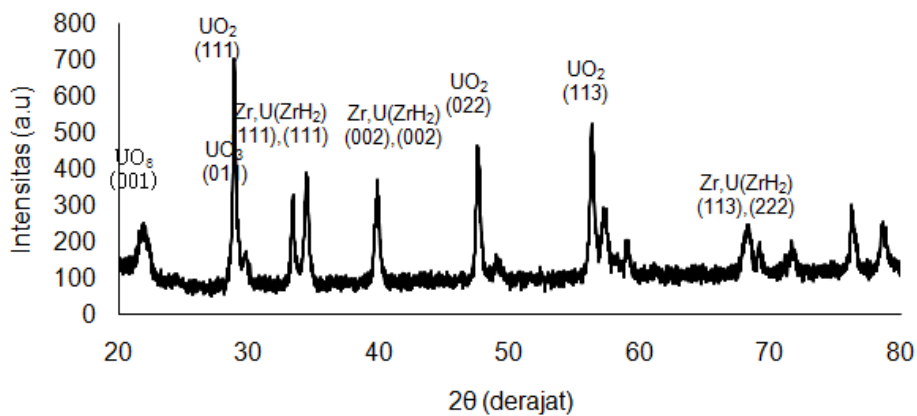
Gambar 3. Pola difraksi pelet sinter paduan U-45ZrH_x

(a). 1200 °C

(b). 1300 °C



(a)



(b)

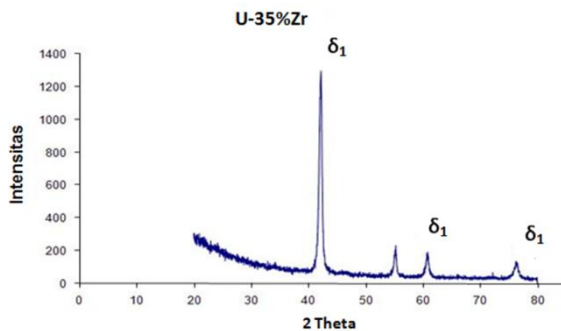
Gambar 4. Pola difraksi pelet sinter paduan U-55ZrH_x

(a). 1200 °C

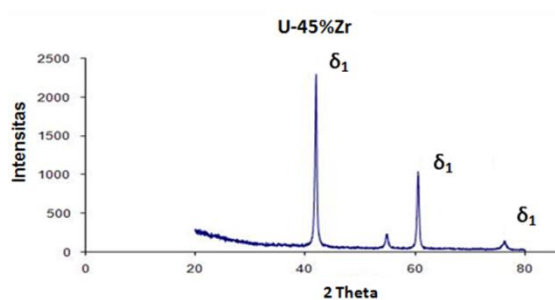
(b). 1300 °C

Adanya senyawa UO_3 dan UO_2 disebabkan oleh penanganan sampel uji sebelum dimasukkan di dalam tungku sinter, dimana sampel berada di dalam ruang terbuka sehingga mengalami oksidasi. Berdasarkan hasil pengujian pelet U-35ZrH_x, U-45ZrH_x, U-55ZrH_x sebelum disinter dalam penelitian sebelumnya, ditemukan bahwa ketiga pelet didominasi oleh fase $\delta(ZrH_2)$ dan $\alpha-U$, dimana kadar Zr yang lebih tinggi dapat meningkatkan kandungan $\delta(ZrH_2)$ [11].

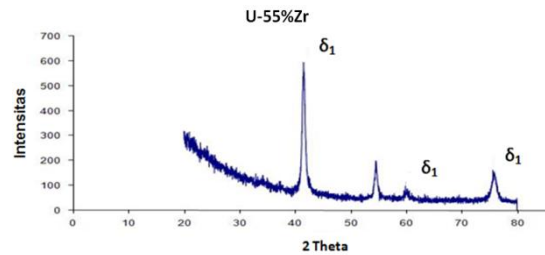
Gambar 5 hingga 7 menampilkan kurva hubungan antara intensitas dengan sudut 2θ untuk pelet U-35Zr, U-45Zr dan U-55Zr sebelum disinter menunjukkan keberadaan fasa $\delta(ZrH_2)$. Apabila kandungan Zr semakin besar maka fasa $\delta(ZrH_2)$ menjadi semakin besar. Fasa $\delta(ZrH_2)$ terbentuk pada sudut 2θ berturut-turut sebesar 42° , 60° dan 76° untuk pelet paduan U-35ZrH_x dan U-45Zr sedangkan untuk pelet paduan U-55ZrH_x terbentuk pada sudut 2θ sebesar $28,3646^\circ$; $47,1684^\circ$; dan $55,8464^\circ$. Fasa $\delta(ZrH_2)$ merupakan fasa yang terbentuk antara U dengan Zr setelah melampaui batas kelarutan Zr di dalam U.



