

PREPARASI KERNEL CeO_2 -STABILIZED ZrO_2 TERSINTER SEBAGAI MATERIAL ANALOG KERNEL UO_2

Sarjono, Gagad Rahmadi, Erilia Yusnitha, Sukarsono
Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir

ABSTRAK

Telah dilakukan penelitian fabrikasi kernel zirkonia (ZrO_2) yang distabilkan oleh ceria (CeO_2) dengan variasi konsentrasi Zr dalam larutan umpan. Penelitian ini bertujuan untuk mendapatkan kernel zirkonia tersinter dengan diameter yang memenuhi persyaratan spesifikasi kernel untuk litbang pelapisan TRISO, tanpa retak dan memiliki fasa tunggal yang stabil di rentang suhu proses pelapisan TRISO. Preparasi sol dalam fabrikasi kernel zirkonia yang distabilkan oleh ceria menggunakan metode presipitasi homogen menggunakan reagen presipitasi urea. Homogenitas kernel hasil fabrikasi dapat dicapai melalui kontrol parameter pada proses pembentukan droplet seperti laju alir, frekuensi getaran jarum tetes dan viskositas umpan. Hasil fabrikasi menunjukkan bahwa kernel dengan diameter sekitar 0,5 mm diperoleh dari umpan dengan konsentrasi Zr 0.8499 mol/L untuk penggunaan jarum penetes dengan diameter dalam 1 mm. Umpan dengan komposisi rasio mol Ce/Zr seragam untuk masing-masing variasi konsentrasi Zr, yaitu mol Ce/Zr 12%, memberikan hasil larutan padat cerium zirkonium dioksida dengan fasa tunggal struktur kristal tetragonal.

Kata kunci: *Ce-stabilized Zirconia*, analog, gelas eksternal, bahan bakar, RDE

PENDAHULUAN

Salah satu misi BATAN yang tertuang dalam dalam Renstra BATAN tahun 2015-2019 adalah unggul di kawasan regional serta bersama-sama institusi pemerintah lainnya dalam menyejahterakan masyarakat dengan didasari peraturan perundang-undangan yang berlaku. Pada pelaksanaan perwujudan misi ini, BATAN mempertimbangkan pembangunan dan pengoperasian Reaktor Daya Eksperimental (RDE), yang dikategorikan sebagai Reaktor Daya Non Komersial (RDNK), dan menurut rencana akan dibangun di Kawasan Puspiptek Serpong, Tangerang Selatan, Banten^[1].

Jenis teknologi reaktor yang akan dibangun adalah reaktor temperatur tinggi berpendingin gas (*High Temperature Gas Cooled Reactor*, HTGR). Reaktor HTGR adalah jenis reaktor nuklir generasi ke-4. Reaktor Daya Eksperimental yang akan dibangun memiliki spesifikasi ukuran daya 10 MWth (setara dengan keluaran daya listrik sekitar 3 MWe)^[2]. Desain RDE mengacu pada reaktor HTGR berdaya kecil (menurut definisi klasifikasi IAEA yaitu reaktor maju dengan kapasitas di bawah 300 MW(e)^[3]) yang telah beroperasi^[4].

Sebagaimana tertuang dalam Cetak Biru Pembangunan Reaktor Daya Eksperimental (RDE), bahan bakar untuk pengoperasian RDE secara jangka panjang akan menggunakan bahan bakar produksi domestik. Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir, sebagai salah satu unit kerja di BATAN, mempunyai tugas melaksanakan pelaksanaan

pengembangan teknologi fabrikasi bahan bakar^[5] termasuk pengembangan teknologi bahan bakar RDE. Penguasaan teknologi fabrikasi bahan bakar nuklir membutuhkan, antara lain, penguasaan/pemahaman materi proses, proses fabrikasi dan peralatan fabrikasi bahan bakar RDE dan ini dapat diperoleh melalui eksperimen.

Menurut dokumen *preliminary engineering design* RDE, disain elemen bahan bakar RDE adalah *pebble* dengan diameter 6 cm yang berisi kernel UO_2 diameter 0,5 cm yang terlapis oleh lapisan-lapisan prolitik karbon dan silikon karbida, dari lapisan terdalam ke terluar berturut-turut 1) lapisan karbon pirolitik berporositas tinggi, 2) lapisan karbon pirolitik berdensitas tinggi, 3) lapisan silikon karbida, dan 4) lapisan karbon pirolitik densitas tinggi. Partikel-partikel terlapis ini secara merata terdistribusi dalam matriks karbon (grafit alam dan electro-graphite) dengan ruang bebas partikel terlapis di bagian terluar^[6].

Untuk memperoleh kernel bahan bakar sferis dengan densitas tinggi, telah dikembangkan proses basah yang dikenal dengan proses sol-gel. Pada proses sol-gel, larutan koloid yang mengandung material bahan bakar, disebut larutan "sol", diteteskan atau dipancarkan ke dalam larutan pemicu proses gelas. Larutan koloid ini mengandung partikel oksida dari material bahan bakar dalam bentuk kristalit yang sangat kecil ($\sim 50\text{\AA}$). Distribusi partikel halus dalam koloid mampu membentuk oksida dengan densitas mendekati densitas teoritis pada sinterting suhu tinggi ($\geq 1200^\circ\text{C}$) dengan atmosfer reduktif tanpa memberlakukan tekanan. Metode gelas internal dan eksternal dapat diterapkan untuk mengkonversi sol menjadi gel yang stabil. Kernel berdensitas tinggi diperoleh setelah hasil gel sferis dikenakan pencucian, pengeringan, kalsinasi dan sintering^[7].

Adanya resiko paparan radiasi dan kompleksitas dalam penanganan bahan uranium karena sifatnya yang radioaktif, pada tahap permulaan riset bahan bakar nuklir akan lebih leluasa jika menggunakan bahan pengganti uranium yang tidak radioaktif. Bahan pengganti ini sering disebut juga bahan analog. Pemilihan bahan analog biasanya didasarkan pada kemiripan sifat-sifat termal, mekanik dan struktur kristal dengan bahan UO_2 . Pemilihan bahan pengganti juga harus mempertimbangkan kemudahan dalam metode sintesisnya^[8, 9]. Penggunaan bahan pengganti ini juga pada akhirnya akan mengurangi biaya pengelolaan limbah proses fabrikasi^[10] dan memberi keleluasaan dalam penggunaan peralatan karakterisasi. Bahan yang umum digunakan sebagai bahan pengganti uranium biasanya cerium atau zirkonium^[11].

