



STUDI PEMISAHAN SISA UNSUR AKTINIDA DALAM PYROREPROCESSING

Bambang Suharto
PTPLR-BATAN, Kawasan Puspitek Serpong, Tangerang 15310

ABSTRAK

STUDI PEMISAHAN SISA UNSUR AKTINIDA DALAM PYROREPROCESSING. Telah dipelajari proses daur ulang bahan bakar bekas dengan proses kering yang disebut "pyroprocessing". Dalam proses ini sebagian besar U, Pu dan MA (minor aktinida) bisa direcovery untuk dikembalikan ke reaktor sebagai bahan bakar baru. Akumulasi sisa unsur aktinida ini akan dipisahkan dengan proses ekstraksi yang menggunakan cadmium cair sebagai solven. Penelitian dilakukan dengan simulasi komputer untuk menghitung jumlah tahap ("stage") yang diperlukan. Hasil perhitungan menunjukkan bahwa dengan menggunakan ekstraktor 20 tahap, 99% lebih sisa unsur aktinida bisa dipisahkan.

ABSTRACT

STUDY ON REMAIN ACTINIDES RECOVERY IN PYROREPROCESSING. The spent fuel reprocessing by dry process called "pyroprocessing" have been studied. Most of U, Pu and MA (minor actinides) from the spent fuel will be recovered and be fed back to the reactor as new fuel. Accumulation of remain actinides will be separated by extraction process with liquid cadmium solvent. The research was conducted by computer simulation to calculate the stage number required. The calculation's results showed on the 20 stages extractor more than 99% actinides can be separated.

PENDAHULUAN

Daur ulang bahan bakar yang ada pada "integral fast reactor" (IFR) mempunyai keuntungan yang potensial sekali untuk menangani limbah aktivitas tinggi.^[1] Proses yang digunakan dalam daur ulang bahan bakar ini adalah proses kering ("dry process") yang disebut "Pyrometallurgical reprocessing" atau kadang-kadang disingkat dengan "pyroprocessing". Disebut demikian karena ada 3 tahapan proses yakni: *electrorefining*, *cathode processing* dan *injection casting* yang ketiganya itu berlangsung dalam temperatur relatif tinggi (500 °C).

Dalam proses ini, limbah yang ada pada bahan bakar bekas mengalami pemisahan antara unsur aktinida dan produk fisi dalam suatu kolom elektrolisa yang menggunakan elektrolit (KCl - LiCl) dan elektroda cadmium. Pemisahan ini terjadi karena adanya perbedaan harga standar energi bebas pembentukan ("Standard Free Energies of Formation") diantara unsur yang ada pada bahan bakar bekas dalam larutan elektrolit tersebut.^[2] Sebagian besar aktinida yang sudah terpisahkan dari produk fisi akan didaur ulang kembali untuk menjadi bahan bakar baru, sedang sisanya dan

produk fisi terutama unsur tanah jarang tetap tinggal dalam larutan elektrolit.

Akumulasi limbah yang ada pada larutan elektrolit ini memerlukan penanganan lebih lanjut agar supaya akumulasi limbah ini terbebas dari unsur aktinida yang mempunyai aktivitas alpha sangat tinggi dan waktu luruh ("time decay") sangat panjang, sehingga untuk selanjutnya bisa diperlakukan sebagai limbah LWR. Untuk itu sisa unsur aktinida ini akan diekstraksi dalam suatu ekstraktor banyak tahap berlawanan arah atau "multistage counter current extractor" dengan menggunakan solven cadmium cair yang mempunyai daya kelarutan tinggi terhadap unsur aktinida. Penelitian dilakukan dengan melakukan perhitungan melalui simulasi komputer guna mengetahui kebutuhan cadmium dan jumlah tahap atau "stage" yang diperlukan dalam proses pemisahan unsur aktinida tersebut.

