

# ANALISIS ENERGI AKTIVASI PRESIPITAT FASA KEDUA PADA PADUAN Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe DENGAN DIFRAKSI SINAR-X

Sugondo<sup>(1)</sup>, Meniek Rachmawati<sup>(1)</sup>

1. Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-BATAN

Kawasan PUSPIPTEK, Serpong, Tangerang Selatan 15314

E-mail: sugondo@batan.go.id

(Naskah diterima tanggal: 05-09-2011, disetujui tanggal: 06-12-2011)

## ABSTRAK

**ANALISIS ENERGI AKTIVASI PRESIPITAT FASA KEDUA PADA PADUAN Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe DENGAN DIFRAKSI SINAR-X.** Penelitian ini bertujuan untuk menganalisis energy aktivasi fasa kedua pada ingot paduan Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe hasil sintesa. Ingot dibuat dengan peleburan busur tunggal. Selanjutnya sampel dianil pada temperatur 400 °C, 500 °C, 600 °C, 700 °C dan 800 °C selama 2 jam. Analisis difokuskan pada presipitat fasa kedua (*Secondary Phase Precipitate/SPP*). Identifikasi energy aktivasi berdasarkan pola difraksi sinar-X dan dibantu dengan data JCPDF (*Joint Committee Powder Diffraction File*). Hasil pola difraksi beserta datanya dianalisis secara manual, tidak dapat langsung sesuai dengan data JCPDF sebab adanya distorsi terutama dari SPP. Hasil analisis disimpulkan sebagai berikut: Pada temperatur anil 400 °C, 500 °C, dan 700 °C pengintian partikel fasa kedua SPP terjadi dengan baik. Untuk paduan Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe pada temperatur anil antara 400 °C sampai dengan 800 °C ditemukan SPP Fe<sub>2</sub>Nb, ZrSn<sub>2</sub>, FeSn, SnZr, NbSn<sub>2</sub>, Zr<sub>0,68</sub>Nb<sub>0,25</sub>Fe<sub>0,08</sub>, Fe<sub>2</sub>Nb<sub>0,4</sub>Zr<sub>0,6</sub>, Fe<sub>37</sub>Nb<sub>9</sub>Zr<sub>54</sub>, dan ω-Zr. Stabilisasi presipitat terjadi dengan baik pada temperatur anil 800 °C, pertumbuhan presipitat antara 500 °C sampai dengan 600 °C, dan minimisasi ukuran presipitat pada temperatur anil 700 °C. Diperoleh energi aktivasi Fe<sub>2</sub>Nb sebesar -7,0083 kJ/mol, energi aktivasi FeSn sebesar -2,2858 kJ/mol, energi aktivasi NbSn<sub>2</sub> sebesar -3,1498 kJ/mol, dan energi aktivasi nano kristalit α-Zr sebesar 0,0077 kJ/mol.

**Kata Kunci:** paduan Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe, pola difraksi sinar-x, presipitat fasa kedua, energy aktivasi.

## ABSTRACT

**ACTIVATION ENERGY ANALYSIS OF SECONDARY PHASE PRECIPITATE IN Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe ALLOY.** The objective of this research is to analyze of activation energies in Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe alloy as the product of the synthesis. The ingot was prepared by single spark melting. The samples then anneal at temperature 400°C, 500°C, 600°C, 700°C dan 800°C for 2 hours. The analyzed was focused on secondary phase precipitate/ SPP. The activation energies was identified based on X-rays diffraction pattern and supported by Joint Committee Powder Diffraction File/ JCPDF. The Result of diffraction pattern with the data were analyzed by manual, it was not done by direct meet with the JCPDF data because of the distortion of the SPP. The analyzed results were concluded as follow: The nucleation of the secondary phase precipitate/ SPP

was good at the anneal temperature of 400°C, 500°C, and 700°C. The Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe alloy at temperature in between 400°C to 800°C were found the precipitates  $Fe_2Nb$ ,  $ZrSn_2$ ,  $FeSn$ ,  $SnZr$ ,  $NbSn_2$ ,  $Zr_{0.68}Nb_{0.25}Fe_{0.08}$ ,  $Fe_2Nb_{0.4}Zr_{0.6}$ ,  $Fe_{37}Nb_9Zr_{54}$ , dan  $\omega$ -Zr. At temperature anneal 800°C was good for the precipitate stabilization, at temperature in between 500°C to 600°C was good for the precipitate growth, at temperature anneal 700°C was good for minimizing the precipitate size. It was found that activation energy of  $Fe_2Nb$  was -7,0083 kJ/mol, activation energy of  $FeSn$  was -2,2858 kJ/mol, activation energy of  $NbSn_2$  was -3,1498 kJ/mol and activation energy of  $\alpha$ -Zr nano crystallite was 0,0077 kJ/mol.

**Keywords:** alloy Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe, pola difraksi sinar x, secondary phase precipitate, activation energy.

## PENDAHULUAN

### Latar belakang

Paduan zirkonium (Zircaloy) adalah bahan yang paling utama digunakan dalam industri nuklir. Dalam reaktor nuklir, Zircaloy diperlukan sebagai pelindung bahan bakar dari pendingin, pengungkung gas hasil fisi, pemindah panas, dan bahan struktur. Dengan demikian maka Zircaloy harus mempunyai sifat mekanik yang baik, tahan korosi, dan serapan neutron rendah. Sebagai contoh, Zircaloy-2 digunakan untuk reaktor air didih (BWR) dan Zircaloy-4 digunakan untuk reaktor air bertekanan (PWR) dengan temperatur kelongsong 349 °C untuk PWR dan 390 °C untuk BWR [1].

