

KARAKTERISASI DENSITAS GRAFIT SEBAGAI KANDIDAT BAHAN REAKTOR TEMPERATUR TINGGI

Heri Hardiyanti¹, Slamet Pribadi, Dadang¹, Jan Setiawan¹

¹Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir
Badan Tenaga Nuklir Nasional, Serpong, Banten, Indonesia, 15313
email: hrdyanti@batan.go.id, jansetiawan@batan.go.id

ABSTRAK-Telah dilakukan karakterisasi densitas grafit dengan menganalisis pola difraksi sinar-X menggunakan metode Rietveld yang dibandingkan dengan pengukuran densitas dengan ASTM C373 dan ASTM C559. Pengamatan struktur mikro menggunakan mikroskop optik dilakukan untuk memperkuat karakteristik densitas elektroda grafit yang diuji. Hasil yang diperoleh menunjukkan sampel grafit merupakan alotropi grafit 2H dengan sistem Kristal heksagonal dan grup kisinya adalah P 63 m c. Parameter kisi hasil analisis Rietveld diperoleh $a=2,4627 \text{ \AA}$ dan $c=6,7215 \text{ \AA}$, dengan densitas yang diperoleh sebesar $2,26 \text{ g/cm}^3$. Hasil pengukuran densitas dengan ASTM C373 diperoleh sebesar $2,41 \text{ g/cm}^3$, sedangkan pengukuran densitas dengan ASTM C559 sebesar $2,28 \text{ g/cm}^3$. Hasil pengamatan struktur mikro memperkuat hasil pengukuran densitas yang diperoleh dengan menunjukkan sampel grafit memiliki kepadatan yang tinggi. Dari pengukuran densitas ini elektroda grafit telah memenuhi salah satu kriteria agar dapat digunakan pada reaktor temperatur tinggi.

Kata kunci: karbon, grafit, pola difraksi, densitas.

ABSTRACT-Characterization on graphite density has been done. The characterizations were done by analyzed X-ray diffraction pattern using Rietveld method compared to the density measurement according to ASTM C373 and ASTM C559. Microstructure observation by optical microscope was done to prove the density characteristic of graphite electrode. The results showed the graphite electrode was 2H graphite allotrope with hexagonal crystal system and its space group is P 63 m c. Rietveld analysis for lattice parameter was achieved at $a=2,4627 \text{ \AA}$ and $c=6,7215 \text{ \AA}$, with density at $2,26 \text{ g/cm}^3$. Density measurement based on ASTM C373 at $2,41 \text{ g/cm}^3$, and based on ASTM C559 at $2,28 \text{ g/cm}^3$. The observation microstructure appearance showed high density in graphite. The density measurement showed the graphite electrode has passed one criteria to be used in high temperature reactor.

Keywords: Carbon, graphite, diffraction pattern, density.

I. PENDAHULUAN

Grafit memiliki sifat menarik dan sangat luas penerapan aplikasinya. Di Indonesia belum ditemukan daerah yang berpotensi mengandung grafit, sehingga sampai saat ini masih mengimpornya[1]. Secara alamiah grafit berwarna hitam dan dapat ditemukan di berbagai belahan dunia seperti Sri Lanka, Jerman, Ukraina, Rusia, Tiongkok, Afrika, USA, Amerika Tengah, Amerika Selatan dan Kanada [2]. Struktur grafit berupa tumpukan lapisan-lapisan ABAB dengan tipe ikatan van de Waals [2], dengan konfigurasi elektron karbon pada keadaan dasar dapat berupa sp^3 , sp^2 dan sp [3], [4]. Sebagai alotropik dari karbon, grafit memiliki struktur kristal heksagonal. Basis dari struktur kristal dari grafit adalah bidang grafen atau lapisan karbon. Struktur kristal grafit dapat berupa rhombohedral, dengan tumpukan lapisan-

lapisannya adalah ABCABC dan merupakan komponen yang sangat kecil. Struktur rhombohedral grafit dapat ditingkatkan dengan memberikan deformasi [3] dan dapat dikurangi dengan perlakuan panas. Struktur grafit heksagonal lebih stabil dibandingkan struktur rhombohedralnya dengan karakteristik densitas sebesar $2,26 \text{ g/cm}^3$ [3].