Gambar 5. Pola difraksi palet U-35ZrH_x, sebelum disinter[11]



Gambar 6. Pola difraksi palet U-45ZrH_x, sebelum disinter[11]



Gambar 7. Pola difraksi palet U-55ZrH_x, sebelum disinter[11]

Memperhatikan pola difraksi antara pelet U-35ZrH_x, U-45ZrH_x dan U-55ZrH_x sebelum dan setelah disinter terlihat bahwa pelet sebelum disinter tidak diperoleh adanya oksida UO_2 , UO_3 dan logam Zr sedangkan setelah disinter terbentuk oksida UO_2 , UO_3 dan logam Zr. Hal ini menunjukkan bahwa adanya kesalahan penanganan pelet sebelum dilakukan proses *sintering* dimana pelet tersebut telah teroksidasi. Sementara itu, adanya unsur logam Zr disebabkan oleh pemanasan pada saat proses sinter sehingga sebagian Zr terlepas dari ikatannya dengan hidrida ZrH₂.

b. Analisis kristalografi

Hasil analisis kristalografi dari fasa yang terbentuk diolah datanya dengan *software High Score Plus*. Beberapa kristalografi yang terbentuk ditunjukkan pada Tabel 1. Tabel 1 menunjukkan terbentuknya fasa seperti $U(ZrH_2)$, oksida UO_3 , UO_2 dan logam Zr. Fasa $U(ZrH_2)$ merupakan fasa utama pada pelet paduan U-ZrH_x, sedangkan oksida UO_3 terbentuk dari reaksi antara oksigen dan uranium yang memiliki struktur kristal monoklinik, baik pada pelet U-35ZrH_x, U-45ZrH_x maupun U-55ZrH_x yang telah dipanaskan pada temperatur 1200 °C dan 1300 °C. Fasa $U(ZrH_2)$ mempunyai struktur kristal tetra-gonal yang muncul pada sudut 2θ berturut-turut sebesar 32,44; 36,68; 39,34; 67,37 untuk paduan U-35Zr H_x yang dipanaskan pada temperatur 1200 °C, sedangkan untuk paduan U-35ZrH_x yang dipanaskan pada temperatur 1300 °C dan U-45ZrH_x serta U-55ZrH_x yang dipanaskan pada temperatur 1200 °C dan 1300 °C

muncul pada sudut 2θ sebesar 32,44; 39,34; 67,37. Keberadaan oksida UO₃ yang mempunyai struktur kristal monoklinik dapat dilihat pada sudut 2θ antara lain 21,8; 28,61; 33, 17; 39,52; 47,49; 56,21; 58,92 dan 76,2. Sementara itu, oksida UO₂ yang terbentuk dari proses *sintering* memiliki struktur kristal kubik dan terdapat dalam paduan U-35ZrH_x,

U-45ZrH_x, dan U-55ZrH_x yang disinter pada temperatur 1200 °C dan 1300 °C. Oksida UO₂ muncul pada sudut 2θ sebesar : 28,38; 33,46; 58,64; 68,45; 76,2. Selain adanya senyawa oksida, terdapat pula logam Zr yang mempunyai struktur kubik yang muncul pada sudut 2θ sebesar 21,86; 26,37; 39,52.

