

# BAB 2

## Proses Pembuatan Gel *Cerium Stabilized Zirconium (CSZ) Kering*

---

Sukarsono, Sri Rinanti, Ariyani Kusuma Dewi, Kristanti, Dedy Husnurrofiq, Sardjono, Endang Nawangsih

### 2.1. PENDAHULUAN

Pemanfaatan energi nuklir dimasa yang akan datang merupakan salah satu cara untuk pemenuhan kebutuhan energi listrik di Indonesia. Pembangkitan listrik dari energi nuklir merupakan pembangkit listrik yang polusinya paling kecil. Salah satu reaktor nuklir yang dipertimbangkan dibangun di Indonesia adalah reaktor suhu tinggi (RST) karena reaktor tersebut merupakan reaktor generasi IV yang aman, tanpa pelelehan bahan bakar meskipun dalam keadaan abnormal [1]. Reaktor suhu tinggi tipe modular dapat dibangun di Indonesia karena sesuai dengan geografis yang terdiri dari pulau-pulau. Rencana pembangunan RST akan dimulai dengan membangun reaktor daya eksperimental di Serpong yang ijin tapaknya sudah disetujui oleh BAPETEN.

Untuk menjaga kesinambungan (*sustainability*) pengoperasian reaktor seperti tersebut di atas dan jika di sisi lain diinginkan kemandirian pasokan bahan bakar, maka Indonesia perlu memiliki pabrik bahan bakar nuklir. Adanya pabrik bahan bakar nuklir juga harus diiringi dengan kemampuan tenaga ahli Indonesia dalam pembuatan bahan bakar nuklir sesuai reaktor yang diinginkan. Oleh karena itu, penguasaan teknologi fabrikasi bahan bakar, termasuk bahan bakar RST, melalui serangkaian penelitian perlu segera dilakukan.

Bahan bakar RST yang telah dikembangkan hingga saat ini terdiri dari 2 jenis, yaitu bentuk prisma dan bola [1,2]. Pembuatan bahan bahan bakar RST di Indonesia difokuskan kepada bahan bakar bentuk bola. Proses pembuatan bahan bakar RST bentuk bola melibatkan banyak proses mulai dari pemurnian uranium, pembuatan larutan sol, proses gelasi untuk menghasilkan gel uranium, pencucian, kalsinasi, reduksi dan sintering untuk menghasilkan kernel  $UO_2$  tersinter, dilanjutkan dengan pelapisan kernel  $UO_2$  tersinter sehingga diperoleh partikel terlapis. Partikel terlapis selanjutnya dikompaksi menjadi bahan bakar nuklir RST [3].

Tahap awal proses pembuatan bahan bakar RST yang paling penting adalah proses gelasi untuk menghasilkan gel *amonium diuranat* (ADU) yang akan menentukan kualitas kernel bahan bakar yang dihasilkan. Produk gel ADU yang dihasilkan dari proses gelasi, harus menghasilkan bahan bakar yang dapat memenuhi persyaratan spesifikasi yang telah ditetapkan. Sifat-sifat gel seperti: densitas, komposisi, kebulatan yang tidak sesuai spesifikasi dan adanya keretakan permukaan akan menyebabkan gel tidak dapat dilanjutkan untuk proses-proses selanjutnya dan harus ditolak (*reject*). Proses pembuatan

gel ADU kering yang menentukan kualitas gel yang dihasilkan meliputi proses-proses: pembuatan sol, gelasi, *ageing*, pencucian dan *drying*.

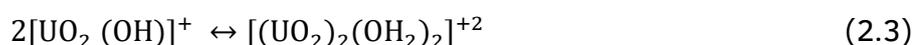
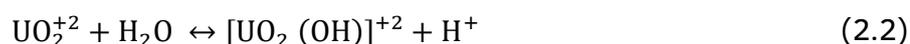
Dalam proses gelasi digunakan bahan *surrogate* zirkonium yang distabilkan dengan cerium (*Cerium Stabilized Zirconium*, CSZ). Penggunaan CSZ sebagai bahan *surrogate* karena proses gelasi CSZ, secara fisika sama dengan gelasi uranium, khususnya pada proses pembentukan tetes (*droplets formation*). Berdasarkan hal tersebut, variabel proses untuk pembuatan kernel  $UO_2$  dapat didekati dengan menggunakan bahan *surrogate* yang tidak perlu menggunakan bahan radioaktif. Zirkonium dapat mengalami polimerisasi pada proses gelasi karena reaksi hidrolisa pada pH tinggi pada lingkungan medium ammonium hidroksida [4,5,6]. Penggunaan CSZ sebagai bahan *surrogate* juga dapat menghasilkan kernel dengan mikrostruktur yang stabil pada suhu tinggi untuk simulasi proses pelapisan.

Dalam pembuatan gel ADU untuk bahan bakar RST, uranium yang digunakan adalah uranil nitrat murni hasil ekstraksi berkualifikasi *acid deficient uranyl nitrate* (ADUN). Larutan uranil nitrat terlebih dahulu ditambah urea. Penambahan urea pada larutan uranium nitrat pada proses gelasi, berfungsi untuk mengikat uranium nitrat menjadi senyawa kompleks menurut persamaan reaksi 2.1 [1,4,7].



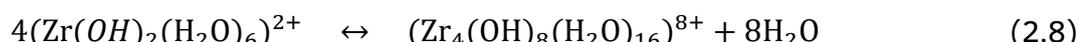
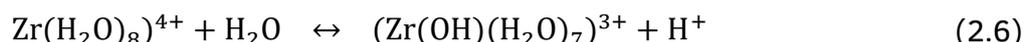
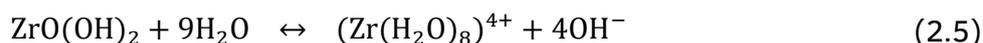
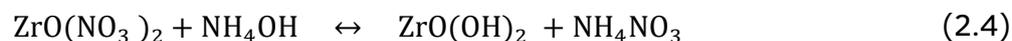
Senyawa kompleks  $\{UO_2 [CO(NH_2)_2]_2\}^{+2}$  kalau dipanaskan terurai menjadi  $NH_3$  yang akan mengurangi keasaman dan membentuk koloid. Larutan uranil nitrat yang sudah diatur pH-nya ditambahkan bahan aditif *poly vinyl alcohol* (PVA) dan *tetra hydro furfuryl alcohol* (THFA) menjadi larutan sol yang siap untuk dilakukan proses gelasi. Proses gelasi terjadi pada peneteskan larutan sol ke dalam kolom gelasi. Larutan sol kemudian diteteskan ke dalam kolom gelasi melalui *nozzle* dengan diameter tertentu yang divibrasi pada frekuensi dan amplitudo tertentu. Sebelum jatuh ke dalam medium gelasi berisi larutan  $NH_4OH$ , tetesan melalui lingkungan/zona gas  $NH_3$  dan terjadi presolidifikasi yang berupa pengerasan permukaan tetes. Presolidifikasi terjadi karena terjadi polimerisasi pada permukaan tetesan disebabkan reaksi polimerisasi zirkonium nitrat dan cerium nitrat pada tetesan larutan sol tersebut.

