

PENENTUAN UKURAN BUTIRAN PELET SINTER URANIUM DIOKSIDA DENGAN METODE DIFRAKSI

Ilias Ginting

Pusat Penelitian Teknik Nuklir - Badan Tenaga Atom Nasional

ABSTRAK

PENENTUAN UKURAN BUTIRAN PELET SINTER URANIUM DIOKSIDA DENGAN METODE DIFRAKSI. Penentuan ukuran butiran pelet sinter uranium dioksida dari berbagai tekanan telah dilakukan dengan metode difraksi yang didasarkan atas intensitas hamburan dari cuplikan. Peralatan yang dipergunakan dalam percobaan ini berupa difraktometer sinar-x dengan target tembaga (Cu) yang memberikan panjang gelombang karakteristik $CuK\alpha$ sebesar 1,54051 Angstrom. Pengambilan data puncak difraksi (220) dan (311) dilakukan secara bertahap dengan waktu cacah 20 detik, selang sudut hamburan $0,02^\circ$ dan sudut inklinasi cuplikan diambil dari 0° , hingga 340° dengan selang sudut 20° . Hasil pengukuran dari kedua puncak difraksi ini menunjukkan bahwa harga ukuran butiran pelet sinter uranium dioksida berkisar antara $22,6 \mu\text{m}$ hingga $27,8 \mu\text{m}$.

ABSTRACT

DETERMINATION OF GRAIN SIZE OF URANIUM DIOXIDE SINTERED PELLETS USING DIFFRACTION METHOD. Determination of grain size of uranium dioxide sintered pellets for several pressures has been carried out using diffraction method based on scattering intensities from the specimens. A copper target as radiation source in the x-ray diffractometer was used in this experiment with $CuK\alpha$ characteristic wavelength of 1.54051 Angstrom. Measurements were taken with step counting method on diffraction peak (220) and (311) respectively with preset time of 20 seconds, scattering angle interval of 0.02° and inclination angle of the specimen were taken from 0° until 340° with interval of 20° . The result from both diffraction peaks indicate that the grain size of uranium dioxide sintered pellets has the values between $22.6 \mu\text{m}$ and $27.8 \mu\text{m}$.

PENDAHULUAN

Pelet uranium dioksida (UO_2) alam banyak dipergunakan pada reaktor daya sebagai bahan bakar reaktor. Untuk mendapatkan pelet tersebut, digunakan serbuk uranium dioksida sebagai bahan baku. Serbuk uranium dioksida tersebut kemudian diubah bentuknya menjadi pelet mentah dalam mesin pres (pressing machine) dan selanjutnya disinter dalam tungku sinter.

Pada dasarnya apabila kita ingin berswastambada bahan bakar nuklir ini, banyak tahapan yang harus diteliti dan dikerjakan mulai dari penambangan, pemurnian hingga proses pencetakan serbuk menjadi pelet uranium dioksida. Khusus untuk pembuatan pelet uranium dioksida, ada beberapa proses yang harus dilakukan diantaranya proses penekanan dan pemanasan pada suhu tinggi yang disebut sintering. Proses penekanan bertujuan untuk memadatkan serbuk uranium dioksida, sedangkan pemanasan pada suhu tinggi berguna untuk mendapatkan sifat-sifat fisis dan mekanis yang memenuhi persyaratan sebagai bahan bakar reaktor.

Ditinjau dari ilmu kristalografi, oksida uranium ini dapat digolongkan dalam kategori bahan keramik seperti oksida nitrida, karbida, thorium dan plutonium. Beberapa sifat-sifat fisis dan mekanis yang berperan dalam pengendalian mutu sebagai bahan bakar reaktor antara lain rapat massa, ukuran butiran, luas permukaan, regangan maupun tegangan yang terdapat pada bahan tersebut.

Dalam penelitian ini dicoba untuk menentukan ukuran butiran uranium dioksida hasil penyinteran pelet mentah pada suhu 1800°C dari berbagai tekanan pemadatan. Ukuran butir merupakan salah satu karakteristik bahan yang penting, karena hal ini dapat mempengaruhi kekuatan, kekerasan, luas permukaan maupun rapat massa bahan. Peralatan yang dipergunakan dalam penelitian ini berupa difraktometer sinar-x dengan logam sasaran tembaga (Cu) yang memberikan panjang gelombang karakteristik $CuK\alpha$ sebesar 1,54051 Angstrom.

