

# Urania

## Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir

Beranda jurnal: <http://jurnal.batan.go.id/index.php/urania/>



### PENGARUH JENIS PREKURSOR DAN METODE PRENETRALISASI PADA MORFOLOGI PERMUKAAN KERNEL TERSINTER ZIRKONIA

Sarjono<sup>1</sup>, Gagad Rahmadi<sup>1</sup>, Ety Mutiara<sup>1</sup>, Mujinem<sup>1</sup>, Dedy Haryadi<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir - BATAN

Kawasan PUSPIPTEK Serpong Gd. 65, Tangerang Selatan, Banten 15314

e-mail: tedsardjana@gmail.com

(Naskah diterima: 18–03–2021, Naskah direvisi: 20–04–2021, Naskah disetujui: 28–06–2021)

#### ABSTRAK

**PENGARUH JENIS PREKURSOR DAN METODE PRENETRALISASI PADA MORFOLOGI PERMUKAAN KERNEL TERSINTER ZIRKONIA.** Telah dilakukan kegiatan penelitian tentang pengaruh jenis prekursor dan metode prenetralisasi pada morfologi permukaan kernel tersinter zirkonia. Morfologi permukaan dengan kekasaran minimum dikehendaki pada riset pengembangan sistim pelapisan TRISO. Beberapa batch larutan *broth* dipreparasi dengan beberapa rute menggunakan jenis prekursor dan metode prenetralisasi yang berbeda. Jenis prekursor yang digunakan adalah zirkonium oksinitrat dan zirkonium nitrat pentahidrat dan preparasi sol dilakukan secara presipitasi-redispersi dan dekomposisi urea. Tahap-tahap eksperimen meliputi preparasi sol, preparasi *broth*, proses *gel-casting*, proses *aging-washing-drying*, proses *de-watering*, perlakuan panas kalsinasi dan sintering, dan pemeriksaan visual morfologi permukaan. Pengukuran sferisitas dilakukan pada gel sferis kering untuk mempelajari hubungan level kejenuhan sol dan kemampuannya terkonversi secara seketika pada reaksinya dengan gas NH<sub>3</sub> pada proses *gel-casting*. Hasil pengamatan visual SEM dari permukaan kernel zirkonia tersinter menunjukkan bahwa kekasaran permukaan paling minim diberikan oleh kernel dari prekursor zirkonium nitrat pentahidrat dengan metode prenetralisasi dekomposisi urea dan permukaan paling kasar diberikan oleh kernel dari prekursor zirkonium oksinitrat dengan prenetralisasi secara presipitasi-redispersi.

**Kata kunci:** kernel, zirconia, prekursor, prenetralisasi, kekasaran permukaan.

## **ABSTRACT**

**EFFECT OF PRECURSOR TYPES AND PRENEUTRALIZATION METHODS ON SURFACE MORPHOLOGY OF SINTERED ZIRCONIA KERNEL.** *Research activities have been carried out on the effect of precursor types and preneutralization methods on the surface morphology of sintered zirconia kernels. Surface morphology with minimum roughness is desired in the development of TRISO coating system. Several batches of broth solution were prepared by several routes using different types of precursors and preneutralization methods. The types of precursors used were zirconium oxynitrate and zirconium nitrate pentahydrate and the preparation of sol was carried out by precipitation-redispersion and urea decomposition. The experimental stages included sol preparation, broth preparation, gel-casting process, aging-washing-drying process, de-watering process, heat treatment of calcination and sintering, and visual examination of surface morphology. Sphericity measurements were carried out on dry spherical gels to study the level of saturation of the sol and its ability to convert instantly upon reaction with NH<sub>3</sub> gas in the gel-casting process. The results of SEM visual observations of the surface of the sintered zirconia kernel show that the lowest surface roughness was given by the kernel from zirconium nitrate pentahydrate precursor with urea decomposition pre-neutralization method, and the roughest surface was given by the kernel from zirconium oxynitrate precursor with pre-neutralization method of precipitation-redispersion.*

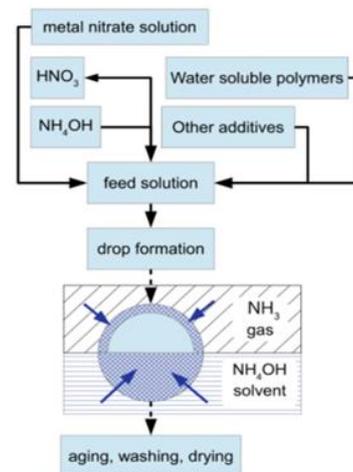
**Keywords:** *kernel, zirconia, precursor, preneutralization, surface roughness.*

## PENDAHULUAN

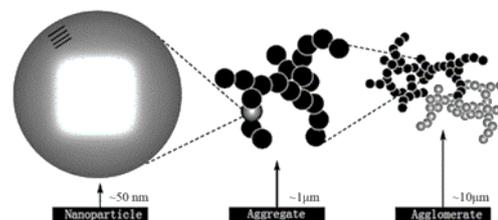
Kernel zirkonia yang digunakan pada pengembangan sistim pelapisan TRISO disyaratkan memiliki kebulatan yang sangat baik, kekasaran permukaan minimal yang dapat dicapai, dan tidak ada cacat retak [1], sementara itu aglomerasi pada peristiwa pengendapan dapat menyebabkan distribusi partikel yang tidak merata yang menyebabkan perubahan variabel seperti kekasaran permukaan [2]. Level kekasaran permukaan minimal ditentukan dari perbandingan visual dari *image* SEM dengan pembesaran yang sama dari kernel yang dipreparasi dari jenis prekursor dan metode prenetralisasi yang berbeda. Kegiatan ini difokuskan pada penelitian untuk mempelajari pengaruh jenis prekursor dan metode prenetralisasi pada morfologi permukaan kernel zirkonia tersinter. Jenis prekursor zirkonium yang tersedia di pasaran adalah jenis zirkonium oksinitrat dan zirkonium nitrat pentahidrat, dan menurut literatur metode prenetralisasi yang dapat diterapkan pada penyiapan sol adalah metode presipitasi-redispersi dan metode dekomposisi urea. Kombinasi parameter jenis prekursor and metode prenetralisasi akan menghasilkan gel hidroksida dengan level aglomerasi tertentu dan selanjutnya mempengaruhi struktur morfologi permukaan dari produk kernel oksida zirkonium yang dihasilkan.