Untuk meningkatkan efisiensi reaktor, maka daya kumulatif harus ditingkatkan tetapi yang menjadi masalah adalah bahwa bahan kelongsong zircaloy-2 dan zircaloy-4 tidak tahan korosi pada kondisi ini. Bahan kelongsong lain yang tahan korosi ialah Zirlo (Zr-1%Nb-1%Sn-0,1%Fe) [2]. Penambahan pemuatan besi dengan konsentrasi antara 0,2-1% pada paduan Zr-1%Sn dapat menurunkan laju korosi [3] dan gejala yang sama pada paduan Zr-1%Nb.

Pengembangan paduan Zr-Sn-Nb-Fe utamanya untuk kelongsong bahan bakar pada derajat bakar (*burn-up*) tinggi. Keunggulan paduan tersebut ialah: pertama, temperatur pendingin dapat ditingkatkan; kedua, konsentrasi litium (Li)

dalam pendingin dapat lebih tinggi; ketiga, pengurangan *creep* dan *growth* akibat iradiasi; keempat, mengurangi *pick-up* hydrogen; dan kelima, ketahanan korosinya lebih tinggi dibandingkan dengan zircaloy-2 (Zry-2) dan zircaloy-4 (Zry-4). Keunggulan itu diketahui setelah uji paska iradiasi (*post irradiation examination/PIE*) dari hasil iradiasi dengan derajat bakar (*burn-up*) 70.000 MWd/Te [4].

Pada saat ini karakteristik korosi zircaloy menjadi yang paling utama pada teknologi bahan bakar reaktor air ringan (*light water reactors/ LWR*). Ketahanan korosi reaktor dan bahan struktur selalu membatasi peningkatan ekonomi pada penggunaan bahan bakar yang terkait dengan peningkatan fluks panas, temperatur pendingin dan waktu tinggal di teras. Tantangan unjuk kerja bahan bakar diarahkan pada optimasi komposisi kimia dan mikrostruktur pada paduan komersial (Zry-2), (Zry-4), Zr-1%Nb dan Zr-2,5%Nb. Kelongsong (Zry-4) dalam reaktor air bertekanan (*pressurized water reactors/ PWR*) meningkat ketahanan korosinya jika ukuran partikel fasa sekunder (*secondary phase particles/SPP*) lebih besar dari sepersepuluh mikrometer dan kandungan timah (Sn) lebih rendah dari yang telah dispesifikasikan. Fakta baru muncul bahwa ketahanan korosi maksimum dicapai dengan ukuran SPP lebih kecil sepersepuluh mikrometer untuk bahan Zr-1%Nb, Zr-2,5%Nb dan Zirlo. Ukuran SPP kecil pada

bahan tersebut juga mengurangi korosi nodular pada BWR<sup>[5]</sup>.

### **Cumulated annealing parameter/ CAP**

Faktor metalurgi utama ialah ditemukannya korelasi antara ketahanan korosi zircaloy dengan ukuran dan distribusi partikel fasa kedua (SPP) dan jumlah *residual strain* dalam kisi  $\alpha$ -zirkonium<sup>[6]</sup>. Unsur pemadu pada partikel tersebut adalah Fe, Cr, dan Ni yang larut dalam  $\alpha$ -Zr, dapat terbentuk dengan konsentrasi lebih kecil dari pengotor yang juga ditemukan pada zirconium murni. Fraksi mayor pada unsur ini selalu ada pada temperatur operasional fabrikasi dalam bentuk presipitat. Pada daerah  $\beta$ -Zr di atas 950 °C unsur-unsur transisi Fe, Cr, Ni terlarut. Fakta itu kemungkinan untuk menjaga dalam keadaan super-saturasi larutan padat akibat *quenching*. Walaupun kenyataan ini bertentangan dengan pengintian presipitat submikroskopik dengan laju *quenching* sebesar 1500 Ks<sup>-1</sup> (jauh lebih tinggi dari proses komersial dengan laju *quenching* 50 Ks<sup>-1</sup>).

Rute fabrikasi modern melibatkan langkah *quenching* cepat dalam fabrikasinya yang menghasilkan distribusi ukuran presipitat tertentu. Berawal dari distribusi partikel fasa kedua (SPP) hasil *quenching* selanjutnya ukurannya bertambah besar dengan meningkatnya perlakuan termo-mekanik pada material tersebut<sup>[7]</sup>. Perlakuan termo-mekanik pada rute fabrikasi inilah yang disebut dengan *Cumulated Annealing Parameter/ CAP*. Penentuan dan pengaturan parameter fabrikasi menjadi penting karena menentukan distribusi ukuran presipitat.

### **Energi aktivasi**

Pertumbuhan presipitat juga mengacu pada pertumbuhan butir yaitu

kenaikan ukuran butir dalam suatu material pada temperatur tinggi. Hal ini terjadi ketika pemulihan dan rekristalisasi terjadi secara sempurna dan selanjutnya pengurangan energi internal yang dapat dicapai oleh pengurangan luas total batas butir, yang pada dasarnya tumpukan energi. Istilah ini biasa digunakan dalam metalurgi juga digunakan pada keramik dan mineral.

