

PENGUJIAN KETAHANAN KOROSI PADUAN BERBASIS ZIRKONIUM DAN KOMPOSIT SiC/SiC_f

Futichah, Isfandi, Sugeng R, Deddy H, Triarjo, Jan Setiawan
Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir

ABSTRAK

Pembuatan komposit SiC sebagai bahan struktur bahan bakar telah dilakukan. Pada temperatur tinggi, komposit SiC merupakan keramik yang mempunyai unjuk kerja yang lebih tinggi bila dibandingkan dengan logam. Proses pembuatan komposit SiC/SiC_f melalui proses metalurgi serbuk. Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah serbuk SiC dan larutan binder yang terdiri dari larutan toluen dan *polycarbosilane* (PCS). Bahan binder disini berperan ganda yaitu sebagai pelumas (binder) dan diharapkan sebagai serat penguat. Serbuk SiC ditimbang kemudian dicampur dengan larutan binder, selanjutnya dikompakan menjadi pelet. Pelet hasil kompakan disinter dalam tungku sinter mini pada temperatur 1300°C selama 3 jam. Komposit SiC/SiC_f hasil sinter dikarakterisasi dan diuji korosi menggunakan alat Potensiostat. Uji yang dilakukan bertujuan untuk memperoleh data ketahanan korosi pada komposit SiC/ SiC_f. Hasil yang diperoleh menunjukkan bahwa data laju korosi tidak representative untuk sampel komposit SiC/SiC_f, diduga hasil tersebut menunjukkan laju korosi logam *holder* yang berada di dalam mounting sampel. Komposit SiC/ SiC_f yang telah dibuat mempunyai densitas yang tidak homogen antara posisi tepi dan tengah dari produk sehingga mudah dilewati cairan elektrolit pada saat uji korosi. Hasil uji korosi pada paduan berbasis zirkonium Zr-Nb-Fe-Sn-Mo sebagai bahan matriks komposit Zr/SiC_f, diperoleh kesimpulan bahwa dengan adanya unsur pemadu (Mo) sampai 0,1% pada *base metal* Zr mengakibatkan laju korosi menurun. Diduga hasil uji korosi komposit Zr/SiC_f tidak jauh berbeda dengan hasil uji korosi matriksnya karena penambahan SiC pada matriks tidak berpengaruh terhadap korosi uap air pada temperatur 350°C mengingat sifat SiC yang stabil terhadap oksigen dan hydrogen pada suhu tinggi.

Kata kunci: komposit SiC/SiC_f, keramik, *polycarbosilane* (PCS), korosi komposit keramik, paduan Zr

PENDAHULUAN

Paduan zirkonium atau zircalloy dan biasa disingkat Zry banyak digunakan sebagai bahan struktur atau kelongsong pada elemen bakar nuklir untuk semua reaktor daya yang berpendingin air (LWR). Kelongsong bahan bakar merupakan bagian yang penting dalam pembuatan elemen bakar, karena di samping berfungsi sebagai pembungkus bahan bakar uranium juga sebagai pengungkung gas hasil fisi selama operasi dalam reaktor nuklir^[1-4].

Keinginan untuk meningkatkan unjuk kerja paduan zirkonium yang lebih baik sebagai bahan struktur bahan bakar yang telah ada, dipicu oleh *trend* pengembangan peningkatan *burn-up* bahan bakar yang lebih tinggi dari 60 MWd/kgU. Konsekuensinya adalah upaya-upaya peningkatan unjuk kerja bahan kelongsong paduan zirkonium sebagai bahan struktur, yaitu meningkatkan kekuatan mekanik dan ketahanan korosi bahan pada temperatur tinggi^[4,5]. Upaya untuk mengatasi terbentuknya ZrH₂ (pada paduan Zr) yang menyebabkan perapuhan ataupun terbentuknya ZrO yang menghambat transfer panas dari bahan bakar ke pendingin, maka kelongsong bahan bakar harus diperkuat dengan bahan yang tahan suhu tinggi seperti bahan keramik SiC. Kelemahan lain dari bahan

kelongsong yang ada selain secara ekonomi mahal, juga terjadinya penurunan kekuatan mekanik ketika suhu operasi reaktor meningkat ^[5-9].

