

ANALISIS TERMAL Al, AlMg₂, U₃Si₂ DAN U₃Si₂-Al DALAM ALIRAN GAS HELIUM DAN CAMPURAN GAS HELIUM DAN OKSIGEN

Tumpal P*, Rukihati*, A. Suropto**, Auring*, Evy*, Syahfandi*
* Pusat Penelitian Sains Materi - Badan Tenaga Atom Nasional
** Pusat Elemen Bakar Nuklir - Badan Tenaga Atom Nasional

ABSTRAK

ANALISIS TERMAL Al, AlMg₂, U₃Si₂ DAN U₃Si₂-Al DALAM ALIRAN GAS HELIUM DAN CAMPURAN GAS HELIUM DAN OKSIGEN. Perubahan fisik dan perubahan kimia dari Al, AlMg₂, U₃Si₂ dan bahan bakar U₃Si₂-Al akibat perubahan suhu dipelajari dengan metode simultan Differential Thermal Analysis (DTA) dan Thermogravimetry (TG). Masing-masing komponen bahan bakar yaitu : Al, AlMg₂, U₃Si₂ dan bahan bakar U₃Si₂-Al dipanaskan secara teratur dari suhu 30° hingga 750°C dengan kenaikan suhu 10°C/menit pada tekanan atmosfer. Cuplikan-cuplikan tersebut dipanaskan pada dua kondisi yaitu dalam aliran gas helium UHP 99,999 % dan dalam aliran campuran gas helium 80% v dengan Oksigen 20%v. Termogram DTA- TG cuplikan serbuk Al 99,97%, serbuk U₃Si₂ dan pelat U₃Si₂-Al pada kondisi aliran campuran gas helium UHP 80% V dengan oksigen 20% menunjukkan pertambahan massa, dan U₃Si₂ menunjukkan dua puncak eksotermik masing-masing pada kisaran suhu 209 °C hingga 567 °C dan 567 °C hingga 625 °C dengan kalor reaksi berturut-turut 5556,8 J/g dan 470,4 J/g. Cuplikan pelat Al, AlMg₂ tidak menunjukkan pertambahan massa. Pada kondisi aliran gas helium 99.999%, entalpi cuplikan serbuk Al, serbuk U₃Si₂ dan pelat AlMg₂ relatif stabil terhadap panas, sedangkan entalpi bahan bakar pelat U₃Si₂-Al tidak stabil, karena terjadi reaksi antara Al dengan U₃Si₂ pada kisaran suhu 570 °C hingga 690°C dengan kalor reaksi 255,5 J/g.

ABSTRACT

THERMAL ANALYSIS OF Al, AlMg₂, U₃Si₂ AND U₃Si₂-Al IN HELIUM AND IN MIXTURE OF HELIUM AND OXYGEN GASES. Physical and chemical transformations of Al, AlMg₂, U₃Si₂ and U₃Si₂-Al fuel dispersion were studied as function of heating by means of a simultaneous differential thermal analysis (DTA) and thermogravimetry (TG) method. The samples were heated up regularly from 30° to 750°C at a heating rate of 10°C/minute under atmospheric pressure. The samples were heated up in two gas flow conditions, namely the flow of high purity helium (99.999%) and the mixture of helium and oxygen (80 %v:20%v). The DTA-TG thermograms of 99.97% Al powder, U₃Si₂ powder, and U₃Si₂-Al dispersion obtained under helium-oxygen mixture showed increase in their mass while for U₃Si₂ there appeared two exothermic peaks at 209 °C to 567 °C and 567 °C to 625 °C regions showing oxidation enthalpies of 5556.8 J/g and 470.4 J/g respectively. Under pure helium flow, Al and U₃Si₂ powders and AlMg₂ plate showed no increase in mass except for U₃Si₂-Al fuel dispersion which was resulted from the reaction between Al and U₃Si₂ in the range of 570 °C-690 °C with reaction heat of 255.6 J/g.

