

# UJI IRADIASI DAN UJI PASCAIRADIASI BAHAN BAKAR KERNEL BERLAPIS DAN ELEMEN BAKAR NUKLIR BERBENTUK BOLA

Yusuf Nampira

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir

## ABSTRAK

Indonesia berencana untuk membangun dan mengoperasikan suatu reaktor daya eksperimen. Jenis reaktor yang dipilih adalah reaktor temperatur tinggi berpendingin gas dan menggunakan elemen bakar berbentuk bola. Elemen bakar ini merupakan bahan bakar speris berlapis yang didispersikan dalam matriks grafit. Elemen bakar di dalam reaktor akan mengalami reaksi pembelahan dari inti dapat belah dan dalam lingkungan temperatur tinggi. Oleh sebab itu bahan bakar dan elemen bakar ini perlu mempunyai unjuk kerja agar tidak menimbulkan kontaminasi pada sistem pendingin, dan membahayakan operasi reaktor. Guna mengetahui unjuk kerja tersebut maka dilakukan iradiasi bahan bakar berlapis dan elemen bakar. Pemantauan unjuk kerja ini dilakukan terhadap bahan bakar berlapis, elemen bakar berbentuk bola serta kapsul tempat bahan bakar/elemen bakar diiradiasi. Analisis dan pemantauan terhadap indikasi kegagalan penahanan hasil belah yang lepas dari bahan bakar/elemen bakar dilakukan dengan metode radiometri, spektrometri, gas chromatografi–*quadrupole mass spektrometry*. Sementara itu, kerusakan elemen bakar, bahan bakar berlapis dan lapisan bahan bakar diamati secara bertahap menggunakan mikroskop optik, *Scanning Electron Microscope (SEM)* termasuk analisis unsur dengan *Energy Dispersive X-Ray (EDS)* dan *Wave length Energy Dispersive X-Ray (WDS)*.

**Kata Kunci:** metode uji/analisis, pascairadiasi, bahan bakar kernel, elemen bakar bola

## PENDAHULUAN

Dalam rangka persiapan dukungan lokal terhadap penyediaan bahan bakar RDE yang direncanakan akan dioperasikan di Indonesia perlu disiapkan program litbang yang mendukung kegiatan tersebut dan perlu dilakukan uji iradiasi dan uji pascairadiasi terhadap bahan bakar kernel berlapis dan elemen bakar nuklir berbentuk bola. Adapun jenis reaktor yang digunakan adalah reaktor temperatur tinggi. Pengoperasian reaktor tersebut menggunakan bahan bakar bola yang berbasis pada bahan bakar kernel. Oleh sebab itu pengembangan bahan bakar nuklir jenis tersebut perlu dikembangkan agar dapat menguasai teknologi fabrikasinya. Pengembangan teknologi elemen bakar nuklir sangat membutuhkan informasi data hasil pengujian atau analisis dari bahan baku dan produk hasil pengembangan elemen bakar nuklir. Data pengujian ini digunakan sebagai informasi umpan balik untuk peningkatan proses pengembangan bahan bakar tersebut, hingga dikuasai teknik pembuatan bahan bakar nuklir atau sebagai informasi karakter bahan baku yang digunakan dalam proses pengembangan bahan bakar tersebut. Disamping itu data hasil pengujian bahan bakar pascairadiasi sangat diperlukan untuk memberikan informasi tentang unjuk kerja bahan bakar di reaktor. Informasi hasil uji pascairadiasi tersebut dapat menunjukkan kehandalan penggunaan bahan bakar yang

dikembangkan. Karena sangat pentingnya kegunaan informasi tersebut dalam pengembangan elemen bakar nuklir maka informasi tersebut harus akurat dan tertelusur.

Keakuratan hasil pengujian dipengaruhi oleh antara lain: metode analisis/pengujian yang sesuai untuk digunakan sebagai pedoman pelaksanaan pengujian, peralatan pengujian yang berfungsi dan terkalibrasi, dan ketersediaan bahan acuan untuk menjaga ketertelusuran hasil pengujian/analisis. Adanya beberapa kendala untuk dapat menghasilkan data dalam rangka penyiapan metode baku analisis/pengujian yang mengiringi proses pengembangan bahan bakar yang dilakukan, salah satunya adalah tersedianya bahan standar produk yang sesuai untuk digunakan sebagai acuan.

### **Latar Belakang**

Energi merupakan salah satu fokus program pembangunan berkelanjutan yang mencakup aspek ekonomi, sosial, lingkungan dan kelembagaan. Dalam memenuhi kebutuhan energi secara nasional, khususnya listrik, perlu selalu dikembangkan, karena kebutuhan energi listrik selalu meningkat setiap tahunnya, seiring dengan laju pertumbuhan ekonomi, penambahan penduduk, perkembangan sektor industri, dan lain-lain.

Sumber daya energi yang ada sekarang sudah sangat terbatas, maka perlu dilakukan langkah strategis dengan mencari sumber energi lain. Teknologi PLTN adalah aman, handal, bersih dan berwawasan lingkungan dan ekonomis. Oleh sebab itu opsi nuklir merupakan solusi yang tepat.