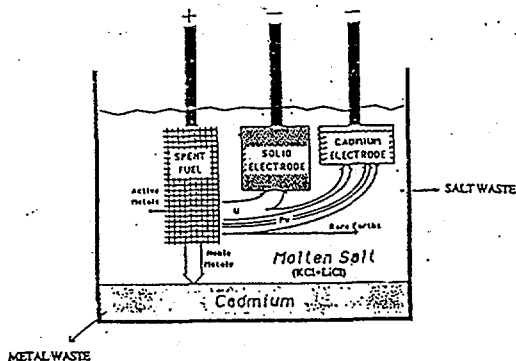
TEORI

Pyrometallurgical Reprocessing

Adalah suatu proses partisioning yang bertujuan untuk menimbulkan limbah sekunder sedikit dan mempunyai fasilitas yang kompak

dibandingkan dengan proses purex, meskipun kemurniannya lebih rendah^[1]. Proses ini telah digunakan dalam pengolahan bahan bakar bekas IFR yang mempunyai komposisi awal paduan dari uranium, plutonium dan zirconium.

Bagian terpenting dalam proses ini adalah *electrorefining* dimana bahan bakar bekas dimasukkan suatu kolom elektrolisa yang berisi larutan elektrolit (KCl + LiCl) dan elektroda cadmium seperti terlihat pada Gambar. 1.^[4] Konsep dasar dari proses ini adalah terjadinya pemisahan antara bahan bakar bekas dan limbah diantara larutan garam sebagai larutan elektrolit dan cadmium cair sebagai anoda pada temperatur tinggi (500 °C) selama proses berlangsung. CdCl₂ sebagai oksidator digunakan untuk mengoksidasi U dan Pu ke dalam bentuk klorida pada anoda yang selanjutnya direduksi oleh Li ke dalam bentuk logam di katoda, kemudian setelah mengalami proses pemurnian U dan Pu ini akan digunakan sebagai bahan bakar baru. Adanya perbedaan standar energi bebas pembentukan (-Δ G_f) seperti pada Tabel. 1^[2] ini juga menyebabkan logam-logam alkali, alkali tanah dan tanah jarang lainnya teroksidasi ke dalam larutan garam, sedangkan logam-logam mulia tetap tinggal di anoda.

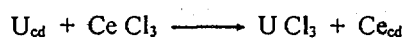


Gambar 1. Skematik proses elektrolisa pada Pyroprocess

Gambar 1. Skematik proses elektrolisa pada Pyroprocess

Pemisahan sisa aktinida

Uranium dalam sistem larutan garam - cadmium akan mengalami reaksi pertukaran dengan TRU dan unsur tanah jarang dengan reaksi :



dengan hubungan kesetimbangan sebagai :

$$DU = \alpha_{Pu} D_{Pu} = \alpha_{Am} D_{Am} = \alpha_{Ce} D_{Ce} = \alpha_{Nd} D_{Nd} = \dots, \text{ dengan :}$$

D = Koefisien distribusi = y/x

y = Fraksi mol dalam larutan garam

x = Fraksi mol dalam cadmium

α = Perbandingan antara harga koefisien aktivitas sistem larutan garam - cadmium dengan standar energi bebas dalam reaksi pertukaran tersebut. Harga ini merupakan kebalikan dari harga faktor pemisahan atau separation factor (SF). Jadi $1/\alpha_{Pu} = SF_{Pu} = D_{Pu} / D_U$.

Tabel 1. Standard Free Energies of Formation of Chlorides (at 1000 K) [-ΔG_f (kcal/g-equivalent x chloride)]

BaCl ₂	83,4	LaCl ₃	67,0	SnCl ₂	51,3
KCl	81,4	PrCl ₃	66,3	ZrCl ₂	49,2
RbCl	81,2	CeCl ₃	66,3	CdCl ₂	30,4
SrCl ₂	81,0	NdCl ₃	64,2	FeCl ₂	26,6
CsCl ₂	80,0	YCl ₃	61,2	TeCl ₂	17,1
SmCl ₂	80,0	AmCl ₃	60,4	MoCl ₂	8,0
LiCl	78,8	CmCl ₃	58,8	TcCl ₂	7,0
CaCl ₂	77,9	PuCl ₃	58,5	RhCl	5,8
NaCl	75,7	MgCl ₂	57,7	PdCl ₂	3,8
		NpCl ₃	54,1	RuCl ₃	1,4
		UCl ₃	51,8		

Dari harga SF seperti ditampilkan pada Tabel. 2^[3] diketahui bahwa harga SF untuk unsur aktinida relatif kecil, sedangkan SF untuk unsur tanah jarang sangat besar. Hal ini menunjukkan bahwa diantara unsur aktinida sulit untuk dipisahkan, namun mudah dipisahkan dari unsur tanah jarang.

