

KARAKTERISTIK MEKANIK KELONGSONG BAHAN BAKAR NUKLIR TEMPERATUR TINGGI DALAM ATMOSFER GAS NITROGEN

Rohmad Sigit, Sri Ismarwanti, Guswardani, Yatno Dwi Agus Susanto, Jan Setiawan

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN

Kawasan Puspiptek Serpong Gd.20 Tangerang Selatan, Banten 15314

e-mail: sigitebp@batan.go.id

(Naskah diterima: 01-06-2018, Naskah direvisi: 10-06-2018, Naskah disetujui: 30-06-2018)

ABSTRAK

KARAKTERISTIK MEKANIK KELONGSONG BAHAN BAKAR NUKLIR TEMPERATUR TINGGI DALAM ATMOSFER GAS NITROGEN. Pada kondisi kehilangan aliran pendingin dalam teras reaktor, Zr-2 dan Zr-4 sebagai kelongsong bahan bakar nuklir berpotensi terpapar udara luar yang secara eksperimen menyebabkan penurunan sifat mekanik lebih cepat jika dibandingkan saat berada dalam lingkungan uap. Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui dampak nitrogen terhadap kekuatan mekanik kelongsong dengan meminimalkan pengaruh lingkungan lainnya. Kelongsong Zr-2 dan Zr-4 dipanaskan dalam kondisi vakum pada temperatur 500°C dan dialiri oleh gas nitrogen dengan tekanan mencapai 1500 mbar selama 2 jam yang dilanjutkan dengan pendinginan secara alami hingga mencapai temperature ruang. Hasil pengujian tarik ring dan uji kekerasan mikro pasca nitridasi menunjukkan peningkatan kekuatan tarik, daktilitas dan kekerasan berturut-turut sebesar 12,1%, 19,2% dan 28,2% untuk Zr-2 serta 5,1%, 25% dan 22,6% untuk Zr-4. Lapisan nitrida terbentuk di permukaan kelongsong akibat interaksi dengan nitrogen dan tidak tampak penurunan sifat mekanik akibat nitrogen yang disebabkan oleh proses nitridasi yang tidak didahului atau disertai oleh proses oksidasi.

Kata kunci: Karakteristik mekanik, kelongsong, zirkaloi, nitrogen, nitridasi.

ABSTRACT

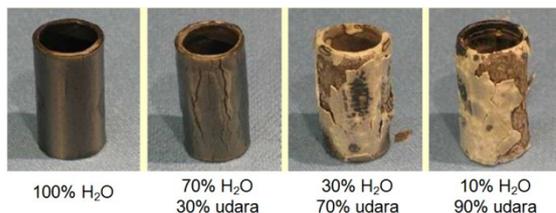
MECHANICAL PROPERTIES OF HIGH TEMPERATURE FUEL CLADDING AT NITROGEN ATMOSPHERE. *At Loss of Cooling Accident (LOCA) scenario, Zr-2 and Zr-4 as nuclear fuel cladding potentially exposed to air which experimentally leads to mechanical properties degradation faster than in steam environment. This study aims to determine the impact of nitrogen on the mechanical strength of cladding by minimizing other environmental influences. The Zr-2 and Zr-4 cladding was annealed under vacuum at a temperature of 500°C for one hour. It was followed by nitriding with the pressure of 1500 mbar for two hours. It was followed by natural cooling to room temperature. The results of tensile strength and microhardness testing showed that tensile strength, ductility and microhardness values increase of 12.1%, 19.2% and 28.2% for Zr-2 and 5.1%, 25% and 22,6% for Zr-4, respectively. Nitride layer was formed on the cladding surface due to interaction with nitrogen and there is no mechanical properties degradation due to nitriding process. It was caused by nitriding processes that were not followed or accompanied by oxidation processes.*