Polimerisasi terjadi karena adanya perubahan pH tetesan larutan sol dalam lingkungan gas  $NH_3$  pada proses presolidifikasi dan lingkungan *ammonium hidroksida* ( $NH_4OH$ ) dalam media gelasi membentuk butiran gel padat. Hal ini identik dengan terjadinya reaksi kompleks uranil nitrat membentuk garam kompleks pada proses gelasi larutan sol uranil nitrat menghasilkan butiran berupa gel ammonium diuranat seperti reaksi 2.2 dan 2.3 [4, 6, 7, 8, 9].

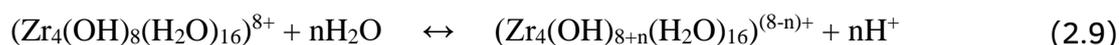


Proses gelasi CSZ menghasilkan gel Zr-Ce yang berwarna kuning abu-abu. Reaksi dalam proses gelasi CSZ adalah polimerisasi *zirkonium nitrat* dan *cerium nitrat* menjadi polimer yang padat karena reaksi hidrolisa dengan adanya bahan aditif. Dalam proses

gelasi pada waktu tetesan sol jatuh melalui kolom  $\text{NH}_3$  dan cairan  $\text{NH}_4\text{OH}$ , terjadi perubahan pH yang menyebabkan terjadinya proses hidrolisa dan polimerisasi. Tetesan masuk lingkungan dengan pH di atas 10. Mekanisme reaksi pengomplekan dan pembentukan gel pada sol yang mengandung zirkonium nitrat bereaksi dengan larutan  $\text{NH}_4\text{OH}$  seperti dalam persamaan reaksi 2.4 sampai dengan 2.8 [10,11].



Senyawa  $(\text{Zr}_4(\text{OH})_8(\text{H}_2\text{O})_{16})^{8+}$  disebut sebagai ion kompleks *zirkonium tetrametrik*. Reaksi hidrolisa berlanjut dan terjadi polimerisasi menjadi gel zirkonium seperti persamaan 2.9.



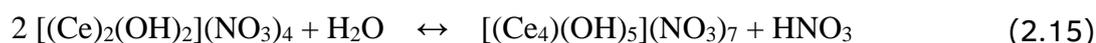
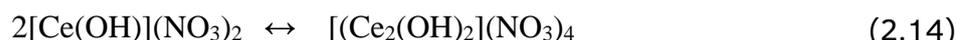
Cerium nitrat yang ditambah dengan bahan aditif PVA dan THFA, bereaksi dengan *ammonium hidroksida* membentuk senyawa kompleks. Reaksi cerium dengan urea terjadi seperti persamaan 2.10.



Reaksi peruraian dengan adanya panas terjadi seperti persamaan 2.11 dan 2.12.

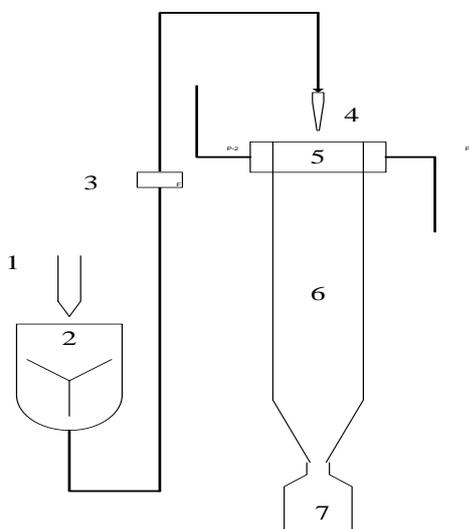


Reaksi hidrolisa cerium nitrat pada proses polimerisasi seperti persamaan reaksi 2.13 sampai dengan 2.15.



Reaksi hidrolisa berlangsung terus sehingga terjadi polimerisasi dari cerium nitrat menjadi gel cerium. Senyawa kompleks cerium menyebabkan tetesan sol menjadi keras membentuk gel cerium hidroksida. Gabungan antara Zr dan Ce hidroksida yang berpolimerisasi dapat membentuk gel yang baik karena apabila dikalsinasi menjadi oksida akan membentuk campuran yang stabil dan tidak ada perubahan struktur kristal apabila dilakukan pemanasan sampai  $1500^\circ\text{C}$ .

Proses gelasi dilakukan pada unit peralatan kolom gelasi yang skemanya dapat dilihat dalam Gambar 2.1. Kolom gelasi dilengkapi dengan unit penetes menggunakan *nozzle* dengan ukuran 1 mm yang divibrasi, bagian atas ada zone presolidifikasi, bagian bawah ada penampung gel dan saluran pemasukan larutan sol.



Gambar 2.1. Diagram alir proses gelasi, *ageing*, pencucian dan pengeringan gel zirkonium distabilkan dengan cerium. 1. *Hoper*, 2. Reaktor pembuatan sol, 3. *Flowmeter*, 4. *Nozzle* penetes, 5. Kolom  $\text{NH}_3$ , 6. Kolom gelasi, 7. Penampung gel, 8. Aliran gas  $\text{NH}_3$  eksternal [4]

Larutan sol dialirkan dengan tekanan udara melalui *nozzle* yang digetarkan pada frekuensi dan amplitudo tertentu. Hubungan antara kecepatan alir (*flow rate*) larutan sol yang kental dengan ukuran geometri *nozzle* dan sifat larutan dapat dilihat dalam persamaan 2.16 sampai dengan 2.18 [12].

$$Q_l = k\phi_g\phi_p \quad (2.16)$$

$$\phi_g = \frac{D_0^4}{l} \quad (2.17)$$

$$\phi_p = \frac{\Delta p}{\eta} \quad (2.18)$$

Dengan,

|                                |   |
|--------------------------------|---|
| $Q_l$ : <i>flow rate sol</i>   | $L$ : panjang <i>nozzle</i>   |
| $\phi_g$ : faktor geometri     | $\Delta p$ : beda tekanan ( <i>pressure drop</i> ) dari ujung <i>nozzle</i> |
| $\phi_p$ : faktor fisik        | $\eta$ : viskositas   |
| $D_0$ : diameter <i>nozzle</i> | $k$ : Konstanta   |

Persamaan 2.16, 2.17 dan 2.18 digabung menjadi persamaan 2.19

$$Q_l = k \frac{D_0^4 \Delta p}{l \eta} \quad (2.19)$$

Diameter tetes dapat dihitung dari diameter hasil akhir gel ( $D_p$ ) menggunakan dasar neraca bahan dari masing-masing bahan dan dapat dinyatakan dengan persamaan 2.20.

$$D_s = D_p \left[ \frac{\rho_p}{\rho_s} \right]^{\frac{1}{3}} \quad (2.20)$$

Dengan,

$\rho_s$  = densitas tetes

$\rho_p$  = densitas partikel akhir.

