

PENENTUAN BILANGAN " Z " PELARUT TBP - KEROSEN  
YANG TERDEGRADASI OLEH SINAR  $\gamma$

Oleh :

KRIS TRI BASUKI

SOEDYARTOMO SOENTONO

DJOKOWIDODO

I N T I S A R I

Ditentukan bilangan " Z " dalam pelarut Tributylpospat ( TBP ), 30% TBP-Kerosen dan 50% TBP-Kerosen yang telah diradiasi oleh sinar gamma Co-60 dengan laju dosis 950 krad tiap jam dan sinar gamma Bahan bakar bekas dengan laju dosis 4,750 krad tiap jam dengan variasi dosis total  $1 \times 10^5$ ,  $5 \times 10^5$ ,  $1 \times 10^6$ ,  $5 \times 10^6$  dan  $1 \times 10^7$  rad. Bilangan " Z " ditentukan oleh banyaknya gram molekul ( grammol ) zirkonium yang terikat dalam satu milyar (  $10^9$  ) liter pelarut, ditentukan juga koefisien distribusi zirkonium. Dalam penentuan bilangan " Z " dan koefisien distribusi tersebut digunakan Spektrofotometer Beckmann-25 pada panjang gelombang 525 nm. Dari hasil percobaan didapatkan bahwa semakin tinggi dosis yang diberikan akan semakin tinggi kerusakan pelarut.

A B S T R A C T

The determination of " Z " number in Tributylphosphat ( TBP ) and the mixture of 30% TBP-Kerosen as well as 50% TBP-Kerosene which have been irradiated by gamma ray from Co-60 and spent fuel was reported. The dose rates of Co-60 was 950 krad per hour and of spent fuel was 4.750 krad per hour. The variation of the total doses were  $1 \times 10^5$ ,  $5 \times 10^5$ ,  $1 \times 10^6$ ,  $5 \times 10^6$  and  $1 \times 10^7$  rads. " Z " number was defined as the number of grammol

of zirconium that was bound by one billion (  $10^9$  ) liters of solvent, the distribution coefficient of zirconium was also determined. The determination of " Z " number and the distribution coefficient were carried out using the Beckmann-25 spectrophotometer at 525 nm. The experiment result showed that " Z " number increased when the radiation doses was increased.

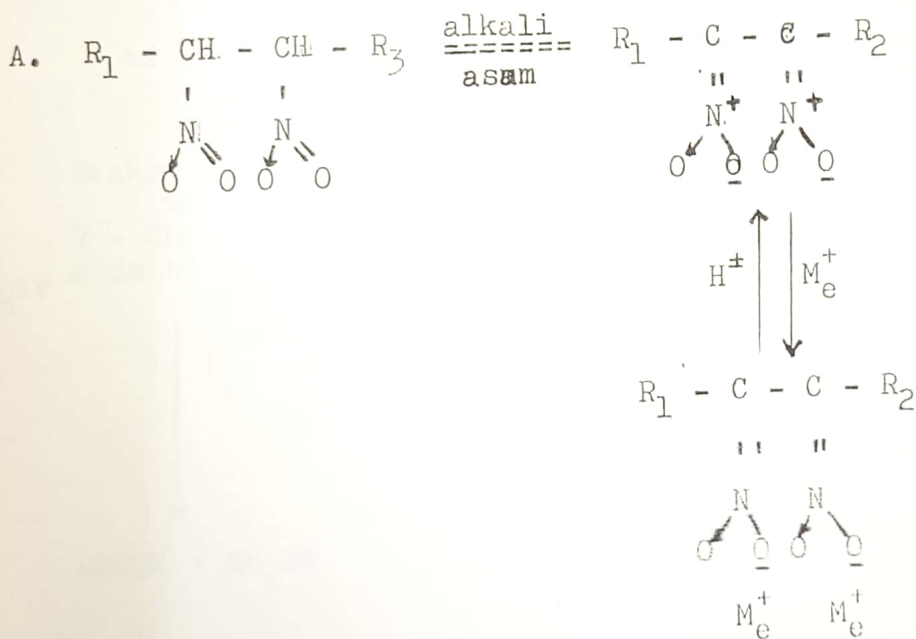
## I. PENDAHULUAN.

