

Pemisahan Impuritas Dari Larutan Uranil Nitrat dengan Proses Ekstraksi dan Re-ekstraksi di Pilot Conversion Plant

Islah Mukminati, Putra Oktavianto, Agus Sartono, Anne Ariyanita

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir
Badan Tenaga Nuklir Nasional, Banten Indonesia, 15346
Islah-mukminati@batan.go.id

ABSTRAK

Pemisahan Impuritas Dari Larutan Uranil Nitrat dengan Proses Ekstraksi dan Re-ekstraksi di Pilot Conversion Plant. Telah dilakukan proses pemurnian uranil nitrat meliputi proses ekstraksi dan re-ekstraksi (*stripping*) pada seksi 400 di instalasi Pilot Conversion Plant dengan umpan uranium kadar rendah sebesar 77,51 gr U/L, kecepatan alir pompa P-401 42L/jam, keasaman \pm 3N dan dikontakan dengan pelarut organik TBP-kerosene (30:70) dalam *mixer settler* MS-401 dengan kecepatan alir 32L/jam. Dalam proses reekstraksi (*stripping*) laju alir uranium (fase organik) 32L/jam, nitrat encer (fase anorganik) yang digunakan dengan kadar 0,05 N dan laju alir 32L/jam. Dengan umpan uranil nitrat kadar rendah tersebut diperoleh *recovery* uranil nitrat hasil pemurnian sebesar 44,65%. *Impurities* yang mampu dipisahkan dalam proses ini unsur Al sebesar 76,54%;Ca dan Mg 94,09%;Cr 62,41%;Co 99,97%;Cu 76,68%;Fe 79,46% ;Pb 88,34% ; Mn 74,84%;Ni 43,82% ; Zn 93,96%.

Kata kunci: ekstraksi, re-ekstraksi (*stripping*), uranil nitrat, *nuclear grade*, *Pilot Conversion Plant*

ABSTRACT

Impurities Separation From Uranyl Nitrate Solution with Extraction and Stripping Process in Pilot Conversion Plant. *Uranyl nitrate from refining process has been carried out including the extraction and stripping process in section 400 Pilot Conversion Plant where the feed is low grade uranium with 77,518 gr U / L, flow rate of P-401 pump is 42L / hour, acidity \pm 3N, the solution contacted with TBP-kerosene as organic solvent (30:70) in the MS-401 settler mixer at a flow rate of 32L / hr. In the process of re-extracting (stripping), uranium flow rate (organic phase) is 32L / hr, 0.05 N nitric acid (inorganic phase) is used and the flow rate is 32L / hr. With this low grade uranyl nitrate feed, recovery of uranyl nitrate from this purification process reached 44,65%. The Impurities which separated in this process are Al 76,54%; Ca and Mg 94,09%; Cr 62,41%; Co 99,97%; Cu 76,68%; Fe 79,46%; Pb 88, 34%; Mn 74,84%; Ni 43,82%; Zn 93,96%.*

Keywords: extraction, stripping, uranyl nitrate, nuclear grade, Pilot Conversion Plant