Tabel 2 Separation Factors of Actinides and Rare Earths Relative to Uranium

Salt : LiCl-KCl

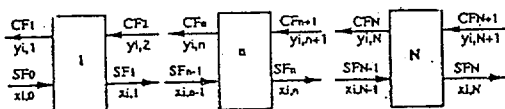
Metal : Cd

Temperature : 773 K

U	1,0	La	70
Np	2,0	Ce	48
Pu	1,9	Nd	43
Am	3,1	Sm	> 1000
Cm	3,8	Eu	> 1000
		Y	> 1000

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil dari perhitungan proses pemisahan masing-masing unsur aktinida dengan proses ekstraksi hasil elektroda yang ada pada pyroprocess dengan skematik seperti pada Gambar 2., ditampilkan dalam Gambar 3. sampai Gambar 7.



n = stage number

N = total number of stages

CF = Cd flow rate (extract phase), kg/h

SF = salt flow rate (raffinate phase), kg/h

X_i = mole fraction solute in salt

Y_i = mole fraction solute i in Cd

Gambar 2. Diagram alir proses ekstraksi banyak tahap berlawanan arah unsur aktinida dalam larutan garam dengan solven Cadmium cair.

Perhitungan dilakukan dengan simulasi komputer dalam bahasa Fortran 77.^[5] Gambar. 3 sampai Gambar. 7 menunjukkan hubungan antara jumlah unsur yang bisa dipisahkan (% recovery) yang dinyatakan dalam perbandingan fraksi mol dengan perbandingan berat cadmium / larutan garam untuk unsur U, Np, Pu, Am, dan Cm. Dengan batasan jumlah tahap ("stage") dari $n=2$ sampai $n=10$. Dari gambar-gambar tersebut diketahui bahwa semakin banyak jumlah cadmium maka % recoverynya juga makin besar, baik untuk $n=2, 4, 6, 8$ dan 10 . Pada ekstraksi dengan jumlah cadmium tertentu, untuk meningkatkan % recovery diperlukan jumlah tahap yang lebih banyak, sehingga semakin banyak jumlah tahap maka aktinida yang dipisahkan juga lebih banyak pula. Mengingat harga SF seperti ditunjukkan Tabel. 2 dari U sampai Cm berturut-turut semakin besar, maka harga koefisien distribusinya (D) semakin kecil. Adanya perbedaan harga D ini mempengaruhi jumlah pemisahan aktinida. Pada jumlah cadmium dan tahap yang tertentu (dengan harga yang sama) terlihat bahwa jumlah pemisahan aktinida persentasenya akan menurun dari U ke Np, Pu, Am dan Cm seiring dengan turunnya harga D nya.

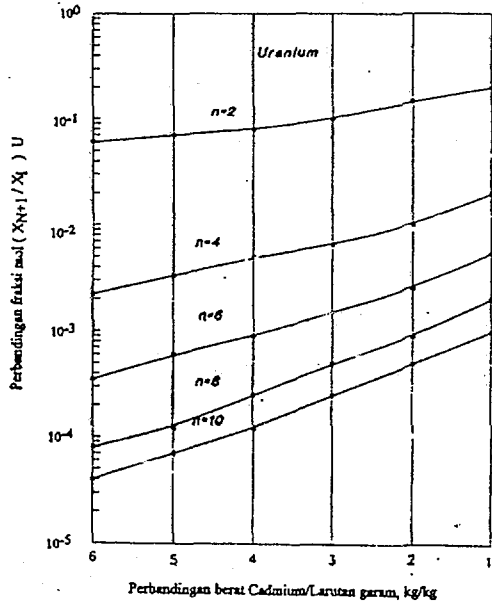
KESIMPULAN

Semakin besar jumlah cadmium dan jumlah tahap, semakin besar pula jumlah pemisahan aktinidanya. Apabila jumlah cadmium dibatasi sebesar 3 kali jumlah larutan garamnya dan jumlah tahap maksimum 20, maka secara keseluruhan hasil pemisahan unsur aktinida dapat dilihat pada Gambar. 8. Dari gambar tersebut bisa diketahui bahwa aktinida yang bisa dipisahkan : 99,97% U; 99,88% Np; 99,75% Pu; 99,55% Am; dan 99,40% Cm.