Pentingnya pertumbuhan presipitat ialah bahwa kebanyakan material mengikuti ketentuan Hall-Petch pada temperatur ruang dan menunjukkan kekuatan luluh lebih besar ketika ukuran presipitat berkurang. Pada temperatur tinggi ketentuan tersebut tidak berlaku karena ketidakteraturan batas presipitat yang berarti kekosongan berdifusi lebih cepat dan menimbulkan *Coble creep*. Batas presipitat adalah daerah yang mempunyai energi lebih tinggi dan merupakan situs yang baik untuk pengintian presipitat dan fasa kedua yang lain.

Energi aktivasi positip ialah energi yang diperlukan untuk keberlangsungan reaksi dan energi ini diperoleh dari luar sistem atau disebut endotermik. Energi aktivasi positip ialah energi untuk keberlangsungan reaksi dan energi ini diperoleh dari dalam sistem atau reaksi berlangsung secara spontan atau disebut eksotermik.

Pertumbuhan presipitat didorong oleh pengurangan energi bebas yang berkaitan dengan batas presipitat sistem dan hukum pertumbuhan presipitat dapat dirumuskan pada persamaan-1<sup>[8]</sup>:

$$\frac{D_t^2 - D_0^2}{t} = K_0 e^{\frac{-Q}{RT}} \quad (1)$$

Pada persamaan-1,  $D_t$  adalah diameter presipitat rerata setelah beberapa waktu  $t$ ,  $D_0$  adalah diameter presipitat awal,  $K_0$  adalah konstanta dan  $Q$  adalah energy aktivasi proses. Logaritma natural persamaan-1 menghasilkan persamaan-2:

$$\ln \left( \frac{(D_t^2 - D_0^2)}{t} \right) = \ln K_0 - \frac{Q}{RT} \quad (2)$$

Pengujian persamaan-2 menunjukkan bahwa plot  $\ln (D_t^2 - D_0^2)/t$  vs  $1/T$  adalah garis lurus dengan garis kemiringan (*slope*)  $Q/R$  dan titik potong (*intercept*) adalah  $\ln K_0$ . Menurut teori kendali antar presipitat ripening Ostwald (*interface-controlled Ostwald ripening*), laju pertumbuhan presipitat dikendalikan oleh tenaga dorong yang dikendalikan oleh perbedaan besar presipitat. Hal ini diperkirakan bahwa suatu sistem dapat mencapai keadaan seimbang jika distribusi ukuran presipitat adalah normal. Artinya perbedaan ukuran presipitat sedikit. Ukuran presipitat terbesar diperkirakan 2,5 kali ukuran presipitat rerata. Jika terjadi ukuran presipitat abnormal dan bentuknya tidak beraturan maka keluar dari teori Ostwald.

### Identifikasi pola difraksi

Pola difraksi diperoleh dari pengukuran. Kristal adalah susunan simetris atom yang menghasilkan baris dan bidang akibat densitas tinggi atom yang dapat berfungsi sebagai *grating* (pengkisi) difraksi tiga dimensi. Hal tersebut menghasilkan hukum Bragg dengan formula [9]:

$$n\lambda = 2d \sin\theta \quad (3)$$

dimana  $\lambda$  adalah panjang gelombang sinar-x yang ditembakkan pada bahan,  $A^\circ$ ,  $d$  adalah jarak antar bidang kristal,  $A^\circ$ ,  $\theta$  adalah sudut sinar datang dengan sudut pantul sinar-x. Hasil pola difraksi dapat dicocokkan dengan data yang ada di JCPDF (*Joint Committee Powder Diffraction File*) maka diperoleh jenis kristal dari suatu unsur atau senyawa tertentu.

Berdasarkan pola difraksi hasil pengukuran dapat ditentukan ukuran presipitat berdasarkan persamaan Scherrer [9]

$$D = \frac{0.9\lambda}{B_\theta \cos \theta} \quad (4)$$

Dengan  $B_\theta = (B^2 - B_i)^{1/2}$  adalah pelebaran puncak,  $\theta$ ,  $D$  adalah ukuran partikel,  $B$  adalah pelebaran puncak terukur (*full width of half maximum*, FWHM),  $B_i$  adalah pelebaran instrumental,  $\theta$  adalah sudut difraksi dan  $\lambda$  adalah panjang gelombang sinar-x. Dengan data pola difraksi standar LaB<sub>6</sub> maka diperoleh kesalahan instrumental secara umum sebesar 0,036 derajat. Teknik ini hanya untuk ukuran partikel sebesar 0–100 nm. Pada umumnya ukuran partikel presipitat sebesar 100–200 nm [10].

### Tujuan penelitian

Penelitian ini bertujuan untuk menganalisis energy aktivasi presipitat dalam paduan Zr–1%Nb–1%Sn–1%Fe hasil sintesa dengan pelebaran busur tunggal yang telah diberi perlakuan panas (anil). Analisis difokuskan pada presipitat fasa kedua (*Secondary Phase Precipitate/ SPP*) untuk diketahui laju pertumbuhannya. Identifikasi energy aktivasi berdasarkan pola difraksi sinar-x dan dibantu dengan data JCPDF.