Untuk memudahkan proses gelasi, larutan prekursor nitrat biasanya dibuat dalam kondisi kekurangan asam atau *acid deficient* dengan membatasi konsentrasi nitrat selama pelarutan atau disebut juga prenetralisasi dengan penambahan amonium hidroksida ( $\text{NH}_4\text{OH}$ ). Proses prenetralisasi dimaksudkan untuk pengerasan permukaan droplet atau presolidifikasi oleh gas amonia sebelum reaksi gelasi bagian lebih dalam dari droplet pada kolom amonium hidroksida. Mekanisme ini merupakan fitur metode gelasi secara eksternal (Gambar 1). Presolidifikasi permukaan ini bertujuan agar tidak terjadi deformasi bentuk karena benturan droplet dengan permukaan cairan  $\text{NH}_4\text{OH}$  yang memiliki tegangan permukaan [3].

Secara umum, proses gelasi merupakan proses presipitasi. Partikel nano dari presipitat memiliki kecenderungan kuat untuk membentuk agregat dan aglomerat, dan aglomerat ini menyebabkan ketidak-homogenan porositas [4]. Diagram skematis pembentukan agregat dan aglomerat pada proses presipitasi ditunjukkan pada Gambar 2.



Gambar 1. Mekanisme gelasi secara eksternal pada proses sol-gel.



Gambar 2. Diagram skematis pembentukan agregat dan aglomerat pada proses presipitasi [5].

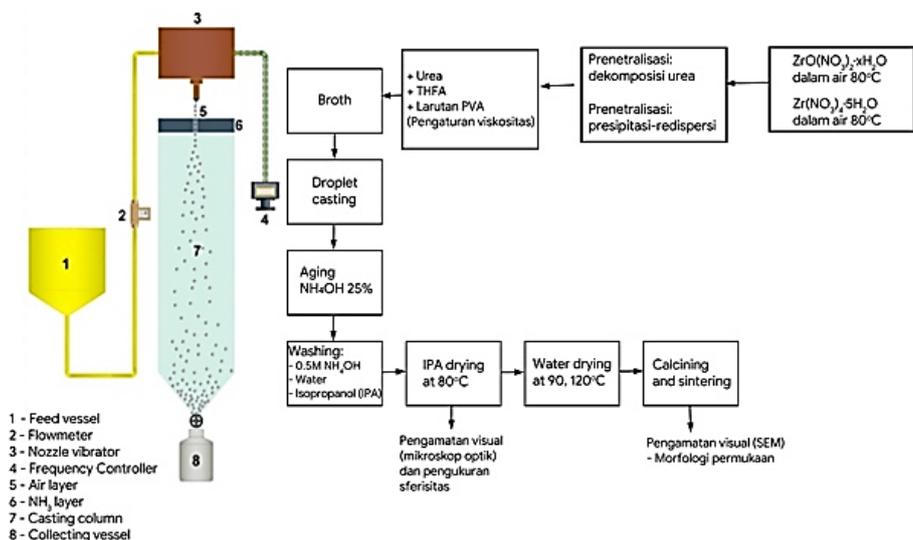
Mekanisme pembentukan nanopartikel dalam proses presipitasi kimia merupakan proses yang agak kompleks sampai akhirnya presipitat secara fisik berada pada bentuk aglomerat. Jenis prekursor zirkonium nitrat pentahidrat dan zirkonium oksinitrat dimungkinkan memiliki tahap pembentukan aglomerat zirkonium hidroksida yang berbeda dan menghasilkan struktur dengan level amorfitas yang berbeda pula. Struktur oksida zirkonium juga dipengaruhi oleh struktur senyawa amorf antara. Presipitasi zirkonium hidroksida selalu disertai dengan koagulasi spontan dari partikel-partikel presipitat yang terdispersi membentuk fraktal agregat dan selanjutnya agregat membentuk aglomerat [6]. Aglomerat biasanya dapat diklasifikasikan sebagai aglomerat 'keras' dan 'lunak', tergantung pada sifat kimiawi ikatan antar partikel dan gaya antar partikel antara partikel dan kelompok. Aglomerat keras memiliki ikatan yang kuat antar partikel, biasanya karena reaksi parsial antar partikel. Aglomerat lunak disatukan oleh gaya fisik yang lemah, seperti gaya van der Waals, dan dapat lebih mudah dipecah [7]. Aglomerat akan mempertahankan identitasnya selama dan setelah proses kalsinasi [8].

