



FAKTOR-FAKTOR YANG MEMPENGARUHI KOROSI LAPISAN SiC OLEH PALADIUM HASIL BELAH

Erlan Dewita
Pusat Pendayagunaan Iptek Nuklir

ABSTRAK

FAKTOR-FAKTOR YANG MEMPENGA-RUHI KOROSI LAPISAN SiC OLEH PALADIUM HASIL BELAH. Reaktor Temperatur Tinggi (RTT) adalah salah satu jenis reaktor daya tipe maju yang mempunyai sistim keselamatan pasif dan melekat, bermoderator grafit dan berpendingin helium. Pada umumnya, reaktor menggunakan partikel bahan bakar jenis TRISO yang terdiri dari 4 lapisan, mulai dari lapisan yang paling dalam yaitu *pyrolytic carbon* densitas rendah (PyC), *pyrolytic carbon* densitas tinggi sebelah dalam (IPyC), *silicon carbide* (SiC) dan *pyrolytic carbon* densitas tinggi sebelah luar (OPyC). Diantara keempat lapisan tersebut, SiC dipandang mempunyai peranan paling penting yang berfungsi selain mempertahankan integritas mekanik partikel bahan bakar, juga mempunyai kemampuan yang efektif dalam menahan hasil belah yang bersifat logam. Namun, hasil uji paska iradiasi menunjukkan bahwa hasil belah paladium dapat bereaksi dan mengkorosi lapisan SiC. Kajian mengenai faktor-faktor yang berpengaruh pada korosi lapisan SiC oleh hasil belah paladium dilakukan untuk memperoleh pemahaman tentang ketahanan lapisan SiC terhadap efek iradiasi, khususnya dalam usaha untuk menaikkan derajat bakar. Hasil kajian menunjukkan bahwa korosi selain dipengaruhi oleh karakteristik material lapisan SiC, juga terdapat faktor lain yang berpengaruh. Pengkayaan bahan bakar, derajat bakar, waktu iradiasi berpengaruh pada besarnya fluks paladium di dalam kernel bahan bakar. Densitas bahan bakar, tekanan uap Pd (besarnya tergantung pada temperatur iradiasi dan komposisi kernel) berpengaruh pada migrasi paladium di dalam kernel bahan bakar.

ABSTRACT

FACTORS AFFECTING THE CORROSION OF SiC LAYER BY FISSION PRODUCT PALLADIUM. HTR is one of the advanced nuclear reactors which has inherent safety system, grafit moderated and helium gas cooled. In general, these reactors are designed with the TRISO coated particle consist of four coating layers that are porous pyrolytic carbon (PyC), inner dense PyC (IPyC), silicon carbide (SiC), and outer dense PyC (OPyC). Among the four coating layers, the SiC plays an important role beside in retaining metallic fission products, it also provides mechanical strength to fuel particle. However, results of post irradiation examination indicate that fission product palladium can react with and corrode SiC layer. This assessment is conducted to get the comprehension about resistance of SiC layer on irradiation effects, especially in order to increase the fuel bum-up. The result of this shows that the corrosion of SiC layer by fission product palladium is beside depend on the material characteristics of SiC, and also there are other factors that affect on the SiC layer corrosion. Fuel enrichment, bum-up, and irradiation time affect on the palladium flux in fuel kernel. While, the fuel density, vapour prresure of palladium (the degree depends on the irradiation temperature and kernel composition) affect on palladium migration in fuel particle.

PENDAHULUAN

Reaktor Temperatur Tinggi (RTT) adalah salah satu jenis reaktor daya tipe maju yang mempunyai sistim keselamatan pasif dan melekat (*inherent and passive*) yang sangat handal. Reaktor dirancang beroperasi dengan bermoderator grafit, serta berpendingin helium yang sangat stabil terhadap suhu tinggi. Dalam pengoperasiannya dikenal ada 2 macam rakitan elemen bakar, yaitu tipe blok prisma yang dikembangkan oleh negara Jepang dan Amerika Serikat, sedang tipe rakitan yang lain adalah rakitan elemen bakar tipe bola yang dikembangkan oleh negara Jerman, Rusia dan Cina. Adapun bahan bakar yang

digunakan adalah bahan bakar partikel berlapis dengan inti bahan bakar persenyawaan uranium dengan peng-kayaan rendah (3~20%)⁽¹⁶⁾.

Secara umum kedua tipe bahan bakar RTT menggunakan partikel bahan bakar berlapis jenis TRISO yang terdiri dari 4 lapisan, mulai dari lapisan yang paling dalam, yaitu lapisan *pyrolytic carbon* densitas rendah (PyC), lapisan *pyrolytic carbon* densitas tinggi sebelah dalam (IPyC), lapisan *silicon carbide* (SiC) dan lapisan *pyrolytic carbon* densitas tinggi sebelah luar (OPyC). Lapisan-lapisan tersebut berperan sebagai sebuah bejana bertekanan (*pressure vessel*), untuk menampung gas-gas hasil belah maupun sebagai penahan terhadap hasil belah yang

lain untuk tetap berada di dalam partikel bahan bakar. Diantara keempat lapisan tersebut, SiC dipandang sebagai lapisan yang mempunyai peranan paling penting karena berfungsi selain mempertahankan integritas mekanik dan dimensi dari partikel bahan bakar, lapisan tersebut juga mempunyai kemampuan yang efektif dalam menahan hasil belah bersifat logam yang lepas dari partikel bahan bakar berlapis. Karena itu kinerja partikel bahan bakar selama iradiasi sangat ditentukan oleh integritas lapisan SiC.^(5,6,11)

Selama reaktor beroperasi, sejumlah hasil belah terbentuk di dalam bahan bakar. Uji paska iradiasi dan uji pemanasan paska iradiasi menunjukkan bahwa hasil belah paladium dan unsur-unsur lantanida dapat bereaksi dan mengkorosi lapisan SiC. Korosi dapat berakibat menurunkan kemampuan lapisan tersebut dalam menahan hasil belah dalam partikel bahan bakar. Kajian ini akan membahas mengenai faktor-faktor yang berperan/ berpengaruh terhadap korosi lapisan SiC dan fenomena yang terjadi serta alternatif yang dapat dilakukan dalam menghindari terjadinya korosi tersebut. Pengkajian dilakukan dengan menggunakan data-data yang berasal dari para peneliti di Jepang, Amerika dan Jerman. Hasil kajian ini diharapkan dapat memberikan masukan dalam memahami ketahanan lapisan SiC dari partikel bahan bakar RTT terhadap efek iradiasi, khususnya dalam usaha untuk menaikkan derajat bakar bahan bakar.

