

KAJIAN REAKSI CAMPURAN TORIUM DAN URANIL NITRAT DENGAN PEREAKSI AMONIUM HIDROKSIDA

Indra Suryawan, Kasilani Noorsajekti
Pusat Penelitian Nuklir Yogyakarta

ABSTRAK

KAJIAN REAKSI CAMPURAN TORIUM DAN URANIL NITRAT DENGAN PEREAKSI AMONIUM HIDROKSIDA. Telah dilakukan kajian reaksi campuran torium dan uranil nitrat dengan menggunakan pereaksi amonium hidroksida. Perubahan molaritas NH_4OH , pH dan suhu proses pengendapan diamati sebagai variabel penelitian. Bahan baku utama penelitian adalah $\text{Th}(\text{NO}_3)_4$, $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ dan NH_4OH . Hasil endapan berbentuk partikel, disaring, dicuci dan digunakan sebagai bahan baku sol. Keadaan optimum dihasilkan pada molaritas NH_4OH 6 M dengan prosentase torium dan uranium terendapkan masing-masing 98,177 % dan 89,594 %. Pada pH optimum 7 dengan prosentase torium dan uranium terendapkan 98,663 % dan 89,988 %. Dan pada suhu optimum 70°C dengan prosentase torium dan uranium terendapkan 98,681 % dan 89,897 %.

ABSTRACT

STUDY OF THORIUM AND URANIL NITRATES MIXTURE REACTION USING AMMONIUM HYDROXIDES REAGENT. The thorium and uranil nitrate mixture reaction using ammonium hydroxide's reagent has been studied. The change of NH_4OH molarity, pH and precipitation temperature has been chosen as research variables. The $\text{Th}(\text{NO}_3)_4$, $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ and NH_4OH are the input material for this research. The resulting to precipitate as particles, was filtered, washed and used as materials for sol. The optimum result was achieved at molarity of 6 M with percentage of resulted thorium and uranium precipitation was 98,177 % and 89,594 %. The optimum pH was found to be 7 with percentage of resulted thorium and uranium precipitation was 98,663 % and 89,988 % respectively. The optimum temperature was found of 70°C with percentage of resulted thorium and uranium was 98,681 % and 89,897 %.

PENDAHULUAN.

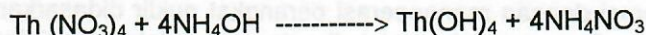
Uranium banyak digunakan sebagai bahan bakar reaktor nuklir baik dalam bentuk logam maupun senyawa oksida. Uranium (U-235 dan U-233) merupakan bahan fisil yang dapat membelah bila ditembak dengan neutron, sedangkan torium termasuk bahan fertil dan tidak dapat membelah seperti uranium. Torium dalam teknologi nuklir digunakan sebagai bahan bakar dalam reaktor pembiak. Torium dicampur dengan bahan bakar fisil seperti uranium atau plutonium yaitu bahan dapat berfisi dan menghasilkan neutron. Neutron itu ditangkap oleh inti torium-232 dan dihasilkan inti U-233. Inti U-233 adalah bahan bakar fisil yang dapat melepaskan dua atau tiga buah neutron, neutron tersebut menembak inti U-233 kembali sehingga reaksi berantai dapat berlangsung⁽¹⁾. Bahan bakar campuran (Th,U) O_2 dapat dibuat melalui dua cara yaitu secara kering dan basah. Dalam pembuatan secara basah dihasilkan bahan bakar dalam bentuk serbuk dan kernel. Pembuatan bahan bakar kernel (Th,U) O_2 oleh beberapa negara maju, seperti Canada dan Jerman, banyak menggunakan jalur proses atau reaksi pengendapan dengan menggunakan bahan baku torium dan uranil nitrat. Torium dan uranil nitrat yang direaksikan dengan amonium hidroksida menghasilkan endapan campuran torium hidroksida dan amonium diuranat. Hasil reaksi tersebut dipengaruhi oleh pH, suhu, laju alir dan konsentrasi pereaksi NH_4OH , menurut Culthbert (2) reaksi yang paling baik terjadi pada pH 6 - 7 dan suhu $60 - 70^\circ\text{C}$. Zimmer,HD et al (3) menulis reaksi pengendapan di atas sebagai berikut.

Proses pengendapan.

