

PROSES PELAPISAN KELONGSONG ZIRKALOI DENGAN *DC SPUTTERING* REAKTIF MENGUNAKAN TARGET TUNGGAL Zr DAN Ti

Etty Mutiara⁽¹⁾, Ikhwanul Aziz⁽²⁾, Yatno Dwi A.S.⁽¹⁾, Isfandi⁽¹⁾,
Slamet Pribadi⁽¹⁾ dan Suprpto⁽²⁾

⁽¹⁾Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir

⁽²⁾Pusat Sains dan Teknologi Akselerator

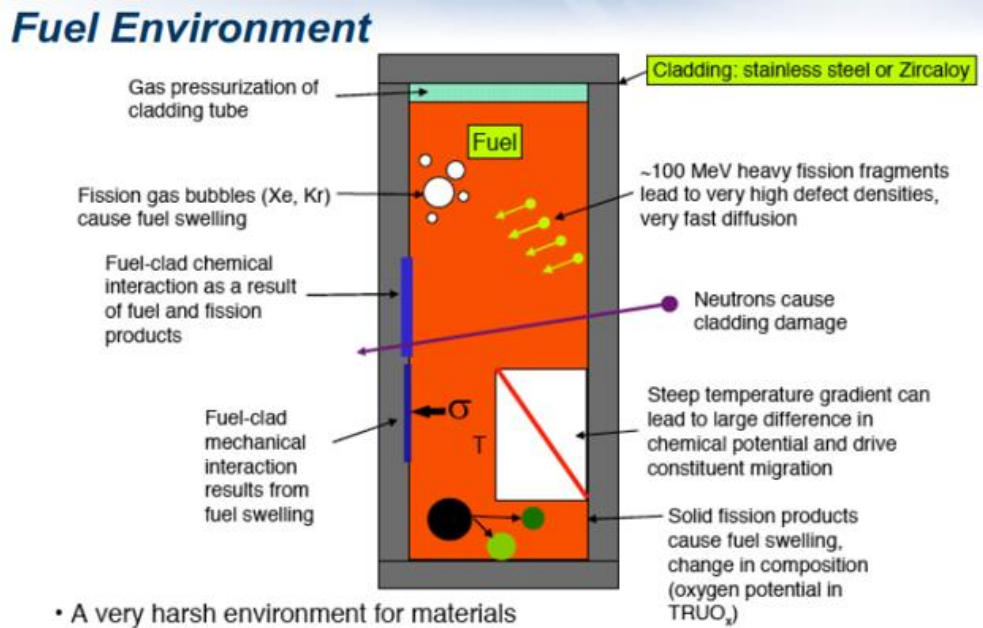
ABSTRAK

Penelitian proses deposisi plasma permukaan kelongsong zirkaloi telah dilakukan menggunakan peralatan *DC sputtering* reaktif untuk meningkatkan kinerja kelongsong elemen bakar *LWR*. Proses deposisi plasma bertujuan untuk memberikan lapisan pelindung di permukaan kelongsong zirkaloi yang akan meningkatkan ketahanan aus dan ketahanan korosi. Proses *DC sputtering* reaktif dilakukan di PSTA-Batan Jogjakarta menggunakan target tunggal zirkonium dan titanium dengan komposisi 70:30 untuk campuran gas CH_4+Ar atau N_2+Ar . Pengaturan kombinasi tegangan–arus dilakukan untuk mempertahankan plasma yang terbentuk pada tekanan *chamber* tertentu selama durasi proses 4 jam. Temperatur spesimen uji selama proses pelapisan tidak dapat dimonitor karena fasilitas tersebut sudah tidak berfungsi. Proses *DC sputtering* kelongsong zirkaloi-4 dengan target Zr berlangsung pada tegangan kerja 1kV, arus antara 9-12mA dan tekanan *chamber* $1,7 \times 10^{-2}$ dan $1,9 \times 10^{-2}$ mmHg sementara proses dengan target Ti berlangsung pada tegangan kerja 4kV, arus 10mA dan tekanan *chamber* $1,8 \times 10^{-2}$ dan $2,7 \times 10^{-2}$ mmHg. Kelongsong zirkaloi hasil deposisi plasma diuji menggunakan alat *XRD* untuk memastikan fasa yang terbentuk di permukaan kelongsong. Hasil pencocokan kurva *XRD* dengan kurva basis data menunjukkan bahwa pada proses *DC sputtering* kelongsong zirkaloi menggunakan campuran gas CH_4 dan Ar dengan target Zr atau Ti belum memberikan lapisan ZrC atau TiC di permukaan kelongsong. Pada proses *DC sputtering* kelongsong zirkaloi menggunakan campuran gas N_2 dan Ar, terdeteksi fasa $\text{ZrN}_{0,28}$ baik untuk penggunaan target Zr maupun Ti. Untuk itu akan dilakukan eksperimen lanjutan dengan pengaturan ulang parameter proses *DC sputtering* agar memberikan hasil proses sesuai yang direncanakan.

