

---

## MIKROSTRUKTUR DAN KOMPOSISI FASA PELET SINTER $UO_2$ DENGAN PENAMBAHAN DOPAN LOGAM ZIRKONIUM

Tri Yulianto, Ety Mutiara

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN

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

e-mail: emutiara@batan.go.id

(Naskah diterima: 20-12-2017, Naskah direvisi: 30-01-2018, Naskah disetujui: 01-02-2018)

### ABSTRAK

**MIKROSTRUKTUR DAN KOMPOSISI FASA PELET SINTER  $UO_2$  DENGAN PENAMBAHAN DOPAN LOGAM ZIRKONIUM.** Telah dilakukan karakterisasi pelet  $UO_2$  sebagai bahan bakar PWR dengan penambahan dopan logam zirkonium pada pelet  $UO_2$ . Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui pengaruh penambahan logam zirkonium terhadap mikrostruktur dan komposisi fasa pelet  $UO_2$  maupun stoikiometri (O/U) ratio. Logam zirkonium yang ditambahkan diharapkan terdistribusi merata dalam pelet  $UO_2$  sehingga dapat meningkatkan kualitas pelet  $UO_2$ . Pelet  $UO_2$  difabrikasi dengan cara kompaksi dan penyinteran pada variasi penambahan logam zirkonium sebesar 0,3%, 0,5% dan 0,9% berat. Pelet  $UO_2$  hasil kompaksi kemudian disinter pada temperatur 1700 °C dengan laju pemanasan 250 °C/jam selama 3 jam dalam media campuran gas hidrogen. Pelet  $UO_2$  hasil sinter dikarakterisasi meliputi pengamatan visual, pengukuran densitas, pengamatan mikrostruktur menggunakan mikroskop optik dengan perbesaran 500x dan analisis fasa dengan difraksi sinar-X (XRD). Hasil analisis menunjukkan bahwa dengan penambahan dopan logam Zr sebesar 0,3%; 0,5% dan 0,9% berat tidak terdapat cacat maupun retak pada pelet  $UO_2$  hasil sinter. Pelet sinter mempunyai rentang densitas 91%–93% TD dan memenuhi persyaratan sebagai bahan bakar PWR. Sementara itu, hasil analisis mikrostruktur pelet  $UO_2$  dengan variasi persentase logam zirkonium diketahui bahwa keberadaan logam zirkonium tidak dapat dikonfirmasi. Sementara itu, hasil evaluasi data uji XRD menggunakan perangkat lunak *HighScore* melalui pencocokan kurva hasil uji dengan struktur dari *data base* diperoleh struktur dan komposisi fasa dalam pelet hasil sinter. Fasa yang terbentuk pada pelet sinter  $UO_2$  tanpa penambahan Zr dan dengan variasi penambahan Zr adalah senyawa  $UO_2$  dan  $UO_3$ . Fraksi senyawa  $UO_3$  dalam pelet sinter  $UO_2$  berbanding lurus dengan persentase penambahan zirkonium yang ditunjukkan oleh stoikiometrinya (O/U) berdasarkan fraksi fasa yang terbentuk.

**Kata kunci:** pelet  $UO_2$ , logam Zr, densitas, mikrostruktur, komposisi fasa.

## **ABSTRACT**

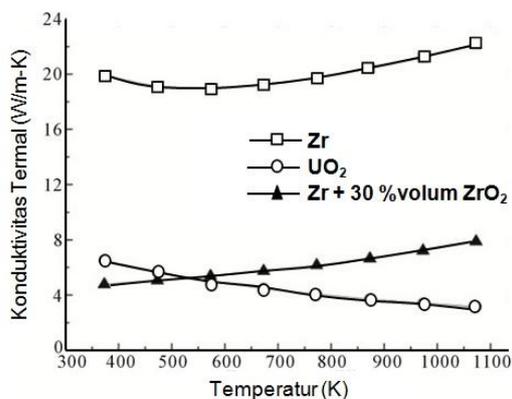
**MICROSTRUCTURE AND PHASE COMPOSITION OF SINTERED  $UO_2$  PELLETT DOPED WITH ZIRCONIUM.** Characterization of zirconium-doped  $UO_2$  pellet for PWR fuel has been done. The investigation aims to study the influence of zirconium doping on microstructure, phase composition and stoichiometric (O/U) ratio. Homogenous distribution of zirconium metal is expected in order to enhance  $UO_2$  pellet quality. The  $UO_2$  pellet was fabricated by compaction and sintering with varied zirconium addition of 0,3, 0,5 and 0,9 wt%. Sintering was done at 1700 °C with heating rate of 250 °C/hour for 3 hours in hydrogen medium. Characterization of the sintered pellet includes visual examination, density measurement, microstructure examination with optical microscope at 500x magnification and phase analysis by X-ray diffraction (XRD) method. Analysis results show that the addition of varied Zr of 0,3, 0,5 and 0,9 wt% did not cause defect or crack of the sintered  $UO_2$  pellet. Microstructure examination with optical microscope, however, could not visually confirm the existence of zirconium. The evaluation of XRD data was done with HighScore software by conforming peaks data of the test sample with peaks data of a reference database. The phase of  $UO_2$  pellet without zirconium addition was confirmed to be  $UO_2$  and  $UO_3$ . The phase of  $UO_2$  pellet with zirconium addition, on the other hand, shows that the  $UO_3$  fraction increases linearly with the percentage of zirconium added, which is indicated by the value of stoichiometric (O/U) ratio.