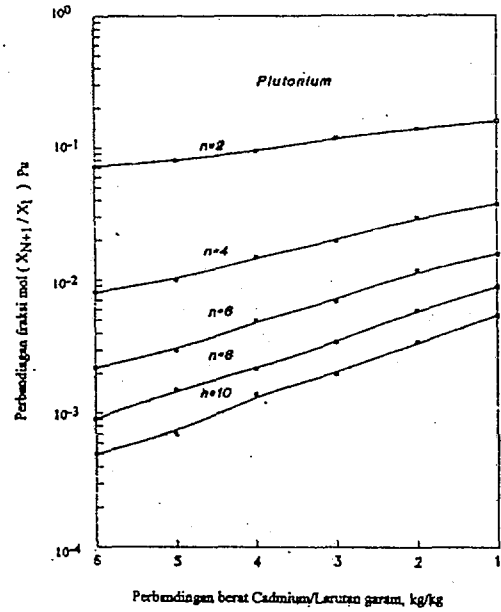
Semakin besar harga faktor pemisahan unsur aktinida dalam sistem larutan garam - cadmium, semakin sulit dipisahkan karena harga koefisien distribusinya menjadi semakin kecil.

DAFTAR PUSTAKA

1. BAMBANG, S., System Evaluation of United Waste Treatments in Pyrochemical Reprocessing for IFR (Integral Fast Reactor), Master Thesis, Tokyo Institute of Technology, Tokyo (1993).
2. TADHASI, I et al, Development of Partitioning and Transmutation Technology for Long Lived Nuclides, Nuclear Technology, 93, 206 (1991).
3. JOHNSON, T.R., "Waste Management in IFR Fuel cycle", Proc. Waste Management, I (1991).
4. ACHERMAN, J.P., Chemical Basis for Pyrochemical Reprocessing of Nuclear Fuel, Ind. eng. Chem. Re, 30, 141 (1991).
5. GORDON, B.D., and THOMAS, R.H., "Fortran 77, A Structured Disciplined Style", third edition, Mc Graw-Hill International Edition (1988).



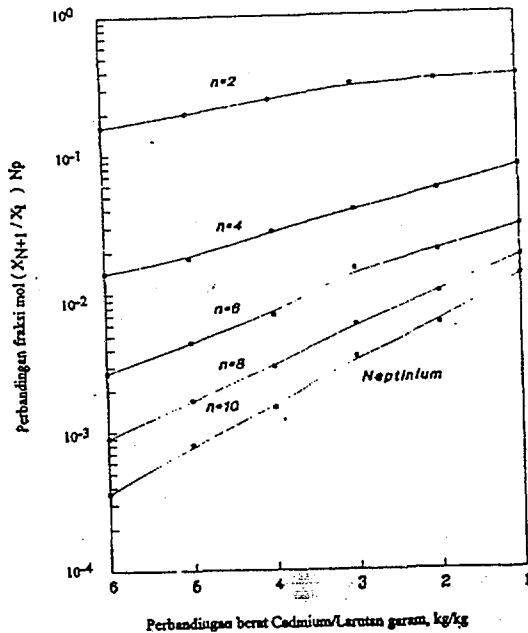
Gambar 3. Pengaruh jumlah Cadmium terhadap perbandingan fraksi mol pada proses pemisahan Uranium



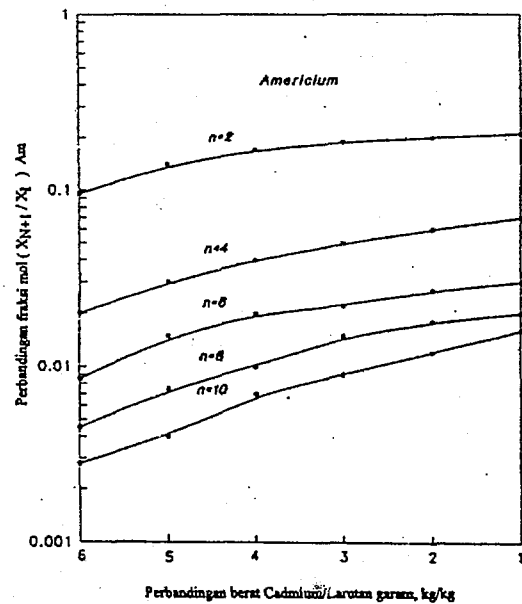
Gambar 5. Pengaruh jumlah Cadmium terhadap perbandingan fraksi mol pada proses pemisahan Plutonium