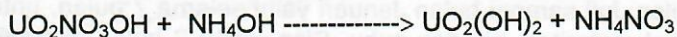
Reaksi yang terjadi pada pengendapan,
Penetralkan asam bebas,



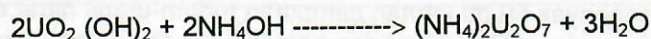
Pada senyawa uranium proses reaksi pengendapannya sebagai berikut.
Pembentukan alkali,



Pengendapan uranil hidroksida,



Pengendapan amonium diuranat,



Endapan torium hidroksida dan amonium diuranat di atas bersifat higroskopis terutama torium hidroksida karena dapat menyerap air dari udara dengan membentuk senyawa hidrat. Pembentukan senyawa hidrat tersebut mengakibatkan terjadinya perubahan fasa padat torium hidroksida dan amonium diuranat menjadi fase cair, sehingga masing-masing komponen dalam endapan mudah terpisah terutama pada waktu pemisahan endapan menggunakan kertas saring. Proses ini dapat mempengaruhi komposisi torium hidroksida dan amonium diuranat dalam endapan⁽⁴⁻⁵⁾.

Tujuan penelitian ini adalah melakukan kajian terhadap jumlah torium hidroksida dan amonium diuranat dalam endapan, dari hasil reaksi campuran torium dan uranil nitrat dengan pereaksi amonium hidroksida. Variabel penelitian meliputi konsentrasi pereaksi, pH dan suhu pengendapan terhadap jumlah endapan torium hidroksida dan amonium diuranat hasil perhitungan secara stoikiometris dengan hasil percobaan. Persamaan yang digunakan untuk menghitung prosentase torium-uranium terendapkan dari hasil percobaan adalah sebagai berikut,

$$X = (M/C) \times 100 \% \text{ dan } M = A \times B \times F$$

dengan X = Perbandingan jumlah torium hidroksida atau amonium diuranat dalam endapan terhadap jumlah torium hidroksida atau amonium diuranat hasil perhitungan stoikiometri (%), A = Hasil analisis Th atau U percobaan (g), B = Perbandingan Berat Molekul $\text{Th}(\text{OH})_4$ /Berat Atom Th atau Berat Molekul $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7/2$ Berat Atom U, F = Hasil bagi berat total endapan/Berat endapan yang dianalisis, C = Jumlah torium hidroksida atau amonium diuranat hasil perhitungan stoikiometris (g). BM. $\text{Th}(\text{OH})_4 = 300,04$; BM. $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7/2\text{BM U} = 1,311$; BM. $(\text{NH}_4)_2\text{U}_2\text{O}_7 = 624$; BA. Th = 232,04; BM. $\text{Th}(\text{OH})_4/\text{BA Th} = 1,293$; BA. U = 238.

TATA KERJA

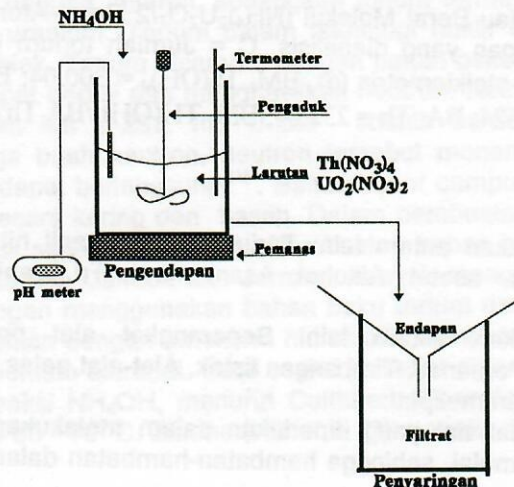
Bahan yang digunakan antara lain: Torium nitrat, Uranil nitrat, Amonium hidroksida, Monoklor asetat, Natrium asetat, Alkohol, Asam nitrat, Tri uranium oktoksida, Air bebas mineral.

Alat yang digunakan antara lain: Seperangkat alat potensiometer, pH meter, Termometer, Pengaduk, Pemanas, Timbangan listrik, Alat-alat gelas, Eppent dorf,