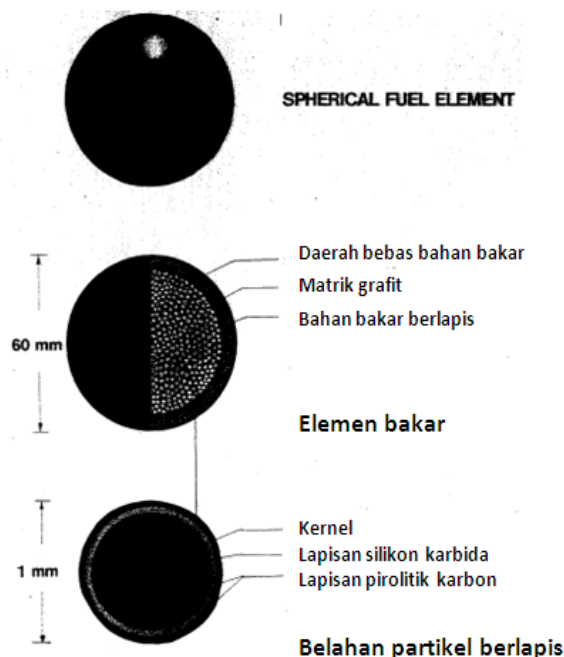
Berdasarkan Renstra BATAN 2014-2019, maka pada tahun 2020 akan dioperasikan Reaktor Daya Eksperimental (RDE) dan pada tahun 2020 telah dihasilkan prototipe bahan bakar untuk RDE. Penggunaan bahan bakar tersebut dalam reaktor RDE diharapkan dapat terlaksana pada tahun 2023. Sehubungan dengan hal tersebut, maka PTBBN harus dapat menguasai teknologi bahan bakar nuklir untuk reaktor daya khususnya bahan bakar untuk RDE. Perlu menguasai teknologi menyeluruh hingga menghasilkan elemen bakar nuklir atau perangkat bakar nuklir yang memenuhi persyaratan kualitas dan keselamatan dalam penggunaannya. Pemenuhan persyaratan kualitas dan keselamatan elemen bakar dilakukan melalui pengujian/analisis terhadap parameter kunci, oleh sebab itu perlu disiapkan penguasaan teknik pengujian pascairadiasi untuk melakukan kualifikasi produk hasil teknologi bahan bakar tersebut. Penguasaan teknologi yang dicapai saat ini merupakan modal yang tidak ternilai bagi PTBBN untuk dapat berkiprah lebih lanjut dalam kegiatan pengembang teknologi bahan bakar nuklir dalam rangka menyongsong era PLTN dalam industri energi nuklir ke depan.

Sehubungan dengan hal tersebut di atas, penguasaan teknologi fabrikasi bahan bakar nuklir merupakan tantangan besar bagi PTBBN untuk mencapai tingkat mampu berdaya guna dan memperkuat penguasaan *sains* dan teknologi untuk mendukung opsi domestifikasi fabrikasi bahan bakar PLTN terpilih. Untuk maksud tersebut peningkatan kompetensi terkait produksi bahan dan elemen bakar nuklir merupakan kegiatan utama PTBBN. Sebagai langkah antisipatif terhadap sistem energi inovatif di Indonesia untuk pengoperasian reaktor daya eksperimen yang diarahkan pada reaktor temperatur tinggi, tantangan yang perlu dijawab adalah penguasaan teknologi elemen bakar untuk kesinambungan pengoperasian reaktor tersebut.

Guna menyongsong kegiatan pengujian pascairadiasi terhadap hasil pengembangan bahan bakar untuk reaktor temperatur tinggi maka dilakukan pengkajian metode uji pascairadiasi untuk melihat unjuk kerja hasil pengembangan elemen bakar tersebut. Dengan terlaksananya kegiatan di atas diharapkan dapat digunakan sebagai acuan dalam melaksanakan persiapan pengujian iradiasi dan pascairadiasi. Dari kegiatan pengujian/analisis yang dilakukan dapat memberikan data informasi yang akurat dan bermanfaat untuk menunjang penguasaan teknologi elemen bakar nuklir dan terjaganya kesiapan Sumber Daya PTBBN dalam rangka melakukan pengembangan bahan bakar untuk reaktor temperatur tinggi berpendingin gas.

### **Pembuatan Elemen Bakar RDE Melalui Proses Pembuatan Bahan Bakar Kernel**

Bahan bakar ini berbentuk butiran kecil  $\text{UO}_2$ . Uranium di dalam reaktor akan mengalami pembelahan dan menghasilkan hasil belah. Agar hasil belah tersebut tidak mengkontaminasi pendingin gas maka bahan bakar  $\text{UO}_2$  perlu dilapis dengan pirolitik karbon dan  $\text{SiO}_2$ . Bahan bakar berlapis ini kemudian didispersikan dalam matrik grafit dalam bentuk bola. Adapun tahapan proses pembuatan elemen bakar berbentuk bola ditunjukkan dalam Gambar 1.



Gambar 1. Tahapan pembuatan elemen bakar HTR berbentuk bola

Bahan bakar di dalam reaktor akan mengalami reaksi pembelahan, dan menghasilkan atom-atom hasil belah. Beberapa hasil belah ini dalam partikel bahan bakar akan mengalami pergerakan dalam matrik bahan bakar dan bahkan mungkin lepas dari bahan bakar. Sesuai dengan kondisi operasi reaktor yang akan menghasilkan temperatur tinggi maka elemen bakar yang digunakan dalam lingkungan temperatur tersebut. Hal ini memungkinkan akan terjadinya mobilisasi hasil belah dalam elemen bakar terutama hasil belah yang mempunyai titik didih rendah bahkan memungkinkan terjadinya pelepasan hasil belah tersebut, sedangkan hasil belah yang mempunyai titik didih tinggi akan tetap berada dalam elemen bakar. Berdasarkan titik didih tersebut maka hasil belah yang mempunyai titik didih di bawah temperatur operasi reaktor dapat digunakan sebagai indikator untuk menentukan kemampuan bahan pelapis partikel atau matrik elemen bakar yang mampu menghambat hasil belah yang terlepas dari partikel bahan bakar dan elemen bakar.

Tabel 1. Titik leleh dan didih unsur-unsur hasil belah  $^{235}\text{U}$

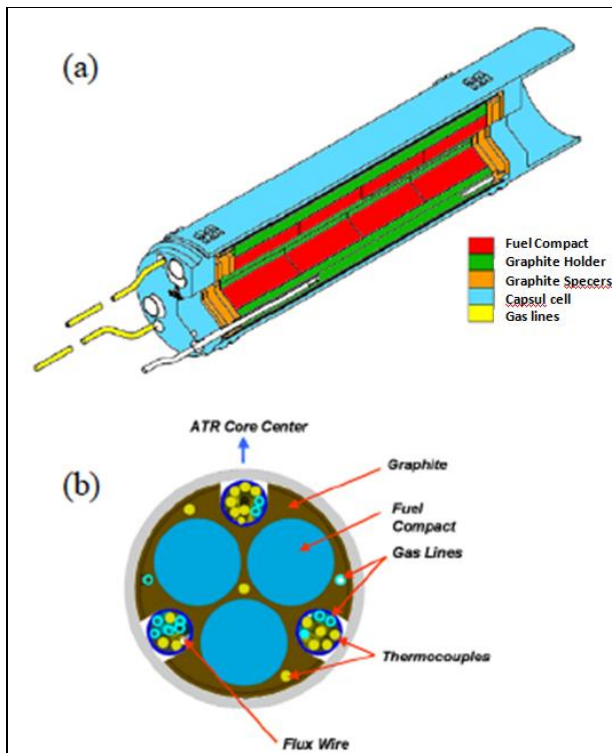
Unsur	Titik leleh ( $^{\circ}\text{C}$ )	Titik didih ( $^{\circ}\text{C}$ )
Zr	1855	4409
Cs	28,44	671
Ce	798	3424
Eu	822	1529
Ag	961,78	2162
Ru	2334	4150