Table 1. Data kristalografi dari fasa yang terbentuk

Paduan	Fasa	Komposisi (% berat)	Parameter kisi (Å)	Densitas (g/cm ³)	Space group	Struktur kristal
U-35ZrH _x , (1200 °C)	Zr	41,3	a= 6,660 b= 4,029 c= 4,200	8,28	F m -3 m	Monoklinik
	UO ₂	0,2	4,58365	6,29	F m -3 m	Kubik
	UO ₃	20,9	6,824	10,97	F m -3 m	Tetragonal
	U(ZrH ₂)	37,6	3,43516	19,5	I m -3 m	Kubik
U-45ZrH _x , (1200 °C)	UO ₃	13,00	a= 6,660 b= 4,029 c= 4,200	6,59	P m -3 m	Monoklinik
	Zr	3,85	4,588	6,27	F m -3 m	Kubik
	UO ₂	45,20	5,477	10,92	F m -3 m	Kubik
	U(ZrH ₂)	41,60	3,448	19,28	I m -3 m	Tetragonal
U-55ZrH _x , (1200 °C)	UO ₃	23,5	a= 4,176 b= 6,989 c= 4,035	8,06	A M M 2	Monoklinik
	Zr	0,50	4,604	6,21	F m -3 m	Kubik
	UO ₂	47,60	5,477	10,85	F m -3 m	Kubik
	U(ZrH ₂)	28,40	3,448	19,28	I m -3 m	Tetragonal
U-35ZrH _x , (1300 °C)	UO ₃	14,39	a= 6,419 b= 5,561 c= 5,518	6,64	P m -3 m	Monoklinik
	Zr	0,05	4,603	6,21	F m -3 m	Kubik
	UO ₂	50,27	5,475	0,93	F m -3 m	Kubik
	U(ZrH ₂)	35,29	3,448	19,28	I m -3 m	Tetragonal
U-45ZrH _x , (1300 °C)	UO ₃	16,30	a= 6,842 b=11,850 c= 4,157	6,45	P m -3 m	Monoklinik
	Zr	45,70	4,600	6,22	F m -3 m	Kubik
	UO ₂	38,00	5,478	10,91	F m -3 m	Kubik
	U(ZrH ₂)	-	-	-	-	-
U-55ZrH _x , (1300 °C)	UO ₃	12,00	a=10,340 b=14,330 c= 3,910	6,64	P m -3 m	Monoklinik
	Zr	0,10	4,593	6,25	F m -3 m	Kubik
	UO ₂	37,90	5,476	10,92	F m -3 m	Tetragonal
	U(ZrH ₂)	49,70	3,448	19,28	I m -3 m	Kubik

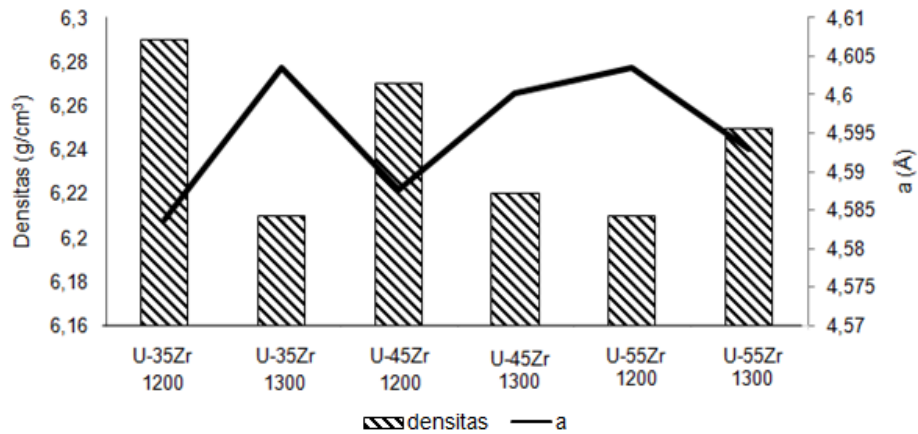
c. Analisis densitas teoritis/densitas total dan parameter kisi

Menarik untuk diperhatikan dari Gambar 5 adalah logam zirkonium. Logam zirkonium yang memiliki struktur kubik akan mengalami perubahan densitas teoritis (perhitungan *software HighScore Plus*) karena perubahan parameter kisi akibat perubahan temperatur *sintering*. Densitas teoritis zirkonium U-35ZrH_x yang dipanaskan pada 1200 °C memiliki nilai lebih tinggi dibandingkan dengan zirkonium pada U-35ZrH_x yang dipanaskan pada 1300 °C dengan nilai densitas masing-masing sebesar 6,29 g/cm³ dan 6,21 g/cm³. Densitas teoritis logam zirkonium U-45ZrH_x juga memiliki kecenderungan yang sama. Apabila dilihat dari perubahan nilai parameter kisi logam zirkonium, pelet U-35ZrH_x yang disinter pada 1200 °C memiliki parameter kisi lebih rendah dibandingkan dengan pelet U-35ZrH_x yang disinter pada 1300 °C, yakni masing-masing 4,583654 Å dan 4,600133 Å [10]. Hal ini disebabkan panas pada temperatur *sintering* yang lebih tinggi mengakibatkan kenaikan nilai parameter kisi.