## METODOLOGI

### a. Bahan dan alat

Bahan dan alat yang digunakan meliputi: zirkonium oksinitrat ( $ZrO(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ ), zirkonium nitrat pentahidrat ( $Zr(NO_3)_4 \cdot 5H_2O$ ), yttrium nitrat ( $Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ ), urea, *polyvinyl alcohol* (PVA), *tetra hydrofurfryl alcohol* (THFA),  $NH_4OH$ , gas  $NH_3$ , air demineral, *Isopropyl alcohol* (IPA), gelas beker, gelas ukur, pengaduk magnetik, pipet plastik, tungku pemanas, termometer, viskometer, sistim gelas eksternal, peralatan *aging-washing-drying*, botol wadah kernel, oven *Ultra Clean*, alat sinter mini, mikroskop optik portabel, dan *Scanning Electron Microscope* (SEM).

Secara skematik tahap-tahap proses eksperimen disajikan pada Gambar 3. Proses preparasi kernel zirkonia diawali dari penyiapan larutan PVA, penyiapan larutan sol, penyiapan larutan *broth*, proses *droplet casting*, proses *aging-washing-drying*, kasinasi dan penyinteran. Beberapa karakterisasi dilakukan sesuai dengan parameter yang hendak dipelajari seperti pengukuran sferisitas gel kering untuk mempelajari kompatibilitas sol dengan sistim gelas eksternal dan pemeriksaan kernel tersinter dengan SEM untuk mempelajari morfologi permukaan kernel.



Gambar 3. Diagram skematik preparasi kernel zirkonia tersinter

### b. Penyiapan larutan PVA

PVA merek Aldrich *Mowiol 56-98* sebanyak 12 g dilarutkan dalam 150 ml air (sehingga diperoleh komposisi 8% berat PVA) pada kisaran temperatur 30 - 70 °C sampai PVA larut dan bening mengental.

### c. Penyiapan larutan sol

**Rute 1: Prekursor zirkonium oksinitrat dengan prenetralisasi secara presipitasi-redispersi.** Sejumlah zirkonium oksinitrat ( $ZrO(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ ) dan yttrium nitrat ( $Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ ) dengan kandungan yttrium nitrat 16% mol dilarutkan dalam 200 ml air demineral sehingga diperoleh kandungan metal 1,8 mol/l pada temperatur 80 °C. Sejumlah  $NH_4OH$  28% diencerkan 4 kali dan dengan menggunakan pipet plastik 3 ml ditambahkan secara penetesan. Distribusi gumpalan presipitasi yang terbentuk diaduk sehingga terdispersi kembali. Penambahan

$NH_4OH$  melalui penetesan dan redispersi diulang sampai larutan zirkonium nitrat memiliki opasitas sedemikian rupa sehingga penambahan berikutnya akan memberikan larutan yang keruh. Kondisi ini merupakan titik jenuh sol, dan penambahan  $NH_4OH$  melalui penetesan berikutnya menghasilkan gumpalan presipitat yang tidak akan terdispersi lagi melalui pengadukan. Pada titik jenuh ini jumlah  $NH_4OH$  yang dibutuhkan dicatat dan dihitung prosentasi stokiometrinya.

**Rute 2: Prekursor zirkonium nitrat heksahidrat dengan prenetralisasi secara presipitasi-redispersi.** Proses renetralisasi dengan bahan zirkonium nitrat heksahidrat secara presipitasi-redispersi sama dengan proses pada Rute 1, hanya saja bahan prekursor diganti dengan zirkonium nitrat heksahidrat ( $Zr(NO_3)_4 \cdot 5H_2O$ ).

**Rute 3: Prekursor zirkonium oksinitrat dengan prenetralisasi secara dekomposisi urea.**

Sejumlah zirkonium oksinitrat ( $ZrO(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ ) dan yttrium nitrat ( $Y(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ ) dengan kandungan yttrium nitrat 16% mol dilarutkan dalam 200 ml air demineral sehingga diperoleh kandungan metal 1,8 mol/l pada temperatur 80 °C. Selanjutnya temperatur dinaikkan menjadi sekitar 85 °C dan ditambahkan urea sebanyak 1x mol metal. Pelarutan urea bersifat eksotermis dan mengakibatkan temperatur turun menjadi sekitar 80 °C. Larutan diaduk perlahan untuk meminimalisir penguapan air dan diamati perubahan opasitas dari waktu ke waktu sampai kondisi opasitas larutan mendekati keruh (titik jenuh sol), tetapi belum keruh, dan pengadukan dihentikan serta pemanas dimatikan. Larutan segera didinginkan dengan cara menempatkan gelas beker dalam genangan air untuk menurunkan temperatur secara cepat karena pada temperatur di atas 70 °C urea masih mampu terdekomposisi dan jika masa pendinginan cukup lama dapat menyebabkan sol menjadi keruh.

**Rute 4: Prekursor zirkonium nitrat heksahidrat dengan prenetralisasi secara dekomposisi urea.** Proses prenetralisasi dengan bahan zirkonium nitrat heksahidrat secara dekomposisi urea sama dengan proses pada Rute 3, hanya saja bahan prekursor diganti dengan zirkonium nitrat heksahidrat ( $Zr(NO_3)_4 \cdot 5H_2O$ ).

**d. Penyiapan larutan broth (umpan)**

Larutan *broth* atau umpan merupakan larutan sol yang diatur kekentalannya menggunakan larutan PVA dan ditambahkan bahan aditif THFA. Urea ditambahkan sebagai bahan penyedia porositas untuk menghindari cacat retak selama proses perlakuan panas berikutnya dengan jumlah tertentu sehingga kandungan urea dalam *broth* kurang lebih 2,5x mol kandungan metal. Pencampuran larutan sol, larutan PVA, THFA dan urea dilakukan pada temperatur di bawah 45 °C dan diaduk minimal 6 jam untuk homogenitas. Kekentalan atau viskositas *broth* yang dikehendaki adalah pada kisaran 45 - 60 cP. Jika sudah diperoleh nilai viskositas *broth* pada kisaran yang dikehendaki, selanjutnya volume *broth* diukur untuk menghitung konsentrasi metal dalam *broth* dan berikutnya larutan umpan ini ditransfer ke bejana umpan pada peralatan sistim gelas eksternal dan dibiarkan semalam

untuk menghilangkan gelembung mikro yang timbul pada saat transfer ke bejana.