I. Pendahuluan

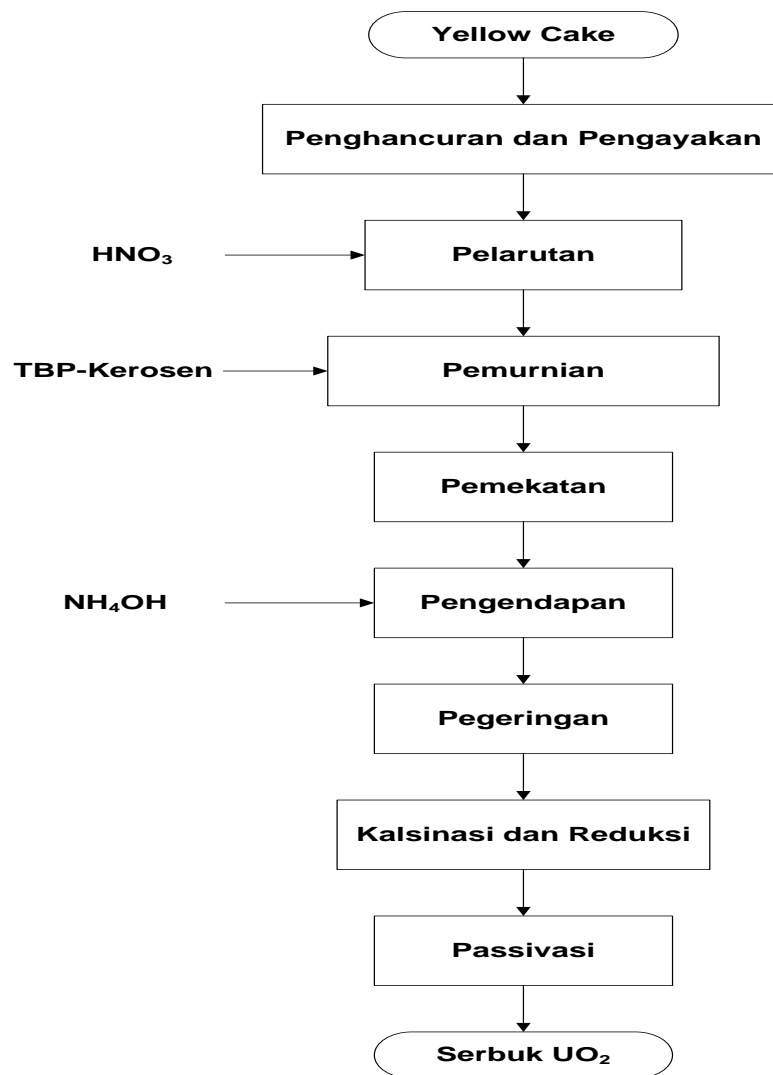
Pilot Conversion Plant (PCP) merupakan salah satu fasilitas yang ada di IEBE - PTBBN yang berfungsi untuk melakukan proses konversi dari *Yellow Cake* ataupun gagal produksi menjadi serbuk uranium dioksida (UO_2) *nuclear grade*. Bahan baku yang digunakan di instalasi PCP adalah *yellow cake* (konsentrat uranium) yang tidak diperkaya, dimana kadar U-235 yang terdapat dalam umpan tersebut sekitar 0,7%, sedangkan sisanya U-238. Target PCP 2019 yaitu menghasilkan serbuk UO_2 *nuclear grade* 20Kg. Untuk merealisasikan target tersebut maka dilakukan proses pemurnian dan konversi di PCP secara intensif.

Status ilmiah saat ini, pernah dilakukan penelitian oleh Ghaib widodo dan Anwar Muchsin pada 2017 dimana percobaan tersebut mencari parameter optimal pengoperasian proses ekstraksi-stripping dengan laju umpan 15L/jam, keasaman 3 M dan umpan uranil nitrat yang digunakan 225,62 gram U/L, serta kemampuan TBP:kerosene 30:70 untuk mengikat uranium (kadar kenyang) sebesar 120 gr U/L, sehingga diperoleh uranium hasil ekstraksi sebesar 48,53 gr U/L sedangkan uranil nitrat hasil stripping diperoleh 64,78 gr U/L[1]. Selain itu pada tahun1997 telah dilakukan tinjauan proses di PCP pada seksi pelarutan konsentrat uranium dan pemurniannya [2]. Perbedaan dalam tulisan ini dari sebelumnya yaitu digunakan umpan uranil nitrat berkadar rendah yaitu 77,51 gr U/L dengan kecepatan alir pompa 42L/Jam umpan untuk memperoleh uranil nitrat *nuclear grade* yang mengacu pada ASTM C 788-98 *Standard "Specification for Nuclear Grade Uranyl Nitrate solution"* (*Annual book of ASTM standards 2002 section twelve, Vol 12.01*) [3].

Dari kegiatan pemurnian uranil nitrat skala pabrik di instalasi PCP ini diharapkan diperoleh uranil nitrat sesuai dengan ASTM C 788-98 [3] untuk dijadikan sebagai umpan dalam proses selanjutnya yaitu pemekatan dan pengendapan agar tercapai target PCP 2019.