TEORI

Puncak difraksi yang ditimbulkan oleh suatu bahan tertentu, merupakan hamburan dari sejumlah kristalit-kristalit atom bahan yang saling berinteraksi dan intensitas terintegrasi yang dihasilkan oleh bahan tersebut untuk suatu posisi adalah konstan. Jikalau sejumlah kristalit tertentu saja yang memberikan pengaruh pada puncak difraksi misalnya butiran-butiran kasar, maka cuplikan ini dikatakan bukan merupakan serbuk yang ideal. Dengan demikian untuk mendapatkan keadaan yang mendekati ideal, perlu diadakan perubahan posisi orientasi cuplikan pada sudut hamburan tetap. Hal ini dilakukan guna mendapatkan intensitas terintegrasi rata-rata dari keseluruhan permukaan cuplikan dan metode ini sering disebut dengan fluktuasi statistik intensitas.

Metode fluktuasi statistik intensitas telah dikembangkan oleh B.E. Warren [2] dan dapat digunakan untuk menentukan ukuran butiran absolut dari suatu cuplikan. Menurut Warren ukuran butiran suatu bahan dapat ditentukan melalui persamaan berikut:

$$D^3 = \left\{ \frac{3j A_0 \Omega r \gamma}{2 \pi^2 \mu} \right\} \left\{ \frac{(Y - \bar{Y})^2}{(\bar{Y})^2} \right\} \quad (1)$$

D merupakan diameter butiran, j faktor multiplisitas dari puncak difraksi yang diamati, A_0 luas sumber, Ω sudut ruang yang masuk ke dalam detektor, μ koefisien absorpsi linier cuplikan, r kerapatan cuplikan, γ faktor koreksi orientasi preferensi, Y jumlah cacahan untuk suatu posisi sudut inklinasi dan \bar{Y} merupakan harga rata-rata dari cacahan.

Untuk cuplikan uranium dioksida, koefisien absorpsi linier dapat dihitung berdasarkan persamaan berikut:

$$\mu^* = \mu / \rho \quad (2)$$

μ^* merupakan koefisien absorpsi massa, μ koefisien absorpsi linier dan ρ rapat massa bahan.

Menurut kepustakaan [3] harga rapat massa teoritis uranium dioksida adalah 10.95 g/cc dan harga ini dihitung berdasarkan ukuran sel satuan dan berat atomnya. Untuk menghitung koefisien absorpsi massa dari uranium dioksida dapat dilakukan melalui persamaan di bawah ini:

$$\mu^* U O_2 = \frac{1 \times BA U \times \mu^* U + 2 \times BA O \times \mu^* O}{BM U O_2} \quad (3)$$

BA dan BM masing-masing merupakan berat atom dan berat molekul dari bahan.

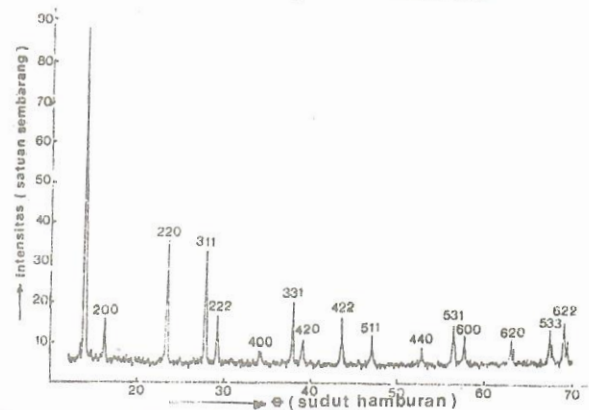
Dari persamaan (1), besarnya sudut ruang (Ω) [4] yang masuk ke dalam detektor dihitung berdasarkan persamaan berikut:

$$\Omega = w l / 4 R^2 \sin \theta \quad (4)$$

w merupakan lebar celah penerima, l panjang celah penerima, R jarak antara lengan detektor dan cuplikan, θ sudut hamburan Bragg.