KONSEP REAKTOR TEMPERATUR TINGGI

1. Disain Reaktor Temperatur Tinggi

Reaktor Temperatur Tinggi (RTT) adalah salah satu jenis reaktor daya tipe maju yang mempunyai sistim keselamatan pasif dan melekat yang sangat handal⁽¹⁶⁾. Reaktor menggunakan moderator grafit dan pendingin gas helium. Reaktor dirancang dengan 2 tipe teras, yaitu teras RTT yang dikembangkan oleh Amerika dan Jepang) beroperasi menggunakan elemen bahan bakar bentuk heksagonal. Pada teras RTT Jepang, lima blok membentuk satu kolom yang mempunyai tinggi 2,9 m. Teras aktif yang berdiameter 2,3 m terdiri dari 30 kolom bahan bakar dan 7 kolom batang kendali. Teras dikelilingi oleh reflektor yang dapat diganti dan terdiri dari sebuah lapisan blok grafit heksagonal. Reflektor permanen dikelilingi reflektor-reflektor yang dapat

diganti dan terdiri dari blok grafit polygonal. Setiap blok grafit heksagonal mempunyai 3 dowel yang terletak di bagian atas dan 3 socket di bagian bawah. Teras reaktor berdiameter 5,5 m dan tinggi 13,8 m, terdiri atas inti reaktor dengan bejana bertekanan, reflektor dan internal reaktor. Reaktivitas dikontrol dengan menggunakan batang kendali yang masing-masing dioperasikan dengan mekanisme penggerak yang terletak pada pipa yang dihubungkan dengan tutup bagian atas bejana reaktor dan dimasukkan kedalam kanal dari teras dan daerah reflektor yang dapat diganti. *Shutdown* dari keadaan beroperasi rutin dilakukan dengan memasukkan 9 pasang batang kendali dalam daerah reflektor dan 7 pasang batang kendali teras yang berguna untuk *shutdown* dingin. Sedangkan pada reaktor RTT Amerika, teras aktif berdiameter 5,9 m dan tinggi 4,75 m dikelilingi oleh reflektor grafit dengan tebal 1,2 m. Setiap elemen bahan bakar heksagonal terbuat dari prisma grafit dengan lebar (sisi ke sisi berhadapan) 360 mm, tinggi 793 mm, dan 108 kanal pendingin yang berdiameter 15,9 mm serta 210 kanal bahan bakar yang berdiameter 12,7 mm. Teras terdiri dari 1482 elemen bahan bakar yang disusun kedalam 247 kolom dan dikelompokkan dalam 37 daerah *refuelling*. Aliran pendingin pada setiap daerah *refuelling* dikontrol dengan sebuah *orifice valve* yang terletak dibagian atas reaktor. Reaktor dimatikan untuk penggantian bahan bakar dan sekitar 1/6 daerah *refuelling* diganti setiap interval penggantian bahan bakar melalui penetrasi PCRV (*prestressed concrete reactor vessel*) yang secara terpusat terletak pada setiap daerah penggantian. Reaktor dirancang dengan interval penggantian setiap tahun dan hanya sebagian teras yang diganti untuk setiap tahunnya (1/6 untuk reaktor Fort St. Vrain, 1/4 untuk disain reaktor yang lain). Satu pasang batang kendali dioperasikan dengan penggerak elektrik dan *cable drum* yang disediakan dalam setiap daerah penggantian bahan bakar. Sebagai alat *shutdown* cadangan bola-bola B₄C dijatuhkan secara grafitasi ke dalam lubang-lubang dalam elemen bahan bakar.

Teras RTT dengan bahan bakar tipe bola, terdiri dari sebuah *pebble bed* yang berisi 100.000 bola bahan bakar dengan diameter ~ 6 cm di dalam reflektor grafit. Generator uap terletak diatas teras dan dilindungi terhadap radiasi dari teras dengan reflektor grafit setebal 50 cm pada bagian

sebelah atas, dan 2 lapisan karbon setebal 50 cm. Sebagai pendingin digunakan gas helium yang bertekanan 10 bar dan disirkulasi dengan 2 blower yang terletak pada bagian yang lebih rendah dari bejana reaktor. Gas helium dipanaskan dalam teras dari temperatur 270°C sampai 950°C dan kemudian mengalir melalui generator uap, dimana gas helium memindahkan energi ke rangkaian air/ uap. Untuk mengatur daya reaktor atau mematikan reaktor pada kondisi darurat, maka terdapat 2 buah sistim batang kendali. Yang pertama adalah adanya batang-batang kendali yang digerakkan dengan elektromotor. Batang-batang kendali ini dimaksudkan untuk mengendalikan daya reaktor apabila terjadi keadaan kecelakaan atau untuk mengoperasikan dan mematikan reaktor. Yang kedua adalah sistim kendali dengan memasukkan bola-bola penyerap yang dikeluarkan dari beberapa buah tempat pada reflektor. Bola-bola penyerap tersebut terdiri dari material boron karbida dengan diameter sekitar 1 cm dan untuk mengeluarkannya diperlukan sistim hisap yang terletak di bagian bawah teras. Sistim sirkulasi bahan bakar pada teras *pebble bed* yaitu bahan bakar dimasukkan ke dalam teras dengan sistim beberapa kali masuk ke dalam teras (sekitar 6 kali dalam jangka waktu 3 tahun). Pada sistim sirkulasi bahan bakar ini, terjadi penggantian dan pengeluaran bahan bakar, elemen moderator dan elemen penyerap secara kontinyu tanpa mematikan reaktor yang sedang beroperasi. Bahan bakar berbentuk bola dilewatkan secara gravitasi dari stasiun penggantian bahan bakar, kemudian dimasukkan kedalam teras. Bahan bakar yang berada di dalam teras, secara periodik dan kontinyu