Diameter tetes yang terbentuk pada waktu tetes meninggalkan *nozzle*, tergantung pada diameter *nozzle* tetapi tidak sama dengan diameter *nozzle*. Menurut Matthews, tetesan sol terbentuk karena keseimbangan gaya berat tetes yang jatuh dari *nozzle* dan tahanan oleh *nozzle*. Ketika tetes sol jatuh, maka gaya berat sol ditambah kekuatan kinetik dari fluida yang mengalir keluar dari lubang *nozzle* melebihi gaya yang bekerja menahan tetes jatuh pada *orifice* (tegangan antar muka ditambah gaya tekan keatas dari media). Volume tetes (untuk aliran yang rendah) dapat dinyatakan dengan persamaan 2.21.

$$V_s = \frac{F\pi\gamma D_o}{g\Delta\rho} \quad (2.21)$$

Dengan,

$V_s$  : volume tetes

$g$  : Gravitasi

$\gamma$  : tegangan antar muka

$\Delta\rho$  : beda densitas antara dua fluida

$D_o$  : diameter *nozzle*

$F$  : faktor koreksi tetes tinggal di *nozzle*

Menurut Hao, untuk dispersi yang baik apabila diameter tetes  $D_s$  adalah 2 kali diameter *nozzle*  $D_o$  [12].

$$D_o = \frac{D_s}{2} \quad (2.22)$$

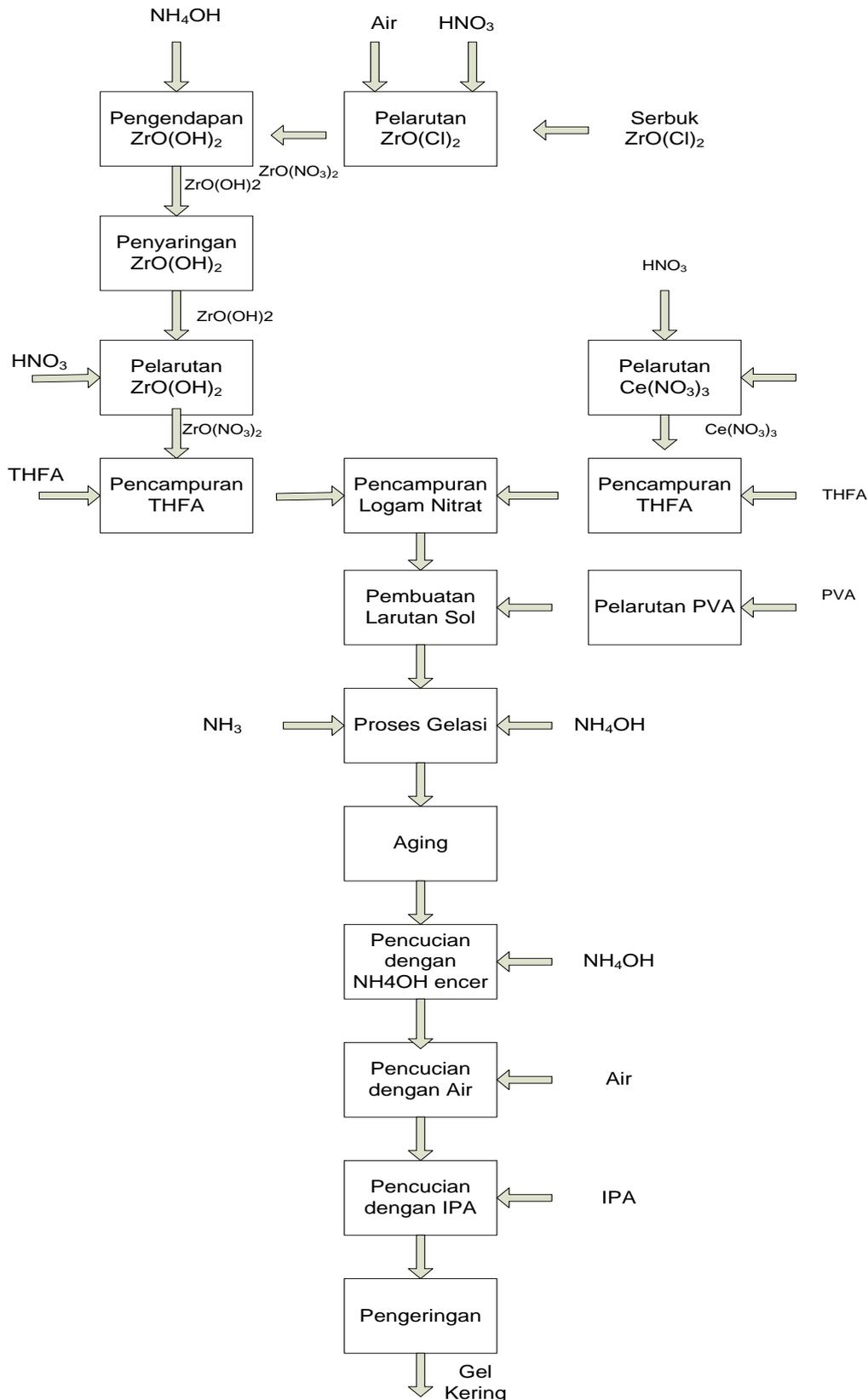
Besar aliran sol ( $Q$ ) dapat diukur dan hubungan antara kecepatan alir sol dengan frekuensi ( $f$ ) dapat dinyatakan dengan persamaan 2.23 [9].

$$Q = f \cdot \frac{\pi D_s^2}{6} \quad (2.23)$$

## 2.2. METODOLOGI

Proses gelas dengan bahan *surrogate* menggunakan Zr nitrat dan Ce nitrat murni. Serbuk Zr nitrat dan Ce nitrat terlebih dahulu dilarutkan menjadi garam nitrat untuk dibuat larutan Zr nitrat dan Ce nitrat. Proses gelas dilaksanakan menggunakan peralatan gelas yang terdiri dari 3 unit yaitu unit pelarutan, unit pembuatan larutan sol, dan unit gelas

yang dilengkapi dengan alat *ageing*, pengeringan dan pencucian. Diagram proses pembuatan gel kering dapat dilihat pada Gambar 2.2 dan unit alat gelas Gambar 2.3.



Gambar 2.2. Proses gelasi, *ageing*, pencucian dan pengeringan gel zirkonium distabilkan dengan cerium



Gambar 2.3. Peralatan proses gelas

Bahan yang digunakan adalah cerium nitrat ( $\text{Ce}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ) dan zirkonium oksida nitrat  $\text{ZrO}(\text{NO}_3)_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ . Kedua bahan tersebut dilarutkan dengan air menjadi campuran garam nitrat. Serbuk  $\text{ZrO}(\text{NO}_3)_2$  ditimbang dengan berat tertentu kemudian dilarutkan dengan air menjadi larutan zirkonium oksida nitrat dengan kadar 377g/L. Sol dibuat dengan mencampurkan larutan zirkonium nitrat dan larutan cerium nitrat kemudian ditambahkan larutan PVA pekat. Cairan *tetra hydro furfurylacid* (THFA) yang sudah ditambah larutan PVA dimasukkan ke dalam larutan Zr-Ce nitrat yang sudah disiapkan sebelumnya. Pembuatan larutan sol dilakukan dengan perbandingan mol Ce dan mol total (Ce dan Zr) = 10,7 % mol, kadar Zr = 56 g/L, kadar Ce = 10,35 g/L, THFA = 15,4 % volum, sedangkan kadar PVA sekitar 8-10% berat. Berat PVA untuk membuat sol bervariasi dengan viskositas yang berbeda-beda.