**HASIL DAN PEMBAHASAN**

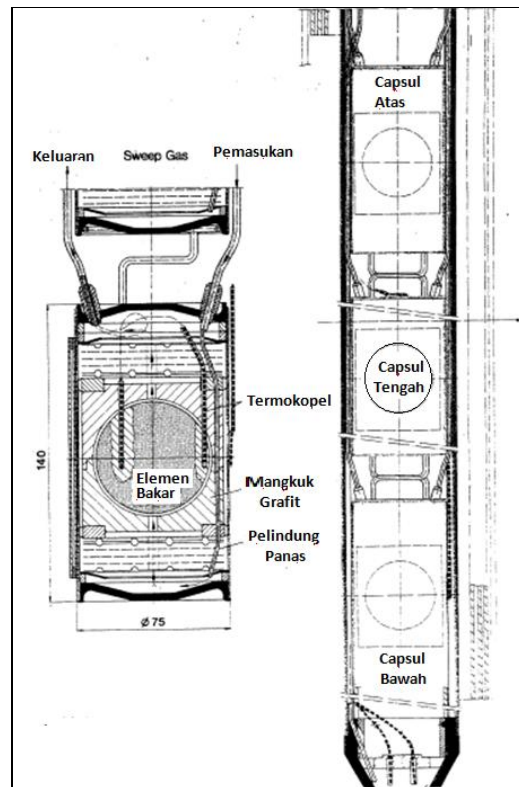
Desain HTR modern didasarkan pada bahan bakar dengan kualitas tinggi. Desain bahan bakar tersebut telah memperhitungkan tingkat keamanan dan keselamatan bila digunakan di reaktor. Bahan bakar di dalam reaktor akan mengalami proses iradiasi dan pembelahan serta pemanasan pada temperatur tinggi maka pengujian bahan bakar pada parameter derajat bakar, temperatur operasi, dan *fluence neutron*. *Monitoring* pelepasan gas dilakukan secara sinambung.

**Uji Iradiasi**

Pengujian iradiasi elemen bakar HTR berbentuk bola dilakukan terhadap partikel kernel, BISO, TRISO dan elemen bakar. Dalam pengujian ini dibutuhkan fasilitas iradiasi yang dilapis dengan bahan yang dapat menyerap hasil belah yang mungkin dilepaskan oleh bahan bakar/elemen bakar saat diiradiasi. Partikel bahan bakar dan bahan bakar berlapis ditempatkan dalam suatu kapsul yang mempunyai fasilitas untuk menempatkan partikel-partikel tersebut, dalam hal ini dikenal dengan *compact* bahan bakar (Gambar 2.a). Sementara itu, untuk elemen bakar ditempatkan di dalam kapsul seperti yang ditunjukkan dalam Gambar 2.b.



Gambar 2.a. (a) Kapsul dan bagian nya untuk iradiasi bahan bakar kernel, (b) tampang lintang kapsul



Gambar 2.b. Kapsul untuk iradiasi elemen bakar berbentuk bola

## Uji Pascairadiasi

Pengujian pascairadiasi bahan bakar nuklir ditujukan untuk mendapatkan informasi tentang unjuk kerja bahan bakar digunakan di reaktor sehingga dapat ditentukan tingkat keamanan dan keselamatan penggunaannya dalam reaktor yang sebenarnya. Adapun beberapa parameter pengamatan, pengujian dan pengukuran yang dilakukan yaitu :

- Radiografi *neutron*
- Penyapuan gamma (*gamma scan*)
- Uji monitor *neutron fluence*
- *Dismantling rig* dan kapsul
- Inspeksi, foto dokumentasi
- Pengukuran dimensi, elemen bakar bola
- Penentuan derajat bakar (bandingkan dengan hasil perhitungan).
- Spektrometri gamma-distribusi hasil belah (elemen bakar, komponen)
- Uji korosi
- Kekuatan tekan
- Ceramografi/REM
- Uji simulasi kecelakaan (korosi, temperatur tinggi 1600 °C)

Kinerja iradiasi ditentukan dengan mengakuisisi spektrum energi gamma dan melakukan analisis kuantitatif radioisotop pada partikel individu dari populasi yang besar. Keputusan gagal didasarkan pada rasio aktivitas produk fisi tertentu yang sensitif. Dua isotop cesium,  $^{134}\text{Cs}$  dan  $^{137}\text{Cs}$ , dan  $^{95}\text{Zr}$  dibutuhkan untuk keperluan tertentu. Dalam lingkungan suhu tinggi dari HTR, cesium berbentuk uap akan terlepas dari partikel yang rusak atau gagal. Zirkonium secara kimiawi stabil dan akan tetap di dalam kernel bahan bakar. Dengan demikian, rasio aktivitas dari *volatile* (Cs) untuk produk fisi *nonvolatile* (Zr) menunjukkan ukuran langsung dari hilangnya hasil belah. Berdasarkan sifat hasil belah tersebut dilakukan pemantauan hasil belah pada bahan bakar/elemen bakar dan komponen kapsul iradiasi untuk menentukan kompatibilitas bahan bakar berlapis dengan elemen bakar berbentuk bola.