**e. Proses gel-casting**

Proses *gel-casting* atau pembentukan droplet merupakan proses konversi dari sol menjadi gel dengan bahan pereaksi gas  $NH_3$  untuk pengerasan permukaan dan  $NH_4OH$  untuk keberlanjutan proses konversi. Larutan *broth* diumpangkan dari bejana atau tangki umpan ke *vibrating nozzle* dengan menggunakan udara tekan. Aliran laminar yang dihasilkan dari *vibrating nozzle* akan menghasilkan droplet yang seragam melalui pengaturan frekuensi getaran, amplitudo, laju alir umpan dan laju alir gas  $NH_3$ . Permukaan droplet akan mengeras setelah melewati gas amonia ( $NH_3$ ) untuk selanjutnya tertampung di dalam kolom  $NH_4OH$ . Hasil droplet gel yang berada di kolom amonium hidroksida ( $NH_4OH$ ) dibiarkan selama 15 menit sebelum dipindahkan untuk proses berikutnya yaitu *aging-washing-drying*.

**f. Proses aging-washing-drying**

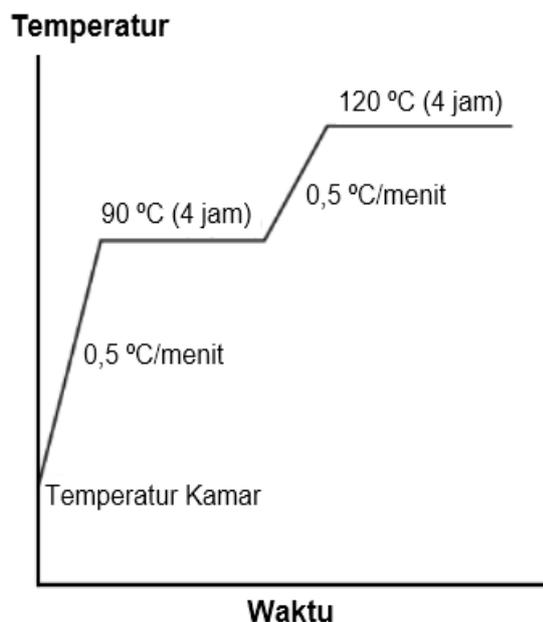
Proses *aging* ditujukan untuk penyempurnaan reaksi konversi sol menjadi gel di keseluruhan bagian droplet. Proses *aging* menggunakan bejana berputar menggunakan larutan amonia 28% selama 3 jam. Dalam proses ini, reaksi gelasi terus berlanjut sampai bagian dalam droplet. Proses berikutnya adalah pencucian dengan larutan amonia encer 0,3M untuk menghilangkan garam (amonium nitrat) dan pada saat yang sama untuk menghindari reptisasi gel. Proses pencucian menggunakan larutan amonia encer dilakukan 2 kali masing-masing selama 15 menit. Larutan amonia dan produk samping amonium nitrat yang tertinggal di permukaan gel selanjutnya dihilangkan dengan pencucian menggunakan air demineral sebanyak delapan kali atau lebih pencucian sampai efluen pencucian memiliki nilai konduktivitas listrik di bawah 20  $\mu S/cm$ . Air yang tertinggal di permukaan gel kemudian dihilangkan dengan pencucian menggunakan isopropil alkohol (IPA) sebanyak 4 kali 30 menit. Proses pencucian ini melalui 2 tahap dengan *recycled* IPA (komposisi air 80 – 150 g/l) dan 2 tahap pencucian dengan IPA murni (komposisi air  $\leq 1$  g/l). Isopropil alkohol yang tertinggal di permukaan selanjutnya dihilangkan dengan pengeringan melalui penguapan perlahan pada temperatur 80 °C selama 4 jam.

### g. Pengukuran sferisitas

Pengukuran sferisitas dimaksudkan untuk mempelajari apakah kualitas larutan sol mampu mengalami proses pengerasan permukaan yang seketika pada kolom  $\text{NH}_3$  yang berjarak hanya 5 cm. Diameter kernel diukur pada posisi 4 lintang *image* hasil pembesaran oleh mikroskop optik portabel yang memiliki fitur pengukuran diameter. Nilai sferisitas adalah nilai diameter tertinggi dibagi dengan nilai diameter terendah pada 4 lintang pengukuran tersebut.

### h. Proses de-watering

Proses *de-watering* adalah perlakuan panas untuk menghilangkan kandungan air dalam gel kering. Perlakuan panas *de-watering* dilakukan dengan profil seperti ditunjukkan pada Gambar 4, yaitu pada temperatur 90 dan 120 °C selama masing-masing 4 jam pada laju kenaikan temperatur 0,5 °C/menit.