dikeluarkan dengan sistim gravitasi melalui penghitung bahan bakar, kemudian dipisahkan mana yang masih baik dan mana yang sudah rusak. Bahan bakar yang sudah rusak ditampung di *container* bahan bakar rusak, sedangkan bahan bakar yang masih bagus bersama-sama dengan bahan bakar baru dikirim ke detektor fraksi bakar melalui suatu sistim pengatur. Selanjutnya dengan sistim komputasi bahan bakar ini dipilih mana yang fraksi bakarnya masih memenuhi dan mana yang tidak. Kemudian bahan bakar yang masih memenuhi syarat (bahan bakar baru dan bekas) dilewatkan ke sistim pemasukan bahan bakar untuk diumpankan kembali ke teras. Sedang bahan bakar yang tidak memenuhi syarat fraksi bakar tertentu, disimpan di penampungan bahan bakar bekas. Disamping sistem diatas, masih ada sistim sirkulasi yang lain yang disebut OTTO system, yaitu bahan bakar sekali masuk ke dalam teras kemudian seterusnya keluar (OTTO system).

2. Bahan bakar RTT

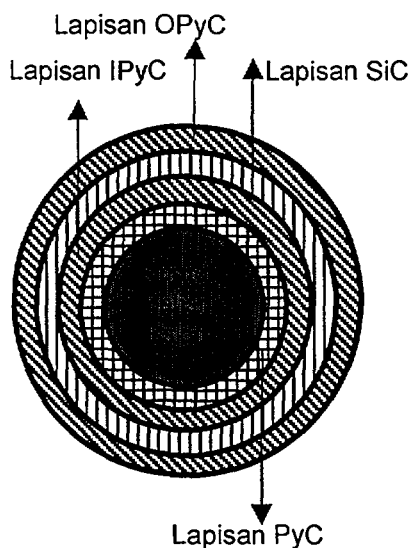
Reaktor Temperatur Tinggi (RTT) menggunakan bahan bakar partikel berlapis dengan pengkayaan rendah, berkisar 3~20%. Berbagai persenyawaan uranium yang digunakan sebagai inti bahan bakar RTT dapat dilihat pada Tabel 1.

Secara umum Reaktor Temperatur Tinggi menggunakan bahan bakar partikel berlapis jenis TRISO yang terdiri dari 4 lapisan dengan susunan yang ditunjukkan pada gambar 1, mulai dari lapisan yang paling dalam yaitu lapisan *pyrolytic carbon* densitas rendah (PyC) yang berpori-pori

Tabel 1. Persenyawaan uranium yang digunakan sebagai bahan bakar RTT ⁽¹⁰⁾

Negara	Nama Reaktor	Daya MW (e)	Bentuk bahan bakar	Bejana Reaktor	Status
US	Fort St.Vrain	330	Prismatik, jenis UC ₂ /ThC ₂	PRCV	Sedang dekomisioning
	HTGRs besar	880-1160	Prismatik, jenis UC ₂ /ThC ₂	PRCV	Tinjauan oleh NRC
	MHTGR	135	Prismatik, jenis UCO	Baja	Draft
	AVR	13	Pebble bed, jenis (U,Th)O ₂	Baja	Akan dekomisioning
Jerman	THTR	300	Pebble bed, jenis (U,Th)O ₂	PCRIV	Akan dekomisioning
	HTR-Modul	80	Pebble bed, jenis UO ₂	Baja	Disain tidak diteruskan
	HTR-50	550	Pebble bed, jenis UO ₂	PCRIV	Disain dan perijinan sedang disiapkan
Japan	HTTR	30 MW (t)	prismatik	Baja	Sedang konstruksi

untuk menampung gas-gas hasil belah, lapisan *pyrolytic carbon* densitas tinggi sebelah dalam (IPyC) berfungsi untuk menahan hasil belah, khususnya Kr dan Xe serta sebagai pelindung terhadap kernel bahan bakar dari reaksi dengan gas-gas yang digunakan dalam proses pelapisan SiC, lapisan *silicon carbide* (SiC) berfungsi untuk mempertahankan integritas mekanik dan dimensi dari partikel bahan bakar berlapis serta sebagai penahan terhadap hasil belah yang bersifat logam dan yang terluar adalah lapisan *pyrolytic carbon* densitas tinggi sebelah luar (OPyC) yang berfungsi secara mekanik melindungi lapisan SiC.