**Keywords:**  $UO_2$  pellet, Zr, PWR, microstructure, phase.

## PENDAHULUAN

Penggunaan pelet  $UO_2$  sebagai bahan bakar nuklir reaktor daya tipe *Pressurized Water Reactor (PWR)* terus dikembangkan untuk peningkatan margin keselamatan pengoperasian elemen bakar dengan *burn up* tinggi di dalam reaktor [1-4]. Peningkatan *burn up* dapat memperpanjang waktu proses irradiasi di dalam reaktor sehingga dapat meningkatkan nilai ekonomis bahan bakar tersebut[3,5-6]. Sebaliknya, peningkatan *burn up* akan memberikan beban kerja tambahan pada pelet  $UO_2$  dengan adanya perpanjangan waktu tinggal di teras reaktor untuk proses irradiasi[3]. Oleh karena itu, perlu dilakukan pengembangan pelet  $UO_2$  untuk peningkatan kinerja sifat termiknya agar penggunaan elemen bakar *burn up* tinggi dapat beroperasi dengan selamat dan handal. Salah satu diantaranya adalah peningkatan konduktivitas panas pelet  $UO_2$  yang berkorelasi dengan densitas pelet, mikrostruktur, panjang kisi maupun komposisi fasa[4, 7-12].

Bahan keramik pada umumnya mempunyai konduktivitas panas yang lebih rendah, bila dibandingkan dengan logam maupun paduan logam termasuk  $UO_2$  [4,7]. Perbandingan konduktivitas panas keramik  $UO_2$  dan logam zirkonium ditunjukkan pada Gambar 1[13].



Gambar 1. Perbandingan konduktivitas panas keramik  $UO_2$  dan logam zirkonium[13].

Konduktivitas panas suatu material dipengaruhi oleh struktur kristal dan kesempurnaannya, dinamika kisi, kestabilan struktur, porositas dan ukuran butir [10,14-18]. Hasil perhitungan dispersi phonon dengan simulasi molekular dinamis pada struktur elektronik  $UO_2$ , mengungkapkan bahwa konduktivitas panas  $UO_2$  yang rendah merupakan efek dari ketidakharmonisan struktur yang besar pada *optical modes* dari phonon sebagai pembawa panas[14]. Hanya *longitudinal acoustic modes (in-phase)* yang mempunyai kelompok phonon dengan laju yang besar dan merupakan pembawa panas yang efisien dan berkontribusi besar pada konduktivitas panas[14].

Salah satu upaya untuk meningkatkan kinerja termik pelet  $UO_2$  adalah melakukan proses fabrikasi pelet  $UO_2$  dengan menambahkan beberapa jenis bahan logam sebagai dopan[7,14] maupun dengan membuat komposit *cermet* [4,9,11,18-19]. Logam dengan konduktivitas panas tinggi dan berpeluang untuk ditambahkan pada keramik  $UO_2$  sebagai dopan antara lain Cr, Mo, Al, Si, W, Zr [4,6-7,9,11-12]. Keberadaan logam dengan konduktivitas panas tinggi pada  $UO_2$  akan mempengaruhi laju vibrasi phonon pada *longitudinal acoustic modes* dan akan meningkatkan konduktivitas panas  $UO_2$  [7,9,14]. Peningkatan konduktivitas panas menyebabkan laju pengambilan panas di dalam bahan bakar akan meningkat dan mengubah gradien temperatur dari pusat pelet ke permukaan pelet sehingga degradasi dini pelet  $UO_2$  sebelum terdepleksi dapat dihindarkan [9,11,14]. Hal ini menyebabkan integritas pelet menjadi lebih baik sehingga keselamatan pengoperasian bahan bakar menjadi lebih aman.

Pada penelitiannya, D.J. Kim[7] menambahkan 3% $Cr_2O_3$  ke dalam pelet  $UO_2$ . Hasil analisis dengan SEM menggunakan kontras fasa diperoleh mikrograf posisi logam Cr yang terbentuk pada batas butir pelet komposit  $UO_2$ -Cr

terlihat dengan jelas[4,7]. Sementara itu, peneliti H.G. Kim[4] memvariasikan jenis dopan logam yang ditambahkan pada pelet  $UO_2$  untuk mendapatkan mikrostruktur dengan dopan logam yang berada di batas butir dan saling terhubung sehingga butir  $UO_2$  seakan dilapisi oleh logam yang ditambahkan tersebut. Jenis dopan yang dipilih oleh H.G. Kim[4] untuk ditambahkan ke dalam  $UO_2$  adalah logam Cr sebanyak 5%volume dan logam Mo 5%volume. Dalam penelitiannya, H.S. Lee[11] memvariasikan fraksi logam Mo sebanyak 2%, 5% dan 10%volume untuk mendapatkan mikrostruktur yang optimal. Demikian juga penelitian yang dilakukan W. B. Ferraz dkk[6], penambahan 6-12%volume logam tungsten (W) pada pelet  $UO_2$ , menunjukkan fase metalik W berada di batas butir pada mikroskop mikrostruktur pelet  $UO_2$  yang diperoleh dengan mikroskop optik dan SEM.