Larutan kemudian diaduk sambil dipanaskan sampai homogen kemudian diendapkan 1 malam. Larutan sol digelasi dalam kolom gelas dengan meneteskan sol ke dalam larutan ammonium hidroksida. Alat untuk melakukan proses gelasi ditunjukkan pada Gambar 2.2. Proses gelasi dilakukan dengan mengisi kolom gelas dengan larutan  $\text{NH}_4\text{OH}$  dan mengalirkan gas  $\text{NH}_3$  ke bagian atas kolom untuk presolidifikasi gel [4]. Hasil proses gelasi diperoleh gel CSZ yang selanjutnya dilakukan proses ageing dalam kolom gelas selama 2 jam.

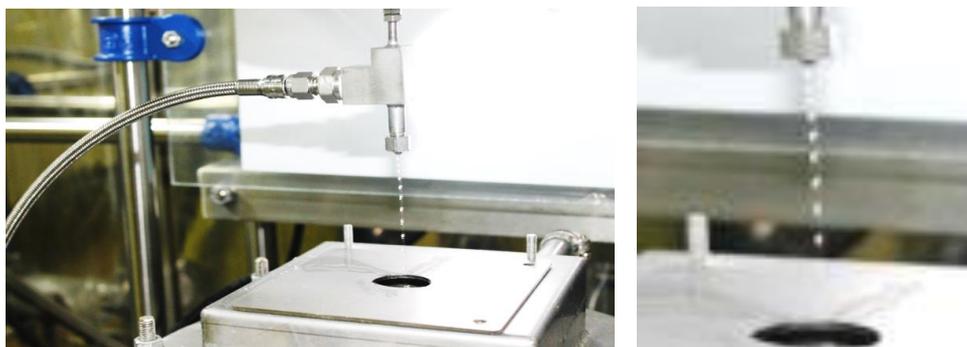
Larutan sol dalam tangki pengumpan, ditekan menggunakan udara tekan dan dialirkan ke perangkat penetes. Larutan sol melalui *nozzle* berdiameter 1 mm yang divibrasi pada frekuensi 50-110 Hz dan amplitudo tertentu. Tetesan sol sebelum jatuh ke media gelas melalui lapisan gas  $\text{NH}_3$  sehingga terjadi presolidifikasi gel dan terjadi pengerasan permukaan tetes. Proses gelasi menggunakan frekuensi vibrasi dengan variasi 50, 80, 90, 100 dan 110 Hz, sedangkan kecepatan alir sol dan amplitudo diatur untuk menghasilkan tetesan sol yang terpisah, seragam dan bulat. Gel hasil proses gelasi ditampung dalam wadah yang berisi ammonia selama 2 jam dan gel dikeluarkan untuk proses pencucian.

Gel dicuci dengan ammonia encer 3 kali selama 30 menit, 6 kali dengan air bebas mineral dan 4 kali dengan isopropil alkohol (IPA). Pencucian dengan ammonia encer bertujuan untuk mengambil ammonium nitrat hasil samping proses gelasi dan bahan organik lain yang ada di dalam gel, sedangkan pencucian dengan air bertujuan untuk mengambil ammonia dan IPA. Pencucian ke-3 menggunakan IPA untuk mengambil air

pencuci yang masih tertinggal diantara butiran-butiran gel dan mengisi pori-pori di dalam gel. Sifat pencuci yang dapat digunakan dalam pencucian akhir ini adalah bahan yang mempunyai kelarutan air besar dan mempunyai titik didih rendah dibawah titik didih air.

Pencucian untuk mengambil air tersebut dapat digunakan bahan seperti  $\text{CCl}_4$ , IPA, aseton, heksana dan lain-lain. Keberadaan air di dalam pori-pori sudah tergantikan oleh IPA setelah pencucian. Titik didih IPA lebih rendah dibandingkan air sehingga pada proses pengeringan IPA lebih mudah menguap, sedangkan air yang terikat harus dilepaskan menggunakan energi yang lebih besar dengan proses pengeringan. Penggunaan IPA mempunyai fungsi yang sama dengan PGME [5,6]. Hasil pencucian gel Zr-Ce kemudian dikeringkan dalam tungku vakum pada temperatur  $60^\circ\text{C}$  selama 7,5 jam, sehingga diperoleh gel kering yang siap diproses lebih lanjut.

Kendali kualitas pada proses pembuatan sol adalah analisis kimia dan fisis yang meliputi kadar dan densitas, sedangkan analisis larutan sol meliputi viskositas, densitas dan pengukuran diameter gel hasil *ageing*, gel basah dan gel kering serta tingkat keretakan secara visual. Pengoperasian alat gelas dilakukan dengan mengalirkan larutan sol dari penampung sol dengan penekanan menggunakan udara tekan. Larutan sol mengalir melalui *flowmeter* dan masuk ke dalam kolom gelas melalui *nozzle* diameter 1 mm yang divibrasi pada frekuensi dan amplitudo tertentu. Pengoperasian alat gelas dilakukan dengan menetapkan frekuensi vibrasi tertentu, kemudian kecepatan alir dan amplitudo diatur untuk menghasilkan tetesan sol yang terpisah, seragam, dan stabil. Tetesan yang masuk ke dalam kolom dapat dilihat karena ada lampu *stroboscop* yang ada dibelakang tetesan tersebut sehingga perubahan bentuk tetesan dapat diamati. Tetesan yang terpisah, seragam dan stabil akan menentukan kualitas gel yang dihasilkan. Contoh tetesan yang baik dalam pengoperasian alat gelas dapat dilihat pada Gambar 2.4.



Gambar 2.4. Penetesan proses gelas eksternal pada kolom gelas

### 2.3. DISKUSI

Tetesan gel yang baik mempunyai bentuk yang seragam, teratur dan terpisah satu sama lain. Penetesan menghasilkan gel dengan diameter yang sama dan sperisitasnya baik, serta diperoleh kernel yang tidak retak setelah melalui proses pengeringan, kalsinasi atau reduksi. Hal ini disebabkan hasil kernel dipengaruhi oleh sifat sol yang ditetaskan pada proses gelas. Bentuk gel yang bulat dan seragam ditentukan oleh parameter yang tepat pada pengoperasian alat sol-gel. Selain itu kualitas gel tergantung juga pada sifat

fisik dan kimia sol yang ditetaskan, sedangkan kualitas kernel ditentukan oleh proses selanjutnya seperti pengeringan, kalsinasi, reduksi dan *sintering*.

Proses gelasi diawali dengan penentuan kecepatan alir sol yang sangat dipengaruhi oleh viskositas. Hasil proses gelasi dengan variasi viskositas sol pada frekuensi 100 Hz ditunjukkan pada Tabel 2.1.