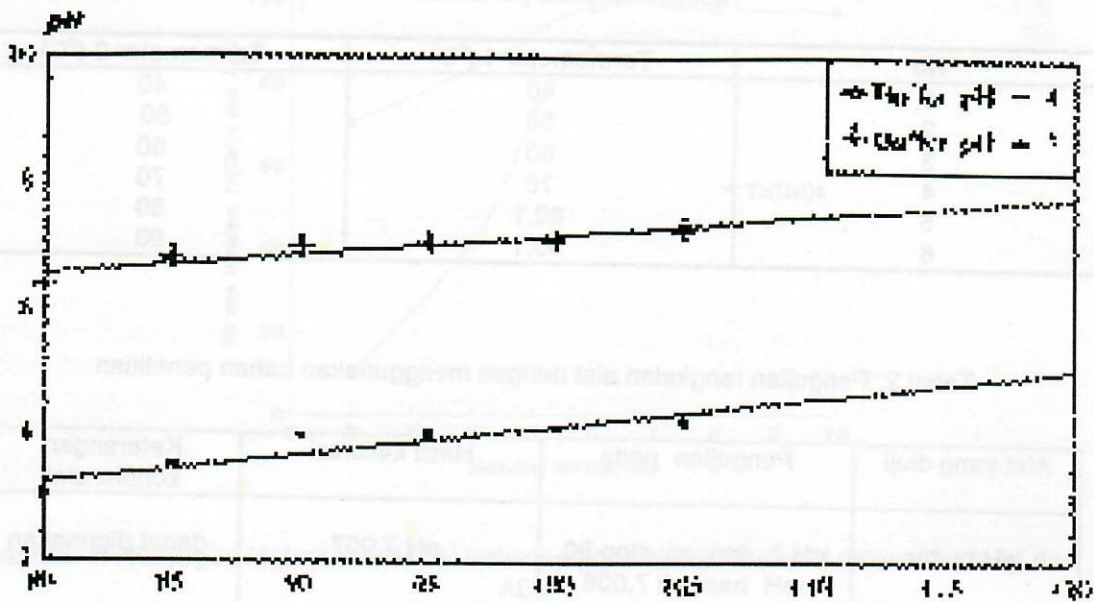
Cara kerja percobaan meliputi:

1. Bahan-bahan dan alat-alat yang diperlukan dalam melakukan percobaan dipersiapkan sebelum penelitian dimulai, sehingga hambatan-hambatan dalam pelaksanaan percobaan dapat dikurangi.

2. Setelah dipersiapkan bahan dan alat, dilakukan instalasi alat didasarkan atas jurnal atau literatur yang mendukung hipotesa penelitian. Menginstalasi alat artinya memasang peralatan sampai siap uji laik pakainya.
3. Kalibrasi alat seperti : pH meter, kecepatan putar pengaduk, termometer. Rangkaian alat setelah diinstalasi, masing-masing alat pendukung variabel penelitian sebelum operasi dimulai dilakukan kalibrasi, dengan maksud untuk membakukan unjuk kerja alat terhadap akurasi dan standarisasi. Pada Tabel 1 ditunjukkan hasil kalibrasi pH meter dengan larutan standar buffer pH 4 dan pH 7 pada suhu kamar terhadap perubahan slope pH meter. Hasil kalibrasi pengaduk dan termometer ditunjukkan pada Tabel 2.
4. Setelah kalibrasi masing-masing alat, dilakukan pengujian terhadap kelaikan pakai dan kepekaan alat.
5. Pelaksanaan operasi dengan mengoperasikan perangkat nuklir didasarkan pada sasaran dan variabel percobaan. Pengoperasian alat di antaranya adalah menjalankan alat, mencatat hasil pengoperasian alat dan sebagainya. Sebelum alat dioperasikan untuk penelitian dilakukan instalasi alat, kalibrasi dan pengujian masing-masing 1 bulan. Operasi penelitian dimulai pada bulan Juli sampai bulan Januari yaitu selama 7 bulan, untuk mengerjakan 3 variabel, variabel molaritas, pH dan suhu. Sisa waktu 2 bulan digunakan untuk evaluasi hasil penelitian dan membuat laporan. Pelaksanaan penelitian berdasarkan perubahan yang dikerjakan adalah sebagai berikut:
 - Disiapkan sebanyak 50 ml larutan campuran torium-uranil nitrat dengan nisbah U/Th = 25 % dalam gelas piala 100 ml dan pereaksi NH_4OH dalam buret.
 - Perubahan yang dilakukan untuk mereaksikan campuran torium-uranil nitrat dengan pereaksi amonium hidroksida adalah perubahan molaritas 2 M - 10 M, pH 4 - 8 dan suhu 40 - 80°C.
 - Amonium hidroksida diteteskan melalui buret ke dalam larutan torium-uranil nitrat sampai terbentuk endapan campuran torium hidroksida & amonium diuranat.
 - Endapan disaring, dicuci dan dikeringkan pada suhu 100°C selama 4 jam dalam tungku pemanas kemudian endapan ditimbang dengan menggunakan timbangan analitik.
 - Jumlah Th dan U dalam endapan ditentukan dengan analisis titrasi potensiometri, dengan cara menimbang kembali sebagian endapan, dan dilarutkan dalam asam nitrat pekat.
 - Volume larutan dijadikan 25 ml dengan menambahkan air bebas mineral, jumlah torium hidroksida dan amonium diuranat dalam endapan hasil analisis dapat dihitung.
6. Mengevaluasi pelaksanaan operasi terhadap masing-masing variabel percobaan dengan metode analisis atau komputer baik kuantitatif atau kualitatif. Hasil evaluasi ditampilkan dalam bentuk tabel atau gambar grafik dan disimpulkan hasil-hasil operasi terhadap variabel-variabel yang dikerjakan. Hasil evaluasi ditunjukkan dalam gambar 4, 5 dan 6.
7. Hasil penelitian setelah dievaluasi disusun dalam laporan triwulan dan dalam bentuk karya tulis.