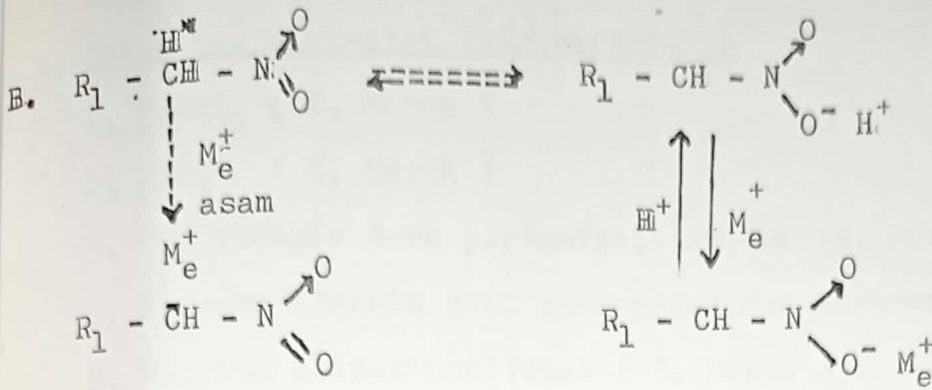
Pada proses PUREX pelarut TBP-Kerosen teradiolisa oleh radiasi sinar gamma, hasil degradasi TBP - Kerosen adalah di-butilpospat, monobutilpospat, hidrokarbon tak jenuh, aromatik radikal bebas dan gugusan karboksilat yang dapat membentuk kompleks dengan hasil belah<sup>(1)(2)</sup>. Kompleks yang terbentuk sangat kuat dan tidak dapat dihilangkan dengan asam ataupun basa<sup>(3)</sup>. Kelarutan DBP dan MBP dalam air kecil, sehingga dalam sistem ekstraksi, DBP dan MBP tersebut larut dalam fasa organik. DBP membentuk kompleks dengan zirkonium dengan ikatan yang sangat kuat dan stabil dan kompleks Zr-DBP sangat mudah terekstraksi ke dalam fasa organik<sup>(4)</sup>. Degradasi TBP-Kerosen menurunkan efisiensi ekstraksi uranium dan plutonium, juga akan memperkecil faktor dekontaminasi hasilbelah. Hasilbelah yaitu zirkonium, niobium, ruthenium, serium dan iodin dapat membentuk kompleks dengan hasil degradasi TBP-Kerosen. Derajat degradasi TBP-Kerosen dinyatakan dengan bilangan "Z", yaitu jumlah gram mol zirkonium yang dapat membentuk kompleks dengan satu milyar (  $10^9$  ) liter pelarut, makin tinggi bilangan " Z " makin rendah kestabilan pelarut tersebut<sup>(5)</sup>.

## II. DASAR TEORI .

Pengambilan plutonium, uranium dari bahan bakar bekas dilakukan dengan cara ekstraksi, dari fasa air ke fasa organik yang merupakan campuran TBP-Kerosen.

Plutonium, uranium maupun hasilbelah yang lain dalam bahan bakar bekas memancarkan sinar  $\gamma$  ; sehingga dapat dikatakan bahwa bahan bakar bekas merupakan sumber sinar  $\gamma$  dengan beberapa macam tenaga sinar  $\gamma$ . Hasil degradasi TBP dan Kerosen dapat membentuk kompleks dengan hasilbelah. DBP membentuk kompleks dengan zirkonium dengan ikatan yang sangat kuat dan stabil. Blake dan kawan-kawan memberikan salah satu kemungkinan mekanisme reaksi kompleks antara hasil degradasi kerosen dengan  $Zr^{95}$  dan  $Nb^{95}$  (5).