### TATA KERJA

Disiapkan serbuk sampel paduan (Zr–1%Nb–1%Sn–1%Fe). Serbuk Zr, Sn, Nb, Fe masing-masing ditimbang hingga komposisi Zr–1%Nb–1%Sn–1%Fe. Dicampur dalam mesin pencampur selama 150 menit, selanjutnya dibuat pelet dengan ukuran tinggi 10 mm × diameter 10 mm pada tekanan kompaksi 1,2 ton/cm<sup>2</sup>. Hasil pengepresan ini disebut pelet mentah. Sebanyak 5 g pelet mentah dilebur dengan busur listrik dalam

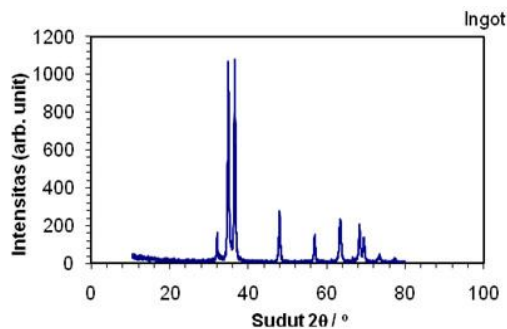
krusibel tembaga dalam kondisi atmosfer gas argon. Tekanan ruang bakar tungku 2 psi dan arus busur 50 A. Hasil leburan adalah paduan Zr-Sn-Nb-Fe berbentuk ingot. Ingot dipanaskan pada temperatur 1100 °C selama 2 jam dan didinginkan cepat (*quenching*) dalam air. Setelah pendinginan cepat, ingot dipotong dengan pisau intan (*diamond blade*) dengan ukuran sekitar 5×2×10 mm. Selanjutnya potongan ingot dianil pada temperatur 400 °C, 500 °C, 600 °C, 700 °C dan 800 °C selama 2 jam.

Kemudian sampel dipoles sampai grid 1200 mesh untuk menghilangkan oksida yang terjadi selama proses anil berlangsung. Sampel dianalisis dengan alat JEOL,DX-GERP-12 pada kondisi operasi sebagai berikut: tube: Cu, filter: Ni, tegangan: 36 kV, arus: 20 mA, *speed*: 2°/menit guna pembuatan difraktogram. Hasil pola difraksi dapat dicocokkan dengan data yang ada di JCPDF maka diperoleh jenis kristal dari suatu unsur atau senyawa tertentu.

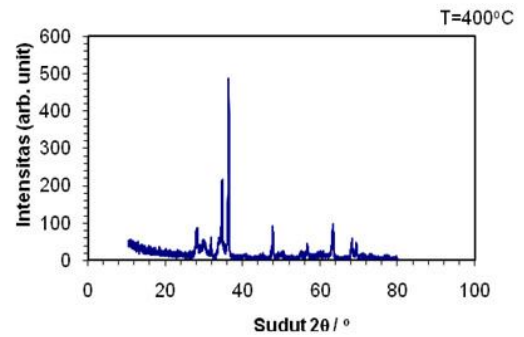
Energi aktivasi dihitung menggunakan persamaan-2 berdasarkan ukuran butir yang diperoleh dari data difraksi sinar-X.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

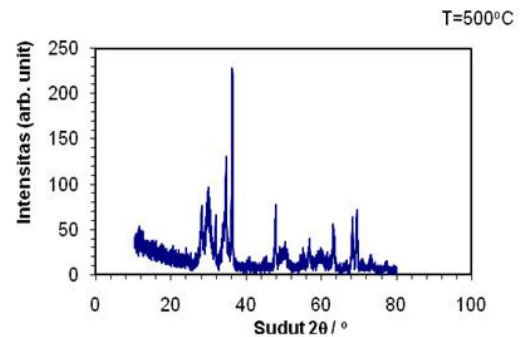
Hasil difraktogram sebagai hasil pengukuran dipaparkan pada Gambar 1,2,3,4, 5,6. Berdasarkan data numerik difraktogram tersebut dapat diketahui jenis dan ukuran partikel presipitat.



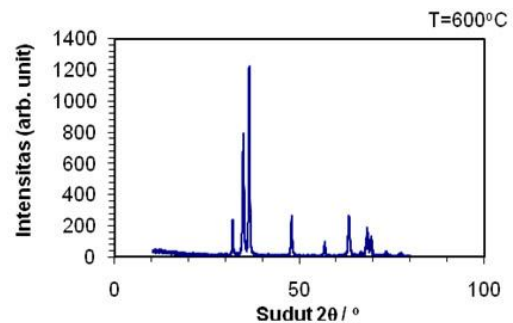
Gambar 1. Pola difraksi paduan(Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe) ingot



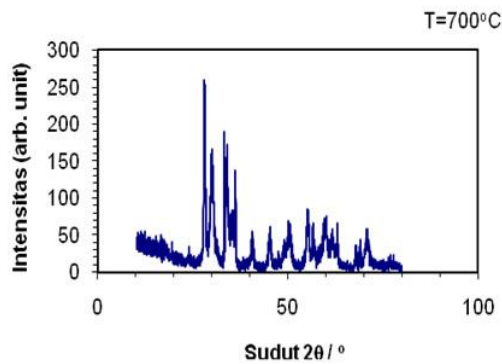
Gambar 2. Pola difraksi paduan(Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe) dianil pada 400 °C, 2 jam



