

ISSN 1907-2635
416/AU2/P2MI- LIPI/04/2012
(Masa berlaku akreditasi s/d April 2015)

JURNAL TEKNOLOGI BAHAN NUKLIR

Vol. 9 No. 1 Januari 2013



**BADAN TENAGA NUKLIR NASIONAL
PUSAT TEKNOLOGI BAHAN BAKAR NUKLIR**

J. Tek. Bhn. Nukl.	Vol. 9	No. 1	Hal. 1 - 54	Serpong Januari 2013	ISSN 1907-2635
--------------------	--------	-------	-------------	-------------------------	----------------

JURNAL TEKNOLOGI BAHAN NUKLIR

Vol. 9 No. 1 Januari 2013

PEMBINA

Kepala Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir

DEWAN REDAKSI / PENYUNTING

Ketua – merangkap anggota

Dr. Ir. Sigit (Teknik Kimia, BATAN)

Wakil Ketua – merangkap anggota

Drs. Sugondo, M.Eng. (Fisika Metalurgi, BATAN)

Sekretaris – merangkap anggota

Ir. Rr. Ratih Langenati, MT (Rekayasa Material, BATAN)

Anggota

Dr. Ir. Suwardi (Modeling, BATAN)

Ir. Bambang Herutomo (Teknik Nuklir, BATAN)

Dr. Sjafruddin, M.Eng. (Keselamatan Nuklir, BATAN)

Ir. Rr. Ratih Langenati, MT (Rekayasa Material, BATAN)

Ir. Sungkono, MT (Ilmu dan Rekayasa Nuklir, BATAN)

MITRA BESTARI

Prof. Ir. Wahyudi Budi Sediawan, SU, Ph.D. (Teknik Kimia, Universitas Gadjah Mada)

Prof. Dr. Ir. Kris Tri Basuki, M.Sc. (Kimia Nuklir, Sekolah Tinggi Teknik Nuklir)

Prof. Drs. Syahbuddin, M.Sc., Ph.D. (Material, Universitas Gunadarma)

Dr. Ir. As Natio Lasman (Teknologi Reaktor, BAPETEN)

Ir. Rini Riastuti M.Sc. (Metalurgi Ekstraktif, Universitas Indonesia)

TATA LETAK

Arief Sasongko Adhi, S.Si

ADMINISTRASI DAN DISTRIBUSI

Rachmawati Lubis

Alamat Redaksi / Penerbit:

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir - Badan Tenaga Nuklir Nasional
Kawasan Puspipetek Serpong - Tangerang Selatan 15314, INDONESIA

Tel. : (021) 7560915

Fax. : (021) 7560909

E-mail : ptbn@batan.go.id, sigit@batan.go.id

Terbit 2 kali setahun setiap Januari dan Juni. Penerbitan khusus dilakukan bila diperlukan.

DAFTAR ISI

Kata Pengantar	ii
Pembesaran Ukuran Butir UO₂ Dengan Penambahan Dopan Untuk Mengurangi Pelepasan Gas Fisi Futichah, Tri Yulianto	1 – 11
Analisis Jumlah Container Produk Logam Uranium Yang Dapat Disimpan Sementara Pada Sebagian Ruang Proses Produksi Ghaib Widodo, Siti Wardiyati	12 – 20
Migrasi Zirkonium Pada Proses Desorpsi Dalam Tumpukan Diam Resin Anion Dowex-1x8 Moch. Setyadi, Budi Sulistyono	21 – 33
Optimasi Pemisahan Zr – Hf Dengan Cara Ekstraksi Memakai Solven TOPO Dwi Biyantoro, M.V. Purwani	34 – 45
Pengolahan Limbah Nuklir Dan Non-Nuklir Oleh Nanokomposit Fe₃O₄-Karbon Aktif Dengan Proses Insitu Siti Wardiyati	46 – 54

KATA PENGANTAR

Puji syukur dipanjatkan pada Tuhan Yang Maha Esa dengan keridhoannya atas penerbitan Jurnal Teknologi Bahan Nuklir (JTBN) volume 9 nomor 1 Januari 2013. JTBN ini berisi informasi dan dokumentasi hasil litbang yang berhubungan dengan teknologi bahan bakar nuklir reaktor daya dan riset. Untuk Litbang Reaktor Daya: pertama, dilakukan penelitian proses pembesaran ukuran butir UO_2 dengan penambahan dopan untuk mengurangi pelepasan gas fisi. Penelitian ini bertujuan untuk mendapatkan korelasi penambahan dopan Cr_2O_3 terhadap densitas dan ukuran butir pada pelet sinter UO_2 . Pelepasan gas fisi turun dengan meningkatnya besar butir UO_2 di dalam pelet dan pada besar butir tertentu pelepasan gas fisi mencapai optimum. Kedua, analisis jumlah *container* produk logam uranium yang dapat disimpan sementara pada sebagian ruang proses produksi. Tujuan analisis ini adalah untuk memperoleh keamanan penuh baik terhadap produk logam uranium itu sendiri, bagi operator, fasilitas, maupun lingkungan. Oleh karena itu *container* yang dipakai sebagai wadah produk logam Uranium harus memenuhi kriteria yang ditetapkan dalam keselamatan bahan nuklir. Untuk bahan kelongsong, dilakukan penelitian tentang migrasi zirkonium pada proses desorpsi dalam tumpukan diam resin anion Dowex-1X8. Penelitian ini bertujuan untuk menentukan model koefisien migrasi zirkonium pada proses desorpsi dalam tumpukan diam resin anion Dowex-1X8. Selain itu bertujuan juga untuk melakukan validasi model matematis dan menentukan besarnya nilai koefisien migrasi zirkonium meliputi konstanta Henry (H), koefisien perpindahan massa ($k_c.a$) dan koefisien difusivitas aksial (D_z). Penelitian lain adalah optimasi pemisahan Zr – Hf dengan cara ekstraksi memakai solven TOPO. Parameter yang diteliti yaitu konsentrasi ekstrak, konsentrasi asam, konsentrasi umpan dan jenis asam, waktu pengadukan, dan kecepatan pengadukan. Untuk penanganan limbah dilakukan penelitian pengolahan limbah nuklir dan non-nuklir oleh nanokomposit Fe_3O_4 -karbon aktif dengan proses insitu. Untuk itu telah dilakukan percobaan penyerapan nikel dan uranium secara insitu menggunakan nanokomposit Fe_3O_4 -karbon aktif. Penelitian ini dilakukan dengan tujuan untuk mendapatkan metoda pengolahan limbah nuklir dan non nuklir yang sederhana dan efektif.