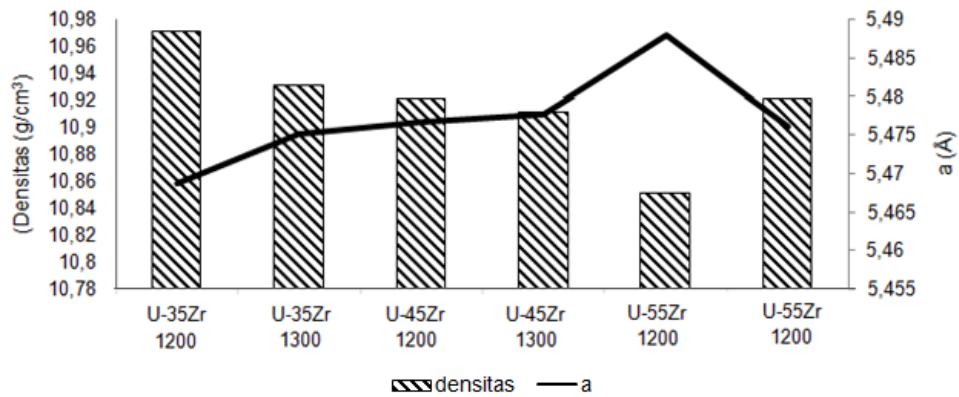
Hasil yang tertera pada Gambar 8 juga terjadi pada fase uranium dioksida seperti yang ditunjukkan pada Gambar 9. Kurva perubahan densitas teoritis dan parameter kisi fasa uranium dioksida terbentuk dalam proses *sintering*. Fase uranium dioksida dengan struktur kristal kubik juga mengalami perubahan sebagai akibat dari proses *sintering*. Dalam sampel pelet U-35ZrH_x pada temperatur 1200 °C, uranium dioksida memiliki densitas teoritis yang sedikit lebih tinggi bila dibandingkan dengan uranium dioksida yang disinter pada temperatur 1300 °C. Densitas teoritis uranium dioksida pada kedua paduan ini masing-masing sebesar 10,23 g/cm³ dan 10,97 g/cm³. Hal ini disebabkan temperatur *sintering* yang berbeda, dimana pada temperatur *sintering* 1300 °C pelet U-35ZrH_x mempunyai volume yang lebih besar

dibandingkan dengan temperatur *sintering* 1200 °C. Oleh karena volume U-35ZrH_x pada temperatur 1300 °C lebih besar maka densitas yang diperoleh menjadi lebih rendah bila dibandingkan pada temperatur *sintering* 1200 °C. Apabila diamati dari perubahan parameter kisi, terlihat bahwa parameter kisi uranium dioksida pada paduan yang sama dan disinter pada temperatur yang lebih tinggi maka terjadi peningkatan nilai parameter kisi. Parameter kisi uranium dioksida pada temperatur *sintering* U-35ZrH_x pada 1200 °C memiliki parameter kisi sebesar 5,468644 Å dan berubah menjadi 5,475092 Å bila disinter pada temperatur 1300 °C. Keadaan ini disebabkan pengaruh panas dari temperatur *sintering*, dimana pada temperatur *sintering* yang lebih tinggi mengakibatkan parameter kisi menjadi bertambah panjang.