Tabel 2.1. Hubungan viskositas dengan kecepatan alir larutan sol

| No | Viskositas sol (cP) | Kecepatan alir sol, mL/menit |
|----|---------------------|------------------------------|
| 1  | 46                  | 30                           |
| 2  | 56                  | 28,8                         |
| 3  | 97                  | 25,8                         |

Tabel 2.1 menunjukkan bahwa semakin besar viskositas sol menghasilkan tetesan yang relatif baik (terpisah, seragam dan bulat). Hal ini sesuai apabila dibandingkan dengan persamaan 2.19 yang digunakan untuk menghitung kecepatan alir pada *nozzle*. Apabila ukuran *nozzle* dan beda tekanan sudah tertentu serta sol yang digunakan berbeda, maka kecepatan alir berbanding terbalik dengan viskositas sol. Viskositas sol berubah menyebabkan perubahan gaya gesek pada *nozzle* terhadap tetesan sol yang jatuh. Hal tersebut dapat mempengaruhi *flow rate* sol untuk menghasilkan tetesan yang baik. Kecepatan alir sol semakin kecil kalau viskositas sol yang ditetaskan semakin besar.

Frekuensi vibrasi berpengaruh dalam proses gelasi terutama kecepatan alir sol untuk menghasilkan tetesan yang baik. Pengaruh frekuensi terhadap kecepatan alir sol dapat dilihat dalam Tabel 2.2. Frekuensi vibrasi meningkat menyebabkan kecepatan alir sol juga meningkat dan berpengaruh terhadap hasil tetesan sol. Hal ini sesuai dengan apa yang ditunjukkan oleh Tabel 2.2. yang menyatakan hubungan linier antara kecepatan alir sol dengan frekuensi.

Tabel 2.2. Hubungan frekuensi vibrasi dengan *flow rate* larutan sol

| Frekuensi vibrasi (Hz) | Skala <i>flowmeter</i> | Kecepatan alir sol mL/menit | Skala <i>Amplitudo Primer-sekunder</i> |
|------------------------|------------------------|-----------------------------|--|
| 50,17                  | 1,2                    | 15,8                        | 40% - 0,5                              |
| 80,70                  | 1,4                    | 16,4                        | 40% - 0,5                              |
| 90,90                  | 1,7                    | 18,6                        | 40% - 0,8                              |
| 100,15                 | 2,0                    | 20,4                        | 40% - 0,9                              |
| 110,32                 | 2,1                    | 23,4                        | 40% - 0,9                              |

Apabila proses gelasi telah selesai, gel dibiarkan terendam dalam larutan  $\text{NH}_4\text{OH}$  untuk proses *ageing*. Proses *ageing* dapat dilakukan dengan cara perendaman dalam media larutan  $\text{NH}_4\text{OH}$  atau perendaman dalam media  $\text{NH}_4\text{OH}$  disertai dengan pemutaran dalam labu putar. Dalam proses perendaman terjadi reaksi polimerisasi untuk menyempurnakan proses gelasi dan menstabilkan struktur gel. Metoda perendaman tanpa pemutaran dalam wadah mempunyai kerugian karena tumpukan gel yang tinggi dan tidak

bergerak menyebabkan proses difusi  $\text{NH}_4\text{OH}$  ke dalam gel tidak homogen sehingga proses polimerisasi gel tidak sempurna dan pada proses pemanasan gel mudah pecah.

Apabila proses *ageing* dilakukan menggunakan alat berputar maka *ageing* dapat sempurna, tetapi memungkinkan terjadi sedikit kerusakan gel pada waktu pengeluaran gel dari wadah penampung. Pada beberapa laboratorium, *ageing* gel dilakukan di dalam wadah yang digoyang dan diputar agar reaksi bisa berlangsung sempurna pada semua bagian gel. Permasalahan yang terjadi adalah pada pemindahan gel kemungkinan terjadi kerusakan karena gesekan dengan peralatan. Setelah proses perendaman selama 2 jam, gel dan larutan dikeluarkan dari kolom gelas untuk disaring sehingga diperoleh gel basah CSZ yang terpisah dari larutannya. Gel basah CSZ hasil penyaringan ditunjukkan pada Gambar 2.5.



Gambar 2.5. Gel basah CSZ hasil *ageing* selama 2 jam

Gel basah CSZ tersebut dicuci untuk menghilangkan medium gelas dari permukaan butiran gel yang sebagian besar adalah nitrat, sisa bahan aditif yang ditambahkan pada umpan gelas dan hasil samping proses gelas dari dalam butiran gel serta proses hidrolisis metal dalam butiran gel. Medium gelas yang masih menempel pada permukaan butiran harus dihilangkan karena dapat mengganggu proses pengeringan. Proses pencucian gel hasil *ageing* dilakukan menggunakan alat *Ageing-Washing-Drying* (AWD) berupa *rotary evaporator* seperti yang terlihat pada Gambar 2.6. Alat *rotary evaporator* dilengkapi dengan labu volume 5 liter, *condensor*, *bath* pemanas dan pompa vakum.

Pencucian gel hasil *ageing* dilakukan melalui 3 tahap : (1). Pencucian dengan  $\text{NH}_4\text{OH}$  2,5 % dengan kondisi operasi temperatur ruangan/tanpa pemanasan, menggunakan labu putar seperti terlihat pada Gambar 2.6, kecepatan putaran 20 rpm, waktu tinggal per siklus 30 menit di dalam atmosfer udara dengan siklus 2 kali. (2). Pencucian dengan air pada kondisi operasi temperatur ruangan, menggunakan labu putar seperti terlihat pada Gambar 2.6, kecepatan putaran 20 rpm, waktu tinggal per siklus 20 menit di dalam atmosfer udara dengan siklus 7 kali.

Setelah selesai dari setiap siklus dilakukan pengukuran konduktivitas cairan sisa pencucian menggunakan konduktometer. (3). Pencucian dengan IPA bertujuan untuk menyerap air cucian yang masih menempel pada gel. IPA digunakan untuk pencucian tahap akhir karena IPA mudah menyerap air dan mudah menguap sehingga gel cepat mengering. Pencucian dengan IPA dilakukan pada kondisi operasi temperatur ruangan,

menggunakan labu putar seperti terlihat pada Gambar 2.6, kecepatan putaran 20 rpm, waktu tinggal per siklus 20 menit di dalam atmosfer udara dengan siklus 3 kali.



Gambar 2.6. Alat AWD dengan *rotary evaporator*

Pencucian gel dilakukan dengan menggunakan air bebas mineral yang konduktivitasnya  $15 \mu\text{S}/\text{cm}$  dan sebagai pembanding digunakan air sumur dengan konduktivitas  $130 \mu\text{S}/\text{cm}$ . Dari hasil pencucian yang berulang-ulang tersebut diperoleh nilai konduktivitas seperti yang ditunjukkan pada Tabel 2.3.