Dewan Redaksi

MIGRASI ZIRKONIUM PADA PROSES DESORPSI DALAM TUMPUKAN DIAM RESIN ANION DOWEX-1X8

Moch. Setyadji, Budi Sulistyono

Pusat Teknologi Akselerator dan Proses Bahan
Jl. Babarsari Kotak Pos 6101 Ykbb, Yogyakarta
e-mail: mstyadji@batan.go.id
(Naskah diterima 1-2-2013, disetujui 11-6-2013)

ABSTRAK

MIGRASI ZIRKONIUM PADA PROSES DESORPSI DALAM TUMPUKAN DIAM RESIN ANION DOWEX-1X8. Penelitian ini bertujuan untuk menentukan model migrasi zirkonium pada proses desorpsi dalam tumpukan diam resin anion dowex-1X8. Penelitian juga bertujuan untuk melakukan validasi model matematis dan menentukan besarnya nilai koefisien migrasi zirkonium meliputi konstanta Henry (H), koefisien perpindahan massa ($k_c \cdot a$) dan koefisien difusivitas aksial (D_z). Model matematis desorpsi zirkonium dalam tumpukan diam resin berupa persamaan differensial parsial simultan sebagai berikut :

$$\frac{\partial^2 C_A}{\partial z^2} - \frac{v}{D_z} \frac{\partial C_A}{\partial z} + \frac{k_c \cdot a}{D_z} (C_A^* - C_A) = \frac{\varepsilon}{D_z} \frac{\partial C_A}{\partial t} \quad \text{dan} \quad \frac{\partial X_A}{\partial t} = \frac{-k_c \cdot a}{\rho b} (C_A^* - C_A)$$

Dengan $C_A^* = H \cdot X_A$. Migrasi zirkonium dilakukan dengan mengalirkan larutan H_2SO_4 4M sebagai eluen ke dalam tumpukan resin dowex 1X8 yang berisi jenuh zirkonium. Kecepatan alir yang digunakan sebesar 1,5; 2,0; dan 2,5 mL/menit pada tinggi resin 12 cm. Larutan yang keluar dari tumpukan resin dalam kolom ditampung dan dianalisis konsentrasi zirkoniumnya pada setiap interval waktu tertentu menggunakan spektrometer pendar sinar-X, kemudian data konsentrasi zirkonium ini dibandingkan dengan data konsentrasi zirkonium hasil perhitungan menggunakan model persamaan di atas. Nilai $k_c \cdot a$ dan D_z yang dipilih adalah yang menghasilkan nilai *sum of square of errors* (SSE) minimum. Dengan menggunakan data laboratorium diperoleh konstante Henry (H) = 2,535. Hasil penelitian menunjukkan bahwa semakin besar kecepatan alir superfisial maka diperoleh nilai $k_c \cdot a$ dan D_z yang semakin besar. Pada kecepatan alir umpan 1,5 mL/menit diperoleh harga $k_c \cdot a$ sebesar 0,0095 /menit dan D_z sebesar $12,2276 \text{ cm}^2/\text{menit}$ dengan nilai SSE 0,2141 dan ralat rerata = 7,958%, pada kecepatan alir umpan 2,0 mL/menit diperoleh harga $k_c \cdot a$ sebesar 0,0117/menit dan D_z sebesar $13,2445 \text{ cm}^2/\text{menit}$ dengan nilai SSE 0,0358 dan ralat rerata = 5,0579 % serta pada kecepatan alir umpan 2,5 mL/menit diperoleh harga $k_c \cdot a$ sebesar 0,0153 /menit dan D_z sebesar $13,2754 \text{ cm}^2/\text{menit}$ dengan nilai SSE 0,0327 dan ralat rerata = 6,1071%.

Kata kunci: Migrasi, desorpsi, zirkonium, resin anion dowex 1X8

ABSTRACT

MIGRATION OF ZIRCONIUM IN THE FIXED BED OF DOWEX-1X8 ANION RESIN ON THE DESORPTION PROCESS. The research was aimed to determine the zirconium migration model in the fixed bed of dowex-1X8 anion resin on the desorption process. It also aims to validate the mathematical model and determine the value of zirconium migration coefficients include Henry constant (H), mass transfer coefficient ($k_c \cdot a$) and axial diffusivity (D_z). The mathematical model of zirconium desorption in the fixed bed resin is simultaneous partial differential equations as follows:

$$\frac{\partial^2 C_A}{\partial z^2} - \frac{v}{D_z} \frac{\partial C_A}{\partial z} + \frac{k_c \cdot a}{D_z} (C_A^* - C_A) = \frac{\varepsilon}{D_z} \frac{\partial C_A}{\partial t} \quad \text{dan} \quad \frac{\partial X_A}{\partial t} = \frac{-k_c \cdot a}{\rho b} (C_A^* - C_A)$$

With $C_A^* = H \cdot X_A$. Migration zirconium done by passing a solution of 4M H_2SO_4 as the eluent into a fixed bed of dowex IX8 resin containing saturated zirconium. Flow rate used of 1.5; 2.0, and 2.5 mL/min at 12 cm height resin. The solution that came out of the fixed bed of resin in the column was collected and then analyzed the concentration of zirconium at each time interval using X-ray fluorescence spectrometer, and the data were compared with zirconium concentration data calculated using the above equation model. The value of k_{ca} and D_z were accepted if giving minimum of sum of square of errors (SSE). By using experimental data it was obtained Henry constant (H) = 2.535. The results of research showed that the greater the superficial flow rate obtained the value of k_{ca} and D_z greater. At the feed with flow rate of 1.5 mL/min obtained k_{ca} value of 0.0095/min and D_z of 12.2276 cm^2/min with SSE of 0.2141 and average error of 7.958%, at the feed flow rate of 2.0 mL/min obtained k_{ca} value of 0.0117/min, D_z of 13.2445 cm^2/min with SSE value of 0.0358, average error of 5.0579 % and then at the feed flow rate of 2.5 mL/min obtained k_{ca} value of 0.0153/min, D_z of 13.2754 cm^2/min with SSE 0.0327 and average error of 6.1071%.