### a. Gamma Scanning Compacts Masing-Masing Bahan Bakar

*Compacts gamma scanning* secara terpisah bekerja didasarkan pada pencacahan untuk mengukur  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ , dimana pengamatan ini membutuhkan waktu cukup panjang. Peralatan eksperimen terdiri dari detektor germanium kemurnian tinggi (HpGe) dengan sistem pencegah *Compton*, dan kolimator persegi panjang dengan pembukaan 2,5 mm. Setiap kompak dicacah untuk setiap jarak aksial 2,5mm. Sistem *gamma*

*scanning* dikalibrasi sehingga aktivitas total dalam kompak dapat diperoleh dari menjumlahkan aktivitas diukur dari semua *scan* kompak. Mencegah gangguan dari  $^{137}\text{Cs}$  penggunaan sinar gamma primer  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ , maka pencacahan dilakukan dengan penggunaan kedua dan ketiga intensitas sinar gamma untuk penentuan aktivitas. Dengan membandingkan hasil pengukuran dengan nilai-nilai diprediksi, maka akan memperoleh data informasi tentang tingkat retensi perak di setiap kompak dianalisis.

### **b. Analisis Pelepasan Logam Hasil Belah**

Pelepasan logam produk fisi dari bahan bakar selama iradiasi ditentukan dengan beberapa cara melalui pemeriksaan pascairadiasi. Pemeriksaan dilakukan setelah iradiasi dengan waktu pendinginan satu hari. Kandungan hasil pengukuran ini dibandingkan dengan kandungan yang diperoleh berdasarkan simulasi fisika.

Pengujian iradiasi partikel ditempatkan dalam kapsul, sewaktu iradiasi berlangsung jika terjadi pelepasan hasil belah maka hasil belah indikator dilepaskan dari *compacts* ke komponen kapsul. Hasil belah yang diamati untuk pelepasan ini adalah  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ ,  $^{144}\text{Ce}$ ,  $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{106}\text{Ru}$ ,  $^{125}\text{Sb}$ , dan  $^{154}\text{Eu}$ . Cesium merupakan hasil belah yang mudah menguap maka bila terjadi kegagalan partikel atau lapisan maka Cs akan berada di bagian kapsul bahan bakar, sedangkan  $^{95}\text{Zr}$  yang stabil pada temperatur tinggi akan tetap berada dalam partikel bahan bakar. Analisis radionuklida tersebut di atas dilakukan pada partikel bahan bakar dan bahan *compact* serta kapsul. Hasil analisis kandungan nuklida stabil (tidak mudah menguap) dalam partikel digunakan untuk perhitungan radionuklida hasil belah lainnya. Berdasarkan perbedaan hasil analisis aktivitas/kandungan dari perhitungan dengan hasil analisis maka nilai pelepasan hasil belah ini dapat ditentukan.

### **c. Analisis Hasil Belah yang Diendapkan dalam Komponen Kapsul Iradiasi**

Komponen utama dari kapsul-termasuk iradiasi *shell* logam dan struktur komponen, grafit pemegang bahan bakar, dan grafit *spacer* ujung kapsul dianalisis untuk menentukan kandungan kumulatif hasil belah yang dilepaskan dari *compacts* selama iradiasi kapsul. Data hasil pengukuran ini menunjukkan informasi tentang total kandungan hasil belah yang dilepaskan dari *compacts* bahan bakar. Dari data ini tidak dapat menentukan pelepasan hasil belah dari masing-masing *compact*. *Shell* kapsul logam dicuci dalam asam untuk melepaskan produk fisi diendapkan dan larutan dianalisis dengan spektrometri gamma, induktif coupled plasma spektrometri massa (ICP-MS), dan pencacah gas-proporsional (untuk  $^{90}\text{Sr}$ ). Pemegang grafit dicacah menggunakan spektrometer gamma untuk menentukan kandungan produk fisi pemancar gamma

kemudian dihancurkan, dioksidasi, dicuci dan larutan dianalisis dengan ICP-MS serta pencacah gas-proporsional. *Spacer* grafit di ujung aksial setiap kapsul dicacah gamma.

#### **d. Dekonsolidasi dan *Leach-Burn-Leach Analysis Compacts* Bahan Bakar**

*Compacts* bahan bakar dikonsolidasi secara elektrolitik sebagai tingkat iradiasi dan *leach-burn-leach* analisis. Dekonsolidasi-*leach burn-leach* (DLBL) analisis secara efektif mengukur total kandungan hasil belah yang terletak di dalam *compact* di luar lapisan SiC (termasuk baik OPyC dan matriks), terkecuali tidak ada partikel dengan lapisan SiC yang gagal (dalam artikel ini, "kegagalan SiC" mengacu pada hilangnya integritas lapisan SiC, setidaknya satu lapisan pyrocarbon tersisa utuh, dan berbeda dari kegagalan pelapis TRISO menyeluruh). Oleh karena itu pengukuran produk fisi yang (a) dipertahankan dalam *compact* luar lapisan SiC, dan (b) yang dihasilkan dari kontaminasi uranium dalam matriks *compact* atau OPyC dan dipertahankan dalam *compact* selama iradiasi. Sebagai tingkat kontaminasi uranium di *compacts* umumnya sangat rendah (rata-rata uranium fraksi kontaminasi kurang dari  $4 \times 10^{-7}$ ), kandungan diukur dari DLBL biasanya didominasi oleh pelepasan partikel. Dalam beberapa kasus, jika nilai yang diukur sangat rendah (seperti yang sering terjadi dengan cesium, di mana pelepasan melalui SiC utuh ditemukan menjadi sangat rendah).

*Compacts* di dekonsolidasi dalam tabung kaca dengan bagian bawah ~ 1 mm terendam asam nitrat pekat. Sebuah kawat platinum-rhodium ditempatkan di bagian atas *Compacts* (anoda) dan elektroda kedua (katoda) ditempatkan ke dalam larutan asam nitrat. Sebuah potensial listrik dengan tingkat daya kurang dari 10 watt digunakan, arus listrik ini mengakibatkan oksidasi elektrolit dari matriks *compact*, membebaskan partikel sebagai reaksi berlangsung. Rontokan partikel dan puing-puing matriks dikonsolidasi dikumpulkan dalam bidal Soxhlet untuk diproses selanjutnya. Bidal (penutup pada lubang) itu dipindahkan ke dalam alat ekstraksi Soxhlet dan dua siklus ekstraksi 24 jam dilakukan dengan menggunakan larutan asam nitrat pekat untuk setiap siklus. Hasil belah dan aktinida dalam larutan lindi dari masing-masing siklus dianalisis. Seluruh bidal kemudian dipindahkan ke dalam *oven* dimana langkah pemanasan dilakukan selama 72 jam pada 750 ° C di udara. Proses ini akan mengoksidasi semua karbon termasuk puing-puing matriks, lapisan luar pirolitik karbon, dan lapisan dalam pirolitik karbon serta lapisan penyangga dari setiap partikel dengan patahan atau lubang di lapisan SiC. Bidal tersebut kemudian ditransfer kembali ke ekstraktor *Soxhlet* dan dua lagi resapan siklus 24 jam dilakukan, dengan masing-masing larutan lagi diuji untuk aktinida dan hasil belah. Jika partikel SiC telah gagal, tahap *pos-burn leach* melarutkan kernel terpapar. Data *post-burn leach* dapat digunakan untuk menentukan jumlah partikel dengan gagal SiC yang