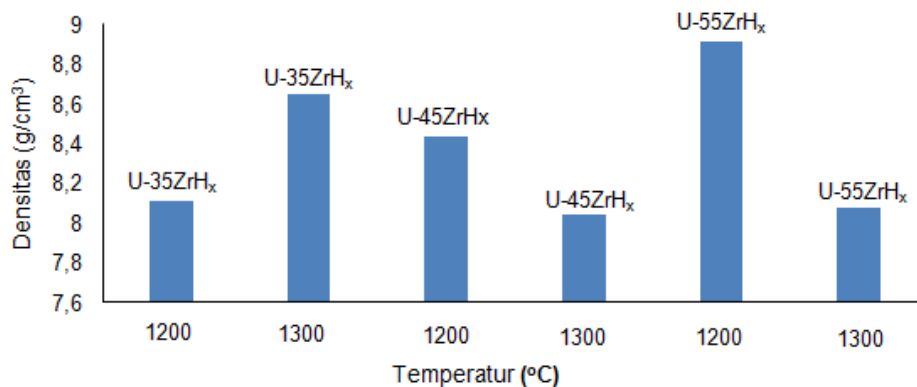
Dari pengamatan hasil perhitungan densitas teoritis/densitas total seperti yang ditunjukkan pada Gambar 10, terlihat adanya perubahan densitas teoritis pelet setelah disinter. Hasil analisis densitas teoritis pelet U-ZrH_x setelah disinter menunjukkan hampir semua pelet mengalami peningkatan densitas teoritis bila dibandingkan sebelum disinter. Pelet U-35ZrH_x sebelum proses *sintering* mempunyai densitas sebesar 8,0253 g/cm³ sedangkan setelah proses *sintering* pada temperatur 1200 °C, densitas meningkat menjadi 8,1164 g/cm³. Apabila temperatur sinter dinaikkan menjadi 1300 °C, diperoleh densitas 8,6511 g/cm³. Pelet sinter U-45ZrH_x dan U-55ZrH_x juga mengalami kecenderungan yang sama. Densitas pelet U-35ZrH_x, U-45ZrH_x dan U-55ZrH_x sebelum disinter masing-masing sebesar 8,0253 g/cm³; 7,8571 g/cm³ dan 7,2227 g/cm³ [12]. Penurunan densitas disebabkan pelet yang disinter mengalami solidifikasi, dimana antar partikel saling berdekatan karena porositas pada pelet berkurang. Dari Gambar 6 juga dapat dilihat bahwa densitas teoritis tertinggi dicapai pada pelet U-55ZrH_x yang disinter pada 1200 °C sebesar 8,9187 g/cm³.



Gambar 8. Densitas dan parameter kisi logam Zr hasil *sinter* pada 1200 °C dan 1300 °C



Gambar 9. Densitas dan parameter kisi UO₂ hasil *sinter* pada 1200 °C dan 1300 °C



Gambar 10. Densitas teoritis pelet U-ZrH_x hasil *sinter* pada 1200 °C dan 1300 °C

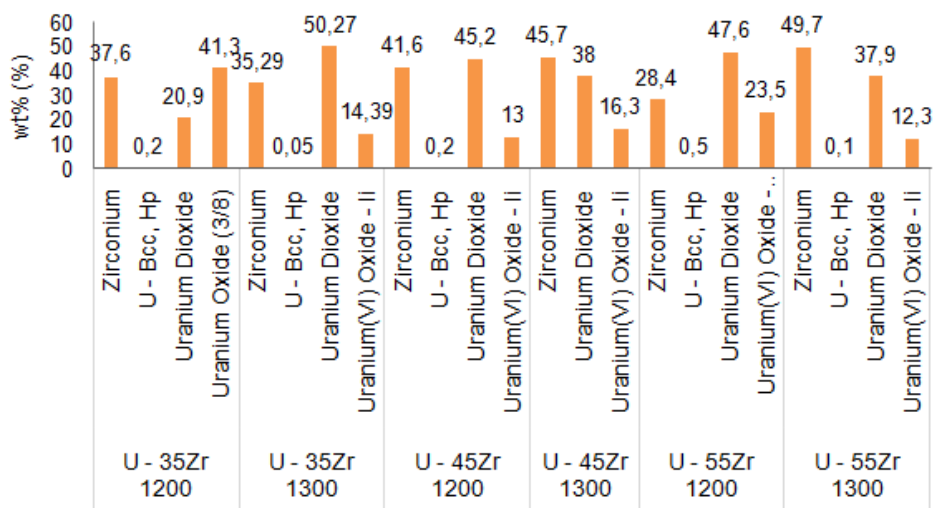
d. Analisis komposisi

Perubahan komposisi kimia hasil *sintering* pelet U-35ZrH_x, U-45ZrH_x, dan U-55ZrH_x dapat dilihat pada Gambar 11. Pelet paduan U-35ZrH_x yang disinter pada temperatur 1200 °C mempunyai komposisi