Kata kunci : deposisi plasma, *DC sputtering* reaktif, kelongsong zirkaloi-4, target Zr, target Ti.

PENDAHULUAN

Kelongsong zirkaloi merupakan salah satu komponen kunci dan sebagai *barrier* kedua dalam pengungkungan produk fisi pada elemen bakar *Light Water Reactors* (reaktor daya berpendingin air)^[1]. Kelongsong zirkaloi akan teroksidasi, mengalami proses *hydrogen uptake* dan penurunan kekuatan mekanik selama operasi di reaktor terutama untuk iradiasi elemen bakar *discharged burn-up* tinggi. Fenomena kompleks yang terjadi pada elemen bakar pada waktu diiradiasi di reaktor penggunaannya diperlihatkan Gambar 1^[1-2].



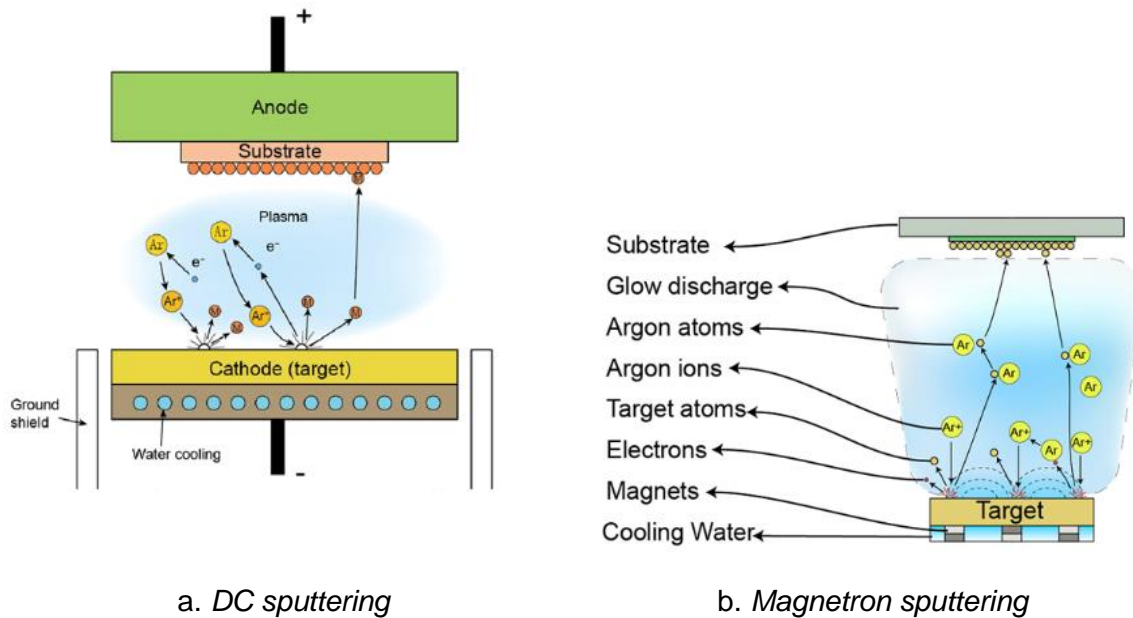
Gambar 1. Fenomena kompleks yang terjadi pada elemen bakar yang diiradiasi di reaktor daya berpendingin air