Dari uraian di atas perlu dilakukan upaya penguasaan teknologi proses pembuatan bahan struktur bahan bakar dari paduan berbasis Zr, komposit logam dengan penguat serat keramik SiC, serta komposit SiC/SiC yang mempunyai unjuk kerja yang lebih tinggi. Diperolehnya paduan zirkonium baru dan komposit keramik yang mampu meningkatkan efektivitas bahan bakar di teras reaktor, maka akan mendukung kemandirian bangsa Indonesia di masa depan apabila rencana pembangunan PLTN dilaksanakan dan pabrik bahan bakar nuklir dibangun.

Dari aspek pemanfaatan untuk industri pada umumnya, komposit SiC diaplikasikan pada industri yang menuntut pengoperasian dan produk yang tahan pada suhu tinggi. Hal ini disebabkan oleh karakteristik SiC yang mempunyai sifat tahan korosi pada suhu di atas 1500°C.

Secara garis besar kegiatan penelitian ini diawali dengan melakukan proses pembuatan pelet keramik SiC. Bahan utama serbuk SiC dan binder dicampur kemudian dikompaksi dan disinter, selanjutnya dilakukan karakterisasi produk yaitu uji ketahanan korosi. Hal ini dilakukan untuk mendapatkan data ketahanan korosi keramik SiC yang telah dibuat.

Hasil penelitian dan pengembangan komposit SiC ini dapat dimanfaatkan pemerintah dalam hal ini adalah BATAN. Dengan memiliki kesiapan pengetahuan dan kemampuan memproduksi kelongsong sendiri maka Indonesia khususnya Batan telah turut mendukung program dan memperkuat kemandirian industri energi nuklir nasional. Selain itu juga meningkatkan kemampuan dan pengalaman bagi peneliti serta meningkatkan daya saing teknologi dalam bidang bahan struktur elemen bakar nuklir (EBN) berbasis zirkonium dan SiC.

METODOLOGI

Penelitian pengembangan paduan berbasis zirkonium dan komposit SiC/SiC_f sebagai bahan struktur elemen bakar nuklir diawali dengan penyiapan bahan dan peralatan serta proses penyiapan bahan uji korosi paduan berbasis zirkonium dan komposit SiC/SiC_f.

Bahan yang digunakan adalah serbuk SiC, larutan dan serat PCS (poly carbo silane), larutan toluene, gas argon, paduan logam (Zr, Nb, Fe, Mo, Sn), sedangkan peralatan yang digunakan antara lain neraca analitik, pengaduk larutan, pemanas air, cetakan pres (*dies*) dan mesin *electrospinning*, tungku sinter, tungku lebur, mesin bubut, mesin rol, Autoclave, Potentiostat dan peralatan kendali kualitas (analisis fisiko-kimia). Menurut pustaka [8] komposit SiC/SiC mempunyai ketahanan korosi sampai suhu

1200° C dalam suasana campuran uap Na_2SO_4 , oksigen dan uap air. Oleh karena itu pada awal penelitian ini dicoba uji korosi dalam media asam ringan yaitu digunakan H_2SO_4 5%.