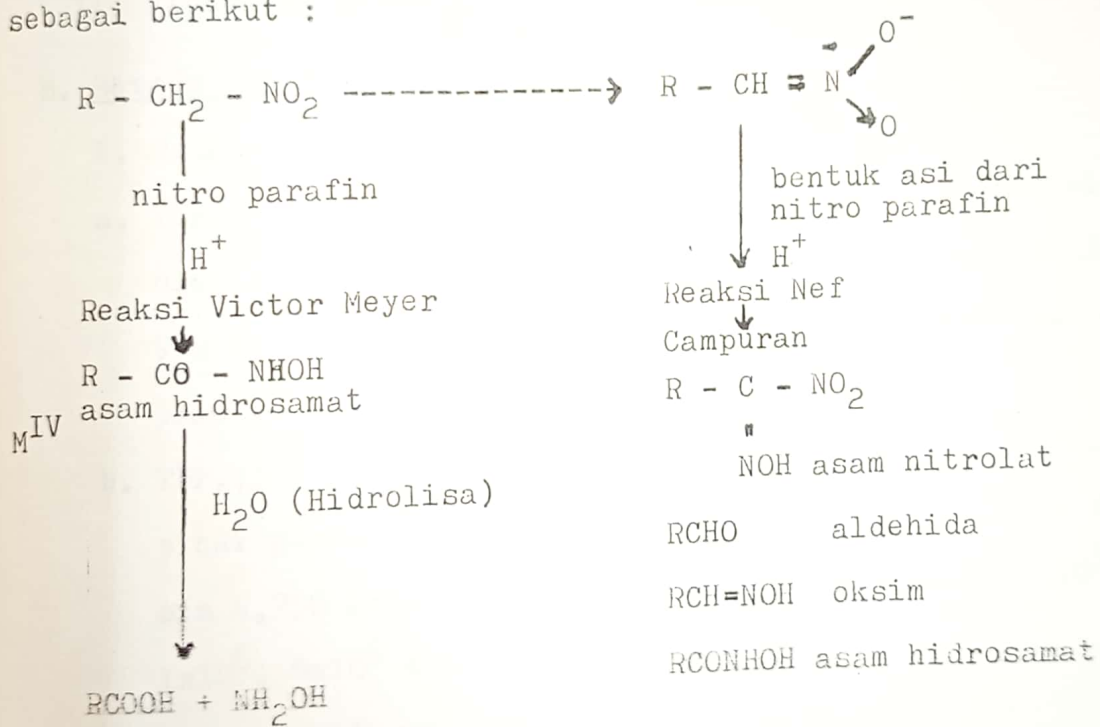


$R_1 ; R_2$  = grup alkali

$H^*$  = atom hidrogen teraktivasi

$M_e$  = ion logam

Sedangkan Siczek dan Steindler memberikan mekanisme reaksi<sup>(6)</sup> sebagai berikut :



$M^{IV} (RCONHO)_4$

Kompleks logam

### III. PERCOBAAN DAN PENGAMATAN.

#### A. Bahan dan alat-alat yang diperlukan

1.  $ZrOCl_2$  ( E. Merck )
2.  $HNO_3$  ( E, Merck )
3. TBP (Teknis dari Pertamina) dan TBP (E. Merck)
4. Kerosen (Teknis dari Pertamina) dan Kerosen (E. Merck)
5. Natrium alizarinsulfonat ( E. Merck )
6. HCl ( E. Merck )
7.  $H_2SO_4$  ( E. Merck )
8. Irradiator gamma Cobalt - 60
9. Irradiator gamma Bahan Bakar Bekas
10. Magnetic stirer (pengaduk putar)
11. Alat-alat gelas

#### B. Metode dan Tatakerja

##### 1. Radiasi pelarut.

- a. TBP.; 30% TBP-Kerosen.; 50% TBP-Kerosen didegradasi oleh sinar gamma Cobalt-60 yang mempunyai laju dosis 950 Krad/jam dengan variasi dosis  $1 \times 10^5$ ,  $5 \times 10^5$ ,  $1 \times 10^6$ ,  $5 \times 10^6$ , dan  $1 \times 10^7$  rad.
- b. TBP.; 30% TBP-Kerosen.; 50% TBP-Kerosen didegradasi oleh sinar gamma bahan bakar bekas yang mempunyai laju dosis 4,750 Krad/jam dengan variasi dosis  $1 \times 10^5$ ,  $5 \times 10^5$ ,  $1 \times 10^6$ ,  $5 \times 10^6$  dan  $1 \times 10^7$  rad.

##### 2. Pembuatan larutan standard Zirkonium.

Dibuat larutan standard zirkonium dari gamma  $ZrOCl_2$  dengan grafik absorbansi versus konsentrasi zirkonium menggunakan Spektrofotometer Beckmann-25 pada pan-

jang gelombang 525 nm<sup>(7)</sup>.

3. Menentukan Bilangan " Z " dan Koefisien distribusi. TBP.; 30% TBP-Kerosen ; 50% TBP-Kerosen yang telah didegradasi ditentukan bilangan " Z " dan koefisien distribusinya.