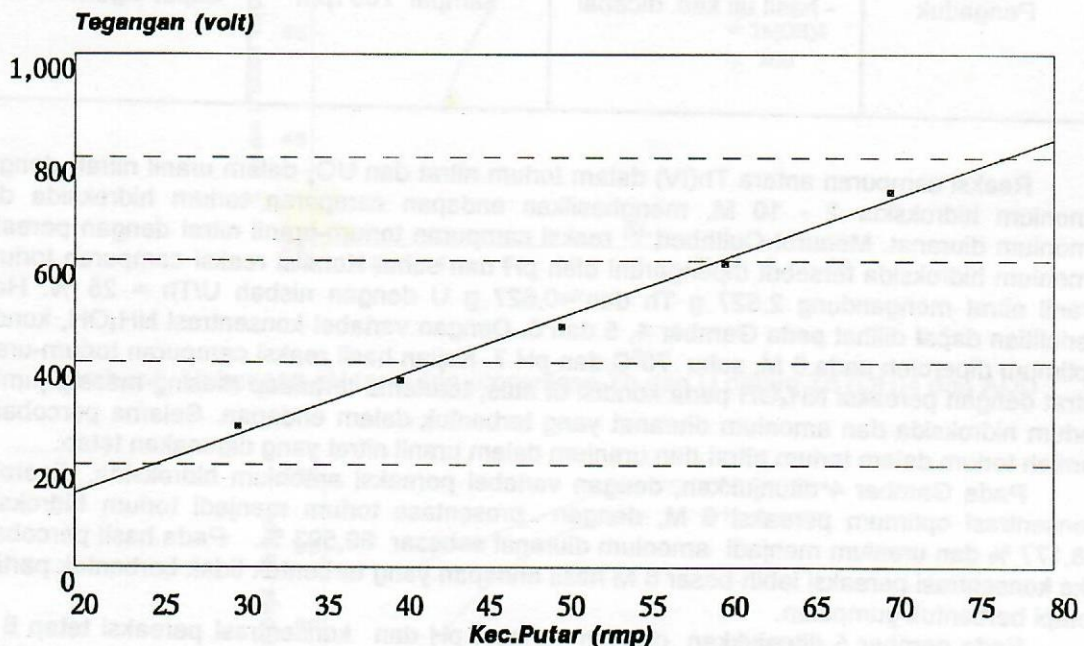
Gambar 1. Rangkaian alat pengendapan dan penyaringan



Gambar 2. Kurva kalibrasi pH dengan standar buffer pH 4 dan 7

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil percobaan mulai dari kalibrasi ditunjukkan pada Gambar 3 dan Tabel 1 sebagai berikut.



Gambar 3. Kurve kalibrasi kecepatan putar terhadap perubahan tegangan.

Persamaan garis lurus untuk kalibrasi pH = 4 : $Y = 0,0444 X - 0,2925$. Persamaan garis lurus untuk kalibrasi pH = 7 : $Y = 0,0310 X + 4,0054$, dengan koefisien korelasi = 0,912. Persamaan garis lurus untuk kalibrasi kec.pengaduk : $Y = 11,5 X - 87$, dengan koefisien korelasi = 0,9923.