Pada penelitian sebelumnya, telah diketahui pengaruh penambahan logam Zr sebanyak 1% sampai dengan 10%berat terhadap perubahan mikrostruktur dan densitas pelet sinter *cermet*  $UO_2$ -Zr[8]. Pada penelitian tersebut, pelet *cermet*  $UO_2$ -Zr hasil sinter dengan kandungan 5% dan 10%berat logam zirkonium tidak dapat dikarakterisasi karena hancur setelah dilakukan proses sinter. Penambahan logam Zr 5% dan 10%berat pada serbuk  $UO_2$  telah menjadikan pelet  $UO_2$  tersebut hancur setelah disinter pada temperatur 1700 °C dengan atmosfer campuran gas  $H_2$  dan  $N_2$  [8]. Hal ini terjadi karena pada proses pencampuran serbuk  $UO_2$  dengan serbuk Zr menggunakan menggunakan *eccentric cage powder mixer* selama 30 menit, belum membentuk campuran yang homogen dan kemungkinan terbentuk gumpalan logam Zr yang berkontribusi pada pencapaian densitas pelet sinter. Pada proses sinter pelet  $UO_2$ , gumpalan logam Zr tersebut berinteraksi dengan  $UO_2$  dan gas  $H_2$  membentuk fasa yang rapuh sehingga pelet sinter  $UO_2$  pecah. Pada penelitian tersebut belum dilakukan uji dengan XRD dan

penelitian ditekankan pada pengaruh penambahan logam Zr terhadap pencapaian densitas pelet selama proses kompaksi dan penyinteran.

Berdasarkan hasil tersebut, maka pada penelitian ini dilakukan penambahan logam zirkonium sebanyak 0,3%, 0,5% dan 0,9%berat dan menganalisis pengaruh kehadiran dopan Zr terhadap mikrostruktur dan fasa yang terbentuk pada pelet sinter  $UO_2$ . Hasil penelitian ini diharapkan diperoleh mikrostruktur, komposisi fasa dan perubahan stoikiometri (O/U ratio) yang dapat dijadikan acuan dalam meningkatkan kualitas pelet sinter  $UO_2$ .

## METODOLOGI

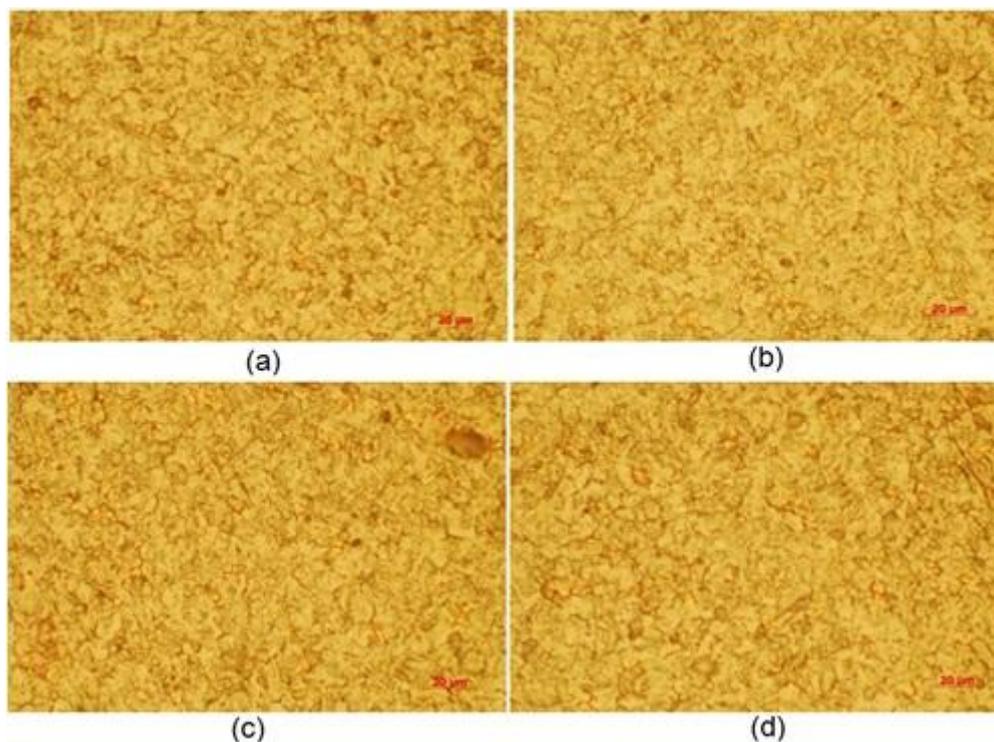
Proses fabrikasi pelet sinter  $UO_2$  dengan penambahan dopan Zr dilakukan dengan mencampurkan serbuk Zr dan serbuk  $UO_2$  dalam sebuah wadah tertutup. Campuran serbuk tersebut diputar dengan menggunakan *eccentric cage powder mixer* selama 30 menit. Variasi dopan Zr yang ditambahkan 0,3%, 0,5% dan 0,9%berat. Serbuk  $UO_2$  yang digunakan mempunyai distribusi ukuran 150–800  $\mu m$  dan serbuk Zr yang digunakan berdiameter 100  $\mu m$ . Campuran tersebut dikompakkan dengan tekanan kompaksi 6 MP (*Mechanical Pressure*) menggunakan mesin kompaksi Komage yang ada di PTBBN-BATAN. Pelet mentah  $UO_2$ -Zr selanjutnya disinter pada temperatur 1700 °C dengan laju pemanasan 250 °C/jam, selama 3 jam dalam media gas hidrogen menggunakan tungku sinter Degussa di PTBBN-BATAN. Pelet sinter  $UO_2$  kemudian dikarakterisasi meliputi pengamatan visual, pengukuran densitas, pengamatan mikrostruktur menggunakan mikroskop optik dengan perbesaran 500 kali dan analisis fasa dengan difraksi sinar-X (XRD). Pengujian dengan XRD bertujuan untuk mendapatkan komposisi fasa dalam pelet sinter  $UO_2$  dengan penambahan dopan Zr. Komposisi fasa dalam pelet sinter  $UO_2$  selanjutnya dilakukan pencocokan kurva