Keywords: Migration, desorption, zirconium, anion resin dowex IX8

I. PENDAHULUAN

Kebutuhan akan energi listrik di Indonesia saat ini terus meningkat. Pembangkit Listrik Tenaga Nuklir (PLTN) merupakan salah satu alternatif sumber energi listrik yang menjanjikan di masa depan, di mana efisiensinya lebih besar dibandingkan dengan pembangkit listrik lainnya. Reaktor Suhu Tinggi (RST) adalah jenis reaktor generasi IV yang telah dikembangkan oleh beberapa negara, yaitu Jepang, Jerman Barat, Perancis, Belanda, dan Amerika. HTR beroperasi secara normal pada suhu antara 750-950 °C dengan suhu pendingin masuk 300 °C. HTR mempunyai keunggulan baik dari segi keamanan maupun ekonomi. Keunggulan dari segi keamanan adalah reaktor mempunyai *forgiving design* yaitu design yang dapat menetralkan sendiri kekeliruan yang mungkin dilakukan oleh operator. HTR memiliki koefisien reaktivitas suhu negatif besar, jadi reaktor akan padam dengan sendirinya bila suhu naik secara berlebihan tanpa adanya intervensi dari para operator. Keunggulan dari segi ekonomi adalah kemampuan reaktor sebagai sumber listrik sekaligus sumber panas (*cogeneration*).^[1,2]

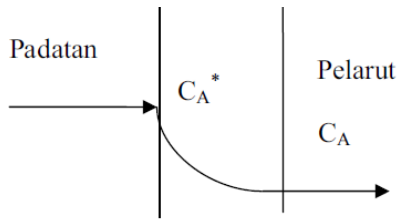
Bahan bakar reaktor suhu tinggi (RST) yang dikembangkan pada dewasa ini ada 2 macam, yaitu bahan bakar berbentuk bola (*pebble bed*) seperti yang dikembangkan

di Jerman, Cina dan Afrika Selatan, dan berbentuk silinder yang dimasukkan dalam blok grafit prismatik yang dikembangkan di Amerika, Jepang, Inggris dan Kanada. Bahan bakar RST terdiri dari beberapa lapisan yaitu lapisan *pyrocarbon* (PyC) luar dengan densitas tinggi, lapisan *silicon carbon* (SiC) dengan densitas tinggi, lapisan *pyrocarbon* (PyC) dalam dengan densitas tinggi, lapisan *pyrocarbon* (PyC) berpori (*phorus*) dengan densitas rendah dan bagian dalam adalah kernel UO_2 .^[1,2,3,4]

Zirkonium dipilih karena ketahanan fisis dan kimianya yang tinggishingga berpotensi untuk menggantikan fungsi unsur silikon dalam SiC. Keberadaan hafnium dalam bahan bakar reaktor nuklir sangat menghambat berlangsungnya reaksi fisi, karena tampang lintang serapan neutron Hf yang besar sekitar 115 barn dibandingkan dengan Zr sendiri yang bertampang lintang 0,18 barn. Oleh karena itu diperlukan tahapan pemisahan yang efisien dan efektif untuk mendapatkan kemurnian nuklir Zr dengan kandungan Hf tidak lebih dari 100 ppm. Pemisahan Zr-Hf dengan metode pertukaran ion secara *fixed bed* dapat dilakukan, akan tetapi untuk mendapatkan zirkon dengan kemurnian tinggi diperlukan kolom yang sangat panjang, hal ini tidak menguntungkan. Oleh karena itu dipilih

pemisahan Zr-Hf dengan sistem annular kromatografi.^[5,6]

Desorpsi adalah kebalikan dari proses adsorpsi yaitu suatu peristiwa terlepasnya molekul, ion atau partikel yang terserap oleh suatu padatan dengan adanya suatu solven. Mekanisme perpindahannya dapat dilihat pada Gambar 1.^[7,8]



Gambar 1. Perpindahanmassadari fasa padat ke fasa cair.

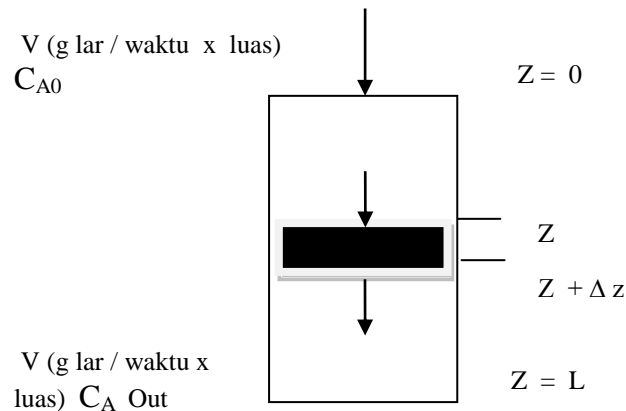
Oleh karena butiran cukup kecil maka kecepatan difusi solut dari dalam butir ke permukaan relatif sangat cepat, sehingga yang mengontrol adalah kecepatan perpindahan massa solut dari permukaan adsorben ke cairan dengan persamaan sebagai berikut:^[7,8]

$$NA = k_c \cdot a(C_A^* - C_A) \quad (1)$$

(g solut/waktu/volum bed)

Dengan C_A = Kadar solut dalam cairan (g solut/g solven bebas solut), C_A^* = kadar solut dalam cairan yang seimbang dengan kadar solut pada permukaan padatan, $k_c \cdot a$ = koefisien perpindahan massa volumetrik (1/waktu).

Misal tinggi tumpukan butir = L , luas tampang tabung = S , kecepatan aliran solven masuk = v g solven/waktu/luas tampang tabung, kadar solut dalam padatan mula-mula = X_{Ain} , kadar solut dalam solven mula-mula $C_{Ain} = 0$, kadar solut dalam solven pada waktu tertentu ($t=t$) keluar kolom ($Z=L$) tertentu, rapat massa bulk padatan bebas solut = ρ_b (g padatan bebas solut/volum tumpukan), porositas tumpukan = ϵ . Mekanisme migrasi cairan dalam proses desorpsi pada *fixed bed* serta parameter yang berpengaruh dapat dilihat dalam *fixed bed column* pada Gambar 2.^[8,9]



Gambar 2. Elemen volum tumpukan diam anion dowex-1X8

Neraca massa solut dalam cairan dalam elemen volum setebal Δz

$$\left(S \cdot V \cdot C_A \Big|_z - D_z \cdot S \cdot \frac{\partial C_A}{\partial z} \Big|_z + k_c \cdot a (C_A^* - C_A) S \cdot \Delta z \right) - \left(S \cdot V \cdot C_A \Big|_{z + \Delta z} - D_z \cdot S \cdot \frac{\partial C_A}{\partial z} \Big|_{z + \Delta z} \right) = S \cdot \Delta z \cdot \epsilon \cdot \frac{\partial C_A}{\partial t} \dots \dots \dots \quad (2)$$

Persamaan diatas dibagi dengan $S \cdot \Delta z$ maka didapatkan persamaan

$$D_z \left(\frac{\frac{\partial C_A}{\partial z} \Big|_z - \frac{\partial C_A}{\partial z} \Big|_{z+\Delta z}}{\Delta z} \right) - \frac{(V \cdot C_A \Big|_{z+\Delta z} - V \cdot C_A \Big|_z)}{\Delta z} + k_c \cdot a (C_A^* - C_A) = \varepsilon \cdot \frac{\partial C_A}{\partial t} \quad (3)$$

Dengan $C_A^* = H \cdot X_A$, dimana H : tetapan kesetimbangan (konstante Henry)

D_z = difusifitas efektif aksial (luas/waktu).