II. TEORI

Pemurnian uranil nitrat merupakan salah satu proses di PCP yang menjadi kunci diperolehnya UO_2 *nuclear grade*. Proses yang berlangsung di PCP ditunjukkan pada gambar 1.



Gambar 1. Diagram proses konversi yellow cake menjadi UO_2 di PCP [6]

Pemurnian uranil nitrat yang dilakukan di PCP meliputi proses ekstraksi dan re-ekstraksi di seksi 400, dapat dilihat pada Gambar 2. Umpam yang digunakan adalah uranil nitrat hasil pelarutan yang dikontakkan dengan pelarut organik TBP:kerosin 30:70 pada tahap ekstraksi. Dan pada tahap re-ekstraksi uranium dalam pelarut organik dikembalikan kedalam fase anorganik (air) dengan mengontakkannya dengan asam nitrat encer (0,05 M).

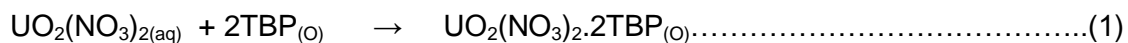
Ekstraksi uranium adalah proses pemisahan uranium dari sejumlah unsur pengotor (impuritas) oleh suatu pelarut organik yang tidak saling melarutkan. Selama proses ekstraksi uranium akan terdistribusi diantara dua pelarut (fase organik dan fase anorganik) sesuai hukum distribusi Nernst [4]

Dalam proses re-ekstraksi pelarut anorganik yang digunakan adalah asam nitrat encer (0,05 M) sedangkan dalam proses ekstraksi pelarut organik yang digunakan adalah campuran Tributyl Posfat (TBP) 30% dengan pengencer kerosin 70% volume. Pemilihan TBP sebagai pelarut organik didasarkan atas sifat selektivitas yang tinggi dalam mengekstrak/mengikat uranium dibandingkan pelarut organik lainnya. Perbandingan TBP:Kerosin (30:70) diperoleh dari percobaan laboratorium dengan kondisi tersebut mampu mengekstraksi 120 g U/L. Selain itu perbandingan TBP:kerosin (30:70) bertujuan agar fase organik berada dilapisan atas sehingga tidak bercampur dengan fase air [1]. Proses ekstraksi dilakukan menggunakan pencampuran-pengenap (*mixer settler*) 16 tingkat. Ekstraksi dilakukan secara *counter current* dengan mengalirkan uranil nitrat berlawanan arah dengan pelarut organik (TBP-kerosin).



Gambar 2. Kolom Ekstraksi di PCP

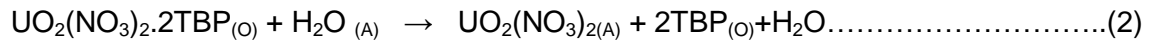
Reaksi yang terjadi dalam proses ekstraksi adalah sebagai berikut:



Uranil nitrat dalam fase air (fase anorganik) dikontakkan dengan TBP membentuk uranil nitrat-TBP (fase organik), uranium dalam fase air akan diekstraksi oleh TBP-kerosin ke dalam fase organik secara selektif sedangkan unsur pengotor tetap dalam fase air (rafinat).

Setelah dilakukan ekstraksi, uranium terikat dalam TBP berada dalam fase organik sebagai ekstrak sedangkan pengotor berada dalam fase air/anorganik dan ditampung sebagai rafinat. Selanjutnya uranium yang berada dalam fasa organik

dikembalikan lagi ke fase air dengan cara di re-ekstraksi menggunakan asam nitrat (HNO_3) encer 0,05 M berdasarkan reaksi berikut:



Uranium hasil re-ekstraksi ini merupakan ekstrak (larutan uranil nitrat) dalam fase air yang telah memiliki tingkat kemurnian yang tinggi terhadap unsur-unsur pengotor dan memenuhi persyaratan yang telah ditetapkan sedangkan TBP keluaran dari kolom re-ekstraksi merupakan TBP bekas dan dapat diregenerasi menggunakan pelarut natrium karbonat 1 M sehingga dapat digunakan kembali untuk proses ekstraksi berikutnya. Larutan uranil nitrat ini siap untuk diproses lebih lanjut hingga menghasilkan serbuk uranium dioksida (UO_2) untuk bahan pembuatan bahan bakar nuklir. [5]