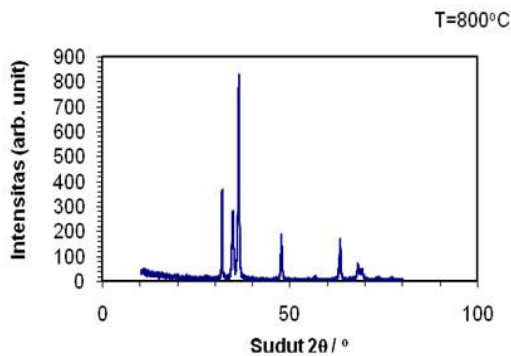
Gambar 3. Pola difraksi paduan (Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe) dianil pada 500 °C, 2 jam



Gambar 4. Pola difraksi paduan (Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe) dianil pada 600 °C, 2 jam



Gambar 5. Pola difraksi paduan (Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe) dianil pada 700 °C, 2 jam



Gambar 6. Pola difraksi paduan (Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe) dianil pada 800 °C, 2 jam

### Identifikasi Fasa

Berdasarkan pola difraktogram ingot, Gambar 1, diperoleh fasa  $\alpha$ -Zr dengan bentuk Kristal heksagonal yang memiliki jarak kisi,  $a=3.232$  dan  $c=5.147$  sebagai referensi JCPDF#05-0665. Ditemukan juga SPP  $Fe_2Nb$  mempunyai bentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=1.8215$  dan  $c=7.877$  sebagai referensi JCPDF#15-0316. Tidak ditemukan SPP dari unsur Sn.

Hukum Home Rothery<sup>[10]</sup> memperkirakan bahwa larutan padat dapat terjadi jika perbedaan diameter atom terlarut

dan pelarut tidak lebih 14-15%. Jika diameter atom pelarut lebih besar maka terjadi pelarutan secara interstisi dan apabila lebih kecil maka pelarutan terjadi secara substitusi. Diameter atom Sn dan Nb hampir sama dengan atom Zr. Sedangkan atom Fe lebih kecil dari pada Zr. Jadi atom Sn dan Nb terlarut secara substitusi dan Fe secara interstisi dalam fasa- $\alpha$ . Menurut hukum ini kelarutan unsur-unsur tersebut dalam fasa- $\beta$  hampir sama dengan fasa- $\alpha$ , yaitu kelarutannya sangat sedikit. Menurut diagram fasa kelarutan unsur tersebut lebih besar di fasa- $\beta$ .

Perbedaan kelarutan di fasa- $\beta$  dan fasa- $\alpha$  mungkin dapat diterangkan dengan teori zona Brillouin (Brillouin zone)<sup>[11]</sup>. Pada fasa- $\alpha$  terjadi tumpang tindih permukaan Fermi sedangkan pada fasa- $\beta$  tidak terjadi. Tidak adanya presipitat yang lain karena sebagian besar pepadu menjadi larutan padat di dalam ingot paduan. Sesuai hukum tersebut SPP yang terbentuk bentuk kristalnya heksagonal sesuai dengan kristal matrik  $\alpha$ -Zr.

Setelah bahan dianil pada temperatur 400 °C, Gambar-2, diperoleh fasa  $\alpha$ -Zr dengan bentuk kristal heksagonal yang memiliki jarak kisi,  $a=3.232$  dan  $c=5.147$  sebagai referensi JCPDF#05-0665. Populasi SPP meningkat dengan drastis. Ditemukan kristal-kristal SPP sebagai berikut:  $Fe_2Nb$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=1.8215$  dan  $c=7.877$  sebagai referensi JCPDF#15-0316;  $ZrSn_2$  berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=9.573$ ,  $b=5.644$  dan  $c=9.927$  sebagai referensi JCPDF#06-0316;  $NbSn_2$  berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=19.0876$ ,  $b=5.645$  dan  $c=9.852$  sebagai referensi JCPDF#19-0876;  $SnZr$  berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=7.433$ ,  $b=5.822$  dan  $c=5.157$  sebagai referensi JCPDF#10-0218;  $FeSn$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=5.302$ , dan  $c=4.449$  sebagai referensi JCPDF#09-0212;

$\text{Fe}_2\text{Nb}_{0.4}\text{Zr}_{0.6}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=4.927$ , dan  $c=24.162$  sebagai referensi JCPDF#23-0303;  $\text{Zr}_{0.68}\text{Nb}_{0.25}\text{Fe}_{0.08}$  berbentuk kristal belum ditentukan sebagai referensi JCPDF#17-0509.

Selanjutnya bahan dianil pada temperatur  $500\text{ }^\circ\text{C}$ , Gambar 3, diperoleh fasa  $\alpha\text{-Zr}$  dengan bentuk kristal heksagonal yang memiliki jarak kisi,  $a=3.232$  dan  $c=5.147$  sebagai referensi JCPDF#05-0665. Populasi SPP masih banyak dan berkurang satu senyawa yaitu  $\text{ZrSn}_2$ . Ditemukan kristal-kristal SPP sebagai berikut:  $\text{Fe}_2\text{Nb}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=1.8215$  dan  $c=7.877$  sebagai referensi JCPDF#15-0316;  $\text{NbSn}_2$  berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=19.0876$ ,  $b=5.645$  dan  $c=9.852$  sebagai referensi JCPDF#19-0876;  $\text{SnZr}$  berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=7.433$ ,  $b=5.822$  dan  $c=5.157$  sebagai referensi JCPDF#10-0218;  $\text{FeSn}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=5.302$ , dan  $c=4.449$  sebagai referensi JCPDF#09-0212;  $\text{Fe}_2\text{Nb}_{0.4}\text{Zr}_{0.6}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=4.927$  dan  $c=24.162$  sebagai referensi JCPDF#23-0303;  $\text{Zr}_{0.68}\text{Nb}_{0.25}\text{Fe}_{0.08}$  berbentuk kristal belum ditentukan sebagai referensi JCPDF#17-0509.