Hasil penyederhanaan persamaan (3) menjadi :

$$\frac{\partial^2 C_A}{\partial z^2} - \frac{v}{D_z} \frac{\partial C_A}{\partial z} + \frac{k_c \cdot a}{D_z} (C_A^* - C_A) = \frac{\varepsilon}{D_z} \frac{\partial C_A}{\partial t} \quad (4)$$

Untuk neraca massa A solut dalam padatan pada elemen volumsetebal Δz

Rate of Input – Rate of Output = Rate of Accumulation

$0 - k_c \cdot a (C_A^* - C_A) S \cdot \Delta z = S \cdot \Delta z \cdot \rho b \cdot \frac{\partial X_A}{\partial t}$ diambil $\Delta z \rightarrow 0$ diperoleh persamaan :

$$\frac{\partial X_A}{\partial t} = \frac{-k_c \cdot a}{\rho b} (C_A^* - C_A) \quad (5)$$

Kondisi batas untuk persamaan (4) dan (5) adalah sebagai berikut :

$$t=0, Z=0, C_A = C_{A0} = 0, X_A = X_{A0}$$

$$t > 0, C_A = C_A, X_A = X_A \quad (0 < Z \leq L)$$

$$t > 0, Z=L, C_A(t, Z=L) = \text{finite} \text{ atau } \frac{\partial C_A}{\partial z} = 0$$

Persamaan (4) dan (5) diselesaikan secara numeris menggunakan metoda beda hingga (cara eksplisit) untuk $i = 1$ s/d. $N-1$, diperoleh sebagai berikut:

$$\left[\frac{(C_A)_{i+1,j} - 2(C_A)_{i,j} + (C_A)_{i-1,j}}{\Delta z^2} \right] - \frac{v}{D_z} \left[\frac{(C_A)_{i,j+1} - (C_A)_{i-1,j}}{2\Delta z} \right] +$$

$$\frac{k_c \cdot a}{D_z} \cdot [(C_A^*)_{i,j} - (C_A)_{i,j}] = \frac{\varepsilon}{D_z} \left[\frac{(C_A)_{i,j+1} - (C_A)_{i,j}}{\Delta t} \right] \quad (6)$$

$$\frac{(X_A)_{i,j+1} - (X_A)_{i,j}}{\Delta t} = \frac{k_c \cdot a}{\rho b} \cdot [(C_A^*)_{i,j} - (C_A)_{i,j}] \quad (7)$$

Penyederhanaan dari persamaan (6) diperoleh:

$$= [(C_A)_{i+1,j} - 2(C_A)_{i,j} + (C_A)_{i-1,j}] - \frac{v \Delta z}{D_z} \cdot \left[\frac{(C_A)_{i+1,j} - (C_A)_{i-1,j}}{2} \right] + \frac{\Delta z^2}{D_z} k_c \cdot a \cdot [(C_A^*)_{i,j} - (C_A)_{i,j}] = \frac{\Delta z^2}{D_z} \cdot \varepsilon \left[\frac{(C_A)_{i,j+1} - (C_A)_{i,j}}{\Delta t} \right] \quad (8)$$

Selanjutnya diambil bagian $(C_A)_{i,j+1}$, menjadi,

$$(CA)_{i,j+1} = \left[1 + \frac{V\Delta z}{2D_z}\right] (CA)_{i-1,j} + \left[-2 - \frac{k_c \cdot \alpha \cdot \Delta z^2}{D_z} + \frac{\Delta z^2 \cdot \varepsilon}{D_z \Delta t}\right] (CA)_{i,j} + \left[1 - \frac{V\Delta z}{D_z}\right] (CA)_{i+1,j} + \left[\frac{k_c \cdot \alpha \cdot \Delta z^2}{D_z}\right] (CA^*)_{i,j}$$

$$(CA)_{i,j+1} = \frac{\frac{\Delta z^2 \cdot \varepsilon}{D_z}}{\gamma} \frac{(1+\alpha)(CA)_{i-1,j} + (-2-\beta+\gamma)(CA)_{i,j} + (1-\alpha)(CA)_{i+1,j} + \beta(CA^*)_{i,j}}{\gamma} \quad (9)$$

Neraca massa solut dalam cairan pada elemen volum setebal $\frac{\Delta z}{2}$ untuk $i=0$
Persamaan neraca massanya adalah,

Rate of Input – Rate of Output = Rate of Accumulation

$$\left[V \cdot S \cdot C_{Ain} + k_c \cdot \alpha \cdot S \cdot \frac{\Delta z}{2} [(CA^*)_{0,j} - (CA)_{0,j}] \right] - \left[D_z \cdot S \cdot \frac{(CA)_{1,j} - (CA)_{0,j}}{\Delta z} + V \cdot S \cdot \frac{(CA)_{0,j} + (CA)_{1,j}}{2} \right] = S \cdot \frac{\Delta z}{2} \cdot \varepsilon \cdot \frac{(CA)_{0,j+1} - (CA)_{0,j}}{\Delta t} \quad (10)$$

Selanjutnya setelah disederhanakan diperoleh,

$$\left[\left(\frac{2 \cdot V \cdot \Delta z}{D_z} \cdot (C_{Ain}) \right) + \frac{k_c \cdot \alpha \cdot \Delta z^2}{D_z} ((CA^*)_{0,j} - (CA)_{0,j}) \right] - \left[-2(CA)_{1,j} - (CA)_{0,j} + \frac{V\Delta z}{D_z} ((CA)_{0,j} + (CA)_{1,j}) \right] = \frac{\Delta z^2 \cdot \varepsilon}{D_z \Delta t} \cdot [(CA)_{0,j+1} - (CA)_{0,j}] \quad (11)$$

Apabila:

$$\alpha = \frac{V\Delta z}{2D_z} \quad (18)$$

$$\beta = \frac{k_c \cdot \alpha \cdot \Delta z^2}{D_z} \quad (19)$$

$$\gamma = \frac{\Delta z^2 \cdot \varepsilon}{D_z \Delta t} \quad (20)$$

Persamaan (dan disederhanakan kembali menjadi bentuk persamaan,

$$(CA)_{i,j+1} = \frac{(1+\alpha)(CA)_{i-1,j} + (-2-\beta+\gamma)(CA)_{i,j} + (1-\alpha)(CA)_{i+1,j} + \beta(CA^*)_{i,j}}{\gamma} \quad (21)$$