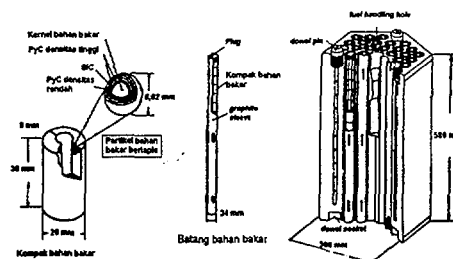


Gambar 1. Susunan partikel bahan bakar berlapis jenis TRISO⁽²⁾

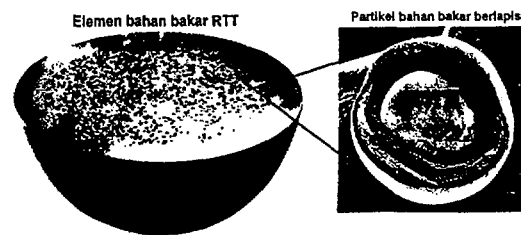
Partikel bahan bakar disusun menjadi 2 tipe rakitan elemen bakar, yaitu tipe blok prisma yang dikembangkan oleh negara Amerika Serikat dan Jepang, sedangkan tipe rakitan yang lain adalah rakitan elemen bakar tipe bola yang dikembangkan oleh negara Jerman, Rusia dan Cina. Pada elemen bahan bakar tipe prisma seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2, partikel bahan bakar berlapis bersama serbuk grafit dan bahan pengikat resin dipadatkan menjadi bentuk silinder berlubang ditengah yang disebut dengan kompak bahan bakar (*fuel compact*). Kompak bahan bakar tersebut diwadahi selongsong grafit menjadi sebuah batang bahan bakar (*fuel rod*) yang berukuran diameter luar 34 mm dan tinggi 577 mm (RTT Jepang). Batang-batang bahan bakar dimasukkan ke lubang-lubang vertikal yang ada pada blok grafit.

Pendingin gas helium mengalir di celah-celah diantara lubang dan batang bahan bakar. Sedang pada elemen bakar tipe bola, seperti yang ditunjukkan pada Gambar 3.

Partikel bahan bakar berlapis TRISO yang berjumlah 10.000~30.000 bersama dengan bahan matriks grafit dipadatkan menjadi bahan bakar bentuk bola dan kemudian diberi selongsong grafit setebal ~5mm. Diameter bahan bakar tipe bola adalah 4~6 cm. Pada kondisi normal RTT beroperasi pada temperatur 700~1200°C (RTT Jerman) dan 1000~1300°C (RTT Jepang).



Gambar 2. Elemen bakar tipe blok prisma⁽⁵⁾



Gambar 3. Elemen bahan bakar tipe bola⁽¹⁵⁾

3. Karakteristik Keselamatan RTT

Karakteristik keselamatan RTT adalah teras dengan koefisien reaktivitas temperatur negative dimana reaktivitas menurun jika temperatur dalam teras melebihi batas pengoperasian normal. Tindakan ini adalah melekat (*inherent*) dimana tidak tergantung pada operator reaktor, pemasukan batang kendali ataupun pada pengoperasian sistim proteksi reaktor yang lain. Konsep pengungkungan aktivitas radioaktif didasarkan pada prinsip ketahanan berlapis (*multiple barrier*), dimana hasil belah ditahan dengan sistim penahan sebagai berikut :

- Lapisan *silicon carbide* dan *pyrolytic carbon* pada partikel bahan bakar.
- Bahan matriks grafit dalam elemen bahan bakar.

- Bejana reaktor (*presstressed concrete*)
- Bangunan penungku reaktor yang dilengkapi dengan filter khusus untuk menahan hasil belah logam pada kondisi kecelakaan.

Karakteristik keselamatan yang lain adalah kapasitas panas yang tinggi dari teras reaktor, ketahanan komponen teras pada temperatur tinggi, kompatibilitas kimia dari bahan bakar, pendingin dan moderator, karakteristik fase tunggal dari pendingin helium, perubahan reaktivitas yang kecil sehubungan dengan kehilangan pendingin dari sistem reaktor, pertahanan berlapis terhadap kejadian *water ingress* dan *air ingress*, kemampuan mendinginkan reaktor dengan mekanisme perpindahan panas yang tersedia pada saat kecelakaan (*postulated accident*), serta kemampuan partikel bahan bakar berlapis dalam menahan hasil belah pada temperatur tinggi. Sedangkan RTT modul menambahkan karakteristik yang unik sehubungan dengan kemampuannya mendinginkan reaktor secara keseluruhan dengan mekanisme perpindahan panas pasif apabila terjadi kecelakaan, sehingga temperatur dalam reaktor tidak melebihi temperatur yang menyebabkan rusaknya partikel bahan bakar. Karakteristik ini dapat dicapai dengan menurunkan tingkat daya teras, densitas daya teras serta menyusun reaktor sehingga proses perpindahan panas yang terjadi secara natural (konduksi, konveksi natural dan radiasi) dapat membatasi temperatur bahan bakar pada tingkatan dimana pelepasan hasil belah dari sistem reaktor ke lingkungan dalam tingkatan yang sangat kecil apabila terjadi kecelakaan.

EFEK IRADIASI TERHADAP KOROSI LAPISAN SiC

Reaktor yang beroperasi akan menghasilkan sejumlah hasil belah di dalam bahan bakar. Pada kondisi normal, bahan bakar RTT telah dirancang untuk menampung 100% hasil belah yang dihasilkan. Namun, dari hasil uji paska iradiasi dan uji pemanasan paska iradiasi ditunjukkan bahwa hasil belah paladium dan unsur-unsur lantanida dapat berinteraksi kimia dengan lapisan SiC sehingga menimbulkan korosi, meskipun tingkat korosinya sangat rendah pada reaktor yang beroperasi dengan kondisi normal. Beberapa faktor (temperatur bahan bakar, pengkayaan, derajat bakar, waktu iradiasi,

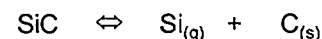
tekanan uap Pd) diduga berpengaruh terhadap korosi lapisan SiC oleh paladium dan berbagai pendapat telah dikemukakan oleh para peneliti. Pearson et.al⁽¹¹⁾ menyebutkan bahwa korosi lapisan SiC oleh Pd tergantung hanya pada temperatur dan tidak tergantung pada perbedaan morfologi kernel bahan bakar. Tieg's⁽¹²⁾ menyebutkan bahwa temperatur merupakan faktor utama yang mempengaruhi laju korosi SiC oleh paladium, sedangkan faktor-faktor lainnya seperti komposisi kernel, konsentrasi paladium dan karakteristik SiC merupakan faktor sekunder.