Serbuk SiC ditimbang dan dicampur dengan binder (larutan toluen dan PCS) selanjutnya dikompaksi dengan mesin pres membentuk pelet mentah (*green pellet*). Pelet mentah disinter dalam tungku sinter mini pada temperatur 1300°C selama 3 jam dalam suasana gas inert (Argon). Sampel uji korosi untuk pelet komposit keramik SiC dilakukan dengan membingkai (*mounting*) pelet hasil sinter menggunakan larutan *AcryFix Kit* yang terdiri dari *AcryFix* serbuk dan cairan pengeras yang kemudian dicampurkan dengan perbandingan 2 : 1. Sampel diletakkan dalam cetakan pembingkai dan diberi kawat kabel sepanjang 10 cm, larutan pembingkai dituangkan ke dalam cetakan dan dibiarkan hingga mengeras seperti tampak pada Gambar 1. Preparasi sampel uji korosi untuk komposit Zr/SiC , proses penyiapannya tidak jauh berbeda dengan penyiapan sampel uji logam paduan Zr meliputi pemotongan, penggerindaan dan pengukuran dimensi serta berat sampel. Bahan matriks untuk komposit Zr/SiC adalah paduan Zr yaitu Zirlo-Mo dengan variasi Mo (0 – 0,5) yaitu 0,1; 0,3 dan 0,5% berat Mo. Hasil penyiapan sampel komposit Zr/SiC seperti tampak pada Gambar 2.



Gambar 1 Hasil pembingkai sampel uji korosi komposit keramik SiC/SiC_f



Gambar 2 Sampel uji korosi komposit Zr/SiC_f

HASIL DAN PEMBAHASAN

Data hasil uji korosi komposit SiC/SiC_f ditampilkan dalam Tabel 1 sampai dengan Tabel 4. Dari hasil uji korosi dinyatakan tidak representative untuk sampel komposit SiC/SiC_f , diduga hasil tersebut menunjukkan laju korosi untuk logam yang berada di dalam mounting sampel. Dalam mounting sampel terdapat cetakan (polimer) dan logam tembaga (Cu) untuk pemegang sampel, jadi kemungkinan besar yang terkorosi adalah tembaga (Cu). Kondisi sampel tidak ideal untuk pengujian dengan potensiostat (kurang konduktif, cara penyambungan solder tidak sesuai, sampel berpori dan terdapat retak). Porositas dan retak pada komposit SiC/SiC_f yang mengakibatkan cairan elektrolit menembus bahan uji komposit SiC/SiC_f sehingga bahan logam Cu yang digunakan sebagai holder komposit

SiC/SiC_f menjadi terkorosi. Selain itu sampel SiC termasuk kategori non logam/ tidak konduktif sehingga tidak sesuai untuk pengujian korosi dengan elektrokimia.

Tabel 1. Hasil uji sampel komposit SiC dengan media H₂SO₄ 5 % dan metode polres

| Kode Sampel | Media | Metode Polres | | |
|-----------------------|---------------------------------------|--------------------------|-------------------------------|--------------------------|
| | | R _p (Ohms) | I _{corr} (Ampere) | Corrosion Rate (mpy)* |
| A (398/120/B/2017) | H ₂ SO ₄ 5 % | 486,8 | 3,656 x 10 ⁻⁵ | 5,604 |
| B (399/120/B/2017) | H ₂ SO ₄ 5 % | 819,4 | 4,644 x 10 ⁻⁵ | 7,119 |
| C (400/120/B/2017) | H ₂ SO ₄ 5 % | 229,4 | 9,336 x 10 ⁻⁵ | 14,31 |

Tabel 2. Hasil uji sampel komposit SiC dengan media H₂SO₄ 5 % dan metode tafel

| Kode Sampel | Media | Metode Tafel | | | |
|-----------------------|---------------------------------------|------------------------------|------------------------------|-------------------------------|--------------------------|
| | | β _a (V/decade) | β _b (V/decade) | I _{corr} (Ampere) | Corrosion Rate (mpy)* |
| A (398/120/B/2017) | H ₂ SO ₄ 5 % | 0,054 | 0,1702 | 1,78 x 10 ⁻⁵ | 2,731 |
| B (399/120/B/2017) | H ₂ SO ₄ 5 % | 0,1442 | 0,2235 | 6,07 x 10 ⁻⁵ | 9,303 |
| C (400/120/B/2017) | H ₂ SO ₄ 5 % | 0,059 | 0,301 | 4,3 x 10 ⁻⁵ | 6,596 |