Persamaan (21) berlaku untuk $i=1,2,3 \dots N-1$
pada saat $i=0$

$$(C_A)_{0,j+1} = \frac{(-2-2\alpha-\beta+\gamma)(C_A)_{0,j} + (2-2\alpha)(C_A)_{1,j} + \beta(CA^*)_{0,j} + 4\alpha(C_{Ain})}{\gamma} \quad (22)$$

pada saat $i = N$

$$(C_A)_{N,j+1} = \frac{(2+2\alpha)(C_A)_{N-1,j} + (-2-2\alpha-\beta+\gamma)(C_A)_{N,j} + \beta(CA^*)_{N,j}}{\gamma} \quad (23)$$

Untuk kadar zirkonium teradsorpsi dalam adsorben dalam elemen volum menghasilkan bentuk persamaan

$$(X_A)_{i,j+1} = (X_A)_{i,j} - \frac{\Delta t k_c a}{\rho b} [(CA^*)_{i,j} - (CA)_{i,j}] \quad (24)$$

Dengan menggunakan persamaan (18), (19), (20), (21), (22), (23) dan (24) tersebut di atas dan dengan memasukkan harga-harga ϵ , H , V , ρ_b , serta mengambil harga $k_c \cdot a$ dan D_z tertentuka konsentrasi zirkonium dalam larutan (C_A) dan konsentrasi zirkonium dalam adsorben (X_A) dapat diketahui pada setiap elemen kolom dan pada setiap waktu. Harga $k_c \cdot a$ dan D_z optimum apabila memberikan nilai SSE (*sum of square of errors*) minimum. Nilai SSE ditentukan dengan persamaan berikut:^[9]

$$SSE = \sum \{(C)_{hitung} - (C)_{data}\}^2 \quad (25)$$

II. METODOLOGI

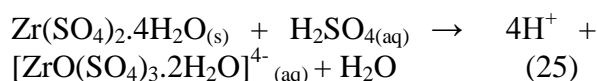
2.1. Bahan

Untuk bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah sebagai berikut: $Zr(SO_4)_2 \cdot 4H_2O$; H_2SO_4 4,2 M; H_2SO_4 3,52 M; Resin anion dowex -1X8; air bebas mineral.

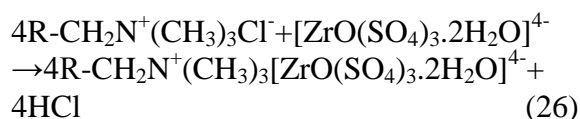
2.2. Pembuatan umpan

Umpan yang digunakan $Zr(SO_4)_2 \cdot 4H_2O$ dari merk BDH dalam bentuk larutan $Zr(SO_4)_2 \cdot 4H_2O$ dengan konsentrasi 7g/L. Setelah ditimbang bubuk $Zr(SO_4)_2 \cdot 4H_2O$ sebanyak 16,3552 g dan dilarutkan dengan H_2SO_4 3,52M sebanyak 600 mL sampai terbentuk konsentrasi 7 g/L. Saat zirkonium sulfat hidrat ditambah asam sulfat, maka molekul air digantikan oleh molekul sulfat. Larutan ini merupakan

larutan umpan yang digunakan pada proses penjuanan resin yang selanjutnya resin yang telah mengandung solut tersebut akan didesorpsi secara *fixed bed*. Reaksi yang terjadi pada pelarutan ini adalah sebagai berikut :



Pada persamaan reaksi tersebut diatas dihasilkan kompleks bermuatan negatif zirkon sulfat $[ZrO(SO_4)_3 \cdot 2H_2O]^{4-}$. Pada proses desorpsi dalam kromatografi *fixed bed* terjadi kesetimbangan antara konsentrasi solut di fasa padat dan solut di fasa cairan. Hubungan keseimbangan antara konsentrasi solut pada permukaan padatan mengikuti hukum Henry, dengan persamaan: $CA^* = H X_A$. Konstanta Henry diperoleh dari pengolahan data hubungan antara kadar solut dalam adsorben dengan kadar solut dalam cairan pada keadaan kesetimbangan. Proses desorpsi dilakukan dengan cara mengalirkan eluen H_2SO_4 4,2 M. Saat penjuanan resin dengan umpan terjadi pertukaran muatan ion antara gugus aktif Cl^- dengan kompleks $[ZrO(SO_4)_3 \cdot 2H_2O]_{(aq)}^{4-}$. sesuai reaksi:



Penentuan koefisien perpindahan massa ($k_c \cdot a$) dan difusivitas aksial (D_z) zirkonium ini dilakukan dengan cara menyusun sebuah model matematis yang mendeskripsikan proses desorpsi yang kemudian dilakukan simulasi komputasi dan pengambilan data dilaboratorium. Massa jenis resin, $\rho_b = 0,7162 \text{ g/cm}^3$.

2.3. Alat

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini adalah satu set alat kolom kromatografi (diameter 0,6 cm, tinggi resin dalam kolom 12 cm), gelas beker, erlenmeyer, corong gelas, pipet volum, pipet tetes, pipet mikro, labu takar, gelas arloji, timbangan, stopwatch, magnetic stirrer, kertas saring, pengaduk, satu set alat spektrometer pendar sinar-X.

2.4. Cara Kerja

Pembuatan larutan umpan zirkonium berbasis sulfat kadar 7 g/L dengan cara ditimbang 16,3552 gram $\text{Zr}(\text{SO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ kemudian dimasukkan ke dalam gelas beker 1000 mL, ditambahkan 600 mL H_2SO_4 3,52 M hingga terbentuk larutan yang bening. Dilakukan analisis kadar zirkonium dalam larutan umpan dengan XRF. Kadar larutan umpan divariasikan 3; 3,5; 4; 4,5 dan 5 g/L dalam 20 mL asam sulfat. Untuk penentuan konstanta Henry caranya ditimbang resin lima buah masing-masing 0,0507 gram lalu dimasukkan ke dalam lima gelas yang

telah berisi variasi umpan sebanyak 12 mL. Larutan tersebut didiamkan selama 1,5 jam dan sesekali diaduk, setelah itu didiamkan selama 18 jam agar kesetimbangan benar-benar telah tercapai. Resin yang telah jenuh pada langkah di atas disaring dengan kertas saring. Dimasukkan dalam gelas beker yang berisi 20 mL H_2SO_4 4,2M. Didiamkan sampai dengan 18 jam, dan cairan yang keluar dianalisis kadar Zr. Untuk proses desorpsi pada kolom kromatografi caranya ditimbang 1,7 gram resin dimasukkan ke dalam kolom kromatografi yang telah berisi dengan larutan umpan, didiamkan agar tercapai kesetimbangan. Proses desorpsi dilakukan dengan cara mengalirkan solven H_2SO_4 4,2 M ke dalam kolom kromatografi. Larutan yang telah keluar dari kolom ditampung dalam gelas beker, dan dianalisis kadar Zr nya setiap lima menit menggunakan XRF. Kecepatan aliran dengan variasi 1,5; 2,0; 2,50 mL/menit dijaga konstan dengan mengatur tinggi larutan dan mengatur larutan yang keluar dengan pompa.