Dari bahan yang dianil pada  $600\text{ }^\circ\text{C}$ , Gambar 4, diperoleh fasa  $\alpha\text{-Zr}$  dengan bentuk kristal heksagonal yang memiliki jarak kisi,  $a=3.232$  dan  $c=5.147$  sebagai referensi JCPDF#05-0665. Populasi SPP masih banyak dan berkurang dua senyawa yaitu  $\text{SnZr}$  dan  $\text{Fe}_2\text{Nb}_{0.4}\text{Zr}_{0.6}$ . Ditemukan kristal-kristal SPP sebagai berikut:  $\text{ZrSn}_2$  berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=9.573$ ,  $b=5.644$  dan  $c=9.927$  sebagai referensi JCPDF#06-0316;  $\text{Fe}_2\text{Nb}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=1.8215$  dan  $c=7.877$  sebagai referensi JCPDF#15-0316;  $\text{NbSn}_2$  berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=19.0876$ ,  $b=5.645$  dan  $c=9.852$  sebagai referensi

JCPDF#19-0876;  $\text{FeSn}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=5.302$ , dan  $c=4.449$  sebagai referensi JCPDF#09-0212;  $\text{Zr}_{0.68}\text{Nb}_{0.25}\text{Fe}_{0.08}$  bentuk kristal belum ditentukan sebagai referensi JCPDF#17-0509.

Pada bahan yang dianil pada  $700\text{ }^\circ\text{C}$ , Gambar 5, diperoleh fasa  $\alpha\text{-Zr}$  dengan bentuk kristal heksagonal yang memiliki jarak kisi,  $a=3.232$  dan  $c=5.147$  sebagai referensi JCPDF#05-0665 dan  $\omega\text{-Zr}$  dengan bentuk kristal heksagonal yang memiliki jarak kisi,  $a=5.039$  dan  $c=3.136$  sebagai referensi JCPDF#09-0212. Ada perubahan fasa yaitu terbentuknya fasa  $\omega\text{-Zr}$  dan perubahan pada jenis populasi SPP. Ditemukan kristal-kristal SPP sebagai berikut:  $\text{ZrSn}_2$  berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=9.573$ ,  $b=5.644$  dan  $c=9.927$  sebagai referensi JCPDF#06-0316;  $\text{FeSn}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=5.302$  dan  $c=4.449$  sebagai referensi JCPDF#09-0212;  $\text{Fe}_2\text{Nb}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=1.8215$  dan  $c=7.877$  sebagai referensi JCPDF#15-0316;  $\text{FeZr}_2$  berbentuk kristal tetragonal dengan jarak kisi  $a=6.385$  dan  $c=5.596$  sebagai referensi JCPDF#25-0420;  $\text{NbSn}_2$  berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=19.0876$ ,  $b=5.645$  dan  $c=9.852$  sebagai referensi JCPDF#19-0876;  $\text{Fe}_{37}\text{Nb}_9\text{Zr}_{54}$  bentuk kristal belum ditentukan sebagai referensi JCPDF#46-1095.

Bahan dianil mendekati daerah  $\beta\text{-Zr}$  pada  $800\text{ }^\circ\text{C}$ , Gambar 6, diperoleh fasa  $\alpha\text{-Zr}$  dengan bentuk kristal heksagonal yang memiliki jarak kisi  $a=3.232$  dan  $c=5.147$  sebagai referensi JCPDF#05-0665. Ada perubahan fasa yaitu hilangnya fasa  $\omega\text{-Zr}$  dan hilangnya beberapa jenis populasi SPP. Ditemukan kristal-kristal SPP sebagai berikut:  $\text{FeSn}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=5.302$  dan  $c=4.449$  sebagai referensi JCPDF#09-0212;  $\text{Fe}_2\text{Nb}$  berbentuk kristal heksagonal dengan jarak kisi  $a=1.8215$  dan  $c=7.877$  sebagai referensi

JCPDF#15-0316; NbSn<sub>2</sub> berbentuk kristal orthorhombik dengan jarak kisi  $a=19.0876$ ,  $b=5.645$  dan  $c=9.852$  sebagai referensi JCPDF#19-0876.

### Estimasi ukuran partikel

Perubahan ukuran partikel akibat perubahan temperatur anil dapat dilihat pada Tabel 1. Ukuran partikel tergantung pada temperatur anil. Untuk SPP Fe<sub>2</sub>Nb menjadi lebih besar seiring dengan kenaikan temperatur anil dan mencapai maksimum pada temperatur 700 °C sebesar 26,7671 nm dan pada temperatur 800 °C menjadi lebih

kecil yaitu sebesar 23,3339 nm. Pada temperatur mendekati daerah fasa-β mengalami pelarutan sesuai dengan diagram fasa paduan Zircaloy. Ukuran partikel FeSn terlihat fluktuatif sekali dan mencapai maksimum pada temperatur anil 500 °C sebesar 28,4199 nm, selanjutnya turun dengan kenaikan temperatur anil dan naik lagi pada temperatur anil 800 °C sebesar 23,3339 nm. Jelas bahwa pertumbuhan partikel FeSn terjadi pada temperatur anil 500 °C. Ukuran partikel NbSn<sub>2</sub> maksimum pada temperatur anil 800 °C yaitu sebesar 23,3339 nm. Jadi jelas pertumbuhan partikel NbSn<sub>2</sub> pada temperatur anil 800 °C.