PERCOBAAN

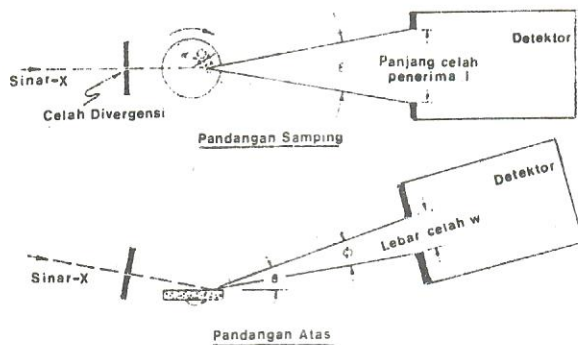
Peralatan yang dipergunakan dalam percobaan ini adalah difraktometer sinar-x XD-5A buatan SHIMADZU dengan daya maksimum 2 KW. Daya yang dipergunakan dalam penelitian ini sebesar 1,2 KW dan ternyata dengan daya ini puncak-puncak difraksi yang dihasilkan cukup tinggi. Sebagai bahan penelitian dipergunakan hasil penyinteran pelet mentah uranium dioksida pada suhu 1800°C dan tekanan pengompakan bervariasi mulai dari 0,3 ton/cm² hingga 4,8 ton/cm² dengan kenaikan tekanan untuk setiap cuplikan masing-masing sebesar 0,5 ton/cm². Adapun puncak difraksi yang diamati dalam penentuan ukuran butiran ini yaitu bidang kristalografi (220) dan (311). Untuk lebih jelasnya pada Gambar 1 ditunjukkan pola difraksi uranium dioksida pada suhu kamar.



Gambar 1: Pola difraksi pelet uranium dioksida pada suhu kamar.

Pengukuran kedua puncak difraksi ini dilakukan secara langkah demi langkah dengan selang sudut hamburan sebesar 0,02 derajat dan waktu pencacahan diambil sebesar 20 detik. Di samping itu juga dilakukan perubahan terhadap sudut inklinasi (α) dengan cara memutar cuplikan dimulai dari 0° hingga 340° dengan selang sudut untuk setiap langkah sebesar 20°. Pengukuran intensitas yang dihambur oleh cuplikan dilakukan dengan cara mengatur sudut inklinasi (α) pada suatu harga tertentu dan pencacahan data intensitas dilakukan

untuk keseluruhan daerah puncak difraksi. Dalam hal ini perubahan sudut inklinasi bertujuan agar intensitas yang dihamburkan oleh cuplikan merupakan peran dari keseluruhan kristalit-kristalitnya baik kristalit yang berukuran kecil maupun yang berukuran besar. Adapun susunan geometri peralatan maupun letak cuplikan pada goniometer difraktometer sinar-x seperti terlihat pada Gambar 2.



Gambar 2 : Susunan geometri peralatan dan cuplikan pada difraktometer sinar-x .

Untuk mendapatkan sudut ruang yang masuk ke dalam detektor berharga maksimum, perlu dilakukan pengaturan setiap celah yang dipergunakan. Dalam percobaan ini, celah divergensi maupun celah penerima masing-masing

diambil sebesar 1° dan 4° , sedangkan celah penghambur tidak dipergunakan sama sekali.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Dari data intensitas yang dihamburkan oleh cuplikan, apabila kita masukkan ke dalam persamaan (1), (2), (3) dan (4), dapat ditentukan ukuran butiran pelet sinter uranium dioksida pada suhu 1800°C untuk berbagai tekanan pemadatan. Adapun hasil percobaan penentuan ukuran butiran uranium dioksida setelah mengalami penyinteran, yang dilakukan melalui metode difraksi pada puncak difraksi (220) maupun (311) dapat dilihat pada Tabel 1.

Jikalau ditinjau hasil percobaan seperti tertera pada Tabel 1, terlihat bahwa dengan penyinteran uranium dioksida, peranan tekanan pengompakan terhadap ukuran butiran hampir tidak terlihat sama sekali. Hal ini terlihat dari masing-masing tekanan pemadatan tersebut ukuran butiran tersusun secara acak dan harganya berfluktuasi antara $22,6 \mu\text{m}$ sampai $27,8 \mu\text{m}$.

Apabila kita bandingkan dengan ukuran butiran pelet mentah, terhadap pelet sinter dengan pemanasan pada suhu 1800° terdapat penambahan ukuran butiran sebesar $5 \mu\text{m}$. Suhu dapat mempengaruhi ukuran butiran pada bahan, misalnya pada suhu tertentu, bahan akan mengalami apa yang disebut pertumbuhan butir ataupun rekristalisasi, sehingga ukuran butirannya berubah dari keadaan semula.