Tabel 1. Kalibrasi perubahan suhu

No	Termometer 1 (°C)	Termometer 2 (°C)
1	40	40
2	50	50
3	60	60
4	70	70
5	80,1	80
6	90,1	90

Tabel 2. Pengujian rangkaian alat dengan menggunakan bahan penelitian

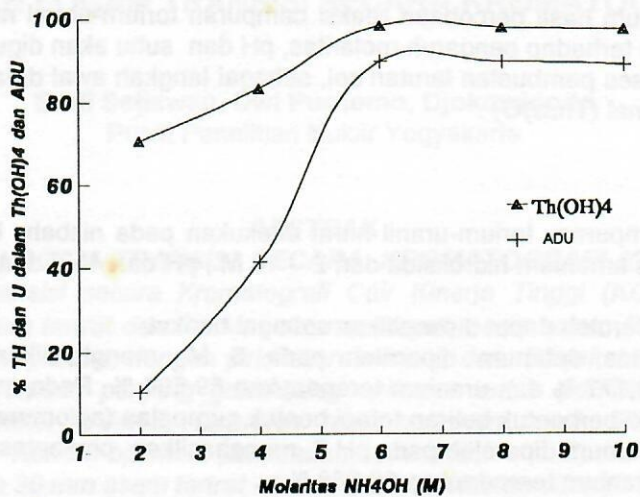
Alat yang diuji	Pengujian pada	Hasil kalibrasi	Keterangan kondisi alat
pH meter	pH 7 dengan slop 90 -pH hasil uji 7,008	pH 7,007	dapat digunakan
Termometer	suhu 70°C - Suhu hasil uji 70°C	suhu 70°C	dapat digunakan
Pemanas	memanaskan s/d 80°C - suhu termometer 80°C	suhu termometer 80°C	dapat digunakan
Pengaduk	Kec. 500 - 600 rpm - hasil uji kec. dicapai	sampai 700 rpm	dapat digunakan

Reaksi campuran antara Th(IV) dalam torium nitrat dan UO₂ dalam uranil nitrat dengan amonium hidroksida 2 - 10 M, menghasilkan endapan campuran torium hidroksida dan amonium diuranat. Menurut Culthbert⁽²⁾ reaksi campuran torium-uranil nitrat dengan pereaksi amonium hidroksida tersebut dipengaruhi oleh pH dan suhu. Kondisi reaksi campuran torium-uranil nitrat mengandung 2,527 g Th dan 0,627 g U dengan nisbah U/Th = 25 %. Hasil penelitian dapat dilihat pada Gambar 4, 5 dan 6. Dengan variabel konsentrasi NH₄OH, kondisi optimum diperoleh pada 6 M, suhu 70°C dan pH 7. Kajian hasil reaksi campuran torium-uranil nitrat dengan pereaksi NH₄OH pada kondisi di atas, terutama terhadap masing-masing jumlah torium hidroksida dan amonium diuranat yang terbentuk dalam endapan. Selama percobaan, jumlah torium dalam torium nitrat dan uranium dalam uranil nitrat yang digunakan tetap.

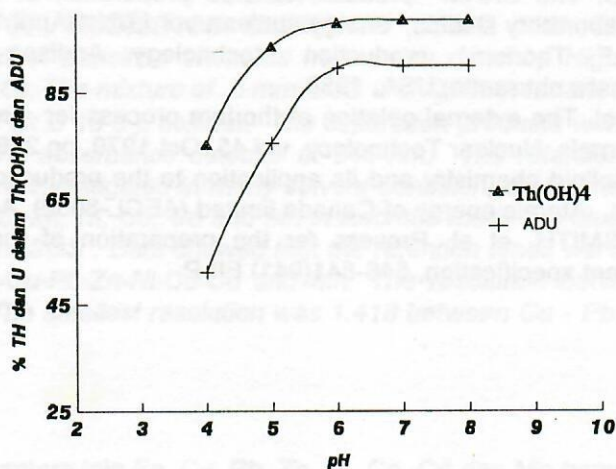
Pada Gambar 4 ditunjukkan, dengan variabel pereaksi amonium hidroksida, diperoleh konsentrasi optimum pereaksi 6 M, dengan prosentase torium menjadi torium hidroksida 98,177 % dan uranium menjadi amonium diuranat sebesar 89,593 %. Pada hasil percobaan jika konsentrasi pereaksi lebih besar 6 M hasil endapan yang terbentuk tidak berbentuk partikel tetapi berbentuk gumpalan.