didasarkan pada pengukuran uranium di dalam larutan. Pengukuran hasil larutan *leaching* menggunakan spektrometri gamma untuk hasil belah pemancar gamma, pencacah pemisahan dan aliran gas proporsional untuk  $^{90}\text{Sr}$ , serta *induktif coupled* plasma spektrometer massa (ICP-MS) untuk aktinida dan hasil belah lain pemancar non gamma.

#### **d.1. Profil Dekonsolidasi Elektrolitik**

Dekonsolidasi elemen bakar bola diperlukan untuk mengambil partikel terlapis tak terbatas untuk analisis lebih lanjut, dan untuk menyelidiki distribusi hasil belah dan hasil aktivasi dalam grafit matriks. Metode yang paling umum digunakan dalam PIE bahan bakar elemen merupakan adopsi dari oksidasi anodik grafit matriks dengan elektrolisis. Dalam proses ini elemen bakar berada dalam kontak langsung dengan anoda dari pasokan tegangan DC, logam Pt-Ir penghubung dicelupkan ke dalam larutan elektrolit dan bertindak sebagai katoda. Grafit bola rusak pada permukaan menghadap katoda. Pengadukan atau resirkulasi dari larutan elektrolit mempercepat proses. Optimalisasi arus listrik diperlukan untuk mencegah kerusakan pada partikel dan untuk mempertahankan proses yang efisien. Larutan asam nitrat, pada konsentrasi 1 sampai 2 mol per liter, digunakan sebagai larutan elektrolit. Penggunaan larutan ini memudahkan analisis kimia berikutnya. Prosedur dekonsolidasi dijelaskan di bawah *yield* serbuk halus grafit dan partikel baik dipisahkan.

Dalam prosedur yang digunakan di KFA Julich, elemen bola berputar dicelupkan ke dalam larutan elektrolit. Setelah sekitar 18 jam, silinder 60 mm panjang, 20 mm diameter tetap (*remaind*) dari elemen bakar. Silinder kemudian berbalik pada porosnya dan dimasukkan ke dalam elektrolit, dan materi dipisahkan dalam jarak 5 mm. Dalam prosedur ini, partikel dan bahan grafit sepanjang suatu aksis melalui pusat bola. *Seibersdorf* prosedur, *concentric glass* tiga tabung digunakan berisi  $\text{HNO}_3$  elektrolit. Luar tabung adalah tempat elektrolit dan ditekan kuat pada elemen.

Partikel, grafit dan elektrolit dipisahkan, hasil belah dan aktinida diukur dalam suatu komponen. Detektor resolusi tinggi digunakan untuk mengukur kandungan hasil belah pemancar gamma dan hasil aktivasi. Unsur  $^{90}\text{Sr}$  dan anak luruhnya merupakan pemancar beta murni dan ditentukan dengan larutan kimia. Sampel grafit di abukan pada temperatur tinggi atau plasma oksidasi dan endapan yang diperoleh dilarutkan dalam asam nitrat dan dianalisis. Isotop  $^{90}\text{Sr}$  diukur secara tidak langsung melalui  $^{90}\text{Y}$  (waktu paro 64 jam) diekstraksi dari larutan asam menggunakan di-n-dibutilfosfat. Beta energy maksimum  $^{90}\text{Y}$  adalah : 2,3 MeV, mudah dideteksi dengan LSC menggunakan radiasi Cerenkov.

Setelah langkah dekonsolidasi partikel pelapis maka diperlakukan untuk memisahkan residu grafit matrik dari permukaan menggunakan pembersih *ultrasonic* atau

vibrasi. Mikroskop optik, X ray-radiografi dan *Scanning Elektron Microscope* (SEM) digunakan untuk mendeteksi *defective* lapisan atau kernel.

#### **d.2. Pencacahan Gamma Masing-Masing Partikel Bahan Bakar Berlapis**

Masing-masing partikel dicacah gamma pada berbagai tahap proses DLBL untuk menentukan kandungan hasil belah pemancar gamma. Analisis kandungan hasil belah dalam partikel, hasil ini dapat digunakan untuk mengevaluasi tingkat retensi relatif. Analisis ini memiliki tujuan ganda. Partikel individu dengan kandungan abnormal rendah hasil belah tertentu dapat diidentifikasi, seperti dalam kasus pelepasan cesium tinggi, dan ini mengindikasikan cacat lapisan SiC. Sementara itu, cesium relatif mudah berdifusi melalui pyrocarbon utuh yang melewati SiC. Namun, cacat lapisan SiC atau kegagalan *in-pile* memungkinkan cesium mudah lepas dari partikel pada suhu iradiasi normal. Oleh karena itu, pengukuran kandungan relatif  $^{137}\text{Cs}$  dapat digunakan untuk mengidentifikasi partikel SiC yang gagal. Partikel tersebut kemudian dapat dianalisis strukturmikro untuk mengetahui sifat dari kegagalan SiC.