Grafit memiliki struktur berupa jaringan dimana kristal C_{60} [5], [6] sebagai molekul padat dimana setiap molekulnya terikat dengan ikatan Van der Waals. Pada grafit, anisotropik terjadi terhadap nilai Modulus Young-nya dimana komponen yang tegak lurus dengan bidang dasar akan memiliki lebih rendah dibandingkan yang paralel dengan bidang dasar. Hal ini juga menyebabkan adanya sifat anisotropik pada konduktivitas termal. Hal tersebut dikarenakan ikatan bidang yang saling paralel hanya terhubung dengan gaya ikatan van der Waals yang relatif lemah[4]. Karakteristik termodinamik dari grafit pada tekanan rendah lebih stabil dibandingkan intan.

Saat ini telah dibuat berbagai bentuk karbon berupa grafit sintetis dan intan sintetis, karbon adsorban, kokas, karbon hitam, serat grafit dan karbon, karbon gelas, karbon serupa intan dan lain-lain, yang akan digunakan dalam berbagai aplikasi seperti kontak elektrik dan elektroda, pelumas, pemoles sepatu, batu permata, pisau potong, penyerap gas, dan lain-lain [5]. Industri nuklir, memanfaatkan grafit sebagai bahan moderator untuk berbagai jenis reaktor fisi [7]. Grafit yang telah digunakan sebagai moderator reaktor, diproduksi dengan berbagai jenis tingkatan (*grade*) [7], sebagai contoh *Pile Grade A* (PGA) digunakan pada reaktor Magnox dan Gilsocarbon digunakan di *Advanced Gas-Cooled Reactor* (AGR). Grafit dengan grade nuklir merupakan komposit karbon-karbon *grade* industri yang telah diberikan perlakuan panas antara $2500 \text{ }^\circ\text{C}$ hingga $3000 \text{ }^\circ\text{C}$ [8]. Elektroda grafit merupakan bahan dengan karakteristik konduktivitas listrik dan kemampuan ketahanan terhadap kejutan termal yang digunakan pada tungku busur listrik untuk membuat baja. Material poligranular sintetis dengan kemurnian kimia yang tinggi dan memiliki mikrostruktur yang kompleks, akan mempengaruhi sifat mekanik dalam kondisi ekstrim dan ketahanan terhadap iradiasi [9]. Dalam kajian ini dilakukan karakterisasi densitas dengan menganalisis pola difraksi sinar-X menggunakan metode Rietveld, metode Archimedes sesuai dengan ASTM C373, pengukuran fisik sesuai dengan ASTM C559 dan diperkuat dengan pengamatan struktur mikronya. Karakterisasi ini dilakukan sebagai langkah awal untuk mengetahui kualitas dan kelayakan elektroda grafit bila dimanfaatkan dalam industri nuklir sebagai bahan yang digunakan pada reaktor temperatur tinggi.