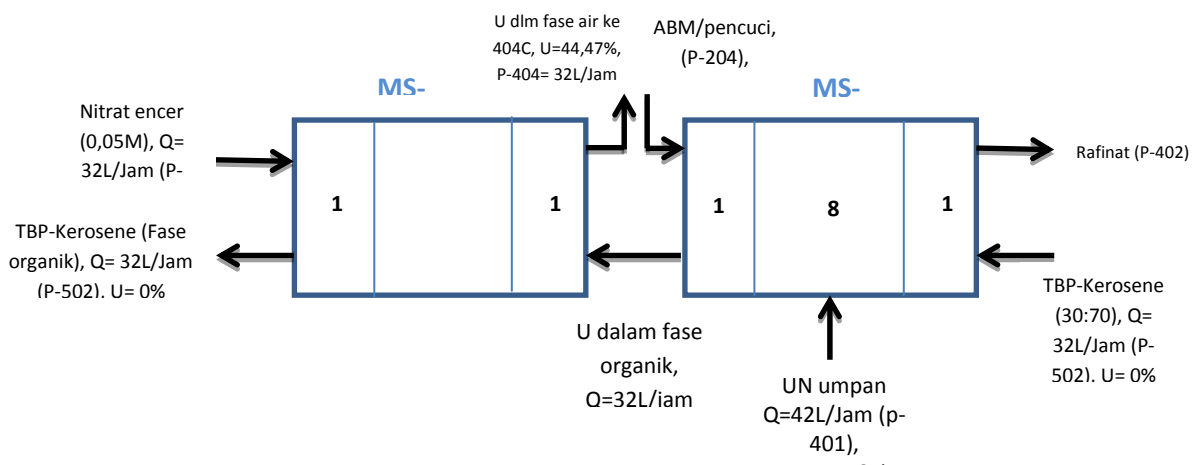
III. METODOLOGI / TATA KERJA

Uranil nitrat berkadar 77,58 g U/L hasil dari proses pelarutan diumpankan ke *Mixer Settler* MS-401 dengan menjalankan pompa P-401 A/B, pengisian ABM dengan menjalankan pompa P 203 sampai volumenya tercapai 50%. Melakukan pengisian fasa organik pada *Mixer Settler* MS – 401 dan MS – 402 meliputi : pengisian TBP-Kerosin kedalam *mixer settler*, dengan menjalankan pompa P-207/ P-504. Melakukan proses ekstraksi dan reekstraksi dengan menyalakan pengaduk pada *mixer settler*, serta mengalirkan larutan HNO_3 encer dengan menjalankan pompa P-205 ke *mixer settler*. Uranil nitrat dari V-401 dan 404C disampling untuk dilakukan uji kadar uranium dengan menggunakan alat potensiometri dan impuritasnya diuji menggunakan *Atomic Absorption Spectrometry* (AAS). Uranium hasil (ekstrak) ditampung pada tangki V-404 A/B. Jika kadar pengotornya sudah memenuhi persyaratan, alirkan ke tangki V-404C tapi jika tidak terpenuhi alirkan ke tangki V-302. Rafinat ditampung pada V-402 A/B. Jika kadar U kurang dari 50 ppm, alirkan ke V-702. Jika kadar U lebih dari 50 ppm, alirkan ke V-302. Ekstraktan (TBP-kerosin) bekas ditampung pada V-405 A/B. Jika kadar uranium lebih besar dari 10 gU/liter, maka di alirkan ke V-403 dan jika kadar uranium kurang dari 10 gU/liter, maka di alirkan ke V-405C untuk dilakukan proses regenerasi TBP-kerosin.

IV. HASIL DAN PEMBAHASAN

Ekstraksi dilakukan pada *mixer settler* MS-401 16 *stages* diikuti dengan re-ekstraksi pada *mixer settler* MS-402 16 *stages*, umpan uranil nitrat masuk pada *stage* ke-8 dengan kadar 77,51 gr U/L dan kecepatan 42 L/Jam. TBP