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

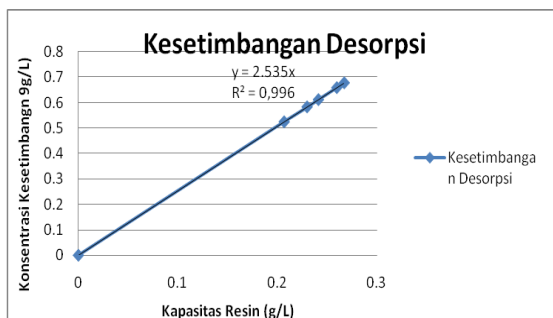
3.1. Penentuan Konstanta Henry

Hasil analisis konsentrasi zirkonium dalam larutan dan padat dalam keadaan kesetimbangan yang diperoleh disajikan dalam Tabel 1 berikut:

Tabel 1. Hasil analisis konsentrasi zirkonium dalam larutan (C^*) dan dalam resin (X)

No.	Cacah Zr	Cacah Compton	Zr/Compton	Kadar Zr dalam larutan (C^*) (g/L)	Kadar Zr dalam resin (X) (mg Zr/g resin)
			Y		
D1	7188	291388	0,0246	0,5235	206,5142
D2	10957	324332	0,0337	0,5819	229,5637
D3	12594	329123	0,0382	0,6106	240,8975
D4	15924	328201	0,0485	0,67640	266,8260
D5	14859	326066	0,0455	0,65750	259,3701

Selanjutnya untuk mendapatkan harga konstanta kesetimbangan Henry maka dibuat grafik hubungan antara C^* dengan X , yang dapat dilihat pada Gambar 3.



Gambar 3. Grafik hubungan antara kapasitas resin versus konsentrasi kesetimbangan

Dari grafik hubungan antara X dan C^* di atas maka didapatkan persamaan garis regresi linier yaitu $Y=2,535X$. Nilai konstanta Henry adalah tangen arah garis lurus yaitu sebesar $2,535 = 0,006159 \text{ gmol/l}$.

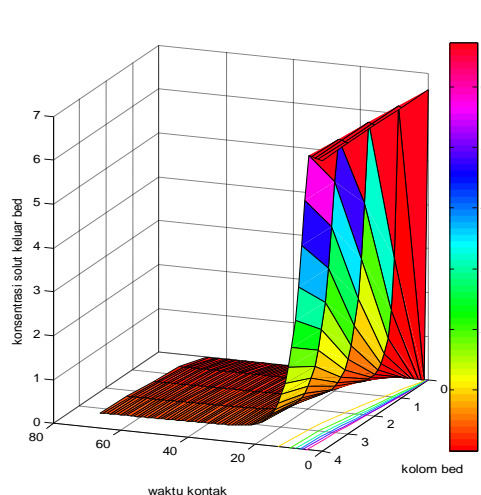
3.2. Penentuan koefisien migrasi zirkonium

a. Kecepatan alir 1,5 mL/menit

Konsentrasi zirkonium pada setiap waktu dan elemen kolom hasil simulasi dan eksperimen pada kecepatan alir 1,5 mL/menit dapat dilihat pada Gambar 4 atau Tabel 2.

Data hasil simulasi dengan data hasil percobaan pada selang waktu 5 menit, untuk kecepatan alir 1,5 mL/menit dapat dilihat pada Gambar 4 dan Tabel 2. Dari Gambar 4 dan Tabel 2 tersebut diketahui bahwa konsentrasi zirkonium didalam cairan semakin berkurang seiring dengan bertambahnya waktu. Hal ini disebabkan karena zirkonium yang terikat pada resin semakin berkurang (terus menerus terelusi) sampai terjadi keadaan kesetimbangan. Dengan menggunakan model matematis yang telah diselesaikan secara numerik (persamaan 21, 22, 23 dan 24) dan dengan

bantuan pemrograman Matlab akan didapatkan hasil data hitungan yang bersesuaian dengan data yang telah didapat di laboratorium, maka akan didapatkan harga $k_c \cdot a = 0,0095/\text{menit}$, harga $D_z = 12,2276 \text{ cm}^2/\text{menit}$, $SSE = 0,2141$ dan ralat rerata = $7,958\%$.



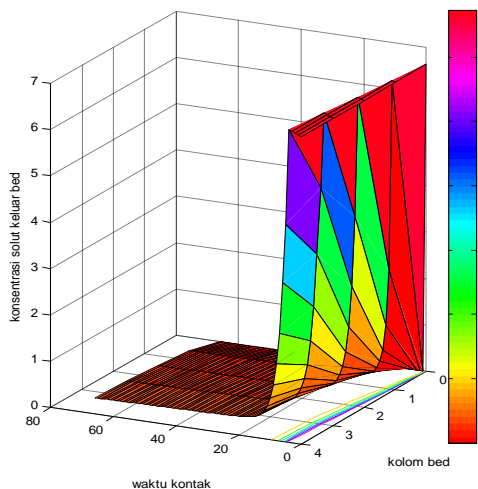
Gambar 4. Hubungan antara waktu dengan konsentrasi zirkonium pada kecepatan alir 1,5 mL/menit.

Tabel 2. Hubungan waktu, konsentrasi dan SSE untuk kecepatan alir 1,5 mL/menit.

Waktu(menit)	C hitung(g/L)	C data(g/L)	Kuadrat Error	Ralat(%)
5	5,671	5,8074	0,0186	2,4053
10	1,8312	1,4030	0,1832	23,3793
15	0,7296	0,7695	0,0015	5,4725
20	0,4677	0,5211	0,0028	11,4212
25	0,4037	0,4390	0,0012	8,7598
30	0,3855	0,4150	0,0008	7,6607
35	0,378	0,4073	0,0008	7,7588
40	0,373	0,3984	0,0006	6,8307
45	0,3686	0,3927	0,0005	6,5540
50	0,3645	0,3675	9,0175E-06	0,8238
55	0,3604	0,3854	0,0006	6,9608
60	0,3564	0,3840	0,0007	7,7660
65	0,3524	0,3794	0,0007	7,6702

b. Kecepatan alir 2,0 mL/menit

Konsentrasi zirkonium pada setiap waktu pada kecepatan alir 2,0 mL/menit dapat dilihat pada Gambar 5 dan Tabel 3.