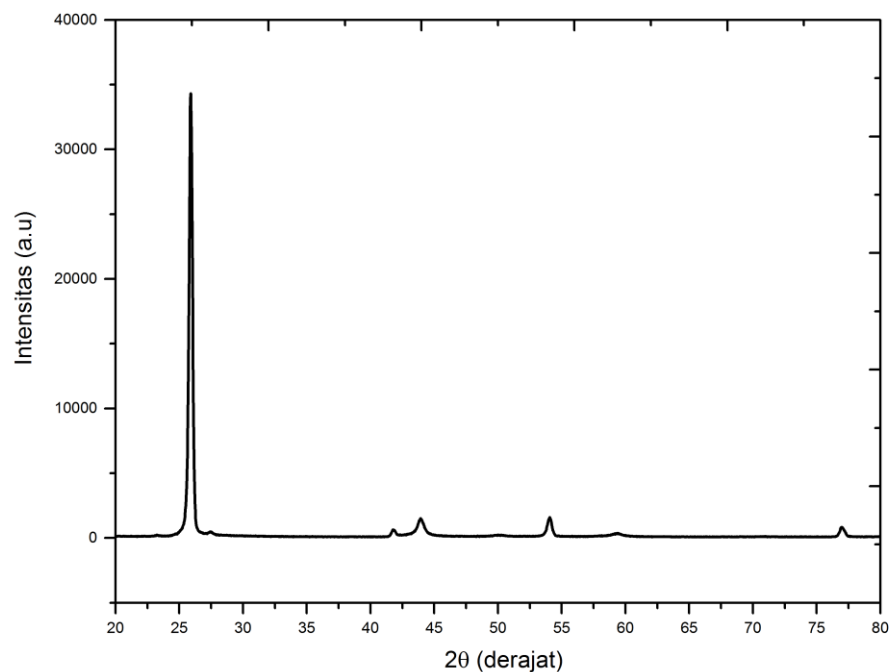
II. TATA KERJA

Sampel grafit dipreparasi dengan membuat potongan ukuran 2 x 3 x 1 cm untuk pengujian difraksi sinar-X menggunakan XRD Empyrean Panalytical pada sudut pengukuran 2θ dimulai dari 20 derajat hingga 80 derajat. Sumber sinar-X yang digunakan adalah Cu K α dengan tegangan sebesar 40 kV dan arus sebesar 30 mA. Pola difraksi yang diperoleh dilakukan pencocokan pola difraksi dengan basis data kristalografi dari COD (*Crystallography Open Database*) untuk memperoleh informasi pendekatan fasa dan parameter kisi. Analisis dari fasa dilakukan menggunakan aplikasi GSAS (*General Structure Analysis Software*) untuk memperoleh parameter kisi dan densitas teoritis dari sampel grafit dengan metode Rietveld. Pengukuran densitas grafit dilakukan menggunakan metode Archimedes sesuai dengan ASTM C373 dibandingkan dengan pengukuran densitas dengan ASTM C559. Dari pengukuran densitas dengan ASTM C373 dapat ditentukan porositasnya. Untuk mengetahui kepadatan sampel grafit secara mikrostruktur dilakukan pengamatan menggunakan mikroskop optik Nikon Ehipot yang dilengkapi dengan kamera digital Nikon. Sampel grafit dipreparasi dibingkai (*mounting*) dengan resin, kemudian di amplas menggunakan amplas kertas dengan *mesh* 320, 600, 800 dan 1200. Sampel grafit kemudian dietsa dengan larutan HF-CH₃COOH-HNO₃ dengan perbandingan 1:2:3.

III. Hasil dan Pembahasan

Pola difraksi yang diperoleh disajikan pada Gambar 1 dan hasil pencocokan kurva di sajikan pada Tabel 1. Pencocokan kurva dilakukan menggunakan aplikasi Highscore Plus dari Panalytical dengan menggunakan basis data COD diperoleh kecocokan fasa dengan nomor kartu 96-101-1061.

Kecocokan fasa grafit yang diperoleh pada nomor kartu 96-101-1061 merupakan grafit 2H dengan sistemkristalheksagonal dan grup kisinya adalah P 63 m c. Dari kartu 96-101-1061 parameter kisi untuk sistemkristal heksagonal adalah $a=2,4700 \text{ \AA}$ dan $c=6,7900 \text{ \AA}$ dengan densitas teoritis sebesar $2,22 \text{ g/cm}^3$.