Pengembangan untuk peningkatan kinerja kelongsong zirkaloi dilakukan dengan tiga pendekatan yaitu mengoptimalkan komposisi metalurgis dan proses pembuatan kelongsong berbasis zirkonium, memberi lapisan pelindung pada permukaan kelongsong paduan zirkonium dan mengganti kelongsong paduan zirkonium yang digunakan selama ini dengan bahan non zirkonium^[1-7]. Lapisan pelindung di permukaan kelongsong berfungsi untuk meningkatkan ketahanan korosi dan ketahanan aus kelongsong melalui peningkatan kekerasan permukaan^[8-9]. Kandidat lapisan pelindung diantaranya adalah Ti_3AlC , Cr_3C_2 , Y_2O_3 , Cr_2O_3 , ZrC , SiC , TiC , ZrN dan TiN [2,4,10]. Tebal lapisan pelindung yang telah diteliti bervariasi, lapisan TiN dengan tebal 1 μm , lapisan Ti_3AlC dengan tebal berkisar antara 10 - 20 μm dan lapisan keramik dengan tebal antara 10 - 30 μm sebagai batasan untuk penalti neutronik^[2,5,10].

Proses pelapisan permukaan kelongsong zirkaloi dapat dilakukan dengan cara deposisi plasma yaitu perlakuan permukaan (*surface treatment*) menggunakan plasma. Penggunaan plasma pada proses pelapisan menjadi lebih unggul dalam hal durasi proses, konsumsi gas dan konsumsi energi serta ramah lingkungan bila dibandingkan dengan proses konvensional seperti *cold spray* atau *dip-coating* yang harus diikuti dengan proses perlakuan panas setelah pelapisan^[11-12]. Selain itu, pada proses deposisi plasma akan lebih mudah melakukan pengontrolan kualitas lapisan khususnya untuk pelapisan bahan yang memerlukan tebal lapisan presisi tinggi^[12]. Kelemahan proses pelapisan dengan deposisi

plasma adalah perlunya melengkapi peralatan pelapis dengan sistem tegangan tinggi, sistem pengendali temperatur dan pengatur laju alir gas dalam orde mikro.

Mekanisme proses pelapisan dengan deposisi plasma diperlihatkan pada Gambar 2 [13]. Proses pelapisan dengan deposisi plasma antara lain adalah proses *DC sputtering* dan *magnetron sputtering*. Proses *sputtering* merupakan salah satu proses *PVD (Physical Vapor Deposition)* dimana atom-atom pada target (bahan yang akan dilapiskan) dilepaskan oleh tumbukan target oleh ion-ion berenergi tinggi dari dalam plasma dan akan mengendap pada permukaan bahan yang dilapis (substrat). Proses pelapisan dengan *DC sputtering* memerlukan target yang konduktif [7], sedangkan proses *magnetron sputtering* dapat melapiskan bahan-bahan non konduktif seperti oksida, nitrida atau karbida dari logam (keramik).



Gambar 2. Proses pelapisan dengan deposisi plasma [13]

Pada penelitian ini deposisi plasma yang dilakukan adalah proses *DC sputtering reaktif* untuk membentuk lapisan ZrC atau ZrN pada kelongsong zirkaloi. Pada deposisi ZrC atau ZrN di permukaan kelongsong zirkaloi dengan *DC sputtering* ada dua pilihan sistem pelapisan. Proses deposisi plasma pada permukaan zirkaloi dengan *DC sputtering* yang hanya menggunakan gas argon perlu menyiapkan target yang terdiri dari bahan konduktif zirkonium dan karbon. Proses *DC sputtering* dengan target zirkonium tunggal perlu menyiapkan campuran gas argon dengan gas sebagai sumber karbon atau sumber nitrogen. Kualitas lapisan hasil deposisi plasma dengan *DC sputtering* dipengaruhi oleh kondisi plasma yang dibangkitkan, jenis dan kualitas target, temperatur dan kondisi

permukaan substrat serta durasi proses. Kondisi plasma ditentukan oleh tegangan kerja, jarak antar elektrode dan tekanan *chamber* (laju alir gas).