Tabel 1: Hasil percobaan penentuan ukuran butiran pelet sinter uranium dioksida dengan metode difraksi

Contoh	Tekanan ton/cm ²	Ukuran butiran bidang kristal (μm)			
		Pelet sinter		Pelet mentah*	
		2 2 0	3 1 1	2 2 0	3 1 1
UA1	0,3	26,5 (24,9)	26,9 (25,4)	16 (19,6)	16 (19,6)
UA2	0,8	25,3 (25,0)	26,0 (25,5)	21 (19,7)	21 (19,6)
UA3	1,3	24,5 (25,1)	23,7 (25,6)	24 (19,9)	22 (19,7)
UA4	1,8	25,1 (25,3)	26,5 (25,6)	18 (20,0)	17 (19,8)
UA5	2,3	22,6 (25,5)	22,9 (25,7)	21 (20,2)	18 (19,6)
UA6	2,8	- (25,6)	- (25,6)	21 (20,3)	24 (19,9)
UA7	3,3	27,0 (25,7)	27,8 (25,8)	22 (20,5)	21 (19,9)
UA8	,38	25,0 (25,9)	24,4 (25,9)	19 (20,6)	25 (20,0)
UA9	4,3	27,8 (26,0)	27,2 (25,9)	20 (20,8)	25 (20,0)
UA10	4,8	25,8 (26,1)	26,2 (26,0)	21 (20,9)	21 (20,1)

Catatan : () menunjukkan hasil regresi linier.

* diambil dari daftar pustaka [4]

KESIMPULAN

Dari percobaan ini dapat ditarik kesimpulan bahwa kenaikan tekanan yang diberikan pada waktu pencetakan pelet mentah, tampaknya tidak berpengaruh pada ukuran butiran setelah uranium dioksida mengalami penyin-

teran pada suhu 1800°C. Demikian pula metode fluktuasi statistik seperti yang dikembangkan oleh Warren, sesuai digunakan untuk menentukan ukuran butiran suatu bahan padatan.

DAFTAR PUSTAKA

1. B.D. Cullity, Elements of X-Ray Diffraction, Addison-Wesley Publishing Company, INC, Massachusetts, USA (1959)
2. B.E. Warren, X-ray measurement of grain size, USAEC, Technical Report NYO-4836 (1960)
3. J. Belle, Uranium dioxide properties and nuclear application, Naval Reactor, Division of Reactor Development, United States Atomic Energy Commission (1961)
4. Ilias Ginting, dkk, Penentuan ukuran butiran uranium dioksida dengan metode fluktuasi statistik, Seminar Pendayagunaan Reaktor Nuklir Untuk Kesejahteraan Masyarakat, Bandung (1990)

DISKUSI

Margono :

Setelah didapatkan ukuran butiran, apa hubungannya dengan kualitas pelet ? Apakah ada daftar pustaka yang mengatakan berapa μm ukuran butiran yang baik untuk pelet ?

Ilias Ginting :

Kualitas pelet secara fisis dipengaruhi oleh beberapa faktor diantaranya ukuran butir, oleh karena ukuran butir dapat mempengaruhi rapat massa (density) dari bahan tersebut maupun porositas dan lain-lain. Ukuran butir yang baik menurut standar maksimal sampai 50 μm .

Gunandjar:

1. Berapa besar ketelitian dan ketepatan pengukuran butiran pelet UO_2 yang Saudara peroleh ?
2. Jika dilihat dari perumusan Warren, terlihat bahwa besarnya diameter butiran (D) berbanding lurus dengan r (rapatan cuplikan). Pada cuplikan di variasi tekanan pres (0,3 sampai dengan 4,8 ton), berarti kerapatan akan makin besar. Tetapi mengapa data ukuran butir tidak terlihat adanya perubahan ? Mohon penjelasan !

Ilias Ginting :

1. Menurut daftar pustaka Warren faktor kesalahan (probability error) yang diperoleh mereka dalam penelitiannya berkisar 5 % sampai 10 %.
2. r di sini bukan merupakan jari-jari cuplikan akan tetapi r adalah kerapatan cuplikan yang mengandung arti $r = 1$ untuk cuplikan berbentuk padatan dan $r \ll 1$ untuk cuplikan berbentuk serbuk.

Engkir Sukirman :

1. Apa sebetulnya yang diharapkan dengan memvariasikan tekanan pada waktu pembuatan pelet ?
2. Sebaiknya dipakai metode pembandingan (metode lain) untuk meyakinkan apakah ukuran butiran yang diperoleh sudah benar.

Ilias Ginting :

1. Untuk mengetahui / mendapatkan *density* pelet yang terbaik, sehingga diperoleh rongga (porositas) yang kecil.
2. Akan diusahakan melalui peralatan SEM (Scanning Electron Microscope).