Keywords: *Mechanical properties, cladding, zircaloy, nitrogen, nitriding.*

PENDAHULUAN

Perilaku kelongsong bahan bakar saat berada pada temperatur tinggi harus menjadi perhatian penting. Hal ini terkait dengan potensi terjadinya kecelakaan lepasan zat radioaktif ke lingkungan. Zirkaloi-2 (Zr-2) dan zirkaloi-4 (Zr-4) adalah salah satu paduan zirkonium yang digunakan sebagai kelongsong bahan bakar nuklir. Selama iradiasi di reaktor, kelongsong berada dalam lingkungan yang memberi potensi menurunnya kekuatan mekanik seperti radiasi, oksidasi dan absorpsi hidrogen. Degradasi sifat mekanik kelongsong selama operasi reaktor nuklir menyebabkan menurunnya toleransi kekuatan kelongsong untuk mengakomodasi kondisi transien seperti tekanan gas hasil fisi yang terbentuk selama proses iradiasi.

Salah satu kondisi transien yang banyak digunakan sebagai simulasi skenario kecelakaan adalah kehilangan aliran pendingin dalam reaktor nuklir atau *Loss of Cooling Accident* (LOCA)[1-4]. Pada kondisi LOCA, permukaan pendingin dalam teras reaktor akan berkurang sehingga kelongsong akan berpotensi langsung kontak dengan udara luar. Dari beberapa eksperimen, dinyatakan bahwa korosi zirkaloi terjadi lebih cepat di udara luar dibandingkan saat berada dalam dalam suasana oksigen atau uap air seperti yang terlihat pada Gambar 1 [5-9].



Gambar 1. Kelongsong Zr-4 dipanaskan pada temperatur 1200°C selama 1 jam dengan berbagai variasi komposisi uap air[9]

Fenomena tersebut menurut Lassere, *et al* dipengaruhi oleh keberadaan nitrogen di udara yang menyebabkan peningkatan laju

korosi terutama pada suhu di atas 700°C[10]. Coindreau, *et al* menyebutkan bahwa nitrogen terpresipitasi dalam zirkaloi dalam bentuk ZrN dan bereaksi dengan oksida yang telah terbentuk sebelumnya. Reaksi tersebut menyebabkan peningkatan volume akibat pori sehingga menyebabkan terjadinya retakan pada lapisan oksida bagian terluar[11]. Retakan akan memberi akses gas nitrogen atau bahkan hidrogen untuk masuk ke dalam bahan sehingga menyebabkan kerusakan pada kelongsong. Kerusakan akibat serapan hidrogen bahkan bisa menurunkan nilai regangan Zr-4 sebesar 22% dari nilai semula[12].

Penelitian ini dilakukan dengan tujuan untuk mengetahui pengaruh nitrogen terhadap perubahan karakter sifat mekanik kelongsong Zr-2 dan Zr-4. Proses nitridasi dilakukan pada temperatur 500°C dalam kondisi vakum untuk meminimalkan kontak oksigen terhadap kelongsong. Temperatur nitridasi ditentukan sedikit diatas temperatur kelongsong selama operasi reaktor untuk mengetahui toleransi perubahan sifat mekaniknya. Diharapkan perubahan sifat mekanik kelongsong Zr-2 dan Zr-4 yang pasca nitridasi hanya dipengaruhi oleh keberadaan nitrogen pada temperatur tinggi.

METODOLOGI

Penelitian ini menggunakan potongan kelongsong Zr-2 dan Zr-4 non iradiasi yang banyak digunakan sebagai bahan struktur untuk reaktor daya. Dimensi sampel uji dan deskripsinya seperti yang ditunjukkan pada Tabel 1 dan Gambar 2.