PENDAHULUAN

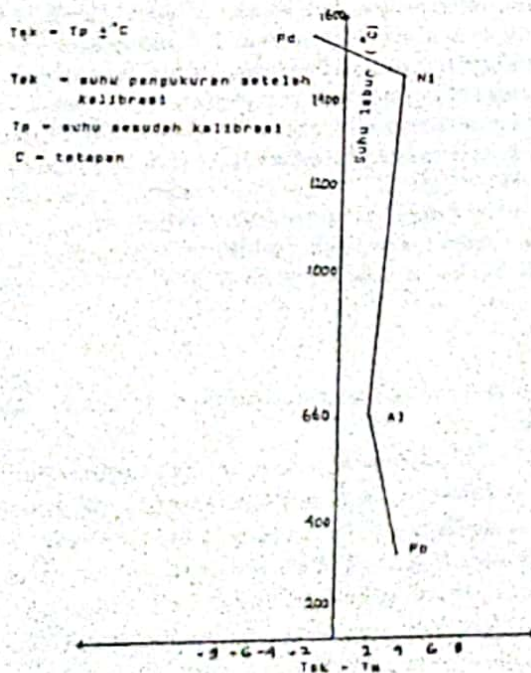
Perkembangan teknologi nuklir menunjukkan adanya upaya pembuatan bahan bakar untuk reaktor penelitian dengan mengurangi pengayaan U-235 yaitu dari $\geq 90\%$ menjadi $\leq 20\%$. Upaya pengurangan kandungan U-235 dalam bahan bakar nuklir tersebut dimaksudkan untuk memperkecil resiko pemanfaatan untuk keperluan yang bukan perdamaian [1]. Bahan bakar uranium silisida yang didispersi pada Al dengan kemurnian 99,97% merupakan bahan

bakar jenis pelat dengan pengayaan U-235 kurang dari 20%.

BATAN merencanakan penggunaan bahan bakar uranium silisida sebagai pengganti bahan bakar yang lama. Karena bahan bakar uranium silisida cocok untuk bahan bakar tipe pelat. Uranium yang diperkaya rendah mendekati 20% dengan kerapatan uranium mencapai 4,8-5 g U/cm³ merupakan kerapatan yang paling tinggi dibanding dengan bahan bakar tipe lainnya. Juga disamping itu, proses pabrikasi

uranium silisida hampir serupa dengan proses pabrikan bahan bakar tipe pelat U_3O_8 -Al yang ada di BATAN saat ini. Bahan bakar jenis pelat ini terdiri dari bagian isi dan pembungkus. Bagian isi dikenal dengan sebutan *fuel core* atau *meat* yang merupakan hasil pencampuran serbuk U_3Si_2 berdiameter $+125 \mu m$ dan $+40 \mu m$ dengan serbuk Al 99,97 %. Bahan bakar ini kemudian dipress sehingga berbentuk pelat dan setelah dibungkus dengan $AlMg_2$, kemudian dipress kembali pada suhu $415^\circ C$. Cuplikan U_3Si_2 -Al adalah potongan kecil dari bahan hasil pengepresan terakhir tersebut di atas.

Cuplikan serbuk Al, serbuk U_3Si_2 , dan bahan bakar pelat U_3Si_2 -Al dipanaskan dari suhu 30° hingga $750^\circ C$ dalam campuran aliran gas helium 80% v dengan gas oksigen 20% v dan dengan hanya gas helium 99,999% saja pada tekanan atmosfer. Untuk mengetahui hasil oksidasi, masing-masing cuplikan diidentifikasi dengan alat Difraksi Sinar-X sedangkan untuk penghitungan entalpi dilakukan dengan membandingkan luas puncak DTA yang diukur dengan luas puncak DTA cuplikan standar yang sudah diketahui entalpinya. Suhu diperoleh langsung dari hasil pengukuran alat setelah memasukkan faktor kalibrasi alat dengan rumus $T_{sk} = T_p \pm C$, T_{sk} adalah suhu pengukuran setelah kalibrasi alat dalam satuan $^\circ C$. T_p adalah suhu pengukuran sebelum kalibrasi dalam satuan $^\circ C$ dan C adalah tetapan yang diperoleh dari kurva Gambar 1.



Gambar 1. Kalibrasi pengukuran suhu

Percobaan ini merupakan simulasi untuk mengetahui perubahan fisik dan perubahan kimia bahan pendukung dan bahan bakar itu sendiri, akibat perubahan suhu dalam kondisi aliran dua jenis gas tersebut di atas.