Gambar 5. Hubungan antara waktu dengan konsentrasi zirkonium pada kecepatan alir 2,0 mL/menit

Dari Gambar 5 dan Tabel 3 tersebut di atas diketahui bahwa sebagaimana pada kecepatan alir 1,5 mL/menit, konsentrasi zirkonium di dalam cairan semakin berkurang seiring dengan bertambahnya waktu. Pada kecepatan alir 2,0 mL/menit berkurangnya konsentrasi zirkonium dalam cairan lebih cepat dibandingkan dengan kondisi pada kecepatan alir 1,5 mL/menit. Hal ini menunjukkan bahwa dengan bertambahnya kecepatan alir eluen maka konsentrasi solut dalam resin akan semakin cepat terdesorpsi dengan kata lain harga koefisien perpindahan massa ($k_c \cdot a$) dan difusivitas aksil (D_z) bertambah besar sehingga lebih cepat terjadinya kesetimbangan. Dari model matematis dan simulasi komputasi dan dengan membandingkan data simulasi dan data dari laboratorium serta dengan menghitung nilai jumlah kesalahan kwadrat

(SSE) terkecil, maka akan didapatkan harga $k_c \cdot \alpha$ dan D_z yang paling sesuai. Pada kecepatan alir 2,0 mL/menit diperoleh harga

$k_c \cdot \alpha$, D_z dan SSE sebagai berikut $k_c \cdot \alpha = 0,0117$ /menit, harga $D_z = 13,2445$, SSE = 0,00358 dan ralat rerata = 5,0579 %.

Tabel 3. Hubungan waktu, konsentrasi dan SSE pada kecepatan alir 2,0 mL/menit

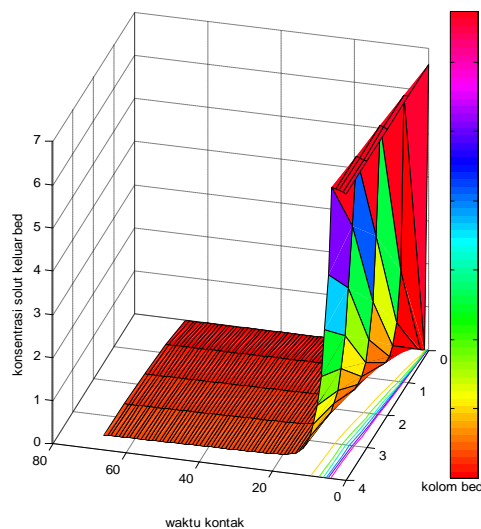
Waktu(menit)	C hitung (g/L)	C data (g/L)	Kuadrat Eror	Ralat(%)
5	4,6859	4,6812	2,1607E-05	0,0992
10	0,8939	0,7231	0,0291	23,6065
15	0,4464	0,4993	0,0028	10,61211
20	0,3993	0,4360	0,0013	8,4325
25	0,3900	0,4019	0,0001	2,9735
30	0,3845	0,3942	9,4872E-05	2,4706
35	0,3793	0,3833	1,6595E-05	1,0626
40	0,3743	0,3783	1,6023E-05	1,0581
45	0,3694	0,3764	4,9063E-05	1,8609
50	0,3646	0,3718	5,2665E-05	1,9515
55	0,3599	0,3704	0,0001	2,8495
60	0,3553	0,3686	0,0001	3,6342
65	0,3508	0,3698	0,0003	5,1415

c. Kecepatan alir 2,5 mL/menit

Konsentrasi zirkonium pada setiap waktu dan elemen kolom hasil simulasi pada kecepatan alir 2,5 mL/menit dapat dilihat pada Gambar 6 atau Tabel 4.

Dari Gambar 6 dan Tabel 4 tersebut di atas diketahui bahwa konsentrasi zirkonium di dalam cairan juga semakin berkurang seiring dengan bertambahnya waktu. Data hasil simulasi dan data hasil percobaan pada selang waktu 5 menit, untuk kecepatan alir 2,50 mL/menit dapat dilihat pada Tabel 4. Dengan membandingkan data simulasi dan data dari laboratorium maka diperoleh harga $k_c \cdot \alpha = 0,0153$ /menit, $D_z = 13,2754$ cm²/menit. Besarnya nilai SSE dan ralat rata-rata masing-masing 0,0327 dan 6,1071%.

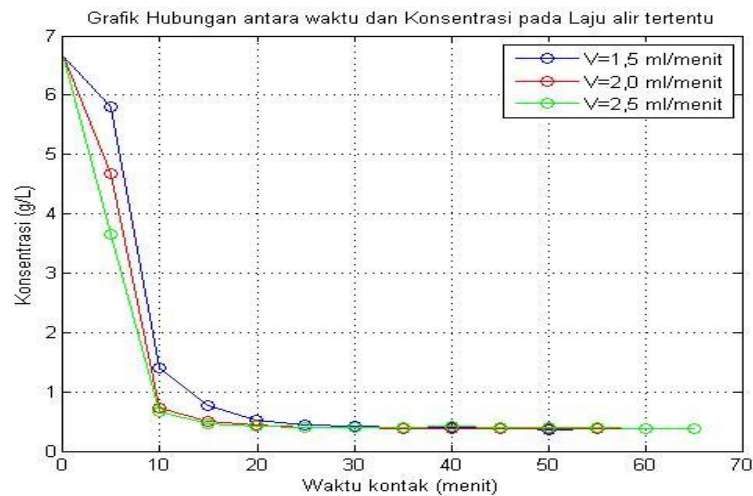
Secara menyeluruh pengaruh kecepatan alir eluen terhadap proses desorpsi dapat dilihat pada Gambar 7 sebagai berikut:



Gambar 6. Hubungan antara waktu dengan konsentrasi zirkonium pada kecepatan alir 2,5 mL/menit.

Tabel 4. Hubungan waktu, konsentrasi dan SSE untuk kecepatan alir 2,5 mL/menit

Waktu (menit)	C hitung (g/L)	C data(g/L)	Kuadrat Error	Ralat(%)
5	3,6362	3,6494	0,0001	0,3644
10	0,5083	0,6708	0,0264	31,9765
15	0,4558	0,4518	1,5397E-05	0,8603
20	0,4482	0,4202	0,0078	6,2319
25	0,4409	0,4076	0,0011	7,5414
30	0,4339	0,4059	0,0007	6,4338
35	0,427	0,3965	0,0009	7,1363
40	0,4203	0,4133	4,867E-05	1,6599
45	0,4138	0,3966	0,0029	4,1563
50	0,4074	0,3918	0,0002	3,8252
55	0,4013	03961	2,6994E-05	1,2946
60	0,3953	0,3797	0,0002	3,9461
65	0,389	0,3739	0,0002	3,9655



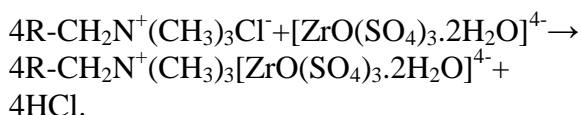
Gambar 7. Hubungan antara konsentrasi Zr terelusi dan waktu pada variasi kecepatan alir

Tabel 5. Hubungan antara kecepatan alir umpan dengan koefisien perpindahan massa $k_c \cdot a$ difusivitas (D_z), sum of square of errors (SSE) dan ralat rerata (%).