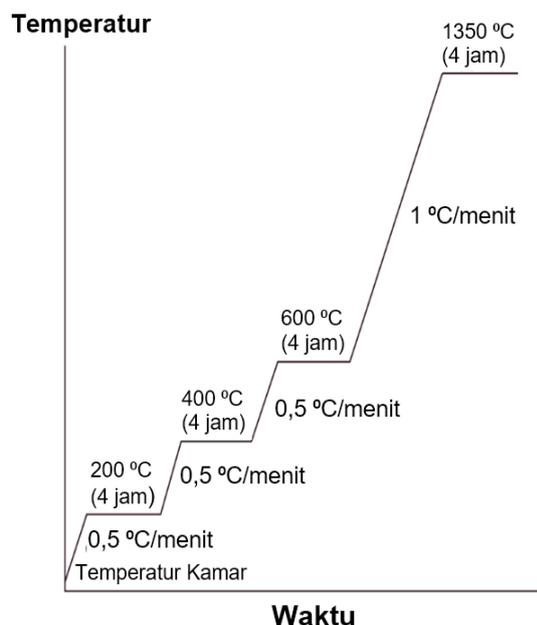


Gambar 4. Profil temperatur pada proses *de-watering*.

### i. Kalsinasi-Sintering

Perlakuan panas kalsinasi dan sintering berjalan pada temperatur 200, 400 and 600 °C dengan laju pemanasan 0,5 °C/menit dan waktu tahan 4 jam di masing-masing temperatur dan selanjutnya proses sinter pada temperatur 1350 °C dengan kenaikan temperatur dari temperatur kalsinasi 1 °C/menit dengan waktu tahan 4 jam. Perlakuan panas dengan kenaikan temperatur secara bertahap dimaksudkan

agar gas hasil dekomposisi bahan aditif dan gas yang dihasilkan dari reaksi kalsinasi meninggalkan kernel tanpa menimbulkan keretakan karena tekanan internal berlebih. Profil temperatur kalsinasi-sintering disajikan pada Gambar 5.



Gambar 5. Profil temperatur kalsinasi-sintering.

Penetapan profil temperatur kalsinasi dan sintering mengacu pada studi yang dilakukan oleh G. Wang et al. [9] berdasarkan analisis kurva TG-DTA. Berdasarkan eksperimen kalsinasi *yttria-stabilized zirconia* pada temperatur 400, 500, dan 700 °C, literatur [10] melaporkan bahwa kalsinasi pada temperatur 400 °C menghasilkan struktur amorf dan fasa kubik mulai diperoleh pada temperatur kalsinasi 500 °C. Aglomerat yang terbentuk saat terjadinya reaksi konversi zirkonium nitrat menjadi zirkonium hidroksida akan tetap mempertahankan bentuk setelah terjadi reaksi kalsinasi dari hidroksida menjadi oksida. Literatur [11] menyatakan bahwa aglomerat yang mengandung struktur ikatan "jembatan oksigen" Zr-O-Zr cenderung memiliki aglomerat yang bersifat keras. Ikatan jembatan oksigen ini dimiliki oleh aglomerat hidroksida dari prekursor zirkonium oksinitrat. Sementara itu, N. Amat et al. [12] telah melakukan studi tentang pengaruh temperatur sinter (rentang temperatur 1100 - 1500 °C) pada densitas relatif *yttria-stabilized zirconia* dan menunjukkan bahwa pada temperatur 1300 °C kurva densitas mulai terlihat melandai.

## j. Pengamatan morfologi permukaan dengan *Scanning Electron Microscope* (SEM)

Pemeriksaan visual menggunakan *Scanning Electron Microscope* (SEM) dilakukan pada kernel tersinter untuk mempelajari morfologi permukaan.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

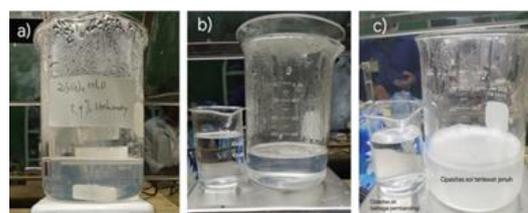
### a. Kontrol dalam proses prenetralisasi pada penyiapan larutan sol

Proses prenetralisasi merupakan proses kunci keberhasilan dalam fabrikasi kernel yang sferis. Permukaan droplet harus dikeraskan agar tidak terjadi deformasi bentuk saat droplet berbenturan dengan permukaan cairan  $\text{NH}_4\text{OH}$  pada kolom sol-gel. Secara ideal, sol dalam umpan harus dalam kondisi jenuh sehingga permukaan droplet mampu seketika terkonversi menjadi gel pada reaksinya dengan gas  $\text{NH}_3$  yang hanya memiliki lebar ketinggian 5 cm. Namun demikian, sol yang melampaui jenuh harus dihindari karena sol yang demikian itu sudah mengandung aglomerat presipitat yang berukuran mikro yang dapat tertahan oleh saringan mikro pada saluran pipa umpan dan mengakibatkan penyumbatan.

Oleh karena itu, kemudahan pengontrolan pembentukan larutan koloid sol merupakan parameter yang diutamakan pada metode prenetralisasi. Pada metode prenetralisasi secara presipitasi-redispersi, seperti pada proses prenetralisasi pada fabrikasi kernel  $\text{UO}_2$ , larutan sol terbentuk melalui pemecahan kumpulan aglomerat dari presipitat yang terbentuk karena reaksi tetesan  $\text{NH}_4\text{OH}$  dengan larutan zirkonium nitrat, dan reaksi ini mudah dikontrol dengan penghentian penambahan tetesan  $\text{NH}_4\text{OH}$  jika secara visual larutan sudah memiliki sifat sol. Namun demikian, proses pemecahan aglomerat, atau disebut juga peptisasi, menghasilkan besar partikel dispersi yang tidak homogen karena sumber dispersi merupakan berbagai gumpalan presipitat yang besarnya tidak sama. Besar gumpalan presipitat yang bervariasi ini dikarenakan oleh proses penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  dilakukan secara manual menggunakan pipet 3 ml, di mana cara ini memiliki potensi ketidakseragaman jumlah  $\text{NH}_4\text{OH}$  yang diperlukan dari satu *batch* ke *batch* lainnya. Ketidakseragaman ini terjadi karena selama penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  ada sebagian gas  $\text{NH}_3$  yang menguap dan jumlahnya mungkin tidak sama dari satu *batch* ke *batch* lainnya. Di samping itu, ketidakseragaman jumlah dan bentuk tetesan