BAHAN DAN PERALATAN

Bahan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah pelat Al (99,999%), pelat Al (99,0%), serbuk U_3Si_2 , serbuk Al, pelat U_3Si_2 -Al, cuplikan standar P, N, T, gas helium UHP 99,999%, gas argon UHP 99,999%, campuran gas helium 80 % V dengan oksigen 20% V.

Peralatan

Peralatan yang dipakai adalah Simultaneous Thermal Analysis SETARAM TAG-24, X-Ray Diffraction Shimadzu tipe XD610.

TATAKERJA

Penyediaan cuplikan serbuk Al, pelat Al, pelat $AlMg_2$, serbuk U_3Si_2 , pelat U_3Si_2 -Al.

Optimasi alat

Dilakukan untuk mendapatkan harga yang optimum dari perubahan kecepatan dan perubahan massa terhadap hasil pengukuran suhu dan entalpi, dengan menggunakan cuplikan standar Al 99,999%.

Kalibrasi alat STA

1. Kalibrasi suhu pengukuran dilakukan dengan pengukuran suhu lebur cuplikan standar pelat Al 99,999%, Pd 99,999%, Ni 99,999%, Sn 99,999%.
2. Kalibrasi entalpi dilakukan dengan membandingkan luas puncak cuplikan standar Al 99,999% dengan entalpi peleburan Al tersebut dari referensi.

Percobaan untuk mendapatkan *base line* dengan mengoperasikan alat tanpa cuplikan pada kondisi optimum.

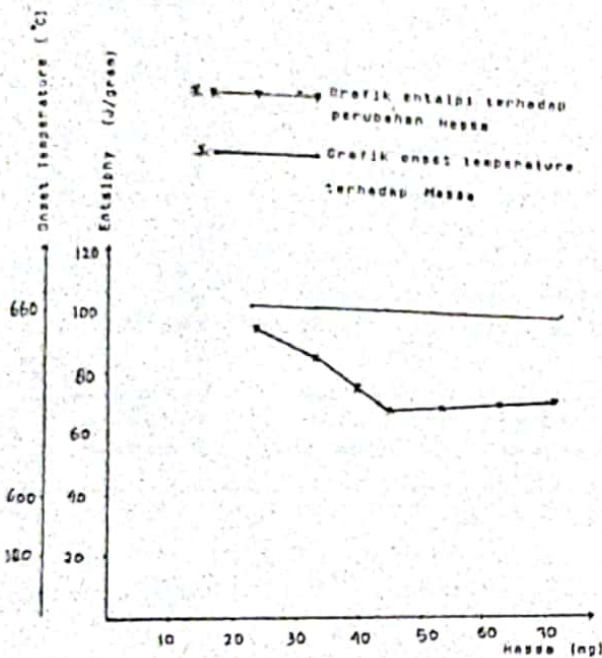
Percobaan untuk mendapatkan termogram DTA-TG pada kisaran suhu 30° hingga $750^\circ C$ dari masing-masing cuplikan nomor 1, dalam dua jenis kondisi aliran gas yaitu : pada campuran aliran gas helium 80% V dengan oksigen 20% V dan aliran gas helium 99,999% saja.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Gambar 1 menunjukkan grafik kalibrasi suhu hasil pengukuran dengan menggunakan bahan-bahan standar. $T_{sk} = T_p \pm C$. T_p adalah hasil pengukuran suhu sebelum kalibrasi alat, dalam satuan $^\circ C$. T_{sk} adalah hasil pengukuran

suhu setelah kalibrasi alat, dalam satuan °C. C adalah tetapan yang diperoleh dari kurva dalam satuan °C.

Gambar 2a menunjukkan hubungan perubahan kecepatan pemanasan terhadap onset temperature atau suhu awal peleburan dan entalpi cuplikan standar Al. Dengan perubahan kecepatan dari 5°, 10°, 15°, 20°, 25° dan 30° C/menit tidak terjadi perubahan harga onset temperature, sedangkan entalpi relatif menurun dari kecepatan 5° C/menit hingga 15°C/menit, dan relatif tetap pada kisaran kecepatan 15° C/menit hingga 30°C/menit.