Tabel 1. Dimensi Sampel Uji

Sampel Uji	Parameter (mm)		
	Diameter	Tebal	Lebar
Zr-2	20,00	0,65	3,00
Zr-4	13,25	0,45	3,00



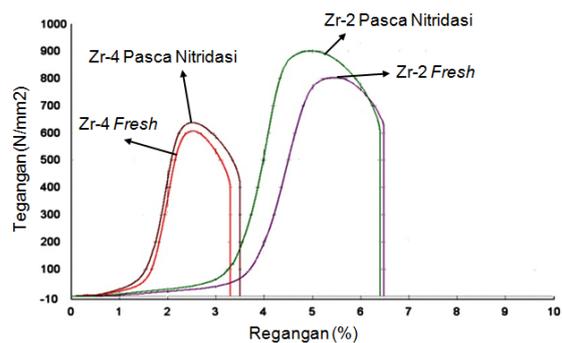
Gambar 2. Kelongsong Zr-2 dan Zr-4

Proses nitridasi menggunakan alat *hydriding-dehydriding* yang sudah ada sebelumnya dengan menambahkan jalur baru untuk *charging* gas nitrogen ke dalam tabung sampel. Potongan kelongsong Zr-2 dan Zr-4 dipanaskan pada temperatur 500°C dalam tabung sampel yang terintegrasi dengan tungku sistem *hydriding-dehydriding*[13]. Proses pemanasan berada dalam kondisi vakum dengan tekanan vakum mencapai orde 10^{-2} mbar selama 1 jam. Hal ini bertujuan untuk mengoptimalkan homogenitas temperatur terhadap sampel. Selanjutnya, proses nitridasi dilakukan dengan cara memasukkan gas nitrogen ke dalam tabung sampel secara bertahap hingga tekanan sistem mencapai 1500 mbar dan ditahan selama 2 jam. Setelah proses nitridasi, sistem didinginkan secara perlahan hingga mencapai temperatur ruang.

Untuk mengetahui pengaruh interaksi gas nitrogen dengan kelongsong dilakukan pengujian mekanik dan pengamatan struktur mikro. Pengujian mekanik meliputi pengujian tarik spesimen *ring* dan uji kekerasan mikro. Pengujian tarik ring menggunakan mesin uji tarik dengan beban 10 kN dan laju penarikan sebesar 1 mm/s pada temperatur kamar. Uji kekerasan mikro dilakukan dengan menggunakan alat uji kekerasan dengan parameter beban sebesar 50 gf dan waktu indentasi selama 10 detik. Pengamatan mikro struktur zirkaloi pasca nitridasi dilakukan dengan menggunakan mikroskop optik.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil uji tarik spesimen uji Zr-2 dan Zr-4 pasca nitridasi yang dibandingkan dengan sampel Zr-2 dan Zr-4 fresh ditampilkan pada Gambar 3. Gambar 3 menunjukkan terjadi peningkatan nilai regangan Zr-2 sebesar 19,2% dan Zr-4 sebesar 25% terhadap nilai regangan semula. Peningkatan juga terjadi pada nilai *Ultimate Tensile Strength* (UTS) Zr-2 dan Zr-4 yang meningkat berturut-turut sebesar 12,1% dan 5,1%.

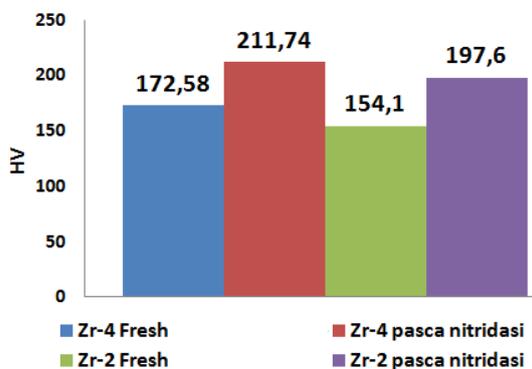


Gambar 3. Hubungan tegangan terhadap regangan spesimen uji Zr-2 dan Zr-4 pasca nitridasi.