C. Pengamatan.

Bilangan " Z " ditentukan oleh banyaknya gram molekul zirkonium yang terikat dalam satu milyard (  $10^9$  ) liter pelarut.

V. PEMBAHASAN DAN KESIMPULAN .

A. Pembahasan.

Dari hasil penelitian Mudiar Masja dkk. menerangkan bahwa Kd ( koefisien distribusi ) uranium akan turun dengan naiknya dosis radiasi sinar gamma yang disinarkan kepada pelarut-pengencer, hal ini dikarenakan pengencer mengalami degradasi membentuk gugus asam karboksilat dan asam karboksilat akan berinteraksi dengan pelarut ( TBP ). Dari permasalahan ini dicari berapa besar interaksi hasilbelah uranium ( dalam hal ini zirkonium ) dengan pelarut-pengencer. Hasil percobaan ini dapat terlihat pada tabel ( untuk TBP, 30% TBP-Kerosen dan 50% TBP-Kerosen ). Kestabilan pelarut-pengencer ditentukan oleh kemampuan pelarut-pengencer tersebut menahan degradasi. Dari data percobaan pelarut dan pengencer akan mengalami degradasi oleh sinar gamma, semakin tinggi dosis radiasi yang diterima semakin tinggi degradasi hal ini diperlihatkan oleh kenaikan bilangan " Z ". Pada dosis  $5 \times 10^6$  rad semua zirkonium telah terekstraksi kefasa organik ( baik dari irradiator Co-60 maupun dari bahan bakar bekas ), dengan kata lain pela

rut TBP dan pengencer Kerosen secara nyata sudah mengalami degradasi. Campuran 30% TBP-Kerosen dapat dikatakan yang paling tidak stabil terhadap sinar gamma Co-60 maupun bahan bakar bekas, hal ini terlihat pada dosis yang sama dengan perbandingan pelarut pengencer yang berbeda dengan kondisi campuran 30% TBP-Kerosen mempunyai bilangan " Z " terbesar.

#### B. Kesimpulan.

1. TBP, 30% TBP-Kerosen dan 50% TBP-Kerosen oleh sinar gamma Co-60 maupun Bahan bakar bekas mengalami degradasi, semakin tinggi dosis yang diberikan semakin tinggi degradasi.
2. Dari data bilangan " Z " untuk pelarut-pengencer TBP, 30% TBP-Kerosen dan 50% TBP-Kerosen ( lihat tabel ) terdegradasi secara nyata pada dosis  $5 \times 10^6$  rad, dan campuran 30% TBP-Kerosen yang paling tidak stabil terhadap radiasi sinar gamma baik dari Co-60 maupun dari Bahan bakar bekas.

#### Saran :

1. Pada proses PUREX perlu ditinjau kembali apakah pada kondisi 30% TBP-Kerosen adalah kondisi paling efisien dan kondisi optimum ekstraksi.
2. Perlu penelitian lebih lanjut logam-logam hasilbelah yang terekstraksi.

Acuan :

1. Pollock, H. " A Stable Diluent for Purex Process Extractants ", Chemistry Separations for Plutonium and Uranium , A.E.C. Research and Development Report DP-294. E.I. du Pont de Nemours & Co Explosives Department Atomic Energy Division - Technical Division Savannah River Laboratory. June 1958.
2. Dennis B.P. " Radiolytic and Chemical Stability of Pure Hydrocarbon ", Chemistry , A.E.C. Research and Development Report DP 557. E.I. du Pont de Nemours & Co Savannah River Laboratory Aiken , South Carolina April 1961.
3. Goode, J.H. " Radiation Damage to TBP and Diluent Covering Period October-December 1956 " , Chemistry-Radiation and Radiochemistry Oak Ridge National Laboratory. U.S. Atomic Energy Commission.
4. Garret, T.P. Jr. " A Test for Solvent Quality " Chemistry General A.E.C. Research and Development Report DP-237. E.I. du Pont de Nemour & Co Savannah River Laboratory Aiken , South Carolina August 1957.
5. Takehiko Ishihara and Ken Ohwada , " On Fission Product Retention of Degraded Kerosene with Nitric Acid " , Journal of Nuclear Science and Technology, 3 (6) , p. 213-248 , June 1966.
6. Siczek and Steindler, " Atomic Energy Review " Volume 16 , December 1978.
7. Mudjar Masja dan Sutrisno Puspodikoro , " Efek Radiasi dan Bahan Kimia terhadap n-parafin sebagai diluent dalam pemisahan radio Kimia " , PPGM-122-76.