dengan basis data menggunakan perangkat lunak *HighScore* untuk mendapatkan informasi tentang fasa yang terbentuk dalam pelet  $\text{UO}_2\text{-Zr}$  dan nilai stoikiometrinya (*O/U ratio*). Hasil evaluasi data XRD dengan *HighScore* dikomparasi dengan hasil-hasil penelitian lain terkait mikrostruktur, fasa yang terbentuk dan *O/U ratio* pelet  $\text{UO}_2$ .

## HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil pengamatan secara visual menunjukkan bahwa tidak terdapat cacat

maupun retak pada pelet  $\text{UO}_2$  hasil sinter. Sementara itu, densitas pelet sinter  $\text{UO}_2$  dengan dopan Zr berada dalam rentang 91%–93% *Theoretical Density* (TD). Besar densitas pada rentang ini telah memenuhi persyaratan pelet  $\text{UO}_2$  sebagai bahan bakar PWR yaitu sebesar 91%–98%TD[20]. Pengamatan mikrostruktur pelet sinter  $\text{UO}_2$  dengan penambahan logam zirkonium 0,3%; 0,5% dan 0,9% berat dan pelet  $\text{UO}_2$  tanpa penambahan logam Zr diperlihatkan pada Gambar 2.



Gambar 2. Struktur mikro pelet sinter  $\text{UO}_2$  dengan dopan Zirkonium.

- (a).  $\text{UO}_2$  tanpa dopan Zr.
- (b).  $\text{UO}_2$  dengan 0,3% berat dopan Zr.
- (c).  $\text{UO}_2$  dengan 0,5% berat dopan Zr
- (d).  $\text{UO}_2$  dengan 0,9% berat dopan Zr

Gambar 2 menunjukkan bahwa pelet  $\text{UO}_2$  dengan kandungan Zr sebesar 0,3%; 0,5% maupun 0,9% berat, posisi logam zirkonium yang ditambahkan tidak dapat dikonfirmasi karena fraksi penambahan logam Zr sangat kecil bila dibandingkan dengan penelitian D.J. Kim dan W.B Farraz. Pada penelitian D.J. Kim, posisi logam Cr yang terbentuk pada batas

butir terlihat dengan jelas yang merupakan hasil uji kontras fase menggunakan SEM[7]. Pada penelitian tersebut, D.J. Kim menambahkan 3%  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  ke dalam pelet  $\text{UO}_2$  dengan proses pencampuran menggunakan *ball mill* selama 24 jam dan disinter selama 4 jam pada temperatur 1750 °C. Proses fabrikasi itu dilanjutkan dengan pemanasan selama 10 jam pada

temperatur 1590 °C agar Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> tereduksi menjadi Cr dan berada di batas butir pelet UO<sub>2</sub>. Demikian juga penelitian yang dilakukan H.G. Kim[4], penelitian H.S. Lee[11], penelitian J.H. Yang[12] dan penelitian yg dilakukan oleh W.B. Ferraz et al [6]. Pada penelitian yang dilakukan oleh J.H. Yang dkk., penambahan 6–12% volume logam tungsten (W) pada pelet UO<sub>2</sub>, menunjukkan fase metalik W berada di batas butir pada mikrogram mikrostruktur pelet UO<sub>2</sub> yang diperoleh dengan mikroskop optik dan SEM[12]