Proses *DC sputtering* yang dilakukan pada penelitian ini menggunakan target tunggal zirkonium dan target titanium dengan laju alir campuran gas yang dijaga tetap. Pengaturan kombinasi arus-tegangan dilakukan selama durasi proses deposisi untuk mempertahankan kondisi plasma yang dibangkitkan. Temperatur proses deposisi zirkaloi tidak melebihi temperatur *annealing* terakhir dari fabrikasi kelongsong zirkaloi untuk menghindari perubahan mikrostruktur, umumnya tidak melebihi 500°C^[14]. Pengujian spesimen kelongsong zirkaloi hasil proses deposisi plasma pada tahun ini baru pada tahap uji menggunakan alat *XRD* untuk memastikan fasa yang terbentuk di permukaan kelongsong zirkaloi adalah lapisan ZrC atau ZrN. Apabila lapisan tersebut belum terbentuk maka akan dilakukan pengaturan ulang parameter proses *sputtering* pada eksperimen berikutnya agar diperoleh lapisan dengan kualitas sesuai yang direncanakan.

METODOLOGI

Spesimen uji yang digunakan pada proses *DC sputtering* reaktif dengan target tunggal Zr atau Ti adalah potongan kelongsong zirkaloi dengan diameter 10,75 mm, panjang 10 mm dan tebal kelongsong 0,7 mm. Sebelum dideposisi plasma, spesimen uji dicuci dengan *rectified benzene* dan campuran metanol dengan aceton dalam *ultrasonic pit* masing-masing selama 5 menit, dilanjutkan dengan pencucian dalam air demin dengan temperatur 80°C selama 3 menit. Sampel uji selanjutnya dikeringkan dengan udara pada temperatur 50 °C selama 1 jam.

Proses deposisi plasma permukaan kelongsong zirkaloi dilakukan menggunakan peralatan *DC sputtering* di PSTA–Batan Jogjakarta. Pada proses deposisi tersebut, setelah kevakuman yang diinginkan tercapai maka dilakukan pengaturan kombinasi tegangan-arus sehingga plasma terbentuk dan dipertahankan. Selanjutnya, dimasukkan campuran gas N₂-Ar atau CH₄-Ar dengan komposisi 70:30 dan laju alir tetap. Pengaturan kombinasi tegangan–arus terus dilakukan untuk mempertahankan plasma yang terbentuk pada tekanan *chamber* yang dicapai setelah pemasukan gas. Kondisi proses tersebut terus dipertahankan selama 4 jam. Temperatur spesimen uji selama proses pelapisan tidak dapat dimonitor karena fasilitas tersebut sudah tidak berfungsi.

Kelongsong zirkaloi hasil deposisi plasma diuji menggunakan alat *XRD*. Kurva *XRD* yang diperoleh selanjutnya dilakukan pencocokan dengan kurva basis data untuk memperoleh informasi tentang fasa yang terbentuk di permukaan kelongsong zirkaloi.

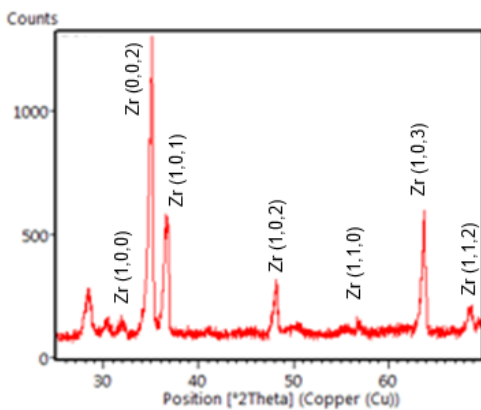
HASIL DAN PEMBAHASAN

Parameter proses deposisi plasma kelongsong zirkaloi dengan *DC sputtering* yang dilakukan pada penelitian ini ditunjukkan pada Tabel 1.