8. Ken Ohwada , " Removal of Fission Products and Their Complexing Agents from Degraded Solvent by Ion Exchange Method " , Journal of Nuclear Science and Technology , 4 (7),p.361-366 (July-1967).
9. Takhasi Tsujino and Takehiko Ishihara, " Radiation Damage to TBP,/Kerosene Solvent (II) Effect on Extraction Behavior of Uranium and Thorium and on their Loading Effect ", Journal of Nuclear Science and Technology, 3 (4), p.144-149 (April 1966)
10. Tarwito dan Soedyartomo Soentono, " Beberapa penelitian tentang kompleks Zirkonium dengan hasil degradasi TBP." PPGM-LX-222-82.
11. Takehiko Ishihara and Ohwada, " Chemical Degradation of Kerosene Diluent with Nitric Acid ", Journal of Nuclear Science and Technology, 3 (1), p.20-26 (January 1966).
12. Perescu N. at al, " The effect of gamma radiation on TBP/Diluent/ $\text{HNO}_3$  system ", ITN - 114 ( MF ).

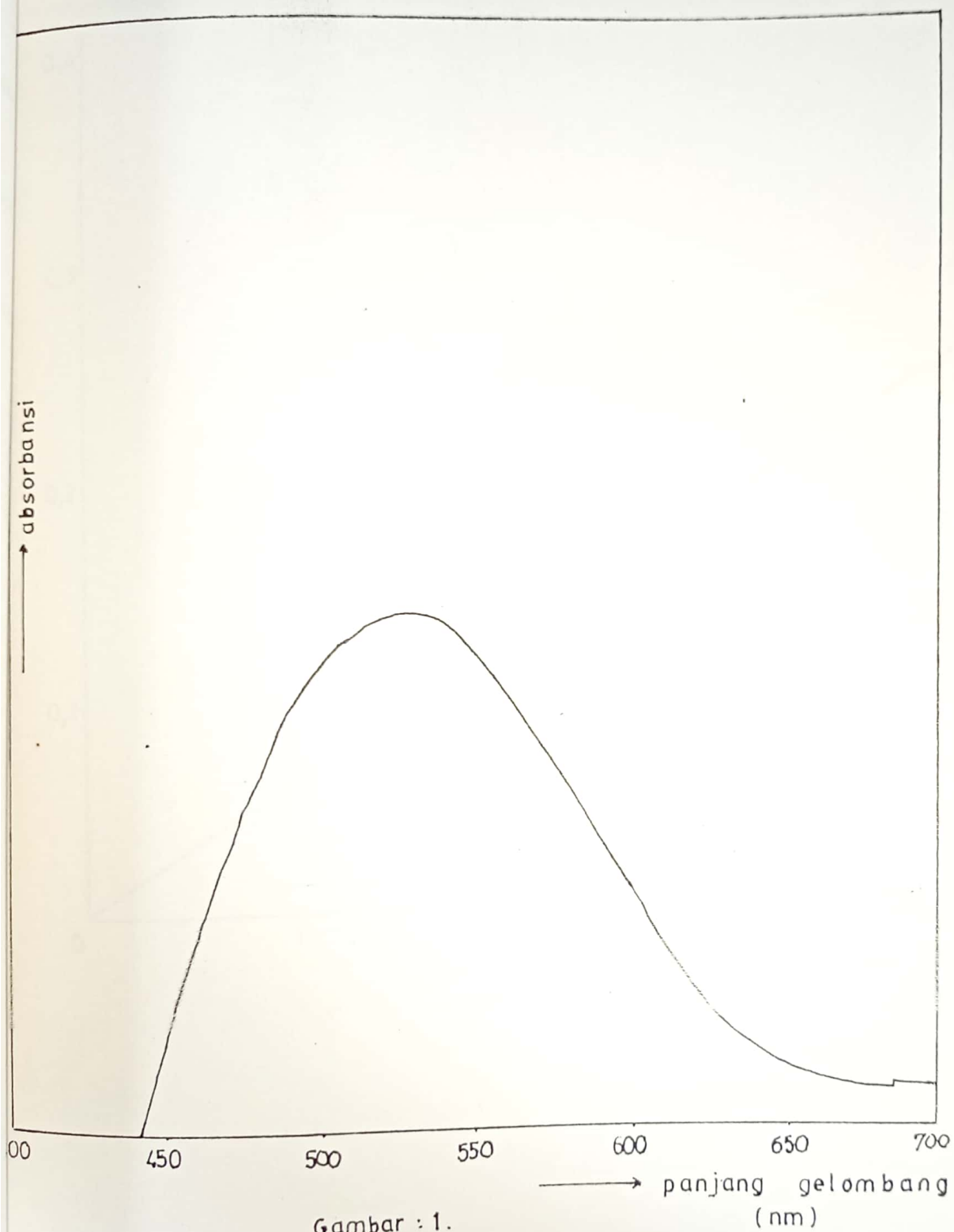
Keterangan Gambar dan Tabel.