Selain untuk menghindari kompleksitas penanganan bahan radioaktif, penelitian dan pengembangan fabrikasi kernel bahan bakar HTGR penggunaan bahan pengganti (analog) dapat juga dimaksudkan untuk tujuan-tujuan lain, misalnya evaluasi suatu metodologi proses fabrikasi^[12, 13], pengujian karakteristik lapisan dari hasil suatu proses pelapisan^[14, 15] dan uji panas partikel TRISO^[16].

Pada proses pelapisan TRISO (yaitu pelapisan *buffer*, *Inner PyC*, SiC dan *Outer PyC*), misalnya, akurasi dan uniformitas hasil pelapisan merupakan dua persyaratan yang krusial. Untuk mempelajari pengaruh perbedaan parameter proses deposisi pada karakteristik hasil pelapisan biasanya lebih disukai penggunaan bahan pengganti yang tidak radioaktif sebagai bahan kernel^[15].

Bahan analog cerium dan zirkonium merupakan bahan yang paling banyak digunakan pada riset dan pengembangan bahan bakar HTGR. Fabrikasi kernel baik cerium dioksida (CeO_2) maupun zirkonium dioksida (ZrO_2) sebagai bahan analog UO_2 telah dieksperimenkan oleh negara-negara seperti China, USA, Jepang, Jerman dan Korea pada program riset dan pengembangan bahan bakar HTGR di negara-negara tersebut. Publikasi tentang metodologi fabrikasi kernel CeO_2 , khususnya, hanya ditemukan untuk jalur proses gelas internal^[17-19], sedangkan metodologi fabrikasi kernel ZrO_2 telah diekperimenkan baik melalui metode gelas internal^[20-23] maupun gelas eksternal^[23-28].

Pada penggunaan zirkonium dioksida sebagai bahan analog UO_2 sesuai dengan tujuan dari penelitian ini, yaitu penggunaan kernel bahan analog untuk penelitian dan pengembangan proses pelapisan TRISO, perlu dilakukan penambahan bahan doping untuk menyetabilkan fasa zirkonium dioksida pada suhu tinggi mengingat proses pelapisan TRISO berjalan pada rentang suhu $1250^\circ\text{C} - 1500^\circ\text{C}$ ^[29, 30].

Penyetabilan zirkonium dioksida diperlukan mengingat ada 3 bentuk kristalin (fasa) zirkonium pada beberapa level temperatur yaitu: kubik (c) (dari 2680°C sampai 2370°C); tetragonal (t) (dari 2370°C sampai 1170°C); monoklinik (m) (dari 1170°C sampai suhu kamar). Fasa monoklinik (m) merupakan fasa zirkonium yang lebih stabil. Pencampuran zirkonium dioksida dengan jenis oksida yang memiliki fasa kubik seperti MgO, CaO, Y_2O_3 dan CeO_2 dapat menunda terjadinya fasa transformasi, misalnya dari monoklinik ke tetragonal, sehingga kristal zirkonia akan tetap berada pada fasa tetragonal pada suhu kamar^[31].

Pada penelitian ini dilakukan fabrikasi kernel analog ZrO_2 yang distabilkan dengan CeO_2 atau disebut juga *Ce-stabilized ZrO₂* yang memenuhi persyaratan spesifikasi untuk proses fabrikasi bahan bakar selanjutnya yaitu pelapisan TRISO yang diawali dengan pelapisan pelapisan *buffer* (karbon pirolitik berdensitas rendah). Sasaran dari penelitian ini adalah produk kernel analog *Ce-stabilized ZrO₂* yang memenuhi persyaratan spesifikasi kernel bahan bakar RDE yang didasarkan pada spesifikasi bahan bakar reaktor HTR-Modul design Jerman, yaitu diameter 5 mm dan sferisitas ($D_{\text{max}}/D_{\text{min}}$) $\sim 1,07$ ^[32, 33]. Spesifikasi kernel bahan bakar RDE desain Jerman diperlihatkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Spesifikasi kernel bahan bakar 170 MWth MODUL dan karakteristik hasil fabrikasi kernel LEU Jerman^[32, 33].

	SPECIFICATION	AS-MANUFACTURED
<i>FUEL KERNEL</i>		
Material	UO ₂	UO ₂
<i>Enrichment</i>	8.0±0.1 wt%	
Diameter	480-520 µm	500±11 µm
<i>Sphericity</i>	≥10.4 g/cm ³	<1.07

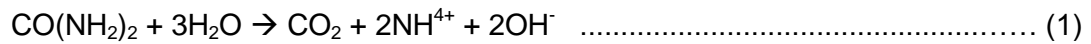
Pada proses pelapisan TRISO, kondisi proses fluidisasi bergantung pada berat total dan diameter partikel (kernel)^[34] dan oleh karenanya agar kondisi-kondisi proses pelapisan menggunakan bahan analog dapat diaplikasikan pada sistem proses pelapisan kernel UO₂ sesungguhnya maka syarat yang harus dipenuhi adalah bahwa diameter kernel bahan analog dan diameter kernel UO₂ sesungguhnya memiliki kemiripan (kurang lebih sama).

Pada sistem gelas eksternal, kontrol diameter dapat dilakukan melalui pengaturan konsentrasi metal dalam umpan (*broth*), kecepatan aliran umpan, frekuensi vibrasi, diameter jarum penetes (*nozzle*) dan jumlah penggunaan bahan polimer aditif. Sistem peralatan gelas eksternal yang dimiliki PTBBN BATAN hanya memiliki ketersediaan satu jenis jarum penetes dengan diameter internal 1 mm. Parameter-parameter seperti kecepatan aliran umpan, frekuensi vibrasi, diameter jarum penetes akan saling berpengaruh dalam pembentukan droplet yang stabil, yaitu droplet yang tidak mengalami perubahan selama berlangsungnya *batch* proses gelas. Penggunaan bahan aditif polimer diperlukan untuk mendapatkan parameter viskositas yang memadai untuk mendapatkan kestabilan droplet dengan parameter kecepatan aliran umpan, frekuensi vibrasi, diameter jarum penetes yang ditetapkan melalui eksperimen pendahuluan. Oleh karenanya, pada penelitian ini parameter yang digunakan untuk mengontrol diameter kernel adalah konsentrasi metal dalam umpan (*broth*).