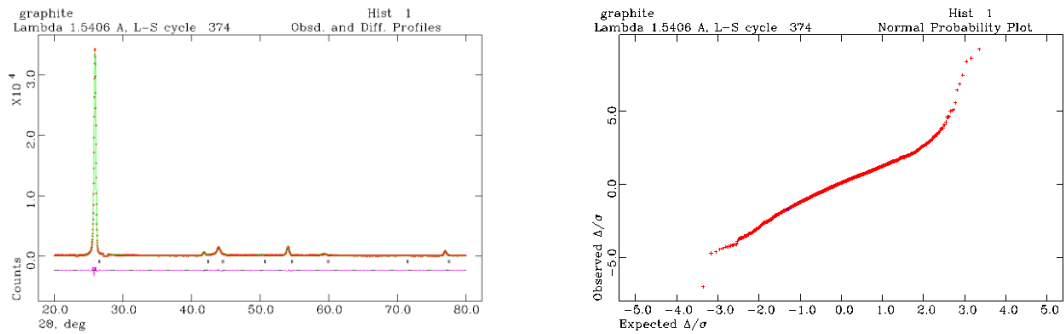


Gambar 1. Pola difraksi sinar-X grafit

Dari data kartu 96-101-1061 yang diperoleh digunakan untuk menganalisis sampel grafit, untuk memperoleh parameter kisi sebenarnya dan densitas teoritis dari pola difraksi menggunakan aplikasi GSAS. Keluaran dari aplikasi GSAS disajikan pada Gambar 2.

Tabel 1. Data puncak, indeks Miller dan intensitas relatif pola difraksi grafit

No.	Posisi Puncak (2θ – derajat)	d (Å)	Intensitas relatif (%)	Indeks Miller		
				h	k	l
1	25,87	3,44	100,00	0	0	2
2	41,77	2,16	1,41	0	1	0
3	43,97	2,06	3,55	0	1	1
4	50,13	1,82	0,17	0	1	2
5	54,08	1,70	4,21	0	0	4
6	59,45	1,56	0,44	0	1	3
7	70,79	1,33	0,02	0	1	4
8	76,93	1,24	2,05	1	1	0



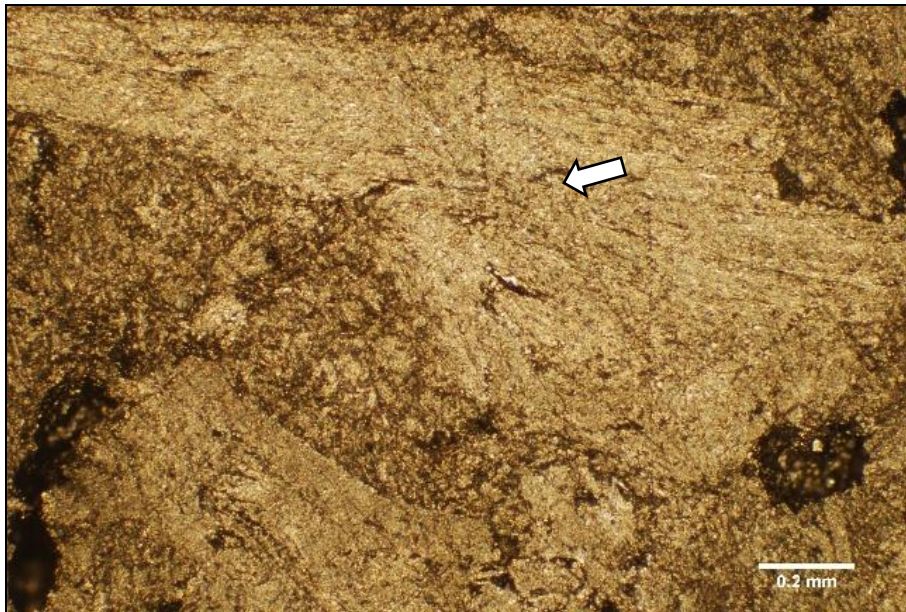
a

B

Gambar 2. Keluaran grafik analisis GSAS, a) pola difraksi sinar-X dan b) probabilitas normal.