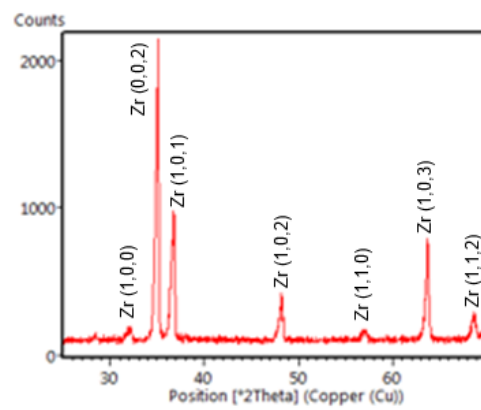
Tabel 1. Parameter proses pelapisan *DC sputtering* spesimen kelongsong zirkaloi-4 dengan target Zr atau Ti dan campuran gas N₂+Ar atau CH₄+Ar

No.	Spesimen uji	Target	Tekanan chamber (mmHg)	Tegangan (kV)	Arus (mA)	Komposisi gas 70: 30	Durasi (jam)
1	Zirkaloi-4	Zr	1,7x10 ⁻²	1	12	N ₂ + Ar	4
2	Zirkaloi-4	Ti	1,8x10 ⁻²	4	10	N ₂ + Ar	4
3	Zirkaloi-4	Zr	1,9x10 ⁻²	1	9	CH ₄ + Ar	4
4	Zirkaloi-4	Ti	2,7x10 ⁻²	4	10	CH ₄ + Ar	4

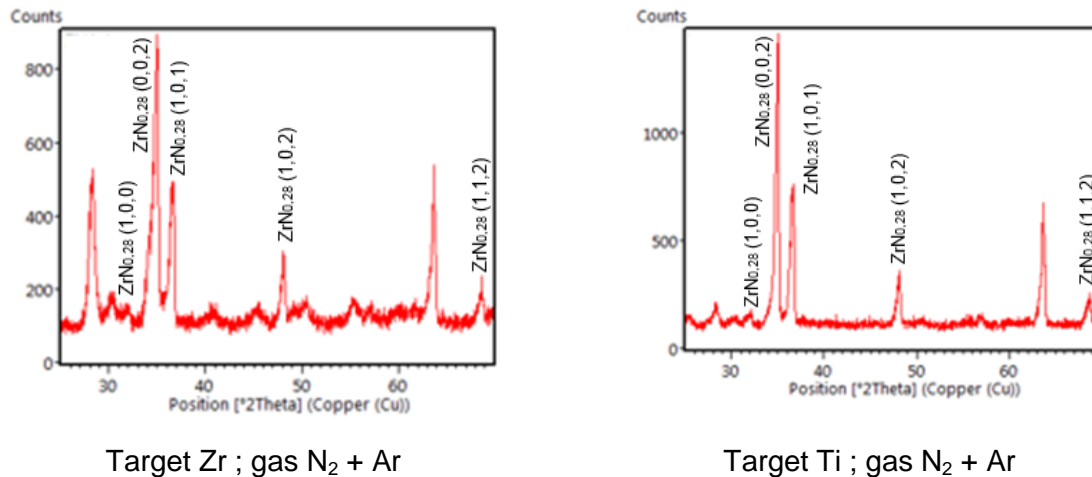
Kelongsong zirkaloi yang telah diproses menggunakan alat *DC Sputtering* dengan variasi campuran gas dan target tunggal Zr atau Ti diuji dengan peralatan *XRD*. Hasil uji dengan peralatan *XRD* berupa grafik 2θ Vs cacahan sebagaimana yang ditampilkan pada Gambar 1. Kurva hasil uji *XRD* kelongsong zirkaloi yang dideposisi plasma dicocokkan dengan basis data menggunakan perangkat lunak *HighScore* untuk mengetahui fasa yang terbentuk di permukaan kelongsong. Hasil pencocokan kurva menunjukkan bahwa pada kelongsong zirkaloi yang diproses *DC sputtering* menggunakan campuran gas CH₄ dan Ar dengan target Zr atau Ti, belum terbentuk lapisan ZrC atau TiC. Pada proses *DC sputtering* reaktif kelongsong zirkaloi menggunakan campuran gas N₂ dan Ar, terdeteksi fasa ZrN_{0,28} baik untuk penggunaan target Zr maupun Ti.



Target Zr : gas CH₄ + Ar



Target Ti : gas CH₄ + Ar



Gambar 3. Hasil uji XRD kelongsong zirkaloi yang telah dideposisi plasma dengan proses *DC sputtering* reaktif

Bila dibandingkan dengan hasil proses pelapisan menggunakan *magnetron sputtering* yang dilakukan pada tegangan dan arus yang lebih rendah serta durasi proses yang lebih singkat, maka perlu dilakukan pengaturan ulang pada proses *DC sputtering* ini agar diperoleh hasil pelapisan sesuai yang direncanakan.