Tabel 3. Hasil uji sampel komposit SiC dengan media air dermin dan metode polres

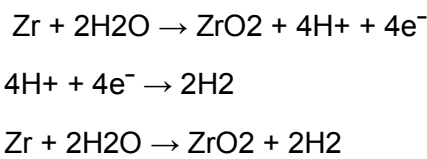
| Kode Sampel | Media | Metode Polres | | |
|-----------------------|------------|---------------------------|-------------------------------|--------------------------|
| | | R _p (kOhms) | I _{corr} (Ampere) | Corrosion Rate (mpy)* |
| A (398/120/B/2017) | Air dermin | 62,24 | 2,177 x 10 ⁻⁶ | 3,177 |

Tabel 4. Hasil uji sampel komposit SiC dengan media air dermin dan metode tafel

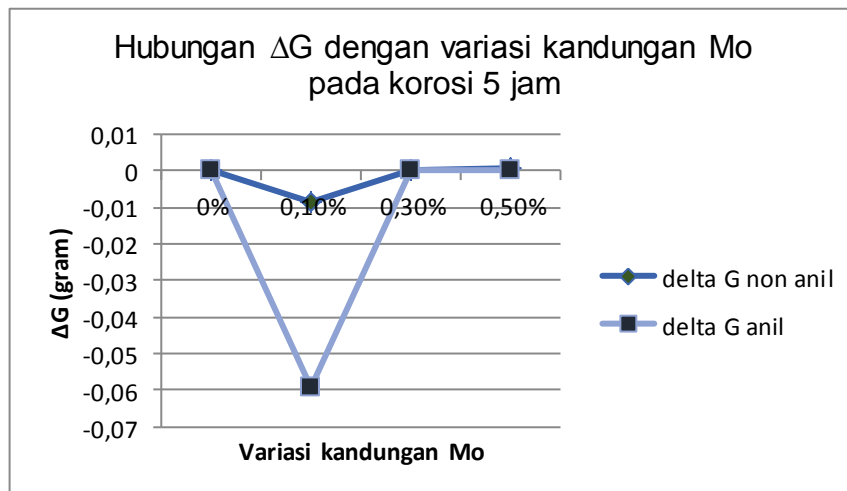
| Kode Sampel | Media | Metode Tafel | | | |
|-----------------------|------------|------------------------------|------------------------------|-------------------------------|--------------------------|
| | | β _a (V/decade) | β _b (V/decade) | I _{corr} (Ampere) | Corrosion Rate (mpy)* |
| A (398/120/B/2017) | Air dermin | 1,125 | 0,432 | 1,87 x 10 ⁻⁶ | 2,724 |

Gambar 3 dan 4 adalah data hasil uji korosi paduan logam Zr yang berperan sebagai matriks pada komposit Zr/SiC_f. Data uji korosi paduan berbasis zirkonium ini diperoleh pada litbang sebelumnya dengan bahan paduan Zr-Nb-Fe-Sn-Mo, diperoleh kesimpulan bahwa dengan adanya unsur pepadu Mo pada *base metal* Zr mengakibatkan laju korosi menurun hingga pada batas pelarutan Mo maksimum 0,3 %, hal ini disebabkan oleh batas