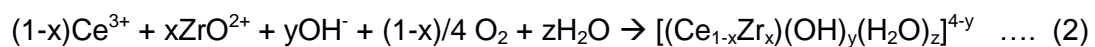
Bagian terpenting dari metode sintesis ZrO₂ berdensitas tinggi secara sol-gel adalah preparasi larutan koloid sol yang mengandung partikel ZrO₂ (dan CeO₂ sebagai penyetabil) nanodispersi. Preparasi larutan koloid nano dispersi oksida logam dapat dilakukan di antaranya dengan cara presipitasi nano dispersi terkontrol. Preparasi partikel nano dispersi dapat dipreparasi dengan pengontrolan kinetika presipitasi, salah satunya dengan kontrol pelepasan anion dari molekul organik. Persyaratan agar terjadi homogenitas larutan koloid harus terpenuhi yaitu bahwa presipitasi berlangsung dengan lambat dan kemudahan dalam pengontrolan pH. Dari sudut pandang ini urea ((NH₂)₂CO) merupakan reagen molekul organik yang ideal^[35]. Urea, sebagai reagen presipitasi, terdekomposisi secara perlahan oleh pemanasan dan menghasilkan anion CO₃²⁻ dan OH⁻ secara serentak diikuti dengan proses presipitasi homogen di keseluruhan larutan. Laju

dekomposisi urea pada pemanasan dalam media air tergolong lambat dengan konstanta laju reaksi $k = 3.3 \times 10^{-6}$ and $1.1 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ pada masing-masing temperatur 80°C and 90°C . Misalnya, jumlah urea terdekomposisi pada konsentrasi antara 6×10^{-3} sampai 1.20 mol/L dan dipanaskan pada suhu 90°C selama 1 jam hanya 4%^[36]. Karena laju dekomposisi urea yang lambat, ligan hasil dekomposisi dapat dikontrol laju pembentukannya melalui pengaturan suhu, dan pada eksperimen ini dekomposisi urea dilakukan pada suhu 85°C .

Reaksi kimia pada dekomposisi urea dalam media air adalah:



Ion hidroksil hasil dekomposisi urea selanjutnya bereaksi dengan kation Ce^{3+} dan ZrO^{2+} menghasilkan hidroksida Ce,Zr terhidrasi $[(\text{Ce}_{1-x}\text{Zr}_x)(\text{OH})_y(\text{H}_2\text{O})_z]^{4-y}$, di mana $y+z$ adalah bilangan koordinasi kation, mengikuti reaksi^[37]:



Pada perlakuan kalsinasi produk hidroksida Ce,Zr terhidrasi ini akan terkonversi menjadi Ce,Zr oksida ($\text{Ce}_{1-x}\text{Zr}_x\text{O}_2$):

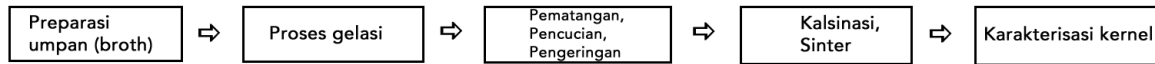


Permasalahan yang sering muncul pada fabrikasi kernel secara gelasi adalah resiko terjadinya retak terutama selama proses perlakuan panas, yaitu proses pengeringan dan kalsinasi, di mana pada proses tersebut terjadi eliminasi senyawa-senyawa non oksida seperti bahan aditif polimer yang berasal dari PVA, THFA dan urea yang digunakan dalam preparasi larutan umpan dan produk samping amonium nitrat yang terbentuk dari reaksi nitrat dalam larutan umpan dan amonia yang digunakan pada proses gelasi.

Pada penelitian ini formulasi preparasi umpan dan kondisi proses gelasi mengacu pada hasil-hasil penelitian yang telah dilakukan di PTBBN BATAN^[38, 39] dan kondisi perlakuan panas yang mengacu pada hasil-hasil analisis TG-DTA oleh referensi [24]. Dengan demikian diharapkan akan diperoleh produk kernel tersinter *CeO2-stabilized zirconia* dengan diameter sesuai spesifikasi melalui preparasi variasi konsentrasi dan dihasilkan produk kernel yang tidak retak.

METODOLOGI DAN PROSEDUR EKSPERIMEN

Penelitian ini dilaksanakan dengan metode eksperimen laboratorium yang meliputi penyiapan larutan umpan, pembentukan *droplet*, *Aging-washing-drying*, kalsinasi-sintering (diagram alir ditunjukkan pada Gambar 1) dengan variasi konsentrasi Zr dalam larutan umpan dan tanpa variasi penggunaan *nozzle* pembentuk *droplet*. Hasil kernel tersinter dikarakterisasi untuk parameter-parameter diameter dan sferisitas kernel, fasa larutan padat $\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2$, dan pengamatan visual untuk mengetahui ada tidaknya keretakan.



Gambar 1 Diagram alir proses fabrikasi kernel *Ce-stabilized ZrO₂* tersinter

Tahap-tahap kegiatan eksperimen pada penelitian ini meliputi:

1. Penyiapan larutan umpan dengan variasi konsentrasi Zr dalam larutan umpan (*broth*)
2. Pembentukan *droplet* dengan kontrol parameter seperti laju alir umpan, frekuensi getaran *nozzle*, jarak area udara, inspeksi visual hasil *droplet* untuk pemeriksaan homogenitas, waktu pematangan (*aging*)
3. *Heat treatment*, yaitu perlakuan panas pada proses pengeringan, kalsinasi dan sintering
4. Karakterisasi produk tersinter meliputi pengukuran diameter kernel tersinter, sferisitas kernel tersinter, pemeriksaan dengan mikroskop optik pemeriksaan keretakan permukaan, uji XRD untuk menentukan fasa *Ce-stabilized ZrO₂* tersinter

Preparasi Umpan (*Broth*) dan Pembentukan Droplet

Sejumlah tertentu $ZrO(NO_3)_2 \cdot 2H_2O$ dan $Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ dilarutkan dalam air dengan perbandingan mol Ce/Zr 12%. Larutan campuran $ZrO(NO_3)_2 \cdot 2H_2O$ dan $Ce(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ dipanaskan pada suhu 85°C selama 1 jam dengan penambahan urea secara perlahan. Perbandingan mol urea yang ditambahkan terhadap jumlah mol campuran Zr+Ce adalah sekitar 2,4. Hasil pemanasan dan penambahan urea adalah sol Zr+Ce hidroksida. Pada sol ditambahkan larutan PVA dan THFA untuk mengatur viskositas pada 40-60 mPa s (cp).