T
A
N
Y
A
-
J
A
W
A
B
:

Indro Yuwono :

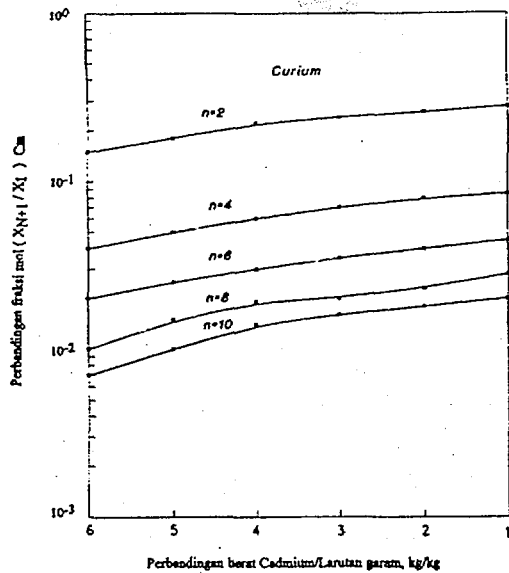


Gambar 4. Pengaruh jumlah Cadmium terhadap perbandingan fraksi mol pada proses pemisahan Neptunium



Gambar 6. Pengaruh jumlah Cadmium terhadap perbandingan fraksi mol pada proses pemisahan Americium

I
D
s
e
c
a
r
a
r
i
l
B
i
l
a
s
u
d
a
h
b
e
r
a
p
a



Gambar 7. Pengaruh jumlah Cadmium terhadap perbandingan fraksi mol pada proses pemisahan Cerium

% penyimpangannya.

2. Dalam menentukan jumlah stage variabel apa saja yang Saudara pilih, dari presentasi yang saya lihat hanya perbandingan volume.

Bambang Suharto :

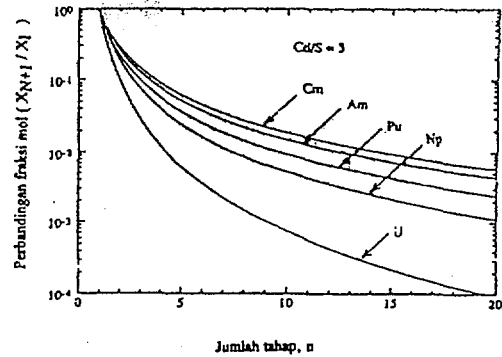
1. Belum dipraktekkan secara riil karena memerlukan dana yang cukup besar.
2. Variabel yang digunakan hanya perbandingan Ed/larutan garam. Sedangkan D untuk tahap penelitian dianggap konstant untuk setiap stage, dan fraksi mol adalah diambil dari data kandungan elemen-elemen dalam spent fuel.

Supardi :

Mohon dijelaskan mengapa dalam pemisahan ini hanya unsur nuklida yang terpisahkan, mengapa tak terikut pula hasil belah, apakah hal ini mungkin.

Bambang Suharto :

Sesuai dengan judul makalah, maka yang dibahas adalah aktinida. Sebenarnya FPs juga bisa dipisahkan, namun data koefisien distribusi untuk menghitung perpindahan massa masih terbatas (belum semuanya ada).



Gambar 8. Pengaruh jumlah tahap, n terhadap perbandingan fraksi mol pada pemisahan unsur aktinida dengan proses ekstraksi

Sukarman A :

1. Apakah Cd cair satu-satunya solvent yang digunakan untuk pyroprocessing.
2. Apakah tidak perlu dilakukan juga eksperimen laboratoris, sehingga hasil simulasi ini dapat dibandingkan dengan hasil eksperimen.

Bambang Suharto :

1. Dalam tahapan R & D, Cd adalah pilihan terakhir yang dianggap terbaik. Dasar pemilihan Cd adalah :
 - high volatility
 - low melting point (320,9 °C)
 - low boiling point
 - solubility aktinida dalam Cd relatif besar
2. Solven lain yang pernah dicoba dalam penelitian (data literatur): Bi dan Zn. Saya kira perlu untuk dilakukan penelitian dalam experiment karena di negara-negara maju pyroprocessing ini juga ditargetkan untuk mengolah spent fuel LWR. Namun yang menjadi kendala adalah dana dan program penelitian biasanya diarahkan untuk program pusat (PTPLR) dalam jangka yang tak panjang.