1. Karakteristik lapisan SiC

Silicon carbide yang digunakan sebagai salah satu lapisan pada partikel bahan bakar RTT, dihasilkan dari campuran *Methylchloro Silane* (CH_3SiCl_3 , MTS) dan hidrogen (H_2) melalui proses *CVD = Chemical Vapor Deposition* (proses pengendapan uap bahan kimia) dengan sebuah alat pelapis *fluidized bed*. *Silicon carbide* adalah merupakan bahan yang mempunyai karakteristik sebagai berikut :

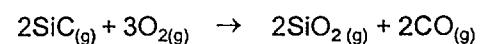
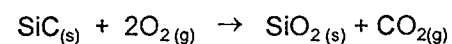
1. Kekuatan mekanik tinggi
2. Konduktivitas panas tinggi ($28\sim 75 \text{ Wm.K}^{-1}$ pada temperatur 600°C)
3. Tahan terhadap sebagian besar bahan kimia.⁽¹⁾
4. Tahan terhadap temperatur tinggi ($\sim 1700^\circ\text{C}$)^(1,3)

Pada temperatur diatas 1700°C (yang diperkirakan dapat dicapai apabila terjadi kecelakaan), *silicon carbide* akan terurai sebagai berikut :



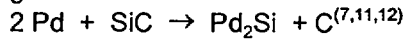
Dalam tenggang waktu tertentu, silicon meninggalkan sistem dan hanya struktur carbon yang tertinggal dalam lapisan SiC, sehingga dapat mengakibatkan struktur yang tertinggal menjadi tidak mampu menahan hasil belah yang bersifat mudah menguap (*volatil*), seperti : cesium dan stronsium.

5. Ketahanan oksidasi yang baik sampai temperatur 1500°C
Oksidasi SiC pada tekanan parsial oksigen yang tinggi terjadi dengan reaksi sebagai berikut :

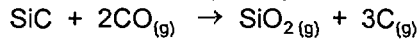


Pembentukan lapisan SiO₂ yang bersifat protektif pada permukaan SiC dapat menahan proses oksidasi selanjutnya (*passive oxidation*)⁽¹⁴⁾.

6. Dapat bereaksi dengan hasil belah paladium (Pd) dan unsur-unsur lantanida, dimana reaksi dengan paladium adalah sebagai berikut^(10,6,11) :



7. Dapat bereaksi dengan CO (dihasilkan dalam kernel akibat reaksi antara oksigen dengan karbon dari lapisan)⁽⁸⁾



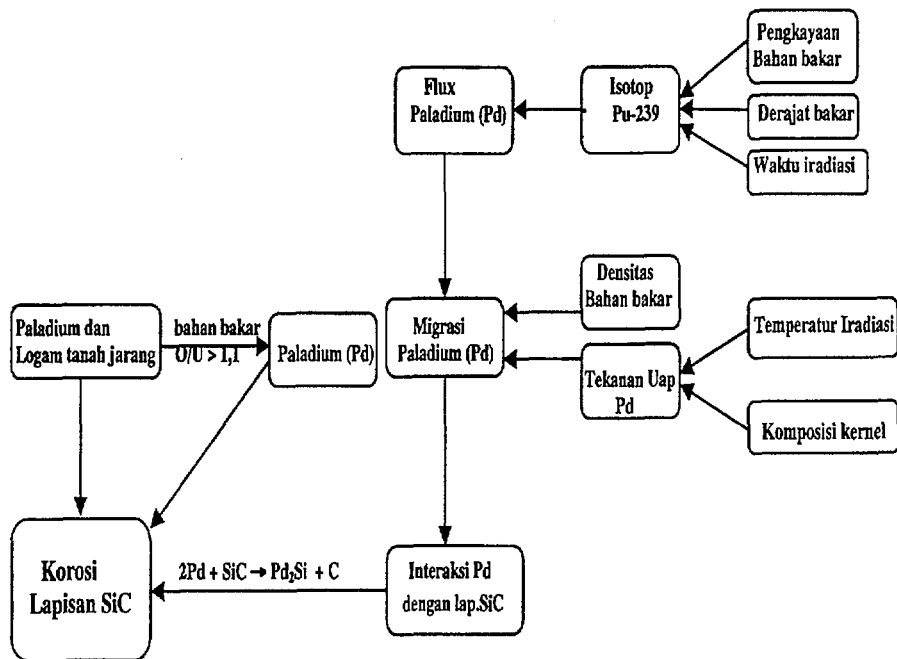
2. Faktor-faktor yang mempengaruhi korosi lapisan SiC oleh paladium

Korosi pada lapisan SiC merupakan salah satu faktor yang membatasi kinerja bahan bakar Reaktor Temperatur Tinggi (RTT). Korosi dapat terjadi disebabkan oleh adanya interaksi antara lapisan SiC dengan hasil belah dan antara lapisan SiC dengan gas CO (hasil reaksi antara oksigen yang dihasilkan dalam bahan bakar selama iradiasi dengan carbon dari lapisan). Namun dari berbagai uji paska iradiasi dan uji pemanasan paska iradiasi diketahui bahwa diantara hasil belah yang terbentuk, hanya paladium (Pd) dan unsur-unsut lantanida yang bereaksi dengan lapisan SiC⁽⁶⁾. Sementara itu pada bahan bakar UO₂

dengan rasio oksigen terhadap uranium (O/U) > 1,1 diketahui bahwa unsur-unsur lantanida berada dalam bentuk senyawa oksida yang stabil⁽⁶⁾, sehingga paladium dipandang merupakan hasil belah bersifat logam yang terutama bereaksi dengan lapisan SiC. Berdasarkan mekanisme korosi yang terjadi yaitu diawali dengan terbentuknya Pd didalam kernel bahan bakar, bermigrasi dan kemudian berinteraksi kimia dengan lapisan SiC, maka terdapat beberapa faktor yang berpengaruh seperti ditunjukkan dengan diagram alir seperti pada Gambar 4, yaitu :

1. Jumlah paladium. Jumlah paladium dalam bahan bakar dipengaruhi oleh jumlah isotop plutonium, pengkayaan bahan bakar, derajat bakar dan waktu iradiasi.