Tabel 2.3. Pengukuran konduktivitas air sisa pencucian gel CSZ

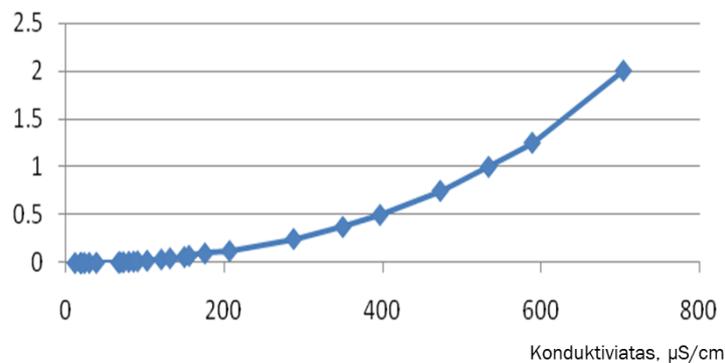
| Pencucian ke- | Konduktivitas ( $\mu\text{S}/\text{cm}$ ) | Berat $\text{NH}_4\text{OH}$ (%) |
|---------------|---|----------------------------------|
| 1             | 550                                       | 1,07272                          |
| 2             | 285                                       | 0,24537                          |
| 3             | 142                                       | 0,05694                          |
| 4             | 76  | 0,01010                          |
| 5             | 51  | 0,00357                          |
| 6             | 27  | 0,00137                          |
| 7             | 17  | 0,00067                          |

Tabel 2.3 menunjukkan bahwa konduktivitas air cucian pertama sebesar  $550 \mu\text{S}/\text{cm}$ . Konduktivitas tersebut dapat dikonversi menjadi kadar  $\text{NH}_4\text{OH}$  dalam air cucian dengan menggunakan kurva hubungan antara konduktivitas dengan kadar larutan  $\text{NH}_4\text{OH}$  yang ditunjukkan pada Tabel 2.4 dan Gambar 2.7. Pada Tabel 2.3, menggunakan data konduktivitas air sisa pencucian, kadar  $\text{NH}_4\text{OH}$  dalam air cucian dapat dihitung secara interpolasi menggunakan data hubungan konduktivitas dan kadar  $\text{NH}_4\text{OH}$  dalam Tabel 2.4.

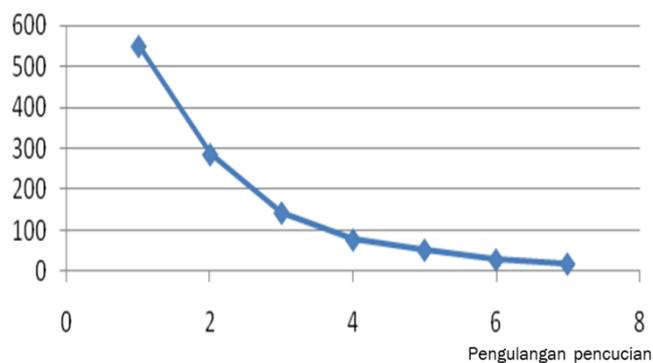
Gambar 2.8 dan 2.9 menunjukkan hubungan antara pengulangan pencucian dengan konduktivitas dan kadar  $\text{NH}_4\text{OH}$ .

Tabel 2.4. Hubungan konduktivitas dengan kadar  $\text{NH}_4\text{OH}$

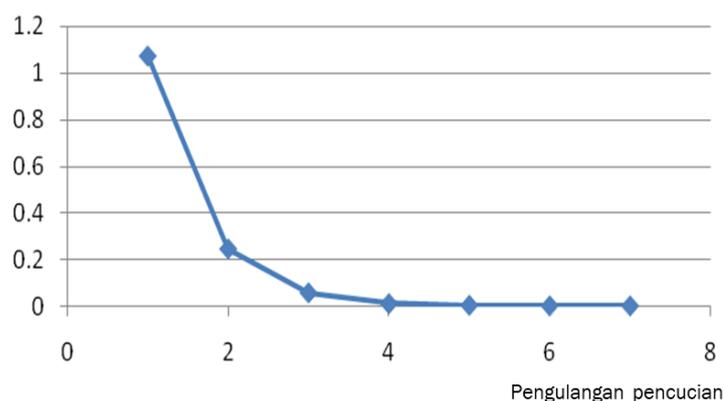
| No | Konduktivitas, $\mu\text{S}/\text{cm}$ | Kadar $\text{NH}_4\text{OH}$ (%berat) | No | Konduktivitas, $\mu\text{S}/\text{cm}$ | Kadar $\text{NH}_4\text{OH}$ (%berat) |
|----|--|---------------------------------------|----|--|---------------------------------------|
| 1  | 12                                     | 0,0005                                | 14 | 121                                    | 0,0375                                |
| 2  | 19                                     | 0,00075                               | 15 | 132                                    | 0,0500                                |
| 3  | 20                                     | 0,0010                                | 16 | 150                                    | 0,0625                                |
| 4  | 24                                     | 0,00125                               | 17 | 156                                    | 0,0750                                |
| 5  | 30                                     | 0,0015                                | 18 | 176                                    | 0,1000                                |
| 6  | 39                                     | 0,0025                                | 19 | 207                                    | 0,1250                                |
| 7  | 67                                     | 0,0050                                | 20 | 288                                    | 0,0250                                |
| 8  | 69                                     | 0,0075                                | 21 | 350                                    | 0,3750                                |
| 9  | 73                                     | 0,0083                                | 22 | 397                                    | 0,5000                                |
| 10 | 80                                     | 0,0125                                | 23 | 473                                    | 0,7500                                |
| 11 | 86                                     | 0,0150                                | 24 | 534                                    | 1,0000                                |
| 12 | 91                                     | 0,0187                                | 25 | 589                                    | 1,2500                                |
| 13 | 103                                    | 0,0250                                | 26 | 704                                    | 2,0000                                |



Gambar 2.7. Hubungan konduktivitas dengan kadar  $\text{NH}_4\text{OH}$



Gambar 2.8. Konduktivitas air cucian dengan pengulangan pencucian



Gambar 2.9. Hubungan kadar NH<sub>4</sub>OH dalam air cucian dengan pengulangan pencucian

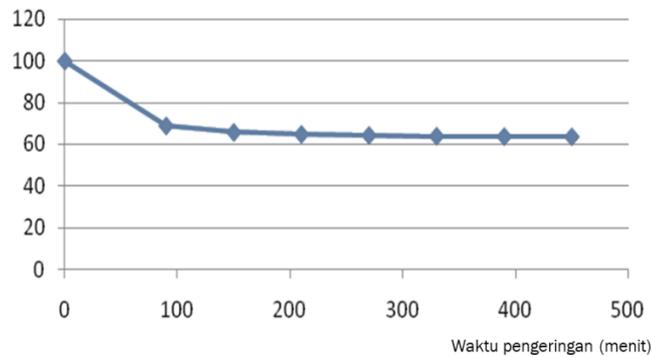
Pada pencucian ke 4, kadar NH<sub>4</sub>OH dalam air cucian yang tersisa 0,01010% dan kadar NH<sub>4</sub>OH pada pencucian ke 5 sudah sangat kecil yaitu 0,00357%. Dari hasil tersebut pencucian gel cukup dilakukan 4 kali. Apabila proses gelasi dan pencucian gel menggunakan bahan organik sebagai medium, maka dipilih pelarut organik yang mudah menguap, seperti CCl<sub>4</sub>, IPA, aseton, heksana dan lain-lain. Sebagai penyerap air pencuci yang masih tersisa di dalam gel digunakan IPA. IPA mempunyai titik didih yang rendah sehingga pada temperatur kamar mudah menguap dan gel cepat kering. Pencucian gel dengan IPA dilakukan pada temperatur ruang dengan volume IPA sebagai pencuci sebanyak 2 kali volume gel, kecepatan putaran 20 rpm dan waktu tinggal selama 30 menit setiap siklus. Gel CSZ hasil pencucian masih mengandung NH<sub>4</sub>OH, air dan bahan organik sisa pencucian, serta hasil samping reaksi polimerisasi.