Selain menemukan partikel dengan SiC lapisan yang rusak, distribusi aktivitas hasil belah antara populasi partikel dapat memberikan informasi melalui perbedaan pelepasan melalui SiC secara utuh. Hal ini terutama menarik untuk perak, yang mungkin menunjukkan pelepasan signifikan dari partikel (beberapa persen atau lebih di bawah kondisi iradiasi normal), perbedaan dapat dideteksi bila nilainya di atas ketidakpastian teknik pencacahan gamma. Dengan mengukur  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  dipertahankan dalam partikel, partikel tertentu dengan pelepasan tinggi atau rendah dapat dipilih sebagai sampel untuk pemeriksaan strukturmikro, dari pemeriksaan ini dapat menjelaskan penyebab keadaan pelepasan tersebut, misalnya, variasi strukturmikro SiC yang berhubungan dengan tingkat pelepasan  $^{110\text{m}}\text{Ag}$ . Pengamatan melalui pencacahan  $^{137}\text{Cs}$  dan  $^{144}\text{Ce}$  akan membutuhkan waktu relative lebih singkat. Hasil belah penting lainnya seperti  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  dan  $^{154}\text{Eu}$  cenderung memiliki aktivitas total jauh lebih rendah dalam partikel (umumnya  $<3 \times 10^4$  Bq untuk  $^{110\text{m}}\text{Ag}$  dan  $\sim 1 \times 10^5$  untuk  $^{154}\text{Eu}$  versus  $4 \times 10^7$  Bq untuk  $^{144}\text{Ce}$  dan  $4 \times 10^6$  Bq untuk  $^{137}\text{Cs}$ ) dan karena itu memerlukan lebih lama waktu pencacahan (umumnya beberapa jam) untuk mendapatkan kuantifikasi statistik yang relevan. Sebagai konsekuensi membutuhkan waktu pencacahan yang lebih lama, pengolahan semua partikel akan memakan waktu.

Pencacahan gamma pada partikel teriradiasi dilakukan secara manual ditempatkan dalam botol kaca dicacah dengan spektrometer gamma hingga terbentuk spektrum- $\gamma$ . Alat spectrometer- $\gamma$  yang digunakan telah dilakukan kalibrasi energi dan efisiensi deteksi menggunakan sumber titik standar  $^{152}\text{Eu}$ . Waktu pencacahan bervariasi dari 1 sampai 12 jam .

Pencacahan gamma pada partikel dicapai dengan menggunakan *Advanced Irradiation Microsphere Gamma Analyzer (Advanced-IMGA)*, sistem otomatis yang dikembangkan oleh ORNL khusus untuk pemeriksaan partikel TRISO. Sistem ini menggunakan jarum vakum dengan dua sumbu arah gerakan untuk secara otomatis memilih satu partikel dari botol terletak di *carousel* berputar, reposisi partikel di depan detektor gamma HpGe, pencacahan gamma partikel untuk interval waktu yang telah ditentukan, tempat partikel dalam vial yang ditujukan berdasarkan kriteria tertentu, dan kemudian diulangi proses sampai semua partikel telah dicacah.

IMGA terdiri dari tiga komponen utama: sistem otomatis penanganan partikel dalam bilik terlindung, detektor gamma resolusi tinggi, dan *analyzer* tinggi pulsa berbasis komputer. Untuk pemeriksaan rinci lebih lanjut pada permukaan partikel, kernel dan *fragmen coating* sebuah mikroskop stereo dan dudukan sampel bergerak dan SEM dipasang di bilik.

Himpunan bagian partikel dari *compacts* dihitung dari pencacahan gamma. Persediaan  $^{110m}\text{Ag}$  setiap partikel dibandingkan dengan aktivitas dihitung dalam partikel rata-rata dari yang kompak bahan bakar untuk menentukan fraksi diperkirakan  $^{110m}\text{Ag}$  dipertahankan. Untuk meminimalkan efek dari variasi partikel ke partikel dalam kandungan bahan dapat belah (variasi dalam ukuran kernel, kepadatan, dan stoikiometri) dan fraksi bakar, rasio aktivitas  $^{110m}\text{Ag}$  diukur dengan aktivitas  $^{110m}\text{Ag}$  dihitung itu dinormalisasi menggunakan aktivitas  $^{137}\text{Cs}$ , seperti dalam persamaan berikut:

$$\frac{A_i^{Ag-110m}}{A_{calc}^{Ag-110m}} \times \left( \frac{A_i^{Cs-137}}{\sum_{j=1}^n \frac{1}{n} A_j^{Cs-137}} \right)$$

Dimana:  $A_i^{Ag-110m}$  adalah peluruhan-dikoreksi diukur aktivitas  $^{110m}\text{Ag}$  partikel  $i$ ,  $A_{calc}^{Ag-110m}$  adalah rata-rata aktivitas  $^{110m}\text{Ag}$  untuk partikel tunggal dihitung,  $A_i^{Cs-137}$  adalah peluruhan-dikoreksi diukur aktivitas diukur  $^{137}\text{Cs}$  untuk partikel  $i$ , dan  $n$  adalah jumlah total partikel dihitung.

### d.3. Mikroanalisis

Mikroanalisis bahan bakar dilakukan karakterisasi seluruh *compacts* dan partikel individu. *Compacts* bahan bakar dipotong secara aksial dan *longitudinal* dan dipoles lintas-bagian diperiksa menggunakan mikroskop optik.

Partikel terekspose di tampang lintang *compact* diperiksa dan dikarakterisasi berdasarkan pada keadaan kernel dan pelapisan selama iradiasi. Selain itu, partikel individu yang diambil dari berbagai *compacts* bahan bakar dikonsolidasi yang dipasang di epoxy, *digrinding* dan dipoles untuk dilakukan pemeriksaan tampang lintang. Beberapa partikel disiapkan dengan mengikatnya dengan epoxy, *digrinding* dan dipoles untuk mengekspos tampang lintang partikel pada beberapa posisi partikel. Hal ini dilakukan untuk lebih memahami morfologi kernel dan lapisan teriradiasi dalam tiga dimensi, dua dimensi penampang sering membatasi diperolehnya karakterisasi lengkap fitur penting. Mikroanalisis tampang lintang partikel diamati dengan mikroskop optik, pengamatan lebih rinci dilakukan dengan menggunakan *Scanning Electron Microscop* (SEM) yang dilengkapi dengan analisis unsur dengan *Energy Dispersif Spectroscopy* (EDS) dan *Wave Length Dispersif Spectroscopy* (WDS) untuk memeriksa strukturmikro lapisan dan distribusi hasil belah dan aktinida dalam bagian lapisan. Bersamaan dengan ini, partikel-partikel yang dipilih diperiksa dengan teknik yang lebih maju untuk lebih mengeksplorasi *microstructure coating* (terutama lapisan SiC) dan menyelidiki migrasi produk fisi dan aktinida dalam lapisan dalam rangka untuk lebih memahami perilaku transportasi. Sebuah sinar ion terfokus (FIB) digunakan untuk mempersiapkan spesimen kecil dari biji dan lapisan *coating* untuk analisis dengan mikroskop elektron transmisi (TEM) dan Transmisi Pemindaian Mikroskop Elektron (STEM). Analisis unsur dilakukan pada spesimen dipilih menggunakan TEM-EDS dan spektroskopi elektron kehilangan energi (EELS) untuk membantu mengidentifikasi elemen tertentu di lapisan coating, sering pada skala nanometer. Akhirnya, pekerjaan telah dimulai menggunakan *Atom Probe Tomography* (APT) untuk memperluas database yang ada dengan informasi sampai ke tingkat atom.