pada metode ini dapat saja mempengaruhi distribusi dan besaran aglomerat gel hidroksida zirkonium yang terbentuk. Morfologi aglomerat pada fase hidroksida ini akan tetap bertahan pada proses perlakuan panas kalsinasi [8] dan menentukan kekhasan morfologi hasil sinternya [13]. Morfologi aglomerat ini, yang khas untuk kernel yang dipreparasi menggunakan kombinasi jenis prekursor dan metode prenetralisasi tertentu, akan menghasilkan sifat morfologis permukaan kernel tersinter yang khas pula. Menurut literatur [1] dan [14] kernel tersinter zirkonia yang memiliki morfologi permukaan yang halus lebih dikehendaki jika kernel tersebut akan digunakan untuk eksperimen pengembangan sistem proses pelapisan TRISO.

Pada proses prenetralisasi menggunakan metode dekomposisi urea, pembentukan presipitat lebih bersifat homogen di keseluruhan volume karena proses dekomposisi berlangsung lambat. Namun demikian, pada kegiatan eksperimen di laboratorium dekomposisi urea kurang mudah dikontrol, di mana pada beberapa sampel terjadi keadaan sol lewat jenuh bahkan sampai terjadi pengendapan atau sedimentasi. Gambar 6 menunjukkan visual sol hasil prenetralisasi dengan cara a) presipitasi-redispersi dan b) dekomposisi urea, sedangkan Gambar 6 c) menunjukkan visual sol yang lewat jenuh.



Gambar 6. a) visual sol hasil prenetralisasi secara presipitasi-redispersi, b) visual sol hasil prenetralisasi secara dekomposisi urea, dan c) vis sol yang lewat jenuh.

### a. Pengaruh jenis prekursor pada sferisitas

Sol yang memiliki level kejenuhan baik akan seketika terkonversi menjadi gel pada reaksinya dengan gas  $\text{NH}_3$  dan mengeraskan permukaan droplet yang berdampak pada keutuhan bentuk meski mengalami benturan dengan permukaan cairan  $\text{NH}_4\text{OH}$  pada kolom konversi. Gambar 7, Gambar 8, Gambar 9 dan Gambar 10 merupakan visual

gel kering dari masing-masing kombinasi parameter prekursor zirkonium nitrat pentahidrat dengan metode prenetralsasi presipitasi-redispersi, kombinasi prekursor zirkonium nitrat pentahidrat dengan metode prenetralsasi dekomposisi urea, kombinasi prekursor zirkonium oksinitrat dengan metode prenetralsasi presipitasi-redispersi, dan kombinasi prekursor zirkonium oksinitrat dengan metode prenetralsasi dekomposisi urea.



Gambar 7. Visual gel kering dari prekursor zirkonium nitrat pentahidrat dengan metode prenetralsasi presipitasi-redispersi.



Gambar 8. Visual gel kering dari prekursor zirkonium nitrat pentahidrat dengan metode prenetralsasi dekomposisi urea.



Gambar 9. Visual gel kering dari prekursor zirkonium oksinitrat dengan metode prenetralsasi presipitasi-redispersi.



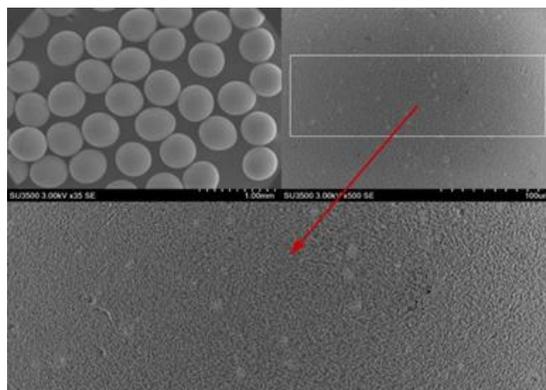
Gambar 10. Visual gel kering dari prekursor zirkonium oksinitrat dengan metode prenetralsasi dekomposisi urea.

Secara visual baik prekursor zirkonium oksinitrat maupun zirkonium nitrat pentahidrat dapat dipreparasi menjadi sol pada fabrikasi kernel zirconia dan metode prenetralsasi baik secara presipitasi-redispersi maupun dekomposisi urea dapat diterapkan pada kedua prekursor tersebut. Data pengukuran rerata sferisitas untuk Gambar 7, Gambar 8, Gambar 9, dan Gambar 10 adalah berturut-turut 1,050; 1,075; 1,039; dan 1,042 sedangkan keberterimaan nilai sferisitas produk kernel adalah lebih kecil atau sama dengan 1,1, di mana kernel yang sepenuhnya sferis memiliki nilai sferisitas 1,0.

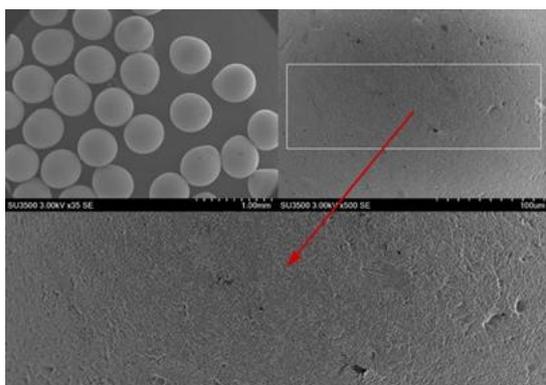
#### b. Pengaruh metode prenetralsasi dan jenis prekursor pada morfologi mikrostruktur permukaan

Kernel zirkonia yang ideal digunakan untuk riset eksperimen pengembangan sistim pelapisan TRISO adalah kernel yang memenuhi spesifikasi sferisitas lebih kecil atau sama dengan 1,1 dengan kekasaran permukaan yang minimal.