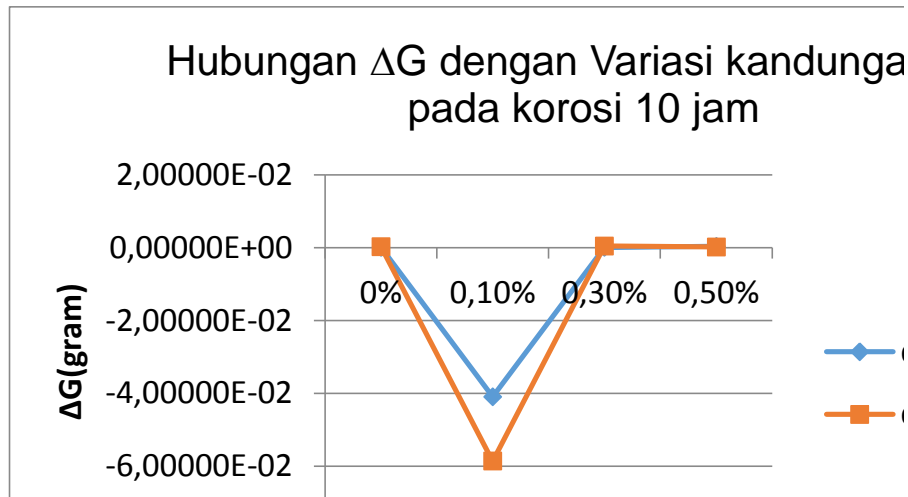
kelarutan Mo dalam Zr yang membentuk presipitat, lebih dari 0,3% berat atau 0,3-0,5% berat Mo akan terbentuk presipitat dan pelarutan padat. Peranan utama untuk peningkatan katahanan korosi pada paduan Zirlo-Mo adalah presipitat [10]. Oleh karena itu untuk bahan matrik pada komposit Zr/SiC_f digunakan paduan Zr dengan prosentase paduan Mo 1 % w/w dan diduga hasil uji korosi komposit Zr/SiC_f tidak jauh berbeda dengan hasil uji korosi matriksnya karena penambahan SiC pada matriks tidak berpengaruh terhadap korosi uap air pada temperature 350°C mengingat sifat SiC yang stabil terhadap oksigen dan hidrogen pada suhu tinggi. Mekanisme terjadinya korosi logam matriks Zr pada komposit Zr/SiC_f seperti pada Gambar 5. Fenomena pembentukan lapisan ZrO₂ [9-11] mengikuti reaksi sebagai berikut:



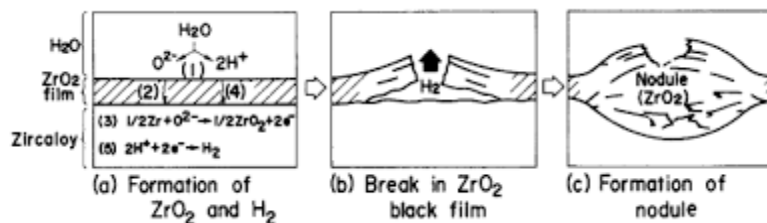
Lapisan pasivasi dapat menghalangi terjadinya proses korosi lebih lanjut, namun dengan adanya peningkatan potensial sampai melampaui daerah pasivasi akan menyebabkan zirkaloy aktif dan terkorosi kembali.



Gambar 3. Pertambahan berat pada paduan Zr-Nb-Fe-Sn-Mo setelah uji korosi pada temperature 350°C dan tekanan 10 bar selama 5 jam



Gambar 4 Pertambahan berat pada paduan Zr-Nb-Fe-Sn-Mo setelah uji korosi pada temperature 350°C dan tekanan 10 bar selama 10 jam



Gambar 5 Mekanisme korosi nodular pada logam zirkaloi^[9].

KESIMPULAN DAN SARAN

Data laju uji korosi komposit SiC/SiC_f tidak representative, diduga bahwa data hasil uji adalah laju korosi logam *holder*-nya yaitu logam Cu. Hal ini diduga diakibatkan oleh sifat porositas dan densitas yang tidak homogen pada komposit SiC/SiC_f. Hasil uji korosi pada paduan logam Zr yakni paduan Zr-Nb-Fe-Sn-Mo yang berperan sebagai matriks pada komposit Zr/SiC_f, diperoleh kesimpulan bahwa dengan adanya unsur pemadu Mo pada *base metal* Zr mengakibatkan laju korosi menurun hingga pada batas maksimum 0,1 %. Pada hasil uji korosi komposit paduan Zr/SiC_f, diduga bahwa semakin tinggi penambahan serat atau serbuk SiC pada matriks paduan Zr maka semakin menurunkan laju korosi komposit Zr/SiC_f karena sifat SiC tidak terpengaruh oleh korosi uap air pada temperature 350°C mengingat sifat SiC yang stabil terhadap oksigen dan hidrogen pada suhu tinggi.