Untuk mempertahankan bentuk gel basah tidak berubah, maka selama proses pengeringan dilakukan dengan menghindari terjadinya tegangan termal melalui tiga cara: (1) membuat laju pemanasan sekecil mungkin, (2) pemanasan dilakukan secara bertahap, (3) gabungan antara cara (1) dan (2). Laju pemanasan perlu dioptimasi untuk mencegah terjadinya retakan pada gel akibat adanya tegangan termal. Proses pengeringan menggunakan alat *rotary evaporator* dilakukan pada temperatur 60°C, kecepatan putaran 20 rpm, tekanan 300±10 mbar dan waktu tinggal antara 2-3 jam. Tabel 2.5 menunjukkan hubungan antara pengurangan berat gel dengan waktu pengeringan.

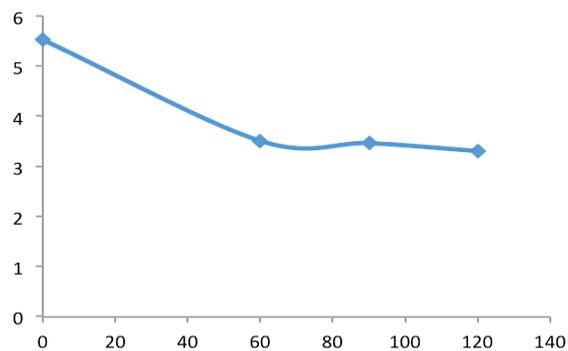
Tabel 2.5. Masa gel kering CSZ pada temperature 60°C

| Waktu pengeringan (menit) | Massa gel (g) | Pengurangan berat (%) | Berat Gel (% berat dari berat awal) |
|---------------------------|---------------|-----------------------|-------------------------------------|
| 0                         | 5,5322        | 0                     | 100                                 |
| 90                        | 3,8162        | 31,0184               | 68,9816                             |
| 150                       | 3,6437        | 3,1181                | 65,863                              |
| 210                       | 3,5916        | 0,9417                | 64,921                              |
| 270                       | 3,5658        | 0,4663                | 64,455                              |
| 330                       | 3,5420        | 0,4302                | 64,025                              |
| 390                       | 3,5322        | 0,1771                | 63,848                              |
| 450                       | 3,5272        | 0,0903                | 63,756                              |

Gambar 2.10 menunjukkan bahwa pada waktu pengeringan 130 menit berat gel kering sudah konstan. Pada temperatur 60°C terjadi penguapan IPA sisa pencucian yang tinggal dalam gel. Sementara itu, untuk menghilangkan kandungan air dalam gel CSZ dilakukan pengeringan lebih lanjut pada temperatur 90 dan 120°C masing-masing selama 2 jam. Pengurangan berat gel pada proses pengeringan dapat dilihat pada Gambar 2.11.



Gambar 2.10. Hubungan berat gel dengan waktu pengeringan



Gambar 2.11. Penurunan berat gel CSZ pada proses pengeringan

Hasil pengeringan diperoleh gel CSZ yang baik, hal ini terindikasi dari bentuk gel dan tidak adanya retak seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2.12. Ukuran butir gel dan retak tidaknya gel dilihat menggunakan mikroskop optik Dino-lite dengan perbesaran 100 - 300 kali.



Gambar 2.12. Gel CSZ hasil pengeringan

## 2.4. KESIMPULAN

Pembuatan gel *Cerium Stabilized Zirconium* dengan gelasi eksternal dapat dilakukan menggunakan unit peralatan gelasi dengan cara mencampur larutan cerium nitrat dan zirkonium oksida nitrat. Sol untuk umpan gelasi berupa logam nitrat yang telah ditambahkan urea, PVA dan THFA dengan perbandingan tertentu dan diaduk serta dipanaskan agar diperoleh sol yang homogen. Proses gelasi dari beberapa sol yang mempunyai sifat hampir sama, tetapi viskositas berbeda menunjukkan bahwa semakin kecil viskositas sol, maka semakin besar laju alir untuk diperoleh gel yang baik. Sementara itu proses gelasi dengan frekuensi vibrasi yang semakin besar menyebabkan laju alir sol semakin besar pula untuk diperoleh gel yang baik. Hasil proses pencucian pada tahap ke 4 diperoleh kadar  $\text{NH}_4\text{OH}$  dalam air cucian sangat rendah, sehingga proses pencucian gel cukup dilakukan 4 kali. Durasi proses pengeringan vakum cukup dilakukan selama 150 menit karena diperoleh berat gel yang hampir konstan dan setelah pengeringan sampai temperatur  $150^\circ\text{C}$ , tidak teramati adanya gel CSZ yang retak.

## DAFTAR PUSTAKA

- [1] Fütterer MA, Fu L, Sink C, Groot S De, Pouchon M, Wan Y, et al. Status of the very high temperature reactor system. *Prog Nucl Energy*. 2014;77:266-281.
- [2] IAEA. High Temperature Gas Cooled Reactor Fuels and Materials. Vienna; 2010.
- [3] Lee YW, Park JY, Kim YK, Jeong KC, Kim WK, Kim BG, et al. Development of HTGR-coated particle fuel technology in Korea. *Nucl Eng Des*. 2008;238(11):2842-2853.
- [4] Sukarsono; Meniek R. Pengaruh viskositas sol dan presolidifikasi pada gelasi eksternal dalam pembuatan gel ammonium diuranat menggunakan *surrogate cerium*. *Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir, URANIA*. Juni 2017;23(2):69-86.
- [5] Wang G, Ma J, Gao Y, Zhao X, Hao S, Deng C, et al. A comparative study of small-size ceria-zirconia microspheres fabricated by external and internal gelation. *Journal Sol-Gel Science Technology*. 2016;78(3): 673-681.
- [6] Wang G, Ma J, Gao Y, Zhao X, Hao S, Deng C, et al. Preparation of ceria-stabilized zirconia microspheres by external gelation: size control. *Journal Sol-Gel Science Technology*. 2016;78:514-522.
- [7] Shaochang H, Jingtao M, Xingyu Z, Yang W, Xiangwen Z. Large-scale production of  $\text{UO}_2$  kernels by sol – gel process at INET. *Nucl Eng Des [Internet]*. 2014; 271: 158-161. Available from: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nucengdes.2013.11.025>
- [8] Xiangwen Z, Zhenming L, Jie Z, Bing L, Yanwen Z, Chunhe T, et al. Preparation of spherical fuel elements for HTR-PM in INET. *Nucl Eng Des [Internet]*. 2013;263:456-461. Available from: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nucengdes.2013.07.001>
- [9] Kyung-Chai Jeong, Sung-Chul Oh, Yeon-Ku Kim Y-WL. ADU compound particle Preparation.pdf. *Journal Indonesian Engineering Chemical*. 2007;13(5):744-750.
- [10] Xiangwen Z, Jingtao M, Shaochang H, Xingyu Z, Yang W, Changsheng D. Preparation of ammonium diuranate particles by external gelation process of uranium in INET. *Nucl Eng Des [Internet]*. 2012;250:192-196. Available from: <http://dx.doi.org/10.1016/j.nucengdes.2012.06.001>