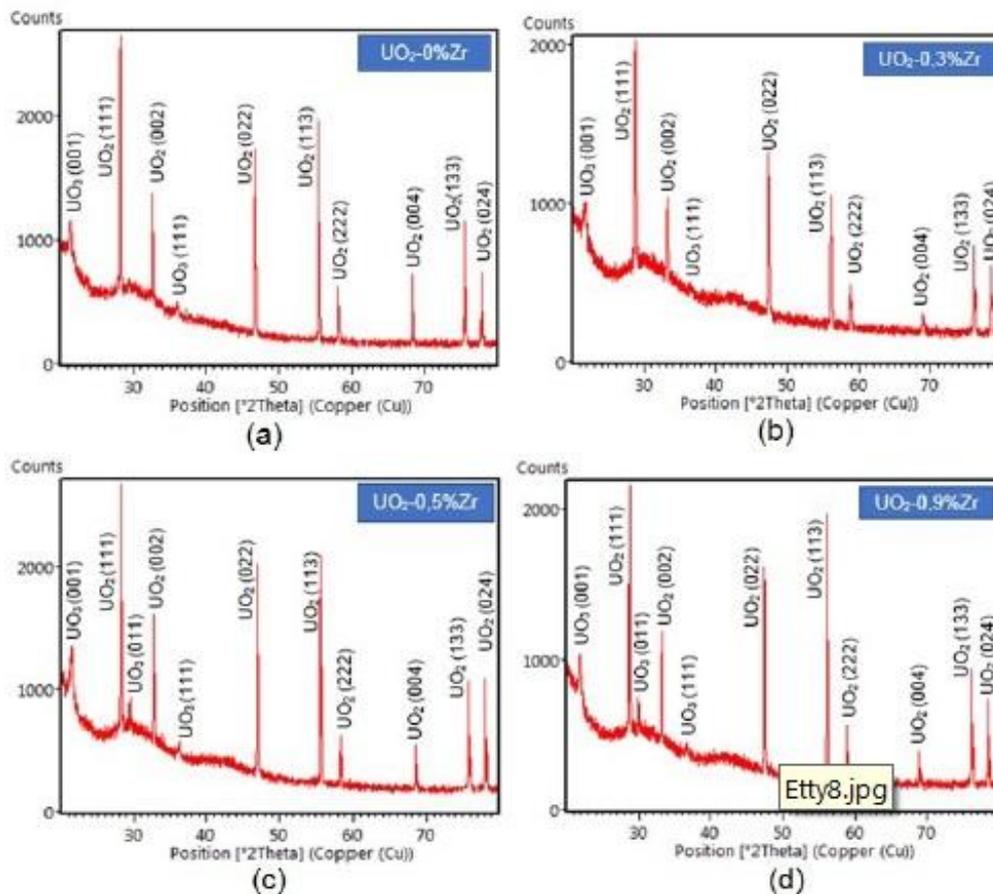
Bila dibandingkan dengan penelitian D.J. Kim, H.G. Kim, H.S. Lee dan W.B. Ferraz, untuk mendapatkan mikrostruktur yang menampilkan posisi logam Zr dengan jelas maka fraksi logam zirkonium yang ditambahkan pada penelitian ini perlu ditingkatkan. Pada penelitian sebelumnya, pelet UO<sub>2</sub> sinter dengan fraksi penambahan

serbuk logam Zr sebanyak 5% dan 10% berat tidak dapat dilakukan pengukuran densitas dan pengamatan mikrostruktur karena pelet UO<sub>2</sub> tersebut hancur setelah disinter[8]. Hal ini terjadi karena logam Zr yang ditambahkan tidak terdistribusi merata di dalam serbuk UO<sub>2</sub>. Untuk itu maka proses pencampuran serbuk sebelum kompaksi perlu menggunakan *ball mill* dengan waktu pencampuran yang lebih panjang untuk meningkatkan homogenitas pencampuran serbuk UO<sub>2</sub> dengan dopan logam Zr.

Hasil analisis komposisi fasa pelet sinter UO<sub>2</sub> tanpa dan dengan penambahan dopan Zr menggunakan XRD ditunjukkan pada Gambar 3. Fasa hasil analisis tersebut dicocokkan dengan kurva *Search-Match* sehingga diperoleh komposisi fasa, parameter kisi dan stoikiometri (O/U) seperti yang ditampilkan pada Tabel 1 dan Gambar 3.

Tabel 1. Komposisi Fasa, Panjang Kisi dan Stoikiometri Pelet Sinter UO<sub>2</sub> pada Variasi Persentase Penambahan Logam Zirkonium

Zr yang ditambahkan (%berat)	Fasa yang terbentuk	Panjang kisi (Å)	Komposisi fasa (%)	<i>Calculated density</i> (g/cm <sup>3</sup> )	Stoikiometri berdasarkan %fasa (O/U)
0	UO <sub>2,0</sub> (kubik, Fm-3m)	5,49011	89,9641	10,83	2,128205
	UO <sub>3,0</sub> (kubik, Pm-3m)	4,24886	10,9641	6,19	
0,3	UO <sub>2,0</sub> (kubik, Fm-3m)	5,42709	88,8215	11,21	2,111785
	UO <sub>3,0</sub> (kubik, Pm-3m)	4,18687	11,1785	6,47	
0,5	UO <sub>2,0</sub> (kubik, Fm-3m)	5,47061	82,7661	10,95	2,172339
	UO <sub>3,0</sub> (kubik, Pm-3m)	4,23266	17,2339	6,26	
0,9	UO <sub>2,0</sub> (kubik, Fm-3m)	5,42711	86,7847	11,21	2,271104
	UO <sub>3,0</sub> (kubik, Pm-3m)	4,18133	13,7847	6,49	



Gambar 3. Hasil pencocokan kurva uji XRD

- pelet sinter  $\text{UO}_2$  tanpa dopan Zr.
- pelet sinter  $\text{UO}_2$  dengan 0,3% berat dopan Zr.
- pelet sinter  $\text{UO}_2$  dengan 0,5% berat dopan Zr
- pelet sinter  $\text{UO}_2$  0,9% berat dopan Zr

Pencocokan kurva pada posisi  $2\theta$  dari difraktogram hasil uji XRD untuk pelet sinter  $\text{UO}_2$  tanpa dan dengan penambahan logam zirkonium pada umumnya sesuai dengan posisi  $2\theta$  struktur atau fasa  $\text{UO}_2$  (98-005-6005) dan  $\text{UO}_3$  (98-006-5556) dari *database*. Struktur 98-005-6005 adalah  $\text{UO}_2$  dengan struktur kubik Fm-3m, panjang kisi  $a=b=c=5,4800\text{\AA}$  dan *calculated density* sebesar  $10,89\text{g/cm}^3$  dengan  $RIR=24,94$ . Struktur 98-006-5556 adalah  $\text{UO}_3$  dengan struktur kubik Pm-3m, panjang kisi  $a=b=c=4,1650\text{\AA}$  dan *calculated density* sebesar  $6,57\text{g/cm}^3$  dengan  $RIR=23,63$ .