Untuk menghilangkan gelembung-gelembung kecil dan udara yang terlarut, larutan umpan harus disiapkan sehari sebelum proses pembentukan *droplet/casting* dan disimpan selama 1 malam dalam temperatur 30°C. Temperatur harus dijaga konstan dengan menggunakan thermostat.

Larutan umpan untuk proses pembentukan *droplet* diumpankan dari tangki umpan ke *vibrating nozzle* dengan udara tekan yang tetap melalui pipa kecil. Aliran laminar yang dihasilkan dari *vibrating nozzle* akan menghasilkan *droplet* yang seragam. Tegangan permukaan akan menyebabkan *droplet* dengan bentuk bulat pada udara atmosfer sebelum masuk dalam atmosfer ammonia untuk proses pre-solidifikasi. Dari hasil pre-solidifikasi partikel-partikel sferis akan ditampung pada tabung yang berisi ammonium hidroksida.

Pada penelitian ini dilakukan preparasi 4 variasi umpan (*broth*) dengan perbedaan konsentrasi Zr dalam *broth*, seperti disajikan pada Tabel 2.

Tabel 2. Variasi konsentrasi Zr dan Ce pada larutan broth dan parameter proses gelasi

No	Parameter	Sampel A	Sampel B	Sampel 1	Sampel 2
1	Ce	10.4375 gr	17.716 gr	12.5055 gr	14.5897 gr
2	Zr	53.425 gr	90.8672 gr	64.1415 gr	74.8318 gr
3	Urea	56.75 gr	56.75 gr	56.75 gr	56.75 gr
4	THFA	50 ml	50 ml	50 ml	50 ml
5	PVA @100 ml	8 wt%	8 wt%	8 wt%	8 wt%
6	Total PVA dalam <i>broth</i>	2 wt%	2 wt%	2 wt%	2 wt%
7	ABM	250 ml	250 ml	250 ml	250 ml
8	Total <i>Broth</i>	400 ml	400 ml	400 ml	400 ml
9	Viskositas	47.5 cP	43.1 cP	40.2 cP	41.6 cP
10	Kecepatan aliran alat	25.2 ml/min	30 ml/min	25.2 ml/min	30 ml/min
11	Konsentrasi Zr dalam <i>broth</i>	0.499 mol/L	0.8499 mol/L	0.599 mol/L	0.699 mol/L
12	pH <i>broth</i>	1.48	1.29	1.30	1.39
13	Densitas <i>broth</i>	1.1715 g/cm ³	1.1937 g/cm ³	1.1815 g/cm ³	1.1937 g/cm ³

Aging, Washing, Drying

Gel mikrosfir yang diperoleh dimatangkan (*aging*) dalam larutan amonia 3 mol/L selama 2 jam. Dalam proses ini, reaksi gelasi terus berlanjut sampai selesai ke pusat mikrosfir. Pencucian dilakukan dengan dengan IPA bertujuan untuk menghilangkan kandungan air pada kernel. Proses pencucian ini melalui 2 tahap dengan *recycled* IPA (komposisi air 80 – 150 g/l) dan 2 tahap pencucian dengan IPA murni (komposisi air \leq 1 g/l). Setiap tahap berlangsung selama 15 menit dalam keadaan temperatur kamar dan dengan *dripping time* 10 menit. Setelah pencucian tahap terakhir dengan IPA komposisi air pada IPA pencuci harus dianalisis. Jika komposisi air lebih tinggi dari 20 g/l maka perlu dilakukan lagi pencucian dengan IPA murni agar kandungan air sesuai yang diharapkan.

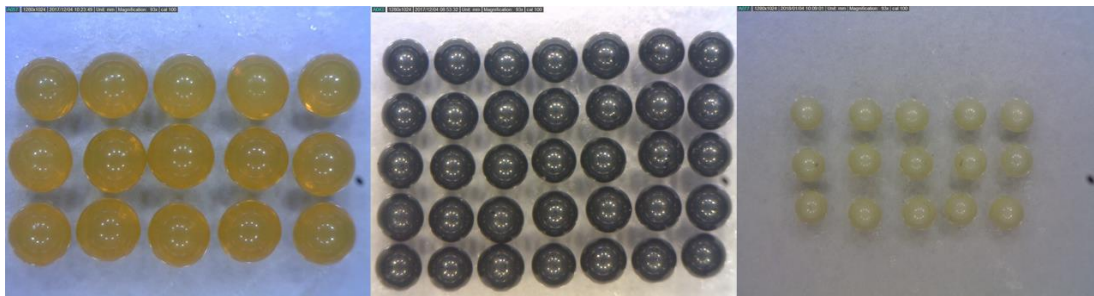
Kalsinasi dan Sintering

Kalsinasi berjalan pada suhu 200, 400 and 600°C dengan laju pemanasan 0,5°C/menit dan waktu tahan 4 jam di masing-masing temperatur dan selanjutnya didinginkan sampai suhu ruang. Sampel yang telah dikalsinasi dan didinginkan selanjutnya disinter dengan laju pemanasan 1°C/menit sampai suhu 1350°C dengan waktu tahan 4 jam. Pada kernel tersinter *Ce-stabilized* ZrO₂ dilakukan karakterisasi meliputi pengukuran diameter dan sferisitas, pemeriksaan dengan mikroskop optik untuk pemeriksaan keretakan permukaan, dan uji XRD untuk analisis fasa.