- [11] Li M. Making spherical zirconia particles from inorganic zirconium aqueous sols. *Powder Technol.* 2003;137:95-98.
- [12] Hao SC, Zhao XY, Ma JT, Zhou XW, Liang TX, Fu XM. Preparation of ZrO<sub>2</sub> Micro Beads by Sol-Gel Method. *Key Eng Mater.* February 2016:269-274.

## BIOGRAFI PENULIS



**R. Sukarsono**, lahir di Yogyakarta tanggal 4 Februari 1954. Pendidikan formal di Fakultas Teknik Jurusan Teknik Kimia UGM memperoleh gelar Insinyur tahun 1981. Gelar Sarjana Utama dalam bidang Ilmu Teknik, Program Studi Teknik Kimia diperoleh dari Fakultas Pasca Sarjana UGM tahun 1987. Penelitian dimulai sejak masuk BATAN tahun 1980 sampai sekarang menekuni penelitian di bidang pemurnian bahan nuklir dan pembuatan bahan bakar nuklir. Kegiatan tersebut antara lain pemurnian uranium dari konsentrat uranium sampai diperoleh uranium dioksida murni derajat nuklir. Sebagai penanggung jawab Riset Kontrak dengan IAEA dengan judul Pembuatan  $\text{ThO}_2$  derajat nuklir dari konsentrat Thorium. Penelitian bidang bahan nuklir lainnya adalah pembuatan zirkon *sponge* dari pasir zirkon dan pengkayaan  $\text{D}_2\text{O}$  serta pembuatan bahan bakar RST bentuk bola yang dilakukan dari tahun 1997 sampai sekarang.



**Sri Rinanti Susilowati**, lahir di Cilacap, tanggal 17 Desember 1963. Pendidikan formal di Teknik Kimia Nuklir STTN, BATAN dan memperoleh gelar Sarjana Sains Terapan pada tahun 2005. Pengalaman di bidang penelitian sejak masuk BATAN tahun 1985 hingga sekarang dengan menekuni bidang analisis dan proses pembuatan bahan bakar nuklir. Kegiatan tersebut antara lain analisis fisis bahan nuklir dari pengendapan konsentrat hingga uranium dioksida murni nuklir, pembuatan bahan bakar RST bentuk bola dari tahun 2005 hingga sekarang. Sebagai pejabat fungsional Pranata Nuklir Ahli Madya tahun 2016 hingga sekarang.



**Ariyani Kusuma Dewi**, lahir di Pemalang (Jawa Tengah), 24 November 1983. Menyelesaikan studi S1 Teknik Kimia di Universitas Diponegoro pada tahun 2005, dan S2 Teknik Kimia di Universitas Gajah Mada pada tahun 2014. Bekerja di BATAN mulai pada tahun 2008 di Yogyakarta dan menjadi peneliti di bidang fabrikasi bahan nuklir. Pengalaman menjadi pengajar dalam pelatihan pemagangan teknologi pembuatan kernel  $\text{UO}_2$  terlapis untuk penyiapan bahan bakar reaktor suhu tinggi. Mengikuti workshop *HTGR Fuel Fabrication Technology* dan *HTGR Fuel and Fuel Cycle Technologies* pada tahun 2016, Pelatihan Pemagangan Penentuan Fasa dan Analisis Kristalografi Zat Padat Menggunakan Alat Difraksi Sinar-X pada tahun 2017. Saat ini sedang menempuh program *doctoral* di University of Fukui Jepang dengan judul riset *Advance in Estimation Methodology of TRISO Fuel Properties*.



**Kristanti Nurwidyaningrum**, lahir di Jakarta, 10 Juli 1987. Pendidikan formal dimulai dari SD Negeri Cipinang Melayu 04 Pagi, SLTP Negeri 109, SMA Negeri 61 Jakarta, melanjutkan kuliah di Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknik UGM dan memperoleh gelar sarjana tahun 2010. Tahun 2016 menempuh pendidikan S2 di Jurusan Teknik Kimia, Fakultas Teknik UGM sampai sekarang. Pengalaman dalam penelitian dimulai sejak masuk BATAN pada tahun 2011 sampai sekarang menekuni penelitian dalam bidang fabrikasi bahan bakar nuklir dan menjabat sebagai Peneliti Pertama pada tahun 2016. Pengalaman dalam mengikuti proyek penelitian sebagai anggota peneliti dalam beberapa program penelitian PKPP dan Sinas dari Ristek.



**Dedy Husnurrofiq**, lahir di Jontlak (NTB) tanggal 23 Februari 1985. Pendidikan formal di Jurusan Tekno Kimia Nuklir Program Studi Tekno Kimia di STTN BATAN lulus tahun 2007. Pengalaman di bidang penelitian dimulai semenjak masuk sebagai karyawan BATAN tahun 2009 sampai sekarang dengan menekuni penelitian di bidang pemurnian pasir zirkonium menjadi zirkonium derajat nuklir dan industri, Pembuatan grafit berderajat nuklir dan pembuatan bahan bakar RST

bentuk bola. Selain itu, pada tahun 2009 sampai 2012 ikut serta dalam pembuatan dokumen studi kelayakan pabrik irradiasi latex alam. Semenjak menjadi karyawan BATAN memiliki jabatan fungsional sebagai Pranata Nuklir Ahli.



**Sarjono**, lahir di Deli Serdang 18 April 1967. Memperoleh gelar sarjana teknik dari Universitas Gadjah Mada Yogyakarta Fakultas Teknik Jurusan Teknik Nuklir pada tahun 1992, gelar magister diperoleh dari *Nuclear and Quantum Engineering - Korea Advanced Institute of Science and Technology* tahun 2005. Pengalaman di bidang penelitian diawali sejak masuk BATAN tahun 1997 sampai sekarang menekuni penelitian di bidang fabrikasi bahan bakar nuklir. Selama di BATAN pernah mengikuti MEXT *Nuclear Researchers Exchange Program di Research Institute of Nuclear Engineering – Fukui University* pada tahun 2013, dan saat ini menduduki jabatan fungsional Pranata Nuklir Muda.