Pencocokan kurva hasil uji XRD untuk pelet sinter  $\text{UO}_2$  tanpa penambahan logam zirkonium dengan kurva struktur atau

fasa  $\text{UO}_2$  (98-005-6005) ditampilkan pada Gambar 3a. Difraktogram pada posisi  $2\theta$  sebesar  $28,1152^\circ$ ;  $32,583^\circ$ ;  $46,6862^\circ$ ;  $55,4352^\circ$ ;  $58,146^\circ$ ;  $68,3321^\circ$ ;  $75,4997^\circ$  dan  $77,835^\circ$  dengan hkl masing-masing (111), (002), (022), (113), (222), (004), (133) dan (024), semuanya bergeser ke kiri. Sementara itu, pencocokan kurva XRD untuk pelet sinter  $\text{UO}_2$  dengan penambahan 0,3%; 0,5% dan 0,9% berat logam zirkonium dengan struktur atau fasa yang diacu, semua posisi  $2\theta$  dari difraktogram hasil uji bergeser ke kanan, seperti yang ditampilkan pada Gambar 3.(b), 3.(c) dan 3.(d). Difraktogram pada kurva XRD untuk pelet sinter  $\text{UO}_2$ -0,3% berat Zr bergeser ke kanan berada pada posisi  $2\theta$  sebesar  $28,685^\circ$ ;

33,177°; 47,372°; 56,102°; 58,765°; 68,937°; 76,094° dan 78,415° dengan hkl masing-masing (111), (002), (022), (113), (222), (004), (133) dan (024). Pencocokkan kurva XRD untuk pelet sinter  $\text{UO}_2$ -0,5%berat Zr, difraktogram pada posisi  $2\theta$  bergeser ke kanan adalah 28,2309°; 32,715°; 46,9397°; 55,6787°; 58,383°; 68,557°; 75,7179° dan 78,0528° dengan hkl yang sama dengan posisi  $2\theta$  kurva XRD untuk pelet sinter  $\text{UO}_2$ -0,3%berat Zr ditampilkan pada Gambar 3c. Hasil pencocokkan kurva XRD untuk pelet sinter  $\text{UO}_2$ -0,9%berat Zr dengan struktur fasa acuan ditampilkan pada Gambar 3.(d). Pada Gambar 3d terlihat posisi  $2\theta$  sebesar 28,689°; 33,17°; 47,3679°; 56,0924°; 58,794°; 68,941°; 76,083° dan 78,406° dengan hkl masing-masing (111), (002), (022), (113), (222), (004), (133) dan (024), semuanya bergeser ke kanan.

Selain struktur atau fasa  $\text{UO}_2$ , fasa lain yang terbentuk pada pelet sinter  $\text{UO}_2$  adalah fasa  $\text{UO}_3$ . Posisi  $2\theta$  pada kurva tersebut bersesuaian dengan struktur 98-006-5556 dari *data base*. Sebagaimana yang ditampilkan Gambar 3.(a), pencocokkan kurva XRD untuk pelet sinter  $\text{UO}_2$  tanpa penambahan logam zirkonium dengan kurva struktur  $\text{UO}_3$  (98-006-5556), posisi  $2\theta=21,242^\circ$  dengan hkl (001) dan  $2\theta=35,962^\circ$  dengan hkl (111) bergeser ke kiri. Pergeseran  $2\theta$  ini dengan perbandingan intensitas yang berbeda. Pencocokkan kurva XRD untuk pelet sinter  $\text{UO}_2$ -0,3%berat Zr seperti yang ditampilkan Gambar 3.(b), dimana posisi  $2\theta=21,60^\circ$  dengan hkl (001) bergeser ke kanan sementara  $2\theta=36,41^\circ$  dengan hkl (111) bergeser ke kiri dengan perbandingan intensitas yang berbeda. Sedangkan pada pencocokkan kurva XRD untuk pelet sinter  $\text{UO}_2$ -0,5%berat Zr seperti yang ditampilkan Gambar 3.(c). Ada tiga posisi  $2\theta$  yang bersesuaian dengan struktur  $\text{UO}_3$  (98-006-5556) tetapi dengan perbandingan intensitas yang berbeda. Ketiga posisi  $2\theta$  tersebut semuanya bergeser ke kiri yaitu posisi  $2\theta=21,313^\circ$ ;  $2\theta=29,83^\circ$  dan  $2\theta=36,12^\circ$  dengan hkl

masing-masing (001), (011) dan (111). Pencocokkan kurva XRD untuk pelet sinter  $\text{UO}_2$ -0,9%berat Zr dengan struktur yang diacu ditampilkan pada Gambar 3d. Pencocokkan tersebut ada tiga posisi  $2\theta$  yang bersesuaian dengan fasa  $\text{UO}_3$  (98-006-5556). Posisi  $2\theta=21,806^\circ$  dengan hkl (001) menjadi bergeser ke kanan sedangkan  $2\theta=29,875^\circ$  dan  $2\theta=35,57^\circ$  dengan hkl masing-masing (011) dan (111) bergeser ke kiri. Ketiga puncak tersebut mempunyai perbandingan intensitas yang berbeda dengan struktur yang diacu.

Pencocokkan kurva di atas seperti yang ditampilkan pada Gambar 3, terjadinya pergeseran posisi  $2\theta$  dan perbedaan intensitas pada setiap posisi  $2\theta$  yang bersesuaian dari pelet pelet sinter  $\text{UO}_2$  diduga karena adanya perubahan parameter kisi dan jumlah bidang dengan arah yang sama di posisi  $2\theta$  tersebut karena logam Zr mensubstitusi sebagian posisi U pada pelet  $\text{UO}_2$  dan mendistorsi kisi  $\text{UO}_2$ . Distorsi kisi  $\text{UO}_2$  dimungkinkan terjadi karena jari-jari ion  $\text{Zr}^{4+}$  (0,084Å) lebih kecil dari ion  $\text{U}^{4+}$  (0,100Å)[10]. Komposisi fasa pelet sinter  $\text{UO}_2$  tanpa dan dengan penambahan dopan zirkonium untuk masing-masing fraksi fasa yang terbentuk, panjang kisi dan harga stoikiometrinya berdasarkan persentase atau fraksi fasa yang terbentuk. Komposisi fasa yang terbentuk dari hasil pencocokkan kurva XRD untuk pelet sinter dengan kurva fasa/struktur yang diacu akan menentukan harga rasio O/U (stoikiometri) pelet sinter  $\text{UO}_2$  seperti ditampilkan pada Tabel 1. Dari Tabel 1 diketahui bahwa (O/U) ratio struktur yang mendominasi adalah  $\text{UO}_2$  sehingga harga stoikiometrinya 2 (dua). Pergeseran harga stoikiometri pelet sinter  $\text{UO}_2$  ini ditentukan oleh persentase fasa  $\text{UO}_3$  yang terbentuk. Pada pelet  $\text{UO}_2$ , nilai stoikiometrinya atau rasio O/U=2, hal ini merupakan salah satu persyaratan pelet  $\text{UO}_2$  sebagai bahan bakar reaktor PWR[20]. Deviasi nilai stoikiometri  $\text{UO}_2$  sangat mempengaruhi kinerja pelet  $\text{UO}_2$  di reaktor [20-21]. Pelet  $\text{UO}_2$  yang hiperstoikiometri

bersifat lebih plastis sehingga mempunyai laju mulur semakin meningkat dengan semakin besar nilai deviasi stoikiometri. Pada temperatur tinggi, peningkatan laju mulur dan laju difusi dapat mengakibatkan terjadinya *swelling* pada pelet  $UO_2$  yang mendegradasi kemampuan retensi produk fisi dan menurunkan integritas kelongsong karena terjadi PCI (*pellet-cladding interaction*). Bila dikaitkan dengan pustaka diatas[20,21] maka penambahan logam zirkonium pada pelet  $UO_2$  dalam penelitian ini dapat menurunkan kemampuan retensi produk fisinya saat digunakan di reaktor. Hasil analisis komposisi fasa pada pelet sinter  $UO_2$  dengan penambahan logam Zr di bawah 1%berat pada penelitian ini dapat memperbaiki kualitas pelet sinter, namun untuk mendapatkan mikrostruktur  $UO_2$ -Zr dengan persentase penambahan Zr sebesar 5% dan 10%berat diperlukan proses pencampuran serbuk  $UO_2$  dengan serbuk Zr menggunakan *ball mill* sehingga diperoleh campuran serbuk yang homogen sebelum dikompaksi.

## SIMPULAN

Penambahan dopan logam Zr sebesar 0,3%; 0,5% dan 0,9%berat terhadap pelet  $UO_2$  tidak terdapat cacat maupun retak pada pelet  $UO_2$  hasil sinter. Pelet sinter mempunyai rentang densitas 91% – 93%TD dan memenuhi persyaratan sebagai bahan bakar PWR. Sementara itu, analisis mikrostruktur dengan mikroskop optik belum dapat mengkonfirmasi keberadaan Zr dalam pelet sinter  $UO_2$ -Zr. Evaluasi data hasil pengujian dengan XRD yang dikombinasikan dengan perangkat lunak *HighScore* memberikan struktur yang terbentuk dan komposisi fasa dalam pelet sinter  $UO_2$  melalui pencocokan kurva hasil uji dengan struktur dari *database*. Fasa yang terbentuk pada pelet sinter  $UO_2$  tanpa tambahan Zr dan dengan variasi persentase penambahan Zr adalah  $UO_2$  dan  $UO_3$ . Fraksi

$UO_3$  yang terbentuk berbanding lurus dengan persentase penambahan zirkonium dan terjadi perubahan nilai stoikiometri berdasarkan fraksi fasa yang terbentuk pada pelet sinter  $UO_2$ .

## UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Ka. PTBBN yang telah memberikan anggaran DIPA PTBBN tahun 2014 dan kepada semua staf BFBBN-PTBBN yang telah membantu pelaksanaan penelitian ini terkait proses preparasi, fabrikasi dan karakterisasi hasil fabrikasi pelet  $UO_2$ . Penulis juga mengucapkan terima kasih kepada Bapak Dr. Jan Setiawan yang telah membantu dalam mengevaluasi data hasil uji XRD sehingga penulisan karya tulis ilmiah ini dapat terwujud.

## DAFTAR PUSTAKA

- [1] S. J. Zinkle and G. S. Was, "Materials challenges in nuclear energy," *Acta Materialia*, vol.6, pp. 735-758, 2013.
- [2] A. M. Savchenko et al., "Review of A.A. Bochvar Institute Activities in Developing Potentially Accident Tolerant Fuel for Light Water Reactors," *Top Fuel 2015 Proceedings Part I*, Switzerland, September 2015, pp. 21–30.
- [3] E. Mutiara and M. Rachmawati, "Dip-coating Process in Colloidal Graphite of Fuel Element Zircaloy-2 Cladding," *Jurnal Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, vol.23, no.1, hal. 1-10, 2017.
- [4] H. G. Kim, et al. , "Development Status of accident-tolerant fuel for light water reactors in Korea," *Nuclear Engineering and Technology*, vol. 48, pp. 1- 5, 2016.
- [5] K. Barret, S. Bragg-Sitton, and D. Galicki, "Advanced LWR nuclear fuel cladding system development trade-off study", *INL/EXT-12-27090*, pp. 1-34, 2012.

- [6] W. B. Ferraz, *et al.*, “Effect of the W and MoO<sub>3</sub> addition on the microstructure of UO<sub>2</sub> pellets,” *International Nuclear Atlantic Conference–INAC*, 2011, Brazil.
- [7] D. J. Kim, *et al.*, “Fabrication of Cr-doped UO<sub>2</sub> fuel pelet using liquid phase sintering,” *Transactionn of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting*, October 2013.
- [8] T. Yulianto, M. Rachmawati, dan E. Mutiara, “Proses pengompakan dan penyinteran pelet cermet UO<sub>2</sub>-Zr”, *Jurnal Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, vol. 19, no.1, hal. 39-46, 2013.
- [9] D. J. Kim *et al.*, “Fabrication of micro-cell UO<sub>2</sub>-Mo pellet with enhanced thermal conductivity,” *Journal of Nuclear Material*, vol. 462, pp. 289-295, 2015.
- [10] H. Xiao, *et. al.*, “Effects of Zr doping on the surface energy and surface structure of UO<sub>2</sub>: atomistic simulations,” *Applied Surface Science*, vol. 351, pp. 517-523, 2015.
- [11] H. S. Lee, *et. al.*, “Numerical characterization of micro-cell UO<sub>2</sub>-Mo pellet for enhanced thermal performance”, *Journal of Nuclear Materials*, vol. 477, pp. 88-94, 2016.
- [12] J. H. Yang, *et. al.*, “A fabrication technique for a UO<sub>2</sub> pellet consisting of UO<sub>2</sub> grains and continuous W channel on the grain boundary”, *Journal of Nuclear Materials*, vol. 353, pp. 202-208, 2006.
- [13] D. J. Kim *et al.*, “Thermal conductivity measurement of Zr-ZrO<sub>2</sub> simulated inert matrix nuclear fuel pellet”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 3, pp. 46-50, 2013.
- [14] Q. Yin and S. Y. Savrasov, “Origin of low thermal conductivity in nuclear fuels,” *Physical Review Letters*, vol. 100, pp. 1-4, 2008.
- [15] J. T. White and A. T. Nelson, “Thermal conductivity of UO<sub>2+x</sub> and U<sub>4</sub>O<sub>9-y</sub>”, *Journal of Nuclear Materials*, vol. 443, pp. 342-350, 2013.
- [16] E. Gevondyan, “Evaluation of the effects of composition on thermophysical properties of non-stoichiometric uranium dioxide by classical molecular dynamics simulations”, *ESSAI*, vol. 11, Art.16, pp. 35-43, 2013.
- [17] T. Uchida, *et. al.* “Thermal properties of UO<sub>2</sub> by molecular dynamics simulation,” *Progress in Nuclear Science and Technology*, vol. 2, pp. 598-602, 2011.
- [18] S. Foral, “Thermal conductivity enhancement of nuclear fuels,” *Doctoral Degree Programme*, 2012. Available:[http://eeict.feec.vutbr.cz/2013/sbornik/03doktorskeprojekty/04silno\\_proudaelektrotechnikaeelektroenergetika/04-xforal02.pdf](http://eeict.feec.vutbr.cz/2013/sbornik/03doktorskeprojekty/04silno_proudaelektrotechnikaeelektroenergetika/04-xforal02.pdf)
- [19] J. Tulenko, “Development of innovative accident tolerant high thermal conductivity UO<sub>2</sub>-diamond composite fuel pellets”, *NEUP Final Progress Report*, Project No. 12-4037, 2016.
- [20] B. Kienzler, *et al.*, “The 7th Framework Programme Collaborative Project FIRST-Nuclides: State of the Art and Rationale for Experimental Investigation”, *European Commision*, 2012.
- [21] C. Riglet-Martial, *et. al.*, “Experimental evidence of oxygen thermomigration in PWR UO<sub>2</sub> fuels during power ramps using in-situ oxide-reduction indicators”, *Journal of Nuclear Materials*, vol. 480, pp. 32-39, 2016.