HASIL DAN PEMBAHASAN

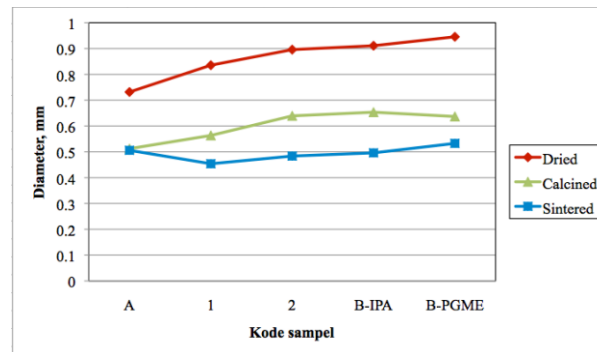
Pada fabrikasi kernel oksida metal, bahan-bahan non oksida seperti bahan polimer PVA dan THFA, urea, amonium nitrat dan sisa bahan pencuci yang tertinggal pada kernel perlu dieliminasi melalui perlakuan panas.

Kadar air di sekitar permukaan dihilangkan dengan pemanasan suhu rendah $\sim 60^{\circ}\text{C}$ selama 8-12 jam, sedangkan kadar air yang terserap pada bagian lebih dalam dihilangkan dengan pemanasan pada suhu lebih tinggi, yaitu pada suhu 90°C dan 120°C selama masing-masing 4 jam dengan pengaturan laju kenaikan suhu 1°C per menit. Sementara itu, eliminasi PVA, THVA, urea dan amonium nitrat berlangsung pada suhu kalsinasi yang lebih tinggi lagi. Pada penelitian ini profil temperatur yang dikenakan pada proses kalsinasi mengikuti hasil analisis TG-DTA yang telah dilakukan oleh referensi [24]. Akibat dari eliminasi bahan-bahan non oksida maupun proses densifikasi pada proses sintering, kernel akan mengalami pengerutan (Gambar 2), dan laju pengerutan ini harus dikontrol melalui pengaturan suhu, waktu tahan dan laju kenaikan suhu agar proses pengerutan tidak mengakibatkan keretakan kernel.

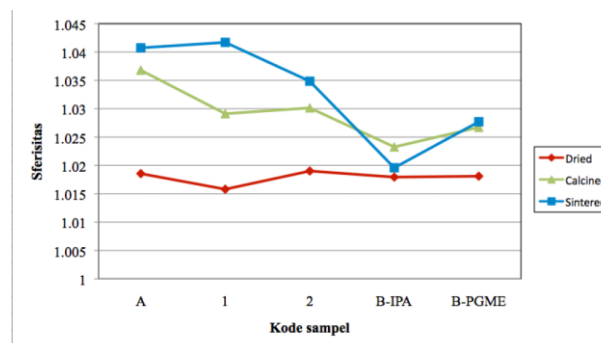


Gambar 2. Dari kiri ke kanan: kernel kering, kernel terkalsinasi, kernel tersinter

Pada produk kernel baik dari hasil pengeringan, kalsinasi maupun hasil sinter dilakukan karakterisasi pengukuran diameter dan sferisitas untuk mempelajari kecenderungan pengerutannya dan pengaruh konsentrasi metal terhadap diameter dan sferisitas kernel. Sebagaimana secara umum diketahui bahwa konsentrasi metal yang lebih tinggi memiliki kecenderungan pembentukan droplet dengan diameter dan distribusi sferisitas yang lebih tinggi pula. Spesifikasi yang ditetapkan pada desain acuan adalah nilai sferisitas maksimal 1,07, di mana nilai ini adalah rasio diameter tertinggi dan diameter terendah terukur dari beberapa titik lintang kernel. Data pengukuran diameter dan sferisitas dari sampel kode A, 1, 2, B dengan konsentrasi Zr tertinggi dalam broth sampel B: 0.8499 mol/L dan konsentrasi terendah sampel A: 0.499 mol/L untuk kernel kering, kernel terkalsinasi dan kernel tersinter disajikan pada grafik berikut:



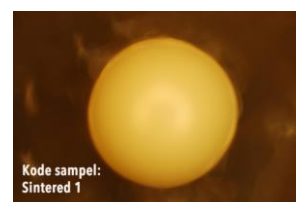
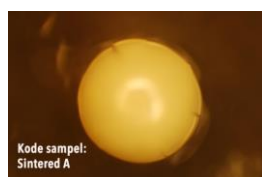
Gambar 3. Hasil pengukuran rerata diameter kernel CSZ kering, terkalsinasi dan tersinter



Gambar 4. Hasil pengukuran rerata sferisitas kernel CSZ kering, terkalsinasi dan tersinter

Dengan kecenderungan pembentukan droplet diameter lebih tinggi untuk konsentrasi metal yang lebih tinggi, data pengukuran diameter menunjukkan bahwa besaran diameter yang mendekati besaran diameter spesifikasi yang ditetapkan, yaitu 500 μm , adalah produk kernel dari umpan dengan Ce/Zr konsentrasi Zr dalam broth sampel B: 0.8499 mol/L dengan diameter rerata 0,496 mm (Gambar 3). Data pengukuran sferisitas (Gambar 4) menunjukkan kenaikan nilai sferisitas dengan kenaikan konsentrasi metal, namun sferisitas kernel dengan variasi konsentrasi metal dalam broth 0.499 mol/L, 0.8499 mol/L, 0.599 mol/L, dan 0.699 mol/L menunjukkan nilai yang masih di bawah 1,07. Dengan demikian variasi konsentrasi dan parameter proses preparasi kernel tersinter yang ditetapkan pada penelitian ini masih memberikan nilai yang memenuhi persyaratan spesifikasi pada aspek sferisitas.