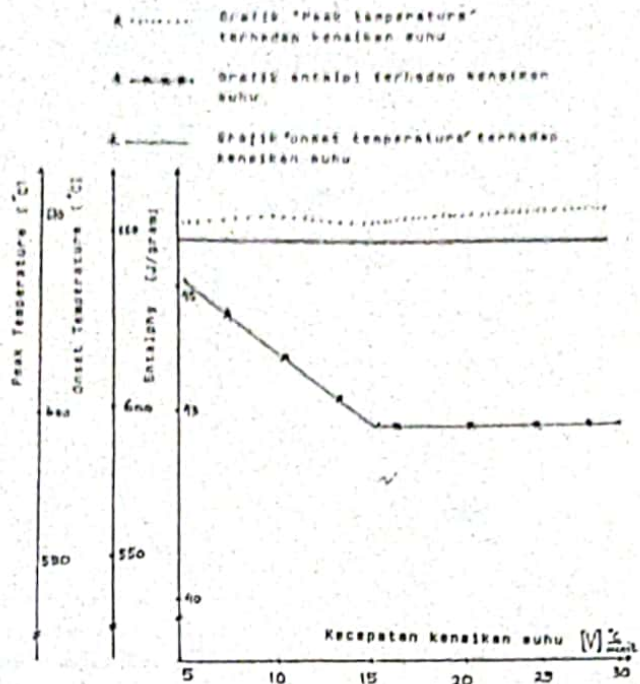


Gambar 2a. Grafik onset temperature, entalpi, terhadap perubahan massa

Gambar 2b menunjukkan harga onset temperature dan entalpi terhadap perubahan massa cuplikan. Harga onset temperature relatif tetap pada perubahan massa cuplikan dari 20 mg hingga 70 mg, sedangkan entalpi relatif menurun pada kisaran massa 20 mg hingga 40 mg dan relatif tetap pada kisaran 40 mg hingga 70 mg.

Hasil analisis termogram DTA-TG komponen dan bahan bakar pada kisaran suhu 30° hingga 750°C pada kondisi aliran gas helium 99,999% terdapat pada Tabel 1, sedangkan kondisi aliran campuran gas helium 80% V dengan oksigen 20% V terdapat pada Tabel 2.

Termogram DTA-TG cuplikan serbuk Al 99,97% dan batang Al 99,0% pada kondisi aliran gas UHP 99,999% menunjukkan suhu peleburan masing-masing 657°C dan 662°C sedangkan



Gambar 2b. Grafik onset temperature, entalpi, peak temperature, terhadap perubahan kenaikan suhu

di bawah suhu lebur hingga 30°C, entalpi relatif stabil. Pada kondisi campuran gas helium dengan oksigen, serbuk Al menghasilkan puncak eksotermik pada kisaran suhu 595°C hingga 655°C. Secara bersamaan termogram TG tersebut menunjukkan pertambahan 0,49 mg dari 57,5 mg cuplikan Al tersebut (Gambar 3), sedangkan untuk cuplikan batang 9,999% pada kisaran suhu tersebut tidak ada puncak eksotermik, maupun pertambahan massa, selain puncak eksotermik hasil peleburan cuplikan tersebut.

Pada Termogram DTA-TG serbuk AlMg₂ pelat pada kondisi aliran gas helium maupun dalam campuran aliran gas helium dengan oksigen tidak terbentuk puncak eksotermik dan tidak ada pertambahan massa. Entalpi serbuk U₃Si₂ dalam kondisi aliran gas helium 99,999% saja relatif stabil sedangkan dalam kondisi campuran helium dengan oksigen terdapat dua puncak eksotermik, masing-masing pada kisaran suhu 209° hingga 567°C dan 567° hingga 625°C dengan entalpi 5556,8 dan 470,4 J/g (Gambar 4).