Proses pembelahan dari atom-atom logam berat akan menghasilkan paladium (Pd). Diantara atom-atom logam berat dapat belah diketahui bahwa plutonium-239 menghasilkan isotop paladium yang tertinggi, yaitu ± 10 kali dibanding dengan yang dihasilkan oleh isotop U-235 (Tabel 2). Oleh karena itu jumlah paladium di dalam bahan bakar sangat tergantung pada jumlah isotop plutonium. Sedangkan rasio plutonium dan uranium dalam bahan bakar selama iradiasi tergantung pada pengkayaan



Gambar 4. Faktor-faktor yang berpengaruh terhadap korosi lap. SiC oleh hasil belah Paladium

Tabel 2. Jumlah hasil belah yang terakumulasi
(Basis : 100 fission/ energi neutron termal)⁽¹⁰⁾

No Atom	Hasil belah	Persen hasil			
		²³³ U	²³⁵ U	²³⁹ Pu	²⁴¹ Pu
32	Ge	0,020	0,005	0,004	0,001
33	As	0,008	0,001	0,000	0,000
34	Se	1,028	0,530	0,402	0,172
35	Br	0,291	0,196	0,175	0,062
36	Kr	6,073	3,791	1,658	1,334
37	Rb	5,711	3,566	1,433	1,110
38	Sr	12,378	9,565	3,481	2,627
39	Y	6,287	4,877	1,699	1,177
40	Zr	32,612	31,040	18,876	15,743
41	Nb	0,000	0,000	0,000	0,000
42	Mo	21,231	24,416	22,950	20,204
43	Tc	4,891	6,104	6,169	6,303
44	Ru	6,716	11,138	17,954	19,162
45	Rh	1,675	3,040	6,951	6,133
46	Pd	0,947	1,609	15,905	22,561
47	Ag	0,045	0,033	1,654	2,249
48	Cd	0,07	0,067	0,575	1,052
49	In	0,012	0,010	0,036	0,040
50	Sn	0,319	0,130	0,436	0,225
51	Sb	0,144	0,058	0,195	0,091
52	Te	2,802	2,119	3,105	2,007
53	I	2,140	0,827	2,001	0,985
54	Xe	28,386	27,810	30,983	28,014
55	Cs	12,811	12,930	13,661	13,398
56	Ba	6,008	6,770	6,144	6,859
57	La	6,311	6,385	5,681	5,881
58	Ce	13,114	12,183	10,566	11,385
59	Pr	6,536	5,838	5,289	5,028
60	Nd	18,182	20,640	16,217	18,781
61	Pm	1,710	2,229	2,050	2,392
62	Sm	1,327	1,833	2,883	3,671
63	Eu	0,125	0,193	0,535	0,800
64	Gd	0,019	0,022	0,245	0,423
65	Tb	0,001	0,001	0,021	0,049
Jumlah tanah jarang		47,325	49,324	43,487	48,410

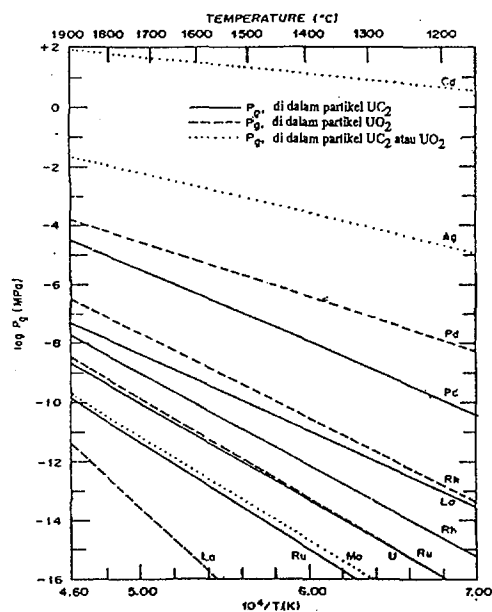
bahan bakar. Pada bahan bakar dengan pengkayaan rendah, kontribusi Pu-239 meningkat dengan meningkatnya derajat bakar. Hal ini disebabkan karena makin rendah pengkayaan bahan bakar, maka prosentase U-238 makin kecil bila dibandingkan dengan U-235. Selanjutnya mengingat bahwa waktu paruh dari isotop paladium (105, 107, 108 dan 110) kecuali Pd-106 adalah sekitar beberapa puluh jam, sedangkan Pd-196 adalah 369 hari maka fluks paladium di dalam bahan bakar selain dipengaruhi oleh

pengkayaan bahan bakar dan meningkatnya derajat bakar, juga dipengaruhi oleh meningkatnya waktu iradiasi.

2. Migrasi paladium. Migrasi paladium dipengaruhi oleh tekanan uap, temperatur radiasi, komposisi kernel dan densitas bahan bakar.

Mekanisme terjadinya korosi pada lapisan SiC oleh hasil belah paladium disebabkan karena terbentuknya paladium di dalam kernel bahan bakar, kemudian bermigrasi dan berinteraksi

secara kimia dengan lapisan SiC. Migrasi Pd dimulai dari migrasi di dalam kernel bahan bakar dimana proses migrasinya dipengaruhi oleh beberapa faktor. Di dalam kernel bahan bakar UO_2 , hasil belah paladium berkelompok bersama hasil belah yang bersifat logam lainnya membentuk paduan yang terdiri dari Mo-Ru-Rh-Tc-Pd(5). Diantara hasil belah yang terkandung dalam paduan tersebut, diketahui bahwa Pd mempunyai tekanan uap yang tertinggi dimana tekanan uap tersebut meningkat dengan makin meningkatnya temperatur, seperti yang ditunjukkan pada Gambar 5.