Zr sebesar 37,6 % berat, sedangkan dari proses *sintering* pada temperatur 1300 °C mempunyai komposisi Zr sebesar 35,39 % berat. Dari hasil ini dapat dikatakan bahwa pelet paduan U-35ZrH_x yang disinter pada 1300 °C mempunyai komposisi kimia yang

mendekati komposisi pelet sesuai dengan yang direncanakan yakni sebesar 35 % berat. Demikian pula untuk pelet $U-45ZrH_x$ dan $U-55ZrH_x$ yang disinter pada temperatur 1300 °C memberikan hasil hampir sama dengan yang direncanakan. Apabila dilihat dari pola perubahan komposisi kimia logam zirkonium maupun uranium dioksida yang terbentuk terlihat bahwa proses sinter pada temperatur 1300 °C (yang lebih tinggi) dapat membentuk logam zirkonium atau uranium dioksida yang lebih besar dibandingkan dengan pada temperatur sinter 1200 °C

(yang lebih rendah). Hal ini menunjukkan bahwa *sintering* pada temperatur 1300 °C terjadi pelepasan zirkonium dengan logam hidrogen dan uranium yang lebih besar dibandingkan dengan proses *sintering* pada 1200 °C. Hal disebabkan pada temperatur yang lebih tinggi, energi yang timbul digunakan untuk melepaskan ikatan antara zirkonium dengan hidrogen serta dengan uranium semakin besar, sehingga zirkonium yang terlepas dari ikatan hidrogen maupun uranium menjadi semakin besar pula.



Gambar 11. Perubahan komposisi kimia dari pelet hasil *sinter* pada 1200 °C dan 1300 °C

SIMPULAN

Proses sinter terhadap pelet $U-ZrH_x$ dapat menaikkan densitas. Terbentuknya hidrida $U(ZrH_2)$ pada pelet paduan $U-ZrH_x$ menghasilkan logam zirkonium, oksida uranium (UO_2) dan uranium trioksida (UO_3). Densitas zirkonium dan uranium dioksida pada *sintering* 1300 °C lebih rendah dibandingkan dengan densitas pada temperatur *sintering* 1200 °C. Sementara itu, terjadi peningkatan parameter kisi zirkonium dan uranium dioksida apabila temperatur sinter dinaikkan dari 1200 menjadi 1300 °C. Densitas total pelet $U-35ZrH_x$, $U-45ZrH_x$ dan $U-55ZrH_x$ hasil proses sinter mengalami kenaikan bila dibandingkan dengan pelet

sebelum disinter. Densitas total tertinggi diperoleh pada pelet $U-55ZrH_x$ yang disinter pada temperatur 1200 °C yakni sebesar $8,9187 \text{ g/cm}^3$. Hasil analisis komposisi berat menunjukkan bahwa persentase berat logam zirkonium maupun uranium dioksida mendekati persentase yang direncanakan apabila pelet tersebut disinter pada temperatur 1300 °C.

SARAN

Upaya yang dilakukan untuk menghindari terbentuknya oksida pada permukaan pelet $U-ZrH_x$ yang akan disinter adalah agar seluruh kegiatan preparasi sampel dilakukan di dalam *glove box* yang dialiri dengan gas argon atau nitrogen.

UCAPAN TERIMA KASIH

Dalam kesempatan ini penulis mengucapkan terima kasih yang kepada Bpk.Slamet Pribadi, Bpk Suyoto, Bpk. Mugiyono dan Bpk. Yatno D.A dan teman-teman teknisi serta staf di BFBBN sehingga penelitian hingga penulisan makalah dapat diselesaikan dengan baik.