Parameter keberterimaan hasil analisis GSAS yang baik adalah nilai Rp, wRp dan χ^2 (chi-square) dimana nilai Rp dan wRp kurang dari 10% dan nilai χ^2 mendekati 1[10]. Hasil analisis yang diperoleh dari pola difraksi sinar-X dari sampel grafit untuk Rp sebesar 4,60 %, wRp sebesar 6,80 % dan untuk nilai χ^2 sebesar 1,761, sehingga ketiga nilai tersebut telah memenuhi nilai keberterimaan yang ditentukan. Pendekatan nilai tersebut dilakukan dengan melakukan penghalusan pada bidang 002. Parameter kisi hasil analisis diperoleh $a=2,4627\text{\AA}$ dan $c=6,7215\text{\AA}$, dengan densitas yang diperoleh sebesar $2,26\text{ g/cm}^3$ sebanding dengan nilai densitas dari tabel 1. Terlihat nilai parameter kisi yang diberikan dari kartu 96-101-1061 berubah setelah dilakukan penerapan ke sampel grafit. Nilai parameter kisi pada sampel grafit lebih kecil dibandingkan dengan nilai dari kartu 96-101-1061. Penurunan nilai parameter kisi akan membuat volume unit sel menjadi lebih kecil. Hal tersebut akan berakibat terhadap nilai densitas teoritisnya, dimana densitas akan meningkat ketika unit sel menjadi lebih kecil dengan jumlah atom yang sama. Hasil analisis menunjukkan densitas yang diperoleh menjadi lebih tinggi 1,8 %, dibandingkan dengan densitas teoritis pada kartu 96-101-1061. Bila nilai densitas hasil analisis dari pola difraksi sinar-X dibandingkan dengan pengukuran densitas dengan metode Archimedes terjadi peningkatan sebesar 6,2 % dimana nilai densitas yang diperoleh sebesar $2,41\text{ g/cm}^3$ dengan porositas sebesar 1,5 %, Sedangkan dari pengukuran densitas ASTM C559 diperoleh hasil yang mendekati dengan nilai yang diperoleh dari analisis pola difraksi dengan peningkatan sebesar 0.9 %. Nilai densitas yang diperoleh sebesar $2,28\text{ g/cm}^3$. Dari ketiga pengukuran densitas ini menunjukkan bahwa sampel grafit yang diuji memiliki densitas yang tinggi bila dibandingkan dengan densitas grafit IG-110 sebesar $1,78\text{ g/cm}^3$, PGX sebesar $1,7\text{ g/cm}^3$ dan ASR-0RB sebesar $1,65\text{ g/cm}^3$ yang digunakan pada reaktor temperatur tinggi[11]. Nilai densitas yang diperoleh dari pengujian telah

memenuhi kriteria yang dipersyaratkan agar dapat digunakan pada reaktor temperatur tinggi yaitu dengan nilai lebih dari 1.7 g/cm^3 [12]. Namun pengujian lain seperti kekuatan kompresi, kekuatan tarik, kekuatan flexural, modulus Young, koefisien ekspansi termal, konduktivitas termal dan kandungan *ash* juga perlu diuji untuk memastikan kelayakan dari sampel grafit dapat digunakan pada reaktor temperatur tinggi [12]. Struktur mikro dari sampel grafit hasil pengamatan menggunakan mikroskop optik disajikan pada Gambar 3.



Gambar 3. Struktur mikro grafit

Struktur sampel grafit menunjukkan adanya *crack* yang ditunjukkan oleh tanda panah putih dan terlihat juga adanya porositas internal. Susunan morfologi sampel grafit menggambarkan kepadatan yang tinggi. Pengamatan mikroskop optik memperlihatkan adanya morfologi dengan kontras terang dan melebar. Morfologi ini diduga partikel pengisi kokas[6] yang ditambahkan ketika dalam pembuatan grafit yang berbentuk jarum.