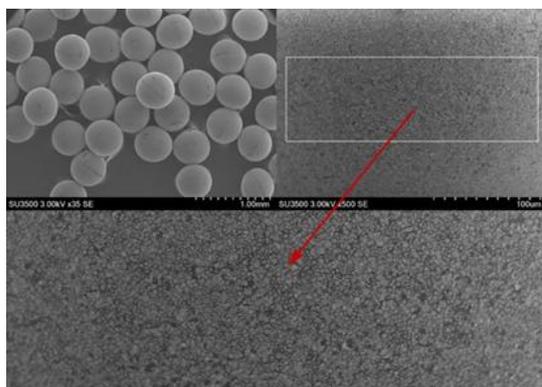
Morfologi permukaan kernel zirkonia tersinter dari sol yang dipreparasi dengan perbedaan metode prenetralsasi memberikan hasil kernel tersinter dengan morfologi permukaan yang berbeda, demikian pula untuk kernel dari jenis prekursor yang berbeda (Gambar 11, Gambar 12, Gambar 13 dan Gambar 14).



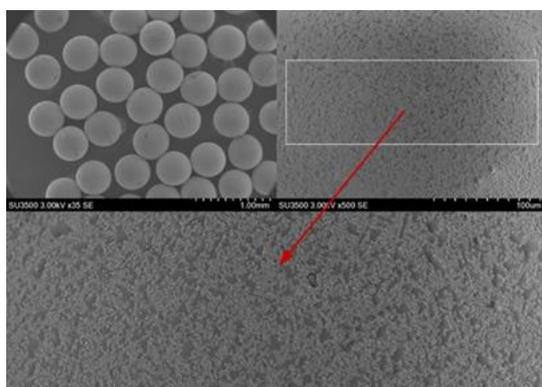
Gambar 11. Morfologi permukaan kernel zirkonia tersinter dari sol yang dipreparasi dengan prenetralsasi secara presipitasi-redispersi menggunakan prekursor zirkonium nitrat pentahidrat.



Gambar 12. Morfologi permukaan kernel zirkonia tersinter dari sol yang dipreparasi dengan prenetralisasi secara dekomposisi urea menggunakan prekursor zirkonium nitrat pentahidrat.



Gambar 13. Morfologi permukaan kernel zirkonia tersinter dari sol yang dipreparasi dengan prenetralisasi secara presipitasi-redispersi menggunakan prekursor zirkonium oksinitrat.



Gambar 14. Morfologi permukaan kernel zirkonia tersinter dari sol yang dipreparasi dengan prenetralisasi secara dekomposisi urea menggunakan prekursor zirkonium oksinitrat.

Proses prenetralisasi secara presipitasi-redispersi cenderung memberikan morfologi permukaan yang lebih kasar daripada morfologi permukaan dari kernel yang dipreparasi dari sol dengan prenetralisasi secara dekomposisi urea. Gumpalan presipitat pada metode presipitasi-redispersi dimungkinkan tidak dapat dipecah menjadi bagian sangat kecil oleh pengadukan, atau jika ingin mendapatkan sol dengan aglomerat yang kecil mungkin membutuhkan waktu yang lama, dan ini menjadi tidak praktis karena proses preparasi umpan dibatasi oleh waktu jam kerja. Sementara itu, morfologi permukaan kernel dari preparasi sol secara dekomposisi urea cenderung memiliki permukaan yang lebih halus. Pada temperatur di atas 75 °C urea dalam air terdekomposisi menghasilkan ion hidroksil yang selanjutnya bereaksi dengan ion zirkonium membentuk presipitat zirkonium hidroksida. Presipitat terbentuk secara lamban mengikuti lambannya laju dekomposisi urea. Oleh karenanya, aglomerat yang terbentuk dari partikel presipitat cenderung lebih homogen, dan hal ini yang mendukung hasil morfologi permukaan yang lebih halus. Kecenderungan ini berlaku untuk prekursor zirkonium oksinitrat maupun zirkonium nitrat pentahidrat.

Jenis prekursor nitrat yang digunakan juga menunjukkan perbedaan morfologi permukaan baik untuk metode prenetralisasi secara presipitasi-redispersi maupun dekomposisi urea. Prekursor zirkonium nitrat pentahidrat cenderung memberikan morfologi permukaan yang lebih halus dibanding hasil dari zirkonium oksinitrat. Hidrolisis zirkonium oksinitrat menghasilkan ion zirkonium yang mengandung elemen "O", demikian pula pada produk gel hidroksidanya, yaitu  $ZrO(OH)_2$ , sementara itu produk gel hidroksida dari zirkonium nitrat pentahidrat adalah  $Zr(OH)_4$ . Senyawa  $Zr(OH)_4$  merupakan bentuk oksida zirkonium terhidrasi  $ZrO_2 \cdot H_2O$  yang sedikit banyak memiliki sifat kristalin yang cenderung membentuk agregat [15] dibanding  $ZrO(OH)_2$  amorf yang lebih mudah teraglomerasi.

Morfologi permukaan yang paling halus ditunjukkan oleh kernel zirkonia dari sol yang dipreparasi menggunakan prekursor zirkonium nitratpentahidrat dan dengan metode prenetralisasi dekomposisi urea (Gambar 12).