DAFTAR PUSTAKA

1. H. Suwarno, "Development of TRIGA due fabrication by powder technique," *Journal of Atom Indonesia*, vol. 40, no.3, pp. 113 – 119, 2014.
2. K.H. Kim, J.H. Kim, S.J.Oh, J.W. Lee, H.J. Lee and C. B. Lee," Fabrication of U-10 wt.%Zr metallic fuel rodlets for irradiation test in BOR-60 fast reactor," *Science and Technology of Nuclear Installations Journal*, Article ID 4385925, p. 7, 2016.
3. M.S. Dias and J. Roberto, L. de Mattos," Uranium-zirconium based alloys," International Nuclear Atlantic Conference-INAC 2015, São Paulo.
4. T. Usman, "Sintering temperatur rendah atas kompakan serbuk halus UO₂ dengan variasi kandungan pelumas Zn-stearat," Prosiding Seminar Nasional Daur Bahan Bakar Nuklir, P2TBDU, 2009, hal. 40-41.
5. S. Rizal, A. Suhadi, "Identifikasi karakteristik mekanis bantalan luncur motor starter dari serbuk tembaga alumunium," *Jurnal Sains dan Teknologi Indonesia*, vol. 12, no. 3, hal.155-156, 2010.
6. M.S. Yafie, Widyastuti, "Pengaruh variasi temperatur sintering dan waktu tahan sintering terhadap densitas dan kekerasan pada paduan MmcW-Cu melalui proses metalurgi serbuk," *Jurnal Teknik Pomits*, vol. 3, no. 1, hal. 44-45, 2014.
7. Masrukan, M.H. Alhasa, A. Muchsin," Pembuatan green pellet untuk reaktor PWR," *Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, vol. 20, no. 1, hal 23-24, 2014.
8. R.D. Herhady, R. Sukarsono, "Pengaruh temperatur dan waktu sintering terhadap kualitas bahan bakar kernel UO₂ dalam furnace jenis fluidized bed," Prosiding Seminar Nasional ke-13 Teknologi dan Keselamatan PLTN Serta Fasilitas Nuklir, Jakarta, 6 Nopember 2007, hal 67-68.
9. C.B. Garcia, "Sintering and thermal behavior of uranium dioxide in beryllium oxide matrix," A Thesis Master Of Science, Nuclear Engineering, Texas A&M University, May 2014.
10. A.K. Dewi, M. Setyadji, "Pengaruh variasi waktu dan temperatur terhadap pembentukan U₃O₈ pada proses kalsinasi UO₃ dengan simulasi Matlab," Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Penelitian Dasar Ilmu Pengetahuan dan Teknologi Nuklir, Pusat Teknologi Akselerator dan Proses Bahan, 2011, hal 171.
11. Masrukan, "Pembuatan dan karakterisasi ingot paduan U-Zr untuk bahan bakar PWR," *Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, vol. 18, no. 3, hal. 126, 2012.
12. Masrukan, Mujinem," Effect of sintering process on changes in density, hardness and microstructure pellets U-ZrH_x for PWR nuclear fuels ," *Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, volume 22, no.1, hal.30-31, 2016.

LAMPIRAN

Table 1. Fase yang terbentuk dalam pelet U-ZrH_x hasil *sinter* pada 1200 °C dan 1300 °C

No	Fasa yang terbentuk	Sudut 2θ	Intensitas
U-35ZrH _x , (1200 °C)	UO ₃	21,86; 26,37; 39,52.	70, 100, 70
	Zr	34,082; 39,517; 67,986	92,85; 49,03; 48,81
	U(ZrH ₂)	32,44; 36,68; 39,34;67,37	100, 60, 30, 30
	UO ₂	28,38; 33,46; 58,64	100, 45, 16
U-45ZrH _x , (1200 °C)	UO ₃	21,9;68,28; 71,72; 76,2	100, 10, 5, 4
	Zr	34,414; 39,844; 68,282	39,53;20,53; 14,09
	UO ₂	28,79; 33,274 ; 58,92;	90, 60, 90, 100, 50, 80
	U(ZrH ₂)	32,44; 39,34; 67,37	100, 30, 30
U-55ZrH _x , (1200 °C)	UO ₃	26,245; 33,38; 39,78;	100, 63, 40, 9,2
	Zr	34,471; 39,881; 68,202	25,49; 13,09; 12,23
	UO ₂ ;	28,92; 33,38; 58,97; 68,45	90, 60, 50, 30
	U(ZrH ₂)	32,44; 39,34; 67,37	100, 30, 30
U-35ZrH _x , (1300 °C)	UO ₃	28,89; 33,94; 78,93.	100, 58, 18.
	Zr	33,964; 39,373; 67,686	25,93; 12,74;9,14
	UO ₂	28,46; 47,44; 58,97;	100; 7,5; 5,1; 8,2
	U(ZrH ₂)	33,94; 68,76	100, 30, 30
U-45ZrH _x , (1300 °C)	UO ₃	21,88; 49,02; 71,58.	100, 29, 5
	Zr	34,383; 39,796; 68,136	59,56; 50,63; 22,32
	UO ₂	28,84; 47,44; 58,97;	90, 50, 30, 80, 80
	U(ZrH ₂)	32,44; 39,34; 67,37	100, 30, 30
U-55ZrH _x , (1300 °C)	UO ₃	21,91; 68,154; 71,62	59,05; 37,01;19,06
	Zr	34,325; 39,748; 68,143	1,07
	UO ₂	28,74; 47,44; 58,86	100; 48,64; 44,79
	U(ZrH ₂)	32,44; 39,34; 67,37	17,15; 3,47