Gambar 5. Tekanan uap campuran bahan bakar - produk fisi yang telah terakumulasi sebagai fungsi temperatur (dihitung menggunakan SCLGASMXPV⁽¹⁰⁾)

Pada gambar tersebut juga ditunjukkan bahwa tekanan uap Pd ini dipengaruhi oleh komposisi kernel. Tekanan uap Pd pada kernel bahan bakar UO_2 adalah lebih rendah dibanding dengan tekanan uap Pd pada kernel bahan bakar UC_2 . Selain itu migrasi paladium di dalam bahan bakar juga dipengaruhi oleh densitas bahan bakar. Hal ini telah dibuktikan dengan mengukur konsentrasi Pd dalam kernel bahan bakar UO_2 , dimana pada suhu 1623°K (1350°C) hasil belah Pd lepas dari paduannya dan berada dalam pori-pori UO_2 dengan kedalaman tembusan lebih dari 100 μ m

untuk pelet dengan densitas 90% TD dan $\pm 50\mu$ m untuk pelet dengan densitas 95% TD. Sedangkan dalam lapisan pyrolytic carbon, hasil belah Pd dapat bermigrasi dengan cepat, dimana hal ini ditegaskan dengan nilai koefisien difusi Pd dalam lapisan PyC yang telah diukur pada suhu 1300°C adalah $7,5 \times 10^{-8} \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ dan juga dibuktikan dengan tidak adanya hasil belah Pd dalam lapisan tersebut⁽¹³⁾.

PEMBAHASAN

Sebagaimana telah diuraikan diatas bahwa korosi pada lapisan SiC terjadi karena terbentuknya Pd oleh proses fisi di dalam kernel bahan bakar, kemudian bermigrasi dan berinteraksi secara kimia dengan lapisan SiC. Berdasarkan mekanisme tersebut dilakukan analisa sederhana, bahwa korosi dapat dihindari apabila hasil belah Pd tidak bermigrasi sampai mencapai lapisan SiC. Proses migrasi Pd untuk mencapai lapisan tersebut adalah melalui migrasi di dalam kernel bahan bakar dan di dalam lapisan PyC. Namun mengingat migrasi Pd di dalam lapisan PyC berlangsung cepat^(7,13), maka migrasi Pd di dalam kernel bahan bakar adalah merupakan mekanisme utama yang penting diperhatikan terhadap terjadinya korosi. Proses migrasinya selain dipengaruhi oleh densitas bahan bakar, juga dipengaruhi oleh tekanan uap Pd yang besarnya bergantung pada komposisi kernel (tekanan uap Pd di dalam bahan bakar UO_2 lebih rendah dari pada di dalam bahan bakar UC_2)⁽¹¹⁾ dan temperatur iradiasi. Sehingga apabila ditentukan inti bahan bakar yang digunakan adalah UO_2 dengan O/U > 1,1 (pada bahan bakar tersebut diketahui bahwa hanya hasil belah Pd yang terutama berinteraksi dengan lapisan SiC) dan densitas 95% TD (merupakan densitas yang dipandang mempunyai efek yang kecil terhadap tembusan Pd⁽⁹⁾), maka temperatur iradiasi merupakan faktor utama yang berpengaruh terhadap korosi lapisan SiC. Hal ini disebabkan karena meningkatnya temperatur iradiasi dapat meningkatkan tekanan uap Pd yang kemudian dapat menyebabkan meningkatnya laju migrasi Pd. Selanjutnya dengan mengacu pada persamaan reaksi yang terjadi antara lapisan SiC dengan Pd, yaitu $2 \text{ Pd} + \text{SiC} \rightarrow \text{Pd}_2\text{Si} + \text{C}$ maka laju korosi selain dipengaruhi oleh karakteristik lapisan SiC, juga tergantung pada fluks paladium yang mencapai lapisan SiC. Besarnya fluks paladium di dalam kernel

bahan bakar meningkat dengan meningkatnya derajat bakar dan waktu iradiasi, yang secara tidak langsung juga berpengaruh terhadap laju korosi. Oleh karena itu meskipun temperatur iradiasi merupakan faktor utama yang berpengaruh terhadap korosi lapisan SiC, namun laju korosi tidak lepas dari pengaruh faktor-faktor yang lain, seperti terlihat pada Gambar 4. Selanjutnya meskipun hasil belah paladium telah diketahui dapat mengkorosi lapisan SiC, pada kondisi operasi normal (derajat bakar 3,6% FIMA, temperatur 1000~1300°C untuk RTT jepang dan derajat bakar 10% FIMA, temperatur 700~1200°C untuk RTT jerman) korosi yang terjadi masih berada pada tingkatan yang tidak membahayakan (hanya terjadi korosi lokal pada sebelah dalam lapisan sic⁽⁵⁾). Namun demikian, dalam rangka untuk meningkatkan derajat bakar, maka beberapa penelitian terhadap korosi lapisan SiC oleh hasil belah Pd telah dilakukan dengan cara mencegah adanya Pd yang bermigrasi keluar dari kernel bahan bakar, yaitu dengan cara menambah lapisan SiC dan SiC +PyC yang diletakkan pada sebelah dalam lapisan SiC. Partikel dengan lapisan tambahan ini telah diuji kinerja dan efektifitasnya dalam menahan migrasi Pd pada uji iradiasi dengan derajat bakar 3,7 dan 7,0% dan temperatur iradiasi 1330°C. Hasil pengujian menunjukkan bahwa partikel dengan lapisan tambahan tersebut mempunyai kinerja yang baik dan berfungsi secara efektif dalam menahan korosi, meskipun untuk penyempurnaan masih diperlukan uji iradiasi yang lebih jauh. Alternatif lain yang juga sedang diusahakan untuk menghindari korosi pada lapisan SiC adalah digunakannya zirconium carbide (ZrC) untuk mengganti lapisan SiC. Beberapa hasil pengujian menunjukkan bahwa partikel berlapis TRISO dengan ZrC mempunyai stabilitas temperatur yang lebih tinggi dan mempunyai ketahanan yang lebih tinggi terhadap serangan hasil belah seperti paladium dibanding dengan lapisan SiC.