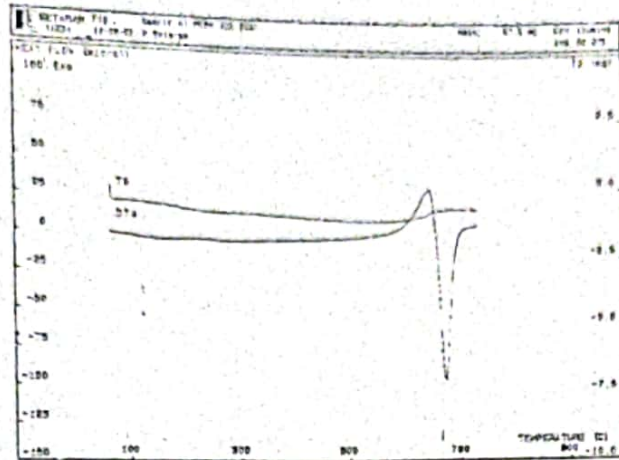
Jumlah massa yang diikat untuk puncak eksotermik I dan II yaitu 15,49 dan 1,7 mg dari

Tabel 1. Data hasil pengukuran *Differential Thermal Analysis* dan *Thermogravimetri* komponen dan bahan bakar uranium silisida U_3Si_2-Al dengan kondisi aliran gas helium pada tekanan atmosfer.

No.	Jenis cuplikan	Massa cuplikan (g)	Suhu lebur Onset Temp. (°C)	Kalor lebur (J/g)	Kisaran suhu reaksi (°C)	Kalor Reaksi (J/g)	Keterangan
1	Al (99,97 %)	44,6	656,7	-	-	-	bentuk serbuk
2	Al (99,999 %)	37,8	662,1	391,0	-	-	cuplikan Al dalam bentuk batang
3	AlMg ₂	26,5	-	-	-	-	bentuk pelat
4	U ₃ Si ₂	28	-	-	-	-	dari suhu kamar s/d 1039 °C relatif stabil thd panas
5	U ₃ Si ₂ - Al (bahan bakar)	27	-	-	570 s/d 690	255,47	tidak ada reaksi eksotermik atau endotermik dari suhu ruangan s/d 670 °C

Tabel 2. Data hasil pengukuran *Differential Thermal Analysis* dan *Thermogravimetri* komponen dan bahan bakar uranium silisida U_2Si_3-Al dengan kondisi aliran gas oksigen 20% V dengan helium 80% V pada tekanan atmosfer

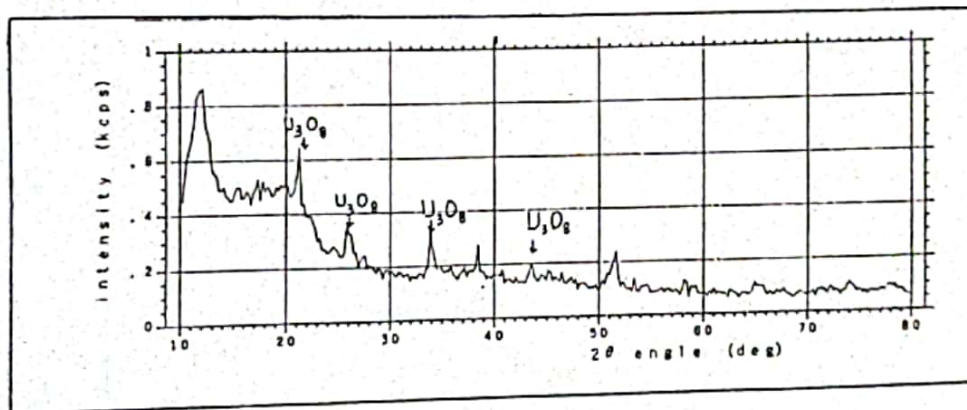
No.	Jenis cuplikan	Massa cuplikan (mg)	Kisaran suhu oksida (°C)	Kalor Reaksi (J/g)	Pertambahan massa (mg)	Hasil reaksi
1	Al (99,97 %) serbuk	31,8	595,7 s/d 655,6	127,6	0,19	
2	Al (99,0 %) batang	38,2	-	-	-	tidak terjadi reaksi pada kisaran suhu 30 °C s/d 750 °C.
3	Al (99,999 %) pelat	30,0	-	-	-	tidak terjadi reaksi pada kisaran suhu 30 °C s/d 750 °C.
4	AlMg ₂ pelat	43,12	-	-	-	tidak terjadi oksidasi pada kisaran suhu 30 °C s/d 750 °C.
5a	U ₃ Si ₂ serbuk	81,25	209,1 s/d 567,6 567,6 s/d 625	5556,8 470,4	15,49 1,70	UO ₂ + x (2) U ₃ O ₈
5b	U ₃ Si ₂ serbuk	106,0	212,8 s/d 514 514,0 s/d 622	5000 538,6	20,44 3,08	
5c	U ₃ Si ₂ cuplikan dari JAERI	13,8	352,0 s/d 400,0 400 s/d 600	2167,99 KJ/mol 1111,14 KJ/mol	19 8	UO ₂ + x (2) U ₃ O ₈ pada tekanan oksigen 0,06 Atm
6	U ₃ Si ₂ + Al serbuk	81,25	209,1 s/d 548,4 547,1 s/d 633	1481,4 148	3,24 0,63	
7	U ₃ Si ₂ Al pelat	10,0	423,4 s/d 584,0 584,0 s/d 645	144,6 210,0	0,49 0,49	