Tabel 1. Ukuran partikel presipitat dalam paduan Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe pada variasi temperatur anil

T, °C	Ukuran presipitat (D) Fe <sub>2</sub> Nb, nm	Ukuran presipitat (D) FeSn, nm	Ukuran presipitat (D) NbSn <sub>2</sub> , nm	Ukuran presipitat (D) α-Zr, nm
400	19,5733	18,3257	17,0906	14,9779
500	22,3284	28,4199	19,5564	26,3058
600	24,2401	23,709	18,5205	26,7616
700	26,7571	19,6429	14,2949	15,241
800	23,3339	23,3339	23,3339	17,982

Untuk memenuhi persamaan 2 diperlukan Tabel 2 yaitu memenuhi laju pertumbuhan butir yang tergantung pada termal. Dengan adanya energi termal, energi paduan juga

meningkat selanjutnya diturunkan dengan pembentukan inti kristal butir dan presipitat. Hal ini terjadi karena kelarutan pepaduan dalam paduan terbatas.

Tabel 2. Logaritma natural ukuran partikel kuadrat dibagi waktu anil presipitat dalam paduan Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe pada variasi temperatur anil

T, °C	1/T	ln(D <sup>2</sup> /t), Fe <sub>2</sub> Nb	ln(D <sup>2</sup> /t), Fe <sub>2</sub> Nb	ln(D <sup>2</sup> /t), Fe <sub>2</sub> Nb	ln(D <sup>2</sup> /t), Fe <sub>2</sub> Nb
400	1,4859e-3	5,2552	5,1235	4,9839	4,7200
500	1,2937e-3	5,5186	6,0010	5,2535	5,8464
600	1,1455e-3	5,6829	5,6386	5,1446	5,8808
700	1,0277e-3	5,8805	5,2623	4,6267	4,7548
800	9,3197e-4	5,6067	5,6067	5,6067	5,0856

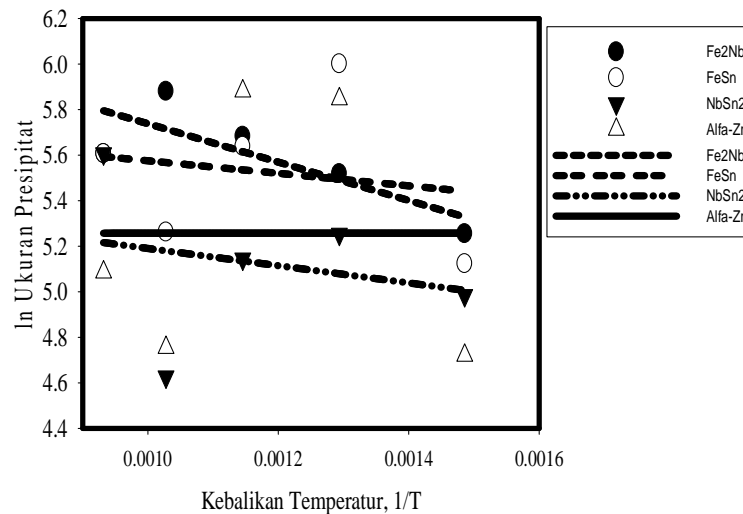


Pada temperatur anil 800 °C ukuran SPP sama, terlihat ada kesetimbangan pengintian dan pertumbuhan butir. Jadi temperatur anil 800 °C baik untuk stabilisasi presipitat. Tidak seperti halnya pada temperatur anil antara 500 °C sampai dengan 600 °C yang menunjukkan bahwa semua SPP mengalami ukuran butir maksimum. Interval temperatur ini baik untuk stabilisasi presipitat, sedangkan untuk minimasi ukuran butir yaitu temperatur anil 700 °C kecuali Fe<sub>2</sub>Nb.

### Energi aktivasi

Pada persamaan 1,  $D_t$  adalah diameter presipitat rerata setelah beberapa waktu  $t$ ,  $D_0$  adalah diameter presipitat awal,

$K_0$  adalah konstanta, dan  $Q$  adalah energy aktivasi proses. Logaritma natural persamaan 1 menghasilkan persamaan 2. Pengujian persamaan 2 menunjukkan bahwa plot  $\ln (D_t^2 - D_0^2)/t$  vs  $1/T$  adalah garis lurus dengan garis kemiringan (*slope*)  $Q/R$  dan titik potong (*intercept*) adalah  $\ln K_0$ . Hasil pengujian persamaan 2 ditunjukkan pada Gambar 7 dan Tabel 3. Berdasarkan hasil yang diperoleh dari Tabel 3, energy aktivasi presipitat secara umum masih kecil dibandingkan dengan referensi yaitu sekitar 15 kJ/mol<sup>[12]</sup>. Banyak faktor yang mempengaruhi pengintian dan pertumbuhan presipitat yaitu konsentrasi dan kelarutan padamu.



Gambar 7. Natural logaritmik ukuran presipitat vs kebalikan temperatur paduan Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe.