#### **d.5. Hot Gas Chlorination**

Metode *hot gas chlorination* dilakukan dengan melewati gas  $\text{Cl}_2$  melalui elemen bakar, dan uap uranium klorida yang lepas dari bahan bakar yang rusak disimpan pada kolom penyerap, analisis kuantitatif uranium total dari residu tercuci selanjutnya memungkinkan penentuan jumlah kerusakan dan kegagalan partikel dilapisi.

#### **d.6. Partikel Cracking**

Tergantung pada lingkup program PIE, hanya sejumlah partikel yang dipilih digunakan untuk pemeriksaan partikel tunggal. Biasanya partikel ini dipilih dengan hati-hati baik melalui pemeriksaan optik atau dengan spektrometri gamma. Partikel dapat dipisahkan secara mekanis dalam kernel dan pelapis untuk persediaan dan pengukuran pelepasan hasil belah berikutnya. Hal ini penting untuk sampel partikel dari beberapa

posisi dalam elemen bakar bola untuk menghilangkan bias karena efek posisi dalam diameter elemen 60 mm. Persediaan hasil belah dalam partikel menunjukkan minimum, sementara nilai pelepasan hasil belah menunjukkan maksimal, di tengah elemen. Bahan bakar kernel ditimbang pada suatu timbangan mikro dan kandungan hasil belah diukur dengan spektrometer gamma resolusi tinggi. Untuk isotop  $^{110m}\text{Ag}$  dan  $^{90}\text{Sr}$  diperlukan pemisahan kimia.

Data pelepasan kernel diperoleh dengan pengukuran persediaan terpisah pada kernel dan pelapis. Dengan model difusi yang ada dan pengetahuan yang baik dari sejarah iradiasi, koefisien difusi dapat diturunkan untuk penguapan hasil belah dalam bahan bakar. Dalam kasus di mana rilis externa<sup>1</sup> signifikan telah terjadi, nilai-nilai dihitung untuk persediaan produk fisi harus diperhitungkan.

#### **d.7. Analisis Gas mikro**

Gas hasil belah, seperti Xe dan Kr, dan gas reaktif, seperti CO yang menumpuk selama iradiasi dengan volume yang bebas sehingga berkontribusi terhadap penumpukan tekanan gas di internal partikel. Jumlah gas meningkat sesuai dengan kondisi operasi iradiasi seperti waktu, suhu, dan derajat bakar. Prosedur dan peralatan telah dikembangkan secara akurat untuk mengukur jumlah gas hasil belah dan gas yang reaktif dan berada dalam suatu partikel dilapisi teriradiasi. Partikel tunggal yang dipanaskan sampai suhu terpilih (hingga 2000 °C) dalam tungku *micro resistance* di bawah vakum tinggi. Setelah mempertahankan suhu ini untuk waktu yang cukup bagi gas reaktif untuk menyeimbangkan, partikel hancur oleh piston pneumatik. Gas-gas yang dibebaskan diarahkan ke spektrometer massa *quadrupole*. batas deteksi untuk pengukuran rutin sekitar  $1,0 \text{ E-7 cm}^3$  (STP) untuk krypton dan xenon, dan  $2.0 \text{ E-5 CM}^3$  untuk CO.

Hasil pengukuran dapat dibandingkan dengan nilai-nilai dari perhitungan berdasarkan pengukuran hasil belah yang dipertahankan dalam partikel seperti  $^{137}\text{Cs}$  dan  $^{106}\text{Ru}$ . Hasil ini sama dengan data masing-masing hasil belah memungkinkan untuk menghitung jumlah pembelahan, dan kemudian, kandungan xenon, krypton, dan CO yang dihasilkan. Karena derajat bakar tinggi bahan bakar HTR, pelepasan gas mulia dari bahan bakar kernel antara 10 dan 100% dan sangat kuat derajat bakar akan berpengaruh pada temperatur. Akibatnya pelapis partikel dirancang mampu untuk menahan tekanan internal yang dihasilkan dari pelepasan 100% dari kernel.

#### d.8. Penentuan Derajat Bakar

Sejumlah partikel berlapis dilebur menjadi satu dengan NaOH dan NaO. Lelehan yang terbentuk dilarutkan dalam asam nitrat dan H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>. Derajat bakar dapat ditentukan dengan dua teknik yaitu: Pertama didasarkan pada pengukuran <sup>137</sup>Cs dalam larutan, metode lain yaitu penentuan <sup>148</sup>Nd yaitu dengan metode pengenceran isotop.

Terkadang penentuan derajat bakar perlu dilengkapi penentuan dengan spektrometri gamma melalui <sup>137</sup>Cs dengan pengukuran spektrometri massa (misalnya ketika cesium dilepaskan dari partikel dilapis). Beberapa partikel dipilih melalui pengukuran gamma, retak, dan dipisahkan antara kernel dan coating.