Gambar 3. Termogram DTA-TG cuplikan 57,5 mg Al 99,97 %.

81,25 mg U_3Si_2 . Hasil reaksi berupa UO_2+x untuk puncak I[5] dan U_3O_8 untuk puncak II, yang diamati dengan difraksi sinar x (Gambar 4a).

sedangkan dalam kondisi aliran gas helium 99,999% saja tidak ada penambahan massa, selain puncak peleburan dan reaksi Al dengan U_3Si_2 [2].



Gambar 4a. Pola difraksi sinar-x cuplikan U_3Si_2 setelah dipanaskan dari suhu 30° sampai 750°C

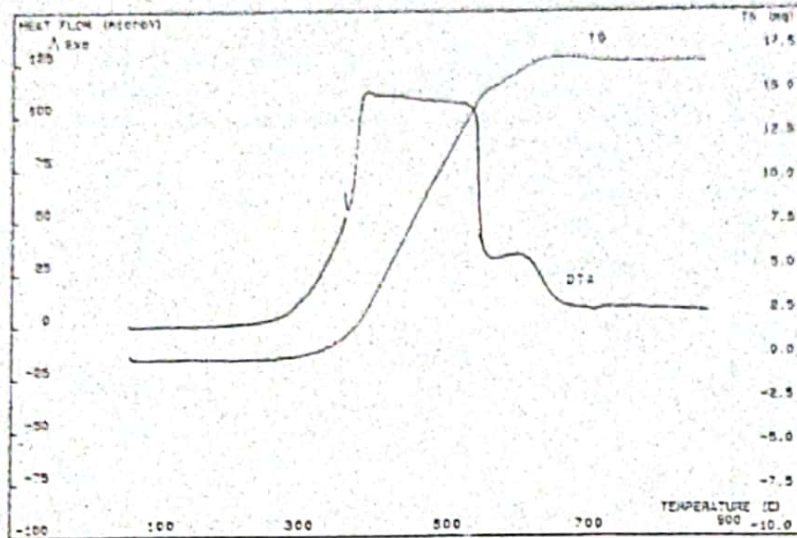
Untuk cuplikan serbuk $U_3Si_2 < 45 \mu m$ dari JAERI, juga terdapat dua puncak eksotermik masing-masing pada kisaran suhu 400° hingga 430°C dan 430° hingga 635°C. Entalpi puncak I dan II masing-masing 2157,99 dan 1111,14 KJ/mol dan penambahan massa 0,0019 gram dan 0,0080 g dari 0,0138 g serbuk U_3Si_2 (Gambar 5)[4].