Dalam paduan Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe ini memang menghasilkan berbagai jenis presipitat sehingga dapat menambah kekuatan dan ketahanan korosi. Ukuran, jenis, dan distribusi presipitat menentukan karakteristik paduan. Kendala yang ditemui ternyata rendahnya energy aktivasi sehingga perlu perlakuan panas yang lama untuk mendapatkan distribusi presipitat yang baik

Berdasarkan energy aktivasi pada Tabel 3 dapat diperkirakan laju pertumbuhan presipitat. Diperoleh energy aktivasi Fe<sub>2</sub>Nb sebesar -7,0083 kJ/mol, energy aktivasi FeSn sebesar -2,2858 kJ/mol, energy aktivasi NbSn<sub>2</sub> sebesar -3,1498 kJ/mol, dan energy aktivasi nano kristalit  $\alpha$ Zr sebesar 0,0077 kJ/mol.

Tabel 3. Energi aktivasi presipitat dalam paduan Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe yang diperoleh dari Gambar-7.

Presipitat	Slope	Intercept	Energi aktivasi, kJ/mol
Fe <sub>2</sub> Nb	-842,8944	6,5808	-7,0083
FeSn	-274,9168	5,85	-2,2858
NbSn <sub>2</sub>	-378,827	5,5689	-3,1498
α-Zr	0,9293	5,2564	0,0077

### SIMPULAN

Pengintian partikel fasa kedua SPP terjadi dengan baik pada temperatur anil 400 °C, 500 °C, dan 700 °C. Pada paduan Zr-1%Nb-1%Sn-1%Fe yang dianil pada temperatur antara 400 °C sampai dengan 800 °C ditemukan SPP Fe<sub>2</sub>Nb, ZrSn<sub>2</sub>FeSn, SnZr, NbSn<sub>2</sub>, Zr<sub>0,68</sub>Nb<sub>0,25</sub>Fe<sub>0,08</sub>, Fe<sub>2</sub>Nb<sub>0,4</sub>Zr<sub>0,6</sub>, Fe<sub>37</sub>Nb<sub>9</sub>Zr<sub>54</sub>, dan ω-Zr. Stabilisasi presipitat terjadi dengan baik pada temperatur anil 800 °C, pertumbuhan presipitat antara 500 °C sampai dengan 600 °C dan minimisasi ukuran presipitat pada temperatur anil 700 °C. Diperoleh energi aktivasi Fe<sub>2</sub>Nb sebesar -7,0083 kJ/mol, energi aktivasi FeSn sebesar -2,2858 kJ/mol, energi aktivasi NbSn<sub>2</sub> sebesar -3,1498 kJ/mol, dan energi aktivasi nano kristalit α-Zr sebesar 0,0077 kJ/mol.

### DAFTAR PUSTAKA

- [1]. Lambert, J.D.B. and Strain, R. (1985). Oxide Fuels, vol. 10 A, in, Materials Science and Technology, VCH, Germany, p 121.
- [2]. Harbottle, J.E. and Strasser A.A. (1994). Towards Failure-Free Fuel, Fuel Review 1994: Design, Nuclear Engineering International, p 28-30.
- [3]. Lustman, B. and Kerze, F.J.R. (1955). The Metallurgy of Zirconium, 1<sup>st</sup> ed, New York, McGraw-Hill INC, , p 632.
- [4]. Banerjee, S. (2004). Better Materials for Nuclear Energy, IAEA Scientific Forum .
- [5]. Yilmazbayhan, A., et al., Structure of Zirconium Alloy Oxides Formed in Pure Water Studied With Synchrotron Radiation and Optical Microscopy: Relation to Corrosion Rate, Journal of Nuclear Materials, 324, 2004, pp 6-22.
- [6]. Garzarolli, F., et. al. (1987). Progress in the Knowledge of Nodular Corrsion. In, Van Swam L.F.P Zirconium in Nuclear Industry: 7<sup>th</sup> Int. Symp., ASTM-STP-939,, ASTM, PA, Conshohocken, pp 417-430.
- [7]. Steinberg, E, et.al. (1987). Analitical Approaches and Experimental Verification to Describe the Influence of Cold Work and Heat Treatment on the Mechanical Properties of Zircaloy Cladding Tube. In, Adamson R.B., et, al Zirconium in the Nuclear Industry: 6<sup>th</sup> 7<sup>th</sup> Int. Symp., ASTM-STP-824, ASTM, pp 106-122.
- [8]. Spassov, T. and Koster, U. (1993). Grain growth in nanocrystalline zirconium-based alloys, Journal of Material Science, 28, 278-2794
- [9]. Cullity, B.D., Element of X-Ray Diffraction, Addison-Wesley, Reading, A. (1978).
- [10]. Gros, J.P. AND Waider, J.F. (1990). Precipitate Growth Kinetics in Zircaloy-4,

Journal of Nuclear Materials, 172, pp  
85-96.

- [11]. Lustman, B. and Kerze, F.J.R. (1955).  
The Metallurgy of Zirconium, 1<sup>st</sup> ed, New  
York, McGraw-Hill INC.
- [12]. Tagstrom, P., Limback, M., Dahlback, M.,  
Anderson, T., and Pettersson, M. (2002).

Effect of Hydrogen Pick Up and Second  
Phase Particle Dissolution on the in-  
Reactor corrosion Performance of BWR,  
in Moan, Gg.D. and Rudling, P. Zirconium  
in Nuclear Industry. Thirteenth  
International Symposium, ASTM, STP  
1423, 98.