Pada gambar 5 ditunjukkan, dengan variabel pH dan konsentrasi pereaksi tetap 6 M, diperoleh kondisi pH optimum 7, dengan prosentase torium menjadi torium hidroksida 98,663 % dan uranium menjadi amonium diuranat sebesar 89,988 %. Pada percobaan jika pH pengendapan bertambah besar, prosentase hasil pengendapan yang diperoleh relatif sama dengan pH 7.

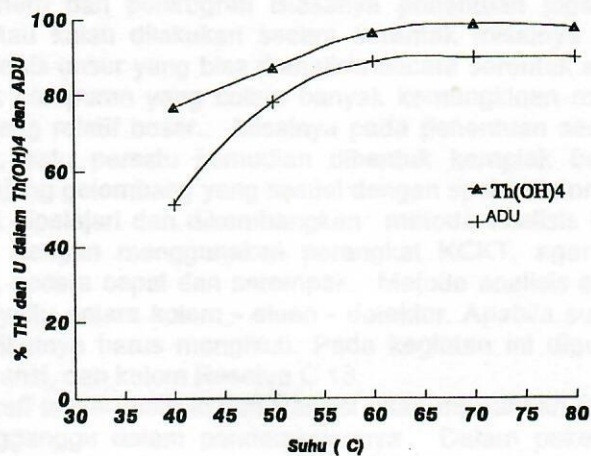
Pada gambar 6 ditunjukkan, variabel suhu, konsentrasi pereaksi tetap 6 M dan pH tetap 7, diperoleh kondisi suhu optimum 70°C, dengan prosentase torium menjadi torium hidroksida 98,681 % dan uranium menjadi amonium diuranat sebesar 89,897 %. Pada percobaan jika suhu pengendapan bertambah besar, prosentase hasil endapan yang diperoleh relatif sama dengan suhu 70°C dan jika suhu lebih besar 100°C hasil torium hidroksida maupun amonium diuranat akan mengalami perubahan bentuk partikel.



Gambar 4. Hubungan Molaritas NH4OH terhadap prosentase Th dan U dalam Th(OH)4 dan ADU



Gambar 5. Hubungan pH terhadap prosentase Th dan U dalam Th (OH)4 dan ADU



Gambar 6. Hubungan suhu terhadap prosentase Th dan U dalam Th (OH)4 dan ADU

Kondisi optimum hasil percobaan reaksi campuran torium-uranil nitrat dengan pereaksi amonium hidroksida terhadap pengaruh molaritas, pH dan suhu akan digunakan sebagai dasar untuk penelitian proses pembuatan larutan sol, sebagai langkah awal dalam pembuatan bahan bakar berbentuk kernel (Th,U)O₂.

KESIMPULAN

Penelitian campuran torium-uranil nitrat dilakukan pada nisbah U/Th = 25%, dengan perubahan molaritas amonium hidroksida dari 2 - 10 M, pH dari 4 - 8 dan perubahan suhu dari 40 - 80 °C.

Hasil yang diperoleh dapat disimpulkan sebagai berikut:

1. Variabel molaritas optimum diperoleh pada 6 M, menghasilkan prosentase torium terendapkan 98,177 % dan uranium terendapkan 89,594 %. Pada molaritas lebih besar 6 hasil reaksi tidak berbentuk butiran tetapi bentuk gumpalan (aglomerat).
2. Variabel pH optimum diperoleh pada pH 7, menghasilkan prosentase torium terendapkan 98,663 % dan uranium terendapkan 89,988 %.
3. Variabel suhu optimum diperoleh pada 70°C, menghasilkan prosentase torium terendapkan 98,681 % dan uranium terendapkan 89,897 %.

DAFTAR PUSTAKA

1. BRAMBILLA, AG, The SNAM process for the preparation of ceramic nuclear fuel microspheres, Laboratory studies, energy nuclear, vol 17/N.4/April 1970, pp 217 - 225.
2. CULTHBERT, LF, Thorium production technology, Addison - Wesley publishing company, Inc, Massa chusetts, USA, 1958.
3. ZIMMER, HD, et al, The external gelation of thorium process for preparation of ThO₂ and (Th,U)O₂ fuel kernels, Nuclear Technolocy, vol 45, Oct 1979, pp 278-279.
4. TUNNER, CW, Colloid chemistry and its application to the production of recycled fuels by sol gel processes, Atomic energy of Canada limited (AECL-8062), Antorio, February 1986.
5. JEAN GILLEN SMITH, et al, Proses for the preparation of thorium dioxide-uranium dioxide sols, Patent specification, 546-841(041) FII-P.