Kernel ditimbang dan (dalam kasus UO<sub>2</sub>) dilarutkan dalam campuran nitrat dan asam klorida. Larutan dibagi menjadi beberapa *aliquot* untuk analisis dengan metode pengenceran isotop. Tergantung pada tujuan dari pemeriksaan, *spike* seperti <sup>150</sup>Nd, <sup>233</sup>U, <sup>242</sup>Pu atau <sup>244</sup>Pu dapat ditambahkan ke dalam larutan. Setelah pemisahan kimia uranium, plutonium dan neodymium dengan ekstraksi pelarut dan tambahan langkah pemurnian untuk neodymium dengan kromatografi pertukaran ion, spektrometri massa sampel dilakukan. Metode ini menghasilkan kelimpahan isotop untuk neodymium, uranium dan plutonium serta entitas mutlak dari unsur-unsur dalam larutan dengan presisi dari sekitar 1% untuk neodymium dan sekitar 0,1% untuk uranium dan plutonium.

Jumlah total pembelahan (derajat bakar) ditentukan dalam pendekatan pertama yang baik melalui <sup>148</sup>Nd yang menunjukkan hasil fisi yang hampir sama untuk <sup>235</sup>U dan <sup>239</sup>Pu. Menggunakan rasio <sup>150</sup>Nd/<sup>148</sup>Nd sebagai U/Pu-fisi memantau presisi hasil. Berdasarkan total derajat bakar dan parameter tambahan seperti <sup>238</sup>U/<sup>235</sup>U atau <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu dapat diturunkan untuk memperoleh rasio fraksi pembelahan uranium dan plutonium. Nilai fraksi bakar dapat dievaluasi dengan metode perhitungan berulang.

Diterapkan analisis uranium bebas pada partikel luar, pengetahuan tentang kelimpahan isotop dapat digunakan untuk membedakan uranium dalam bahan bakar atau kontaminasi uranium dilakukan pengamatan selama pembuatan, selama perakitan eksperimen atau pembongkaran, atau selama prosedur penanganan dalam sel panas.

#### KESIMPULAN

Dari keadaan tersebut di atas menunjukkan bahwa uji pascairadiasi bahan bakar kernel dan elemen bakar berbentuk bola tidak hanya hasil pengamatan dari pengujian bahan bakar dan elemen bakar tersebut akan tetapi perlu dikaitkan dengan pengamatan terhadap *compact* dan kapsul. Oleh sebab itu perencanaan uji iradiasi dan uji pascairadiasi bahan bakar ini merupakan satu perencanaan yang tidak dapat dipisahkan.

**DAFTAR PUSTAKA**

1. Allen G. Croff, 2008, *Reactors and Fuels Fuel Cycle Separations*, Short Course: Introduction to Nuclear Chemistry and Fuel Cycle Separations, Vanderbilt University.
2. F.J.Homan, M.J. Kania, O.M. Stansfield, 1982, *Post Irradiation Characterization and Performance Assessment of Coated Particle Fuels*, BNES Conference on Gas-Cooled Reactors Today, Bristol.
3. Heinz Nabielek, Gerhard Reitsamer, Michael J. Kania, *Post Irradiation Examination of HTR Fuel*, Conf-860603--6 DE86 011071.
4. G. Pott, H. Nabielek, 09.July 01, *Fuel Pebbles Operation Experiences Irradiation and Post-Irradiation Examination*, Forschungszentrum Jitlich-GmbH.
5. Paul A. Demkowicz, John D. Hunn, Scott, A. Ploger, Robert N. Morris, Charles A. Baldwin, Jason M. Harp, Philip L. Winston, Tyler J. Gerczak, Isabella J. van Rooyen, Fred C. Montgomery, Chinthaka M. Silva, October 2014, *Irradiation Performance of AGR-1 High Temperature Reactor Fuel*, Proceedings of the HTR, Weihai, China, NL/CON-14-31531.
6. J.D. Hunn, T.W. Savage, J.S. Kehn, *AGR-1 Fuel Compact Pre-Irradiation Characterization*, Summary Report, ORNL/TM-2012/295, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, TN, 2012.
7. J.M. Harp, P.A. Demkowicz, S.A. Ploger, *Post Irradiation Examination And Fission Product Inventory Analysis Of AGR-1 Irradiation Capsules*, Paper HTR2012-3-006, Proc. HTR 2012, Tokyo, Japan, October 28 – November 1, 2012.
8. P.A. Demkowicz, J.M. Harp, P.L. Winston, S.A. Ploger, 2013, *Analysis of Fission Products on the AGR-1 Capsule Components*, INL/EXT-13-28483, Idaho National Laboratory, 2013.
9. J. M. Harp, 2013, *Analysis of Individual Compact Fission Product Inventory and Burnup for the AGR-1 TRISO Experiment Using Gamma Spectrometry*, ECAR-1682, Revision 1, Idaho National Laboratory.
10. J.M. Harp, P.A. Demkowicz, P.L. Winston, J.W. Sterbentz, 2013, *An Analysis Of Nuclear Fuel Burnup In The AGR-1 TRISO Fuel Experiment Using Gamma Spectrometry, Mass Spectrometry, And Computational Simulation Techniques*, Nuclear Engineering and Design, Submitted for publication.
11. G. Hawkes, 2012, *AGR-1 Daily As-run Thermal Analyses*, ECAR-968 Revision 3, Idaho National Laboratory.
12. C. A. Baldwin, J.D. Hunn, R.N. Morris, F.C. Montgomery, C.M. Silva, P.A. Demkowicz, 2014, *First Elevated-Temperature Performance Testing Of Coated*

- Particle Fuel Compacts From The AGR-1 Irradiation Experiment*, Nuclear Engineering and Design, VOL. 271, p.131.
13. P.A. Demkowicz, J.D. Hunn, R.N. Morris, J.M. Morris, C.A. Baldwin, 2010, *Advanced Irradiated Microsphere Gamma Analyzer Design*, Bench Testing, and Installation, ORNL/TM-2010/181, Oak Ridge National Laboratory.
  14. S.A. Ploger, P.A. Demkowicz, J.D. Hunn, J.S. Kehn, 2014, *Microscopic Analysis of Irradiated AGR-1 Coated Particle Fuel Compacts*, Nuclear Engineering and Design, v271, p.221.
  15. J. de Bueger, H. Rottger, Th. Schoots, 1977, *Nuclear Science And Technology Post-Irradiation Examination Of A 1300°C-HTR Fuel Experiment*, Project J 96.M3, Commission of The European Communities.