Gambar 1 : Penentuan panjang gelombang maksimum larutan zirkonium-alizarinsulfonat.

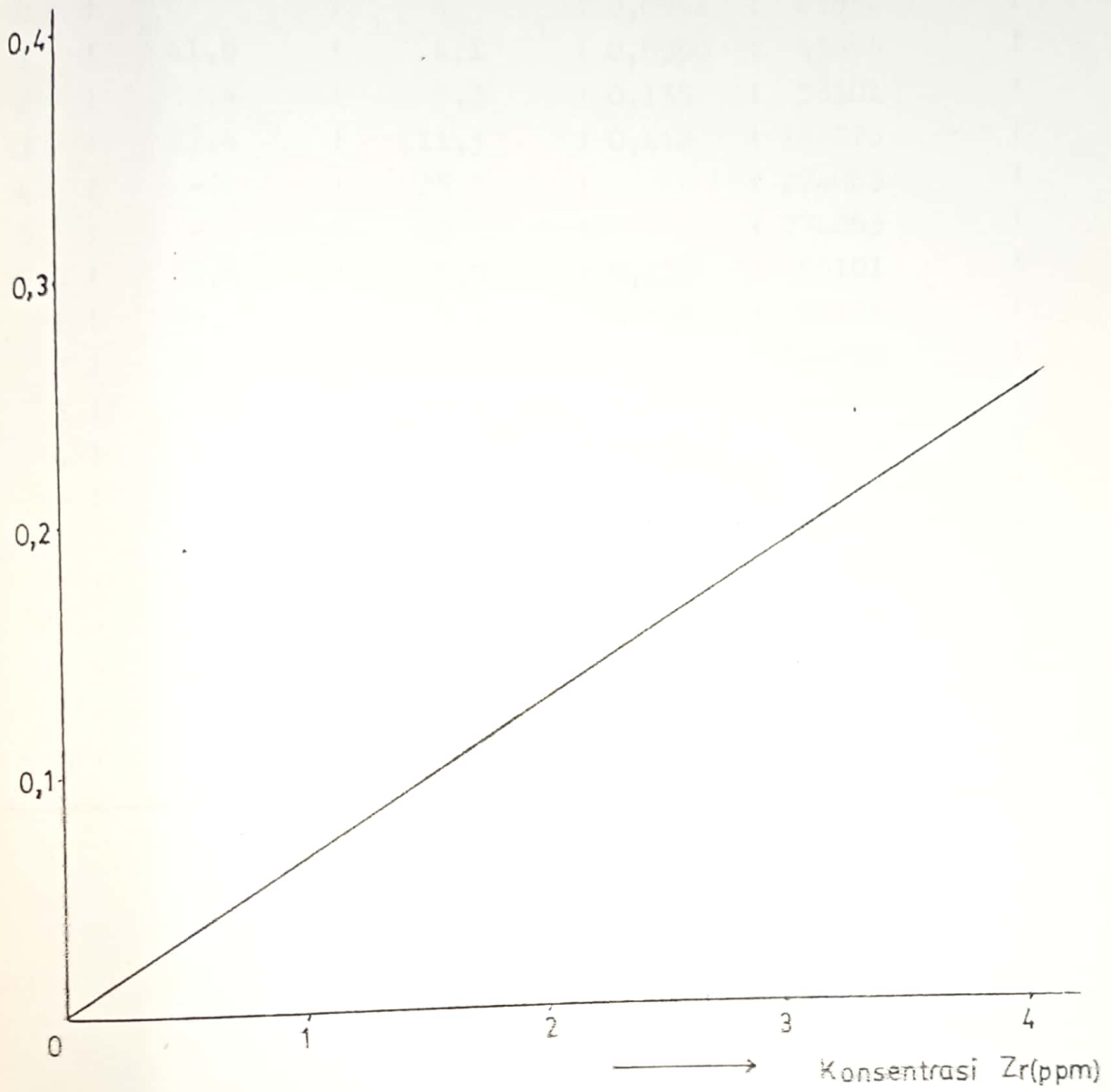
Gambar 2 : Kurva Standart Konsentrasi zirkonium versus absorbansi diamati pada panjang gelombang 525 mu.