IV. Kesimpulan

Karakterisasi densitas pada elektroda grafit diperoleh hasil memiliki kepadatan yang tinggi. Kepadatannya dibuktikan dari pengukuran densitas baik hasil analisis pola difraksi sinar-X, dengan metode Archimedes, dan dengan pengukuran fisik ketiganya menunjukkan nilai yang lebih tinggi dari nilai densitas teoritis. Kepadatan elektroda grafit juga diperkuat oleh morfologinya yang diperoleh dari mikroskop optik. Densitas yang diperoleh dari analisis pola difraksi sebesar 2.26 g/cm^3 , dari metode

ASTM C373 sebesar 2,41 g/cm³ dan dari metode ASTM C559 sebesar 2.28 g/cm³. Ketiga hasil yang diperoleh menunjukkan hasil densitas dari elektroda grafit yang lebih tinggi dari nilai densitas grafit yang telah digunakan pada reaktor temperatur tinggi. Secara densitas elektroda grafit telah memenuhi salah satu kriteria untuk digunakan pada reaktor temperatur tinggi. Namun perlu dilakukan pengujian mekanik dan termal untuk menyatakan elektroda grafit ini layak digunakan pada reaktor temperatur tinggi.

UCAPAN TERIMAKASIH

Penulis mengucapkan kepada Kepala Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir - BATAN, Prof. Dr. Ridwan yang telah memfasilitasi kegiatan ini.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] Tekmira, "Data Pertambangan Mineral & Batubara | GRAFIT | Ulasan." [Online]. Available: <http://www.tekmira.esdm.go.id/data/Grafit/ulasan.asp?xdir=Grafit&commId=16&comm=Grafit> . [Accessed: 28-Feb-2016].
- [2] T. D. Burchell, "Graphite : Properties and Characteristics," pp. 285–305.
- [3] T. D. Burchell, *Carbon materiales for advanced technologies*. 1999.
- [4] A. L. Dicks, "The role of carbon in fuel cells," *J. Power Sources*, vol. 156, no. 2, pp. 128–141, 2006.
- [5] R. Sengupta, M. Bhattacharya, S. Bandyopadhyay, and A. K. Bhowmick, "A review on the mechanical and electrical properties of graphite and modified graphite reinforced polymer composites," *Prog. Polym. Sci.*, vol. 36, no. 5, pp. 638–670, 2011.
- [6] M. Wissler, "Graphite and carbon powders for electrochemical applications," *J. Power Sources*, vol. 156, no. 2, pp. 142–150, 2006.
- [7] J. E. L. Taylor, G. N. Hall, and P. M. Mummery, "Investigating the effects of stress on the pore structures of nuclear grade graphites," *J. Nucl. Mater.*, vol. 470, pp. 216–228, 2016.
- [8] M. R. Ammar, N. Galy, J. N. Rouzaud, N. Toulhoat, C. E. Vaudey, P. Simon, and N. Moncoffre, "Characterizing various types of defects in nuclear graphite using Raman scattering: Heat treatment, ion irradiation and polishing," *Carbon N. Y.*, vol. 95, pp. 364–373, 2015.
- [9] Z. Zhou, W. G. Bouwman, H. Schut, S. Desert, J. Jestin, S. Hartmann, and C. Pappas, "From nanopores to macropores: Fractal morphology of graphite," *Carbon N. Y.*, vol. 96, pp. 541–547, 2016.
- [10] B. H. Toby, "R factors in Rietveld analysis: How good is good enough?," *Powder Diffr.*, vol. 21, no. 01, pp. 67–70, 2006.
- [11] M. Ishihara, J. Sumita, T. Shibata, T. Iyoku, and T. Oku, "Principle design and data of graphite components," *Nuclear Engineering and Design*, Vol 233, pp.251-260, 2004.
- [12] Y. Nagaishi, T. Fukuda, and A. Kondo, "Characterization of New Nuclear-Grade Graphite for HTGR/VHTR," 14th International Nuclear Graphite Specialist Meeting, Seattle, Washington State, USA, 15-18 September, 2013