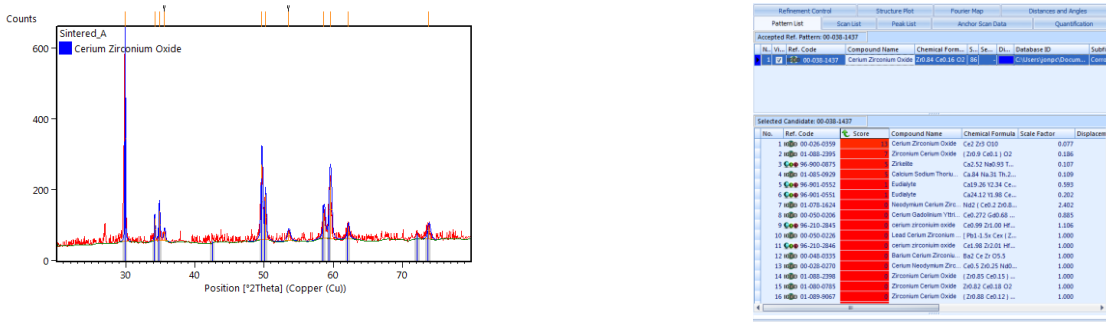
Pemeriksaan mikroskop optik untuk uji keretakan permukaan untuk masing-masing kernel tersinter disajikan sebagai berikut:



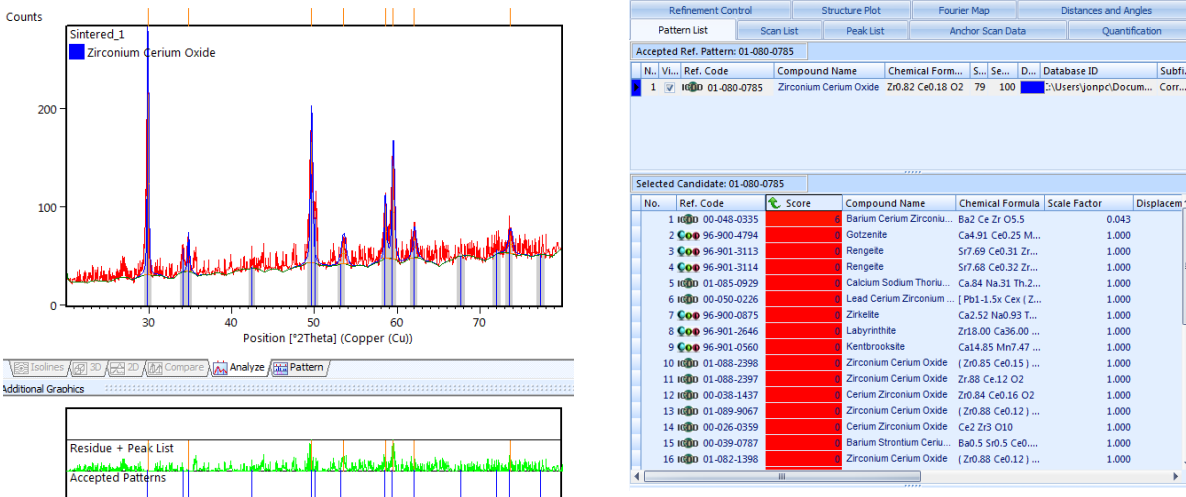


Gambar 5. Hasil pemeriksaan keretakan dengan mikroskop optik untuk sampel Sintered-A, Sintered-B, Sintered-1 dan Sintered-2

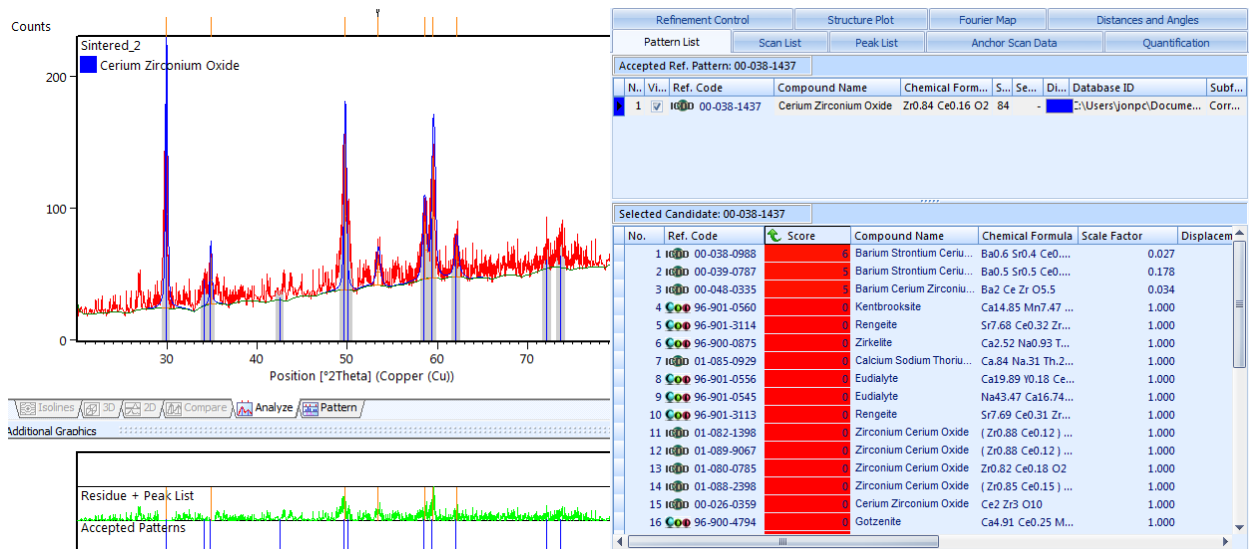
Secara umum, pengamatan visual permukaan kernel tersinter dari variasi konsentrasi metal lebih tinggi tidak menunjukkan cacat retak. Peluang terjadinya retak terlihat pada konsentrasi metal paling rendah (Gambar 5), yaitu pada kode sampel "Sampel-A". Pada konsentrasi metal rendah, eliminasi bahan-bahan non oksida selama proses perlakuan panas akan menyebabkan pengerutan kernel yang lebih ekstrim dan resiko terjadinya keretakan juga lebih tinggi.