Cuplikan bahan bakar pelat U_3Si_2 -Al pada kondisi campuran aliran gas helium dan oksigen menunjukkan, selain peristiwa peleburan Al dan reaksi Al dengan U_3Si_2 juga terjadi penambahan massa sebesar 0,49 mg dari 45,3 mg,

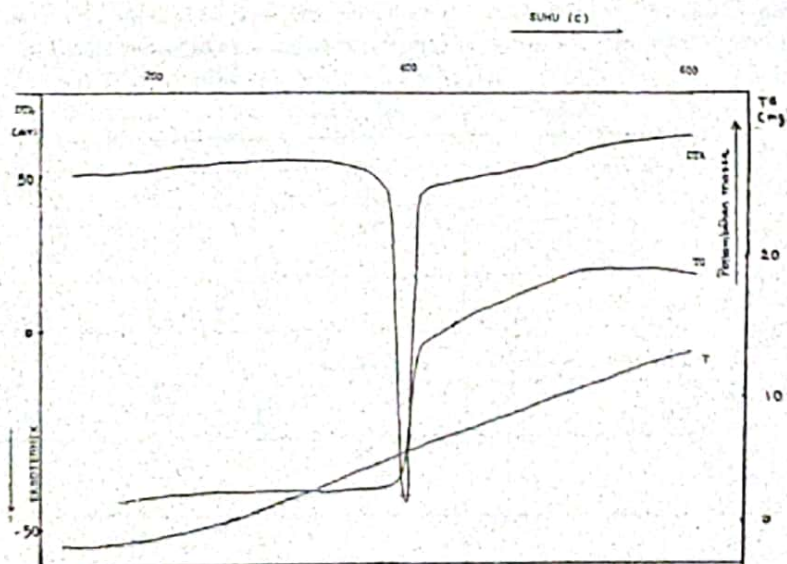
KESIMPULAN

Dari hasil percobaan dapat disimpulkan bahwa, perlakuan pemanasan dari suhu 30° hingga 750°C dalam kondisi:

1. Aliran campuran gas helium 80% V dengan oksigen 20% V pada tekanan atmosfer: cuplikan serbuk Al, serbuk U_3Si_2 dan bahan bakar pelat U_3Si_2 -Al menimbulkan pertambahan massa, cuplikan U_3Si_2 menghasilkan dua tingkat oksidasi pada kisaran suhu 209°C hingga 567°C dan 567°C hingga 625°C dan hasil oksidasi keadaan I dan II berupa UO_2+x dan U_3O_8 dengan kalor oksidasi



Gambar 4. Termogram DTA-TG 81,25 mg cuplikan serbuk U_3Si_2



Gambar 5. Termogram DTA-TG U_3Si_2 pada pemanasan $10^\circ C/menit$

5556,8 J/g dan 470,4 J/g, cuplikan Al, AlMg₂ batang tidak mengalami oksidasi.

2. Aliran gas helium 99,999%

Entalpi cuplikan pelat Al, pelat AlMg₂ dan serbuk U_3Si_2 entalpi relatif stabil terhadap perubahan panas, sedangkan U_3Si_2 -Al mengalami reaksi antara Al dengan U_3Si_2 pada kisaran suhu $570^\circ C$ hingga $690^\circ C$ dengan kalor reaksi 255,47 J/g.

UCAPAN TERIMAKASIH

Pada kesempatan ini kami mengucapkan terimakasih kepada :

1. Prof. Dr. Marsongkohadi Kepala Pusat Penelitian Sains Materi
2. Dr. Wuryanto. Kepala Bidang Metalurgi dan Bahan Industri PPSM
3. Dra Grace MSc., Ibu Neny G., Ibu Mia yang telah banyak mendukung dan membantu dalam penelitian ini.

DAFTAR PUSTAKA

1. Snelgrove, J. L., et. al, The use of U_3Si_2 -Al dispersi in aluminium in plate type fuel element for research and test reactor, ANL/RERTL/TM,77 Argone National Lab. USA (1987).
2. Domagala, R.F., et. al, DTA Of U_3Si_2 -Al and U_3Si_2 -Alr Reactors Ceramic Bulletin Vol 65 no. 8 (1986).
3. Tumpal, P., Evy, Suparjo, H., Analisa termal bahan bakar U_3Si_2 -Al PPNY Yogyakarta (14-16 Mei 1991).
4. Tumpal, P., Purwanto, Hadi, S., Analisa termal bahan bakar paduan U_3Si_2 . PPNY Yogyakarta (28-30 April 1992).
5. Nazare, S., Low enrichment dispersion fuels for research and test reactor, Journal of Nuclear Materials 124, North Holland Amsterdam(1984), 14 - 24.