KESIMPULAN

Proses deposisi plasma spesimen kelongsong zirkaloi dengan *DC sputtering* reaktif menggunakan target tunggal Zr atau Ti dan campuran gas $\text{CH}_4 + \text{Ar}$ belum memberikan lapisan pelindung ZrC atau TiC di permukaan kelongsong zirkaloi. Sementara pada proses *DC sputtering* kelongsong zirkaloi dengan campuran gas N_2 dan Ar, terdeteksi fasa $\text{ZrN}_{0,28}$ baik untuk penggunaan target Zr maupun Ti. Dengan demikian maka akan dilakukan eksperimen lanjutan dengan pengaturan ulang parameter proses *DC sputtering* agar terbentuk lapisan pelindung di permukaan kelongsong zirkaloi dengan dimensi dan kualitas sesuai yang direncanakan.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penelitian ini terlaksana atas pendanaan dari DIPA PTBBN Batan tahun 2017 dan kerjasama dengan PSTA Batan Jogjakarta. Untuk itu, penulis mengucapkan terima kasih atas bantuan dan kerjasama semua pihak yang telah membantu pelaksanaan penelitian ini.

DAFTAR PUSTAKA

1. Zhengang Duan et.al., *Current status of materials development on nuclear fuel cladding tubes for light water reactors*, Nuclear Engineering and Design 316 (2017) 131-150.
2. Ian Younker and Massimiliano Fratoni, *Neutronic evaluation of coating and cladding materials for accident tolerant fuels*, Progress in Nuclear Energy 88 (2016), 10-18.
3. Zinkle, S.J. et al, *Accident Tolerant Fuel for LWRs : A Perspective*, Journal of Nuclear Materials, Vol. 448, Issues 1-3, 2014, 374-379.
4. Kim, H.G. et al., *Application of Coating Technology on the Zirconium-Based Alloy to Decrease High-Temperature Oxidation*, LWR Fuel Technology Division, KAERI, Republic of Korea, 2013.
5. Khatkhatay, F. et al., *Superior Corrosion Resistance Properties of TiN-based Coating On Zircaloy Tubes in Supercritical Water*, Journal of Nuclear Materials, Vol. 451, Issues 1-3, 346-351.
6. Ace Alat et al., *Multilayer (TiN, TiAlN) ceramic coating for nuclear fuel cladding*, Journal of Nuclear Material, 478(2016) 236-244.
7. ETTY Mutiara dkk., *Proses pelapisan kelongsong zirkaloi dengan karburasi plasma dan nitridasi plasma*, Prosiding kegiatan Penelitian PTBBN tahun 2016, 2017, PTBBN-Batan.
8. Peter J. Blau, *A multi-stage wear model for grid-to-rod fretting of nuclear fuel rods*, Wear, Volume 313, Issues 1-2 (2014) 89-96.
9. J.H. Sung et al., *Fretting damage of TiN coated zircaloy-4 tube*, Wear, Vol. 250, Issues 1-12 (2001) 658-664.
10. Barret, K. et al., *Advanced LWR Nuclear Fuel Cladding System Development Trade-off Study*, INL/EXT-12-27090, 2012, Idaho National Laboratory, LWR Sustainability Program.
11. Tjipto Sujitno, *Aplikasi Plasma Sputtering*, Diktat Pelatihan Teknologi Plasma Sputtering. PSTA Batan Jogjakarta & Pusdiklat Batan Jakarta, 2014.
12. Thiago de Souza Lamim et al., *Plasma Carburizing of Sintered Pure Iron at Low Temperature*, Materials Research (2015), 18(2) 320-327.
13. Micro Magnetics, Inc., "Magnetron sputtering technology", 2018, http://www.directvacuum.com/pdf/what_is_sputtering.pdf.
14. Hyun-Gil Kim, Il-Hyun Kim, Yang-Il Jung, Dong-Jun Park, Jeong-Yong Park, Yang-Hyun Koo, *Adhesion property and high-temperature oxidation behavior of Cr-coated Zircaloy-4 cladding tube prepared by 3D laser coating*, Journal of Nuclear Materials. Volume 465 (2015) 531-539.