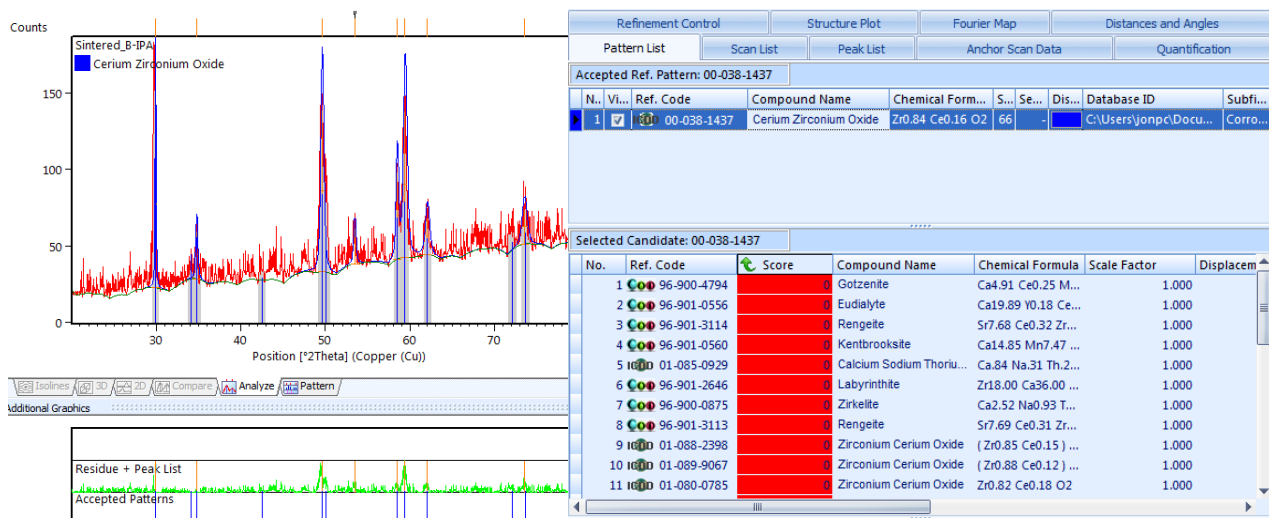
Gambar 6. Analisis penentuan fasa XRD Sampel Sintered-A



Gambar 7. Analisis penentuan fasa XRD Sampel Sintered-1



Gambar 8. Analisis penentuan fasa XRD Sampel Sintered-2



Gambar 9. Analisis penentuan fasa XRD Sampel Sintered-B

Hasil analisis penentuan fasa XRD (Gambar 6, Gambar 7, Gambar 8, dan Gambar 9) menunjukkan bahwa untuk semua variasi konsentrasi Zr memiliki fasa tunggal yang sama yaitu *Cerium Zirconium Oxide* dengan struktur kristal tetragonal yang bersesuaian dengan nomor kode database referensi 00-038-1437. Ini menunjukkan bahwa senyawa larutan padat $\text{CeO}_2\text{-ZrO}_2$ pada perbandingan komposisi Ce/Zr 12% memiliki fasa stabil tetragonal.

KESIMPULAN

Pada penelitian ini, kesimpulan yang dapat diambil antara lain:

1. Kernel tersinter ZrO_2 yang distabilkan oleh cerium dengan diameter mendekati atau sama dengan nilai diameter acuan spesifikasi, yaitu 0.5 mm, dapat difabrikasi secara gelas eksternal pada konsentrasi Zr dalam broth 0.8499 mol/L menggunakan jarum penetes dengan diameter dalam 1 mm
2. Kenaikan konsentrasi cenderung menghasilkan kernel tersinter dengan diameter yang lebih tinggi, dan kernel tersinter dari variasi konsentrasi Zr berkisar antara 0,499 mol/L sampai 0,8499 mol/L memiliki besaran sferisitas yang masih memenuhi persyaratan spesifikasi, yaitu lebih kecil 1,07.
3. Pengamatan secara visual menggunakan mikroskop optik menunjukkan bahwa konsentrasi metal yang rendah memiliki kecenderungan menghasilkan kernel yang retak akibat fenomena pengerutan yang lebih ekstrim. Pengujian keretakan masih perlu konfirmasi melalui pengamatan dengan alat yang lebih baik seperti SEM untuk memastikan tidak terjadi retak mikro.
4. Senyawa larutan padat CeO_2 - ZrO_2 pada perbandingan komposisi Ce/Zr 12% memiliki fasa tunggal tetragonal.

DAFTAR PUSTAKA

1. BATAN, *Cetak Biru Pembangunan Reaktor Daya Eksperimental (RDE) 2014 – 2020*. 2014, BATAN.
2. BATAN, *Spesifikasi Teknis Reaktor Daya Eksperimental*. 2014, BATAN: Tangerang Selatan.
3. IAEA, *Advances in Small Modular Reactor Technology Developments*. 2014, IAEA: Vienna, Austria.
4. BATAN, *Justifikasi Teknis Pembangunan Reaktor Daya Eksperimental*. 2014: Tangerang Selatan.
5. BATAN, *Perka BATAN Nomor 21 Tahun 2014 tentang Rincian Tugas Unit Kerja di BADAN TENAGA NUKLIR NASIONAL*. 2014, BATAN: Jakarta.
6. BATAN, *The Document of Preparation of Preliminary Engineering Design of the Experimental Power Reactor, General Design Features of the RDE*. 2015, BATAN: Jakarta.
7. IAEA, *High Temperature Gas Cooled. Reactor Fuels and Materials*. 2010, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY: Vienna.
8. Sonoda, T., et al., *Electronic excitation effects in CeO_2 under irradiations with high-energy ions of typical fission products*. *Nuclear Instruments and Methods in Physics*

- Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, 2006. **250**(1): p. 254-258.
9. Choi, K., et al., *Densification of nano-CeO₂ ceramics as nuclear oxide surrogate bspark plasma sintering*. Journal of Nuclear Materials, 2010. **404**(3): p. 210-216.
 10. Dunwoody, J.T., et al. *Optimization of sintering parameters for nitride transmutation fuels*. in *Ceramics in Nuclear and Alternative Energy Applications - 30th International Conference on Advanced Ceramics and Composites*. 2006. Cocoa Beach, FL, United States.
 11. Cacuci, D.G., *Handbook of Nuclear Engineering*. Vol. I, Nuclear Engineering Fundamentals. 2010, New York: Springer.
 12. Vasudevamurthy, G., A. Radecka, and C. Massey, *A High-Temperature, Short-Duration Method of Fabricating Surrogate Fuel Microkernels for Carbide-Based TRISO Nuclear Fuels*. Journal of Ceramic Science and Technology, 2015. **6**(1): p. 25-30
 13. Metzger, K.E., *Fabrication and Characterization of Surrogate Fuel Particles Using the Spark Erosion Method*, in *Nuclear Engineering*. 2013, University of South Carolina.
 14. Porter, I.E., et al., *Design and fabrication of an advanced TRISO fuel with ZrC coating*. Nuclear Engineering and Design, 2013. **259**: p. 180-186.
 15. Kashyap, Y.S., et al., *Application of X-ray phase-contrast imaging technique in the study of pyrocarbon-coated zirconia kernels*. NDT & E International, 2009. **42**(5): p.384-388.
 16. Cho, M.-S., et al., *Visco-elastic Analysis of PyC Coated Surrogate Fuel Particles Foran Irradiation Test*, in *Transactions of the Korean Nuclear Society Spring Meeting*. 2008: Gyeongju, Korea.
 17. Collins, J.L. and A. Chi, *Determination of Ideal Broth Formulations Needed to Prepare Hydrous Cerium Oxide Microspheres via the Internal Gelation Process*. 2008, U.S. Department of Energy (DOE) OAK RIDGE NATIONAL LABORATORY.
 18. Collins, J.L. and A. Chi, *Formulation and method for preparing gels comprising hydrous cerium oxide*. 2013, Google Patents.
 19. Katalenich, J.A., *Production of Monodisperse, Crack-Free Cerium Oxide Microspheres by Internal Gelation Sol-Gel Methods*, in *Nuclear Engineering and Radiological Sciences*. 2014, University of Michigan: University of Michigan.
 20. Benay, G., *Fabrication of zirconia based ceramics by internal gelation for conversion of trivalent actinides*. 2008, RWTH Aachen University Aachen, Germany.

21. Zhu, H.-I., Y.-I. Ma, and Y. Zhang, *Preparation and Characterization of ZrO₂ Microspheres by Internal Gelation Process*. Key Engineering Materials, 2007. **336-338**: p. 1121-1123.
22. Jolly, B.C., et al., *Fabrication and Characterization of Surrogate TRISO Particles Using 800 μ m ZrO₂ Kernels*. 2016, ; Oak Ridge National Lab. (ORNL), Oak Ridge, TN (United States). p. Medium: ED; Size: 31 p.
23. Wang, G., et al., *A comparative study of small-size ceria-zirconia microspheres fabricated by external and internal gelation*. Journal of Sol-Gel Science and Technology, 2016. **78**(3): p. 673–681.
24. Wang, G., et al., *Preparation of ceria-stabilized zirconia microspheres by external gelation: size control*. Journal of Sol-Gel Science and Technology, 2016. **78**(3): p. 514–522.
25. Wang, G.G., et al., *Preparation of Small Size Ceria Stabilized Zirconia Microspheres by External Gelation: Effect of Vibration Frequency*. Key Engineering Materials, 2016. **697**: p. 364-367.
26. Guogao, W., et al., *Precisely Controlling Preparation of Ceria-Stabilized Zirconia Microspheres of ~100 μ m by External Gelation*. International Journal of Applied Ceramic Technology, 2016. **13**(5): p. 831-837.
27. Walter, M., et al., *Structure of yttria stabilized zirconia beads produced by gel supported precipitation*. Journal of Materials Science, 2007. **42**(12): p. 4650-4658.
28. Haoa, S.C., et al., *Preparation of ZrO₂ Micro Beads by Sol-Gel Method*. Key Engineering Materials 2012. **512-515**: p. 269-274.
29. Kim, J.-G., et al., *Properties of Chemical Vapor Deposited ZrC coating layer for TRISO Coated Fuel Particle*. J. Korean Ceram. Soc, 2007. **44**(10): p. 580-0.
30. Kim, J.-G., et al., *A Study on the CVD Deposition for SiC-TRISO Coated Fuel Material Fabrication*. J. Korean Ceram. Soc, 2007. **44**(3): p. 169-0.
31. Khamverdi, Z. and Z. Moshiri, *Zirconia: An Up-to-date Literature Review*. Avicenna J Dent Res, 2012. **4**(1): p. 1-15.
32. Wolf, L., G. Ballensiefen, and W. Fröhling, *Fuel elements of the high temperature pebble bed reactor*. Nuclear Engineering and Design, 1975. **34**(1): p. 93-108.
33. Petti, D.A., et al., *Key Differences in the Fabrication, Irradiation and Safety Testing of U.S. and German TRISO-coated Particle Fuel and Their Implications on Fuel Performance*. 2002, Idaho National Engineering and Environmental Laboratory: Idaho.

34. Aihara, J., et al., *Effect of Heat Treatment on TEM Microstructures of Zirconium Carbide Coating Layer in Fuel Particle for Advanced High Temperature Gas Cooled Reactor*. MATERIALS TRANSACTIONS, 2009. **50**(11): p. 2631-2636.
35. Gravani, S., et al., *Growth and characterization of ceria thin films and Ce-doped γ -Al₂O₃ nanowires using sol-gel techniques*. Nanotechnology, 2010. **21**(46).
36. Matijević, E. and W.P. Hsu, *Preparation and properties of monodispersed colloidal particles of lanthanide compounds: I. Gadolinium, europium, terbium, samarium, and cerium(III)*. Journal of Colloid and Interface Science, 1987. **118**(2): p. 506-523.
37. Si, R., et al., *Urea-Based Hydrothermally Derived Homogeneous Nanostructured Ce_{1-x}Zr_xO₂ (x = 0–0.8) Solid Solutions: A Strong Correlation between Oxygen Storage Capacity and Lattice Strain*. The Journal of Physical Chemistry B, 2004. **108**(33): p. 12481-12488.
38. Susilowati, S.R., S. Riyanto, and D. Husnurrofiq, *Pembuatan Gel Ceria Stabilized Zirconia Metode Gelasi Eksternal*. Pengelolaan Instalasi Nuklir, 2017. **10**(19): p. 1-13.
39. Sukarsono, R., et al., *Effect of Sol Concentration, Aging and Drying Process on Cerium Stabilization Zirconium Gel Produced by External Gelation*. Journal of Physics: Conference Series, 2018. **962**(1): p. 012056.