## SIMPULAN

Eksperimen laboratorium menunjukkan bahwa jenis prekursor zirkonium oksinitrat dan zirkonium nitrat pentahidrat dapat

dipreparasi menjadi larutan sol dengan level kejenuhan yang memadai, baik dengan metode prenetralisasi presipitasi-redispersi maupun metode dekomposisi urea untuk fabrikasi kernel zirkonia dengan metode konversi gelas eksternal. Ini ditunjukkan oleh hasil gel yang sferis (nilai sferisitas sama dengan atau lebih kecil dari 1,1). Level kejenuhan larutan sol dengan metode prenetralisasi presipitasi-redispersi lebih mudah dikontrol namun memiliki distribusi partikel aglomerat yang kurang homogen sedangkan level kejenuhan larutan sol dengan metode dekomposisi urea kurang mudah dikontrol namun memberikan distribusi partikel aglomerat yang lebih homogen. Hasil pengamatan visual SEM dari permukaan kernel zirkonia tersinter menunjukkan bahwa kekasaran permukaan paling minim diberikan oleh kernel dari prekursor zirkonium nitrat pentahidrat dengan metode prenetralisasi dekomposisi urea dan permukaan paling kasar diberikan oleh kernel dari prekursor zirkonium oksinitrat dengan prenetralisasi secara presipitasi-redispersi.

#### UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Praditya Vankabo, Odi Buana Hutapea, dan Hanif Gufron yang telah membantu pelaksanaan penelitian ini.

#### DAFTAR PUSTAKA

- [1] J. L. Collins, "Production of depleted  $UO_2$  kernels for the advanced gas-cooled reactor program for use in TRISO coating development," United States, 2004.
- [2] S. W. Chong, C. W. Lai, J. C. Juan, and B. F. Leo, "An investigation on surface modified  $TiO_2$  incorporated with graphene oxide for dye-sensitized solar cell," *Sol. Energy*, vol. 191, pp. 663–671, 2019, doi:<https://doi.org/10.1016/j.solener.2019.08.065>.
- [3] E. Brandau, "Microspheres of  $UO_2$ ,  $ThO_2$  and  $PuO_2$  for the high temperature reactor," 2002.
- [4] R. M. German, *Sintering theory and practice*. New York: Wiley, 1996.
- [5] M. Liu, "Coating technology of nuclear fuel kernels: A multiscale view," in *Modern Surface Engineering Treatments*, pp. 159-184, 2013.
- [6] V. K. Ivanov, G. P. Kopitsa, S. V. Grigoriev, O. S. Polezhaeva, and V. M. Garamus, "Investigation of the evolution of the hydrated zirconia mesostructure at different stages of heat treatment," *Phys. Solid State*, vol. 52, no. 5, pp. 957–963, 2010, doi:[10.1134/S106378341005015X](https://doi.org/10.1134/S106378341005015X).
- [7] F. F. Lange, "Sinterability of agglomerated powders," *MRS Proc.*, vol. 24, p. 247, 1983, doi: [10.1557/PROC-24-247](https://doi.org/10.1557/PROC-24-247).
- [8] K. Haberko, "Characteristics and sintering behaviour of zirconia ultrafine powders," *Ceramurg. Int.*, vol. 5, no. 4, pp. 148–154, 1979.
- [9] G. Wang *et al.*, "A comparative study of small-size ceria-zirconia microspheres fabricated by external and internal gelation," *J. Sol-Gel Sci. Technol.*, vol. 78, no. 3, pp. 673–681, 2016, doi: <https://doi.org/10.1007/s10971-016-981-8>.
- [10] T. L. Wen, V. Hebert, S. Vilminot, and J. C. Bernier, "Preparation of nanosized yttria-stabilized zirconia powders and their characterization," *J. Mater. Sci.*, vol. 26, no. 14, pp. 3787–3791, 1991, doi: [10.1007/BF01184972](https://doi.org/10.1007/BF01184972).
- [11] A. K. Pandey and K. Biswas, "Effect of agglomeration and calcination temperature on the mechanical properties of yttria stabilized zirconia (YSZ)," *Ceram. Int.*, vol. 40, no. 9, Part A, pp. 14111–14117, 2014, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2014.05.144>.
- [12] N. F. Amat, A. Muchtar, M. J. Ghazali, and N. Yahaya, "Suspension stability and sintering influence on yttria-stabilized zirconia fabricated by colloidal processing," *Ceram. Int.*, vol. 40, no. 4, pp. 5413–5419, 2014, doi: <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2013.10.123>.
- [13] W. H. Rhodes, "Agglomerate and particle size effects on sintering yttria-stabilized zirconia," *J. Am. Ceram. Soc.*, vol. 64, no. 1, pp. 19–22, 1981, doi: [10.1111/j.1151-916.1981.tb09552.x](https://doi.org/10.1111/j.1151-916.1981.tb09552.x).
- [14] D. D. Sood, "The role sol-gel process for nuclear fuels-an overview," *J. Sol-Gel Sci. Technol.*, vol. 59, no. 3, pp. 404–416, 2011, doi: [10.1007/s10971-010-2273-y](https://doi.org/10.1007/s10971-010-2273-y).
- [15] P. Albers, M. Maier, M. Reisinger, B. Hannebauer, and R. Weinand, "Physical boundaries within aggregates—differences between amorphous, paracrystalline, and crystalline Structures," *Cryst. Res. Technol.*, vol. 50, no. 11, pp. 846–865, Nov. 2015, doi: <https://doi.org/10.1002/crat.201500040>.