Tabel 1 : Penentuan bilangan "Z" dan Koeffisien distribusi degradasi TBP-Kerosin oleh sinar gamma Co-60.

Tabel 2 : Penentuan bilangan "Z" dan Koeffisien distribusi degradasi TBP-Kerosin oleh sinar gamma Bahan bakar bekas.



Gambar : 1.



Gambar : 2.

Tabel 1.

Kode	Konsentrasi fasa <sub>ai</sub> $\times 10^{-3}$ mg/ml	Konsentrasi fasa <sub>org.</sub> $\times 10^{-3}$ mg/ml	Kd Zr	Bilangan " Z "
0	42	4	0,0952	43850
1	41,8	4,1	0,0950	43896
2	39,4	5,3	0,135	58101
3	27,4	11,3	0,412	123876
4	-	25		274063
5	-	25		274063
30.0	39,4	5,3	0,135	58101
1	39,2	5,4	0,138	59198
2	29,2	10,4	0,356	114010
3	22,8	13,6	0,595	149090
4	-	25		274063
5	-	25		274063
50.0	41,9	4,05	0,0966	44398
1	41,8	4,1	0,095	44896
2	40,4	4,8	0,119	52620
3	29,8	10,1	0,338	110721
4	-	25		274063
5	-	25		274063

Tabel 2.

! Kode !	! Konsentrasi fase air ! ! x 10 <sup>-3</sup> mg/ml !	! Konsentrasi fase organik ! ! x 10 <sup>-3</sup> mg/ml !	! Kd Zr !	! Bilangan "Z" !
! 0 !	! 42 !	! 4 !	! 0,0952 !	! 43850 !
! 1 !	! 34,02 !	! 5,45 !	! 0,141 !	! 60124 !
! 2 !	! 32,04 !	! 8,98 !	! 0,280 !	! 98463 !
! 3 !	! 23,78 !	! 13,11 !	! 0,551 !	! 143722 !
! 4 !	! -- !	! 25 !	! !	! 274063 !
! 5 !	! -- !	! 25 !	! !	! 274063 !
! 30.0 !	! 39,4 !	! 5,3 !	! 0,135 !	! 58103 !
! 1 !	! 36 !	! 7 !	! 0,194 !	! 76738 !
! 2 !	! 19 !	! 15,5 !	! 0,816 !	! 159919 !
! 3 !	! 11,7 !	! 19,15 !	! 1,637 !	! 209932 !
! 4 !	! -- !	! 25 !	! !	! 274063 !
! 5 !	! -- !	! 25 !	! !	! 274063 !
! 50.0 !	! 41,9 !	! 4,05 !	! 0,0966 !	! 44393 !
! 1 !	! 38,94 !	! 5,53 !	! 0,142 !	! 60638 !
! 2 !	! 31,26 !	! 9,37 !	! 0,300 !	! 102721 !
! 3 !	! 24,32 !	! 12,84 !	! 0,528 !	! 140734 !
! 4 !	! -- !	! 25 !	! !	! 274063 !
! 5 !	! -- !	! 25 !	! !	! 274063 !

## Catatan :

- Tanpa kode = untuk TBP.
- Kode 30 = " 30% TBP-Kerosin
- " 50 = " 50% TBP-Kerosin
- " 0 = " Tanpa radiasi
- " .1 = " dosis 1 x 10<sup>5</sup> rad.
- " .2 = " " 5 x 10<sup>5</sup> rad

Kode .3 = untuk dosis  $1 \times 10^6$  rad  
" .4 = " "  $5 \times 10^6$  rad  
" .5 = " "  $1 \times 10^7$  rad