Peningkatan nilai regangan berhubungan dengan peningkatan daktilitas kelongsong Zr yang terlihat pada karakter toleransi regangan yang cukup lebar pasca *necking* sebelum mencapai titik *fracture strength*-nya. Karakter fraktur pada kelongsong Zr pra iradiasi sangat dipengaruhi oleh temperatur[14], jadi besar kemungkinan bahwa penyebab kenaikan nilai regangan didominasi oleh kenaikan temperatur tanpa mengabaikan peranan nitrogen di dalamnya. Kondisi berbeda terjadi pada terjadinya peningkatan nilai kekuatan tarik kelongsong pasca nitridasi. Kenaikan nilai UTS kelongsong disebabkan oleh pembentukan lapisan nitrida pada permukaan kelongsong. Nilai UTS juga bisa meningkat akibat keberadaan presipitat nitrida dalam matriks Zr. Pembentukan presipitat disebabkan oleh pendinginan secara alami didalam tungku yang menyebabkan penurunan daya larut nitrogen. Lapisan maupun presipitat nitrida cenderung bersifat lebih keras dan kaku jika dibandingkan dengan matriks Zr[15]. Hal ini dikonfirmasi dengan hasil pengukuran nilai kekerasan mikro pasca nitridasi dan pengamatan struktur mikro.

Gambar 4 menunjukkan bahwa pada proses nitridasi temperatur 500°C, kekerasan mikro kelongsong Zr-4 meningkat secara signifikan hingga mencapai nilai 22,6% jika dibandingkan dengan kelongsong Zr-4 tanpa perlakuan. Hal senada juga

terlihat pada nilai kekerasan mikro sampel kelongsong Zr-2 yang meningkat sebesar 28,2%. Peningkatan nilai kekerasan mikro pada kedua spesimen uji besar disebabkan oleh keberadaan lapisan nitrida yang terbentuk pada permukaan kelongsong. Homogenitas nilai kekerasan pada kelongsong yang ditunjukkan oleh distribusi nilai kekerasan di sepanjang titik indentasi pada pengujian kekerasan mikro menunjukkan meratanya pembentukan lapisan nitrida pada permukaan kelongsong.

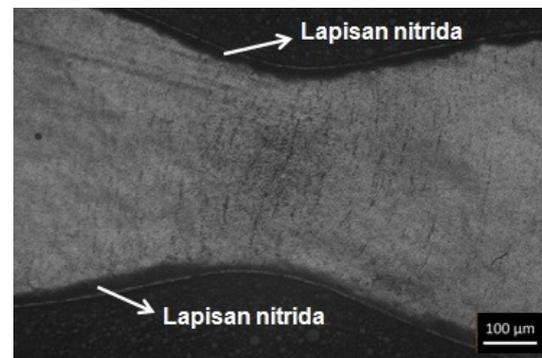


Gambar 4. Hasil uji kekerasan spesimen uji Zr-2 dan Zr-4 pasca nitridasi.

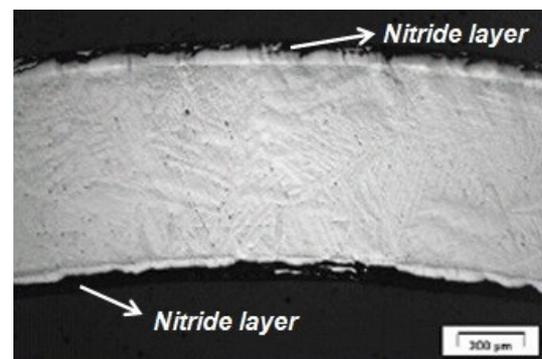
Nihilnya penurunan sifat mekanik kelongsong akibat interaksi dengan gas nitrogen pada temperatur tinggi menunjukkan bahwa mekanisme degradasi kekuatan mekanik kelongsong tidak terpenuhi dalam penelitian ini. Proses nitridasi yang dilakukan pada kondisi vakum menyebabkan tidak adanya intervensi oksida sepanjang proses nitridasi. Selain itu, berdasarkan hasil analisis menggunakan ONH analyzer pada kelongsong sebelum digunakan dalam penelitian menunjukkan bahwa kadar oksigen pada kelongsong mendekati nol. Hal ini membuat potensi kontak langsung nitrogen dengan matriks Zr sangat besar terjadi tanpa harus melewati lapisan zirkonia yang terbentuk sebelumnya. Menurut Vasiliev[16], pembentukan lapisan nitrida pada permukaan kelongsong yang disertai dengan pembentukan lapisan oksida akan membentuk lapisan yang porous. Porositas lapisan inilah yang akan memberi

jalan untuk proses presipitasi lanjutan baik oleh nitrogen, oksigen maupun hidrogen yang berpotensi menurunkan sifat mekanik kelongsong bahan bakar nuklir.