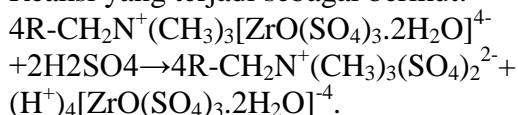
No.	Kecepatan alir (mL/menit)	$k_c \cdot a$ (1/menit)	D_z (cm ² /menit)	SSE	Ralat rerata (%)
1	1,5	0,0095	12,2276	0,2141	7,958
2	2,0	0,0117	13,2445	0,00358	5,0579
3	3,0	0,0153	13,2754	0,0327	6,1071

Pada saat penjenuhan resin dengan umpan terjadi pertukaran ion Cl⁻ dengan

kompleks $[ZrO(SO_4)_3 \cdot 2H_2O]^{4-}_{(aq)}$ dengan reaksi:



Pada proses desorpsi terjadi pertukaran kembali antara kompleks $[ZrO(SO_4)_3 \cdot 2H_2O]^{4-}$ yang sebelumnya terikat pada resin dengan SO_4^{2-} yang berasal dari eluen H_2SO_4 4,2M. Reaksi yang terjadi sebagai berikut:



Kompleks $[ZrO(SO_4)_3 \cdot 2H_2O]^{4-}$ akan terikat dengan $4 H^+$ dan terbawa aliran. Perpindahan massa dan difusi solut merupakan gerakan molekul atau unsur yang disebabkan karena adanya gaya pendorong (*driving force*) baik berupa gradient konsentrasi maupun laju aliran sampai terjadi kesetimbangan. Dari data pada Tabel dan Gambar 7 tersebut di atas diketahui bahwa nilai $k_c \cdot a$ dan D_z berbanding lurus dengan kecepatan aliran umpan yang digunakan, semakin besar kecepatan aliran umpan maka nilai $k_c \cdot a$ dan D_z semakin besar. Kenaikan nilai $k_c \cdot a$ dan D_z ini disebabkan karena semakin besar kecepatan aliran umpan akan menyebabkan kenaikan tingkat turbulensi aliran sehingga kontak antara solut di dalam resin dan eluen (larutan umpan) semakin meningkat akibatnya laju perpindahan massa dan difusi solut dalam padatan resin ke permukaan cairan bertambah besar. Pada saat tertentu perubahan konsentrasi tidak signifikan lagi, dalam hal ini konsentrasi solut dalam cairan (C_A) dan konsentrasi solut dalam padatan (X_A) sudah berada dalam kesetimbangan.

IV. KESIMPULAN

Persamaan diferensial simultan berikut :

$$\frac{\delta^2 C_A}{\delta z^2} - \frac{v}{D_z} \frac{\delta C_A}{\delta z} + \frac{k_c \cdot a}{D_z} (C_A^* - C_A) = \frac{\varepsilon}{D_z} \frac{\delta C_A}{\delta t}$$

dan

$$\frac{\partial X_A}{\partial t} = \frac{-k_c \cdot a}{\rho b} (C_A^* - C_A)$$

dengan $C_A^* = H \cdot X_A$, cukup valid mendiskripsikan migrasi zirkonium proses desorpsi dalam tumpukan diam resin anion dowex 1X8 dengan validitas di atas 90%. Dari model tersebut dapat digunakan untuk mengevaluasi harga koefisien migrasi zirkonium yaitu konstanta kesetimbangan (konstanta Henry), koefisien perpindahan massa ($k_c \cdot a$) dan koefisien difusivitas aksial (D_z). Dengan mempergunakan data laboratorium diperoleh konstanta Henry (H) = 0,006159 gmol/L. Hasil penelitian menunjukkan bahwa semakin besar kecepatan alir superfisial eluen maka konsentrasi solut dalam resin akan semakin cepat terdesorpsi sehingga lebih cepat terjadinya kesetimbangan. Pada kecepatan alir umpan 1,5 mL/menit diperoleh harga $k_c \cdot a$ sebesar 0,0095 /menit dan D_z sebesar 12,2276 cm²/menit dengan nilai SSE 0,2141, pada kecepatan alir umpan 2,0 mL/menit diperoleh harga $k_c \cdot a$ sebesar 0,0117 /menit dan D_z sebesar 13,2445 cm²/menit dengan nilai SSE 0,0358, sedangkan pada kecepatan alir umpan 2,5 L/menit diperoleh harga $k_c \cdot a$ sebesar 0,0153/menit dan D_z sebesar 13,2754 cm²/menit dengan nilai SSE 0,0327.

V. UCAPAN TERIMAKASIH

Pada kesempatan ini penulis mengucapkan banyak terima kasih kepada semua pihak yang telah membantu dalam penelitian ini terutama kepada saudara Sunu Panji Utama yang banyak memberikan kontribusinya yang sangat bermanfaat.

VI. DAFTAR PUSTAKA

- Balthesen, E., (1991), HTR fuel element development in the Federal Republic of Germany, behavior of GCR fuel under accident conditions, In: Proc. IAEA Specialists' Meeting, Oak Ridge, IAEA, IWGGCR/25, Vienna, pp. 24e25
- Young-Woo Lee, Development of HTGR Coated Particle Fuel Technology in Korea

3. Shiozawa, S., (1991), Overview of current research and development programmes for fuel in Japan, behavior of GCR fuel under accident conditions. In: Proc. IAEA Specialists' Meeting, Oak Ridge, (1990), IAEA, IWGGCR/25, Vienna, pp. 19e21
4. Zhou, X., Tang, T., (2010), Current status and future development of coated fuel particles for high temperature gas-cooled reactors, Institute of Nuclear and New Energy Technology, Tsinghua University, Beijing, China
5. Ismono, (1989), Diktat Kuliah Kromatografi Penukar Ion, ITB, Bandung
6. Kwon, Young, J., Process For Producing High Purity Zirconium And Hafnium, United States Patent 4668287 (Publication Date : 05/26/1987)
7. Treybal, R.E., (1968), Mass Transfer Operation, 2nd ed. Mc Graw Hill Book Kogakusha, Ltd., Tokyo
8. Perry, R.S., and Green, (1984), Chemical Engineer's Handbook, 5thed., section 16, Mc. Graw Hill Book Kogakusha Ltd., Tokyo
9. Wahyudi, B.S., dan Agus, P., (1997), Pemodelan Matematis dan Penyelesaian Numeris dalam Teknik Kimia Dengan Pemrograman Bahasa Basic dan Fortran. Yogyakarta, Andi.