KESIMPULAN

Berdasarkan analisa terhadap mekanisme korosi yang terjadi, yaitu terbentuknya hasil belah paladium (Pd) di dalam kernel bahan bakar, kemudian bermigrasi dan berinteraksi kimia dengan lapisan SiC, maka disimpulkan bahwa korosi selain dipengaruhi oleh karakteristik lapisan SiC juga diketahui terdapat beberapa faktor

yang berpengaruh terhadap korosi lapisan tersebut, yaitu pengkayaan bahan bakar, derajat bakar, waktu iradiasi berpengaruh terhadap besarnya jumlah paladium di dalam kernel bahan bakar, densitas bahan bakar, tekanan uap Pd (besarnya tergantung pada temperatur iradiasi dan komposisi kernel) berpengaruh terhadap migrasi paladium di dalam bahan bakar dan temperatur iradiasi.

PUSTAKA

- [1]. BLOOR, D., et.al, The Encyclopedia of Advanced Materials, 4 (1994)
- [2]. MILLER, G. K. and WADSWORTH, D. C., *Nuclear Technology*, (1995) 110, 396
- [3]. NABIELEK, H., SCHENK, W., HEIT, W., MEHNER, A.W. and GOODIN, D.T., *Nuclear Technology*, (1989) 84,62
- [4]. WITULSKI, H., Proceedings of a technical committee meeting and workshop on nuclear heat application, IAEA, (1984)
- [5]. FUKUDA, K., OGAWA, T., HAYASHI, K., SHIOZAWA, S., TSURUTA, H., TANAKA, I., *Journal of Nuclear Science and Technology*, 28 (1991) 570
- [6]. MINATO, K., OGAWA, T., KASHIMURA, S., FUKUDA, K., SHIMIZU, M., TAYAMA, Y. and TAKAHASHI, I., *Journal of Nuclear Materials*, 172 (1990)184
- [7]. MINATO, K., FUKUDA, K., ISHIKAWA, A., MITA, N., *Journal of Nuclear Materials*, 246 (1997) 215
- [8]. MINATO, K., FUKUDA, K., SEKINO, H., ISHIKAWA, A., OEDA, E., *Journal of Nuclear Materials*, 252 (1998)13
- [9]. YONEYAMA, M., SATO, S., OHASHI, H., OGAWA, T., ITO, A., FUKUDA, K., *Journal of Nuclear Materials*, 247 (1997) 50
- [10]. Karcz, P.J., et.al, Proceedings of the 2nd JAERI symposium on HTGR technologies, (1992)
- [11]. PEARSON, R.L., LINDEMNER, T.B. and BEAHM, E.C., Oak Ridge National Laboratory, Report ORNL/TM-6691(1980)
- [12]. TIEGS, T.N., *Nuclear Technology* 57 (1982) 389
- [13]. NAMBA, T., MINATO, K., YAMAWAKI, M., FUKUDA, F., Report JAERI-M, (1988) 87-218

- [14]. Yano, T., et.al, *Journal of Nuclear materials*, 233-237 (1996) 1275-1278
- [15]. SCHENK, W., NABIELEK, H., *Nuclear Tecnology*, 96 (1991) 323
- [16]. *Gas Cooled Reactor Design and Safety*, Technical Reports Series No.312, IAEA, Vienna, (1990)

TANYA JAWAB

Sahat Simbolon

- Apa yang menyebabkan gas-gas yang dihasilkan dari kernel dapat masuk ke PyC?
- Berapa besar volum PyC?
- Bagaimana reaksi Pd dan SiC dapat terjadi padahal keduanya inert?

Erlan Dewita

- Gas-gas yang masuk ke dalam PyC dapat terjadi karena derajat bakar yang tinggi dan temperatur yang tinggi, karena derajat bakar dan temperatur yang tinggi menyebabkan gas-gas lebih mudah lepas dari kernel bahan-bakar.
- Dimensi dari PyC adalah 90 μm (terbesar bila dibandingkan dengan lapisan lain seperti SiC : 35 μm , IPyC : 40 μm dan OPyC : 35 μm)
- Dari beberapa hasil uji pasca iradiasi dengan mikroskop optik dan elektron probe mikroanalizer dan diperkuat dengan analisa dispersive energy yang dilakukan oleh peneliti di Jepang dan

Jerman diketahui selain Pd juga unsur-unsur Lantanida dapat bereaksi dengan SiC namun karena untuk bahan bakar dengan O/U > 1,1 diketahui bahwa hanya Pd yang dapat bereaksi dengan SiC. Memang SiC merupakan bahan yang tahan terhadap bahan kimia, tetapi mungkin bila kondisinya sangat ekstrim (temperatur tinggi) maka korosi lapisan SiC dapat terjadi.

Suwoto

- Faktor apa yang sangat dominan yang mempengaruhi korosi pada lapisan SiC oleh hasil belah Pd?

Erlan Dewita

- Berbagai faktor seperti: pengayaan bahan bakar, derajat bakar, waktu iradiasi, densitas bahan bakar, tekanan uap Pd (yang besarnya tergantung komposisi kernel) dan temperatur iradiasi. Apabila kita tentukan bahan bakar yang digunakan adalah UO_2 (yang menghasilkan Pd lebih tinggi dibanding UC_2), derajat bakar adalah derajat bakar pada kondisi operasi normal dan densitas 95% TD (merupakan densitas yang dipandang mempunyai efek yang kecil terhadap tembusan Pd), maka temperatur iradiasi merupakan faktor utama (dominan) yang berpengaruh terhadap korosi lapisan SiC