Disarankan untuk dilakukan uji korosi ulang terhadap komposit SiC/SiC_f dan Zr/SiC_f dengan preparasi sampel yang lebih baik sehingga diperoleh densitas komposit, tautan mekanik antar partikel serta ikatan metalurgis yang lebih tinggi dan homogen,

Preparasi sampel uji yang baik atau tepat diharapkan dapat diperoleh data uji yang mewakili (representative).

DAFTAR PUSTAKA

1. Sungkono dan Futichah, "Pengaruh Kandungan Fe Dan Mo Terhadap Ketahanan Korosi Ingot Paduan Zirlo-Mo Dalam Media Uap Air Jenuh", Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir URANIA, ISSN 0852-4777, Akreditasi No.265/AU1/ P2MBI / 05/ 2010, Vol. 17 No.3, Oktober 2011.
2. Peng Wang, (2011), Corrosion Behaviour of Zirconium Alloys in High Temperature Aqueous Enviroment by Electrochemical Impedance Spectroscopy, The University of Manchester, Faculty of Physical Engineering and Physical Sciences
3. Olander, D., *Nuclear Fuels Present and Future*. J. of Nuclear Material 389, 2009, 1-22.
4. Anonim, *Very High Burn-Ups in Light Water Reactors*, Nuclear Energy Agency Org. for Economic Cooperation and Development, 2011
5. Hanling Tang, Xierong Zeng, Xinbo Xiong, Long Li, Jizhao Zou, Mechanical and tribological properties of short-fiber-reinforced SiC composites, *Trobology Internatinal* 42 (2009) 823-827
6. Hallstadius, Lars., Johnson, Steven., Lahoda, Ed., *Cladding for High Performance Fuel*, Progress in Nuclear Energy xxx, 2011, 1-6.
7. Mustika, Deni., Sihombing, R., Pribadi, S., Langenati, R., Sujatno, A., Dimiyati, A., Setiawan, J., Indarto, E., Karakteristik Permukaan Serat Silikon Karbida Hasil Pemintalan Listrik dari Polycarbosilane dalam N,N-Dimetilformamida (DMF)/Toluena. Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir Urania Vol 21 No.1, Februari 2015, 29-38.cs
8. Shoujun Wu, Laifei Cheng, Litong Zhang, Yongdong Xu, Xingang Luan, Corrosion of SiC/SiC composite in Na₂So₄ vapor environments from 1000 to 1500 °C, *Composites Part A* 37 (2006) 1396-1401
9. Jeong Yong Park, Seung Jo yoo, Byung –Kwon Choi, Yong Hwan Jeong, Corrosion and oxide characteristi of Zr-1.5Nb-0.4Sn-0.2Fe-0.1Cr alloys in 360 °C pure water an LiOH solution, *Journal of Nuclear Materials* 373 (2008) 343-350
10. KIM, H.H., J.H. KIM, J. Y. MOON, H.S. LEE, J.J. KIM and Y.S. CHAI, High-temperature Oxidation Behavior of Zircaloy-4 and Zirlo in Steam Ambient, *J. Mater. Sci. Technology*, 2010, 26 (9), p. 827 – 832.

11. Hassnaa Hussein Abd El-Halin Mohamed, (2014), Electrochemical Behaviour of Some Metals of Technological Importance in Aqueous Solutions, Departement of Chemistry, Faculty of Science, Fayoum.