Pengamatan struktur mikro zirkaloi pasca nitridasi menegaskan bahwa ketiadaan oksigen dalam reaksi hanya menyebabkan pembentukan nitrida dalam bentuk lapisan di permukaan seperti yang terlihat pada gambar 6(a). Hal ini sejalan dengan hasil pengamatan yang dilakukan oleh M. Steinbrück pada kelongsong Zr-4 yang dipanaskan dalam suasana nitrogen murni pada temperatur 1200°C selama 3 jam yang ditampilkan pada gambar 6(b)[9].



(a)



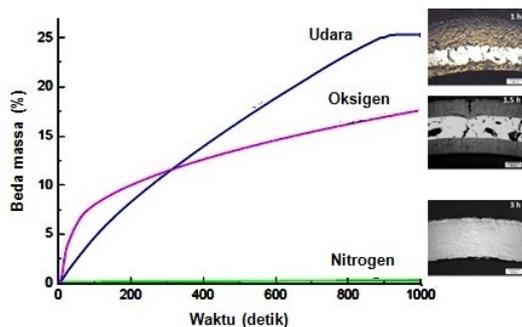
(b)

Gambar 5. Lapisan nitrida pada Zr-4 pasca nitridasi temperatur 500°C selama 2 jam (a); dan lapisan nitrida pada Zr-4 pasca nitridasi pada temperatur 1200°C selama 3 jam (b)

Kedua gambar menunjukkan pembentukan lapisan nitrida pada permukaan kelongsong dengan struktur mikro matriks Zr pasca

nitridasi tidak mengalami perubahan secara signifikan.

Dalam penelitian ini, pembentukan lapisan nitrida di permukaan zirkaloi disebabkan oleh keberadaan nitrogen yang merupakan satu-satunya gas yang berinteraksi dengan kelongsong Zr-2 dan Zr-4 selama proses nitridasi. Hal ini bisa dijelaskan dengan sangat baik oleh gambar 6 yang menunjukkan bahwa nitrogen murni tidak bersifat reaktif saat berinteraksi dengan kelongsong Zr-4 pada temperatur tinggi. Hal berbeda terjadi ketika udara yang komposisi terbesarnya adalah nitrogen berinteraksi dengan kelongsong Zr-4. Ketika terjadi kontak dengan kelongsong, udara berdifusi ke dalam lapisan oksida dan antarmuka matriks Zr yang diikuti dengan pembentukan ZrN baik dalam bentuk presipitat maupun lapisan tipis. Re-oksidasi oleh udara ke dalam jalur difusi yang sama akan menyebabkan peningkatan volume dan menghasilkan lapisan oksida yang porous dan tak terlindung, sehingga penurunan sifat mekanik kelongsong akan terjadi dalam waktu yang relatif singkat.



Gambar 6. Kinetika reaksi Zr-4 setelah pemanasan dalam beberapa kondisi lingkungan[9].

SIMPULAN

Parameter penelitian yang ditentukan dalam penelitian ini tidak menunjukkan adanya penurunan sifat mekanik pada kelongsong Zr-2 dan Zr-4 akibat interaksinya dengan gas nitrogen. Sebaliknya, terjadi peningkatan kekuatan mekanik yang ditandai dengan peningkatan

kekuatan tarik, daktilitas dan kekerasan mikro pada kedua spesimen uji karena tidak adanya mekanisme oksidasi yang menyertai proses nitridasi yang ditandai dengan pembentukan lapisan nitrida pada permukaan zirkaloi.

UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terima kasih penulis sampaikan pada Kepala Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir yang telah memfasilitasi penelitian ini dengan anggaran DIPA 2017. Penulis juga mengucapkan terima kasih pada saudari Elza Aviana yang telah membantu dalam proses nitridasi dan karakterisasi.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] F. Nagase and T. Fuketa, "Behaviour of Pre-hydrated Zircaloy-4 cladding under simulated LOCA conditions." *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 42, no. 2, pp. 209–218, 2005.
- [2] J.H. Kim, B. K. Choi, J. H. Baek, Y. H. Jeong, "Effects of oxide and hydrogen on the behavior of Zircaloy-4 cladding during the loss of the coolant accident (LOCA)" *Nuclear Engineering and Design*, vol. 236, pp. 2386–2393, 2006.
- [3] E. Hong, D. C. Dunand, H. Choe, "Hydrogen induced transformation superplasticity in zirconium," *International Journal of Hydrogen Energy*, vol. 35, pp. 5708-5713, 2010.
- [4] A. Pshenichnikov, J. Stuckert, and M. Walter, M. "Microstructure and mechanical properties of Zircaloy-4 cladding hydrogenated at temperatures typical for Loss-of-Coolant Accident (LOCA) conditions." *Nuclear Engineering Design*, vol. 283, pp. 33-39, 2015.
- [5] C. Duriez, et al. "Zircaloy-4 and M5 high temperature oxidation and nitriding in air," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 380 no. 1-3, pp. 30-45, 2008.
- [6] C. Duriez, et al. "Separate-effect test in zirconium cladding degradation in air

- ingress situation," *Nuclear Engineering and Design*, vol. 239 no.2, pp. 244-253, 2009.
- [7] S. Park, K. Kim, J. Lee, " Effect of nitriding on the air oxidation of Zry-4 at high temperature, *Transactions of the Korean Nuclear Society Autumn Meeting, October 26-27, 2017, Gyeongju, Korea*.
- [8] M. Steinbrueck, F.O. da Silva, M. Grosse, "Oxidation of Zircaloy-4 in steam-nitrogen mixtures at 600-1200°C," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 490, pp. 226-237, 2017.
- [9] Martin Steinbrück, "High-temperature oxidation and mutual interactions of materials during severe accidents in LWRs." *Seminar at the Institute of Nuclear Chemistry and Technology, 20 March 2014, Warsaw, Poland*.
- [10] O. Coindreau, C. Duriez, S. Ederli, "Air oxidation of Zircaloy-4 in the 600-1000°C temperature range: Modeling for ASTEC code application," *Journal of Nuclear Materials*, vol. 405 no. 3, pp. 207-215, 2010.
- [11] M. Lassere, et al., "Study of Zircaloy-4 cladding air degradation at high temperature," *Proceedings of the 2013 21st International Conference on Nuclear Engineering ICONE21*, 2013, Chengdu, China.
- [12] R. Sigit, F. Al Afghani, J. Setiawan, Sungkono, "Pengaruh hidrogen terhadap kekuatan tarik kelongsong bahan bakar nuklir berbasis zirkonium," *Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, vol. 23, no. 3, hal. 175-182, 2017.
- [13] R. Sigit, H. Suwarno, and B. Soegijono, "Characterization of zircaloy-4 after gaseous hydriding at the temperature range of 350-600°C," *Atom Indonesia Journal*, vol. 42, no. 3, pp. 137-143, 2016
- [14] S. K. Kim, et al. "Hoop strength and ductility evaluation of irradiated fuel cladding," *Nuclear Engineering and Design*, vol. 239 no. 2, pp. 254-260, 2009.
- [15] R.W. Harrison and W.E. Lee, "Processing and properties of ZrC, ZrN and ZrCN ceramics: a review," *Advanced in Applied in Ceramics*, vol. 115 no. 5, pp. 294-307, 2016.
- [16] A. Vasiliev, "Role of zirconium nitride formation under zirconium based cladding oxidation in air during NPP beyond design basis accidents," *Proceedings of the 2014 22nd International Conference on Nuclear Engineering ICONE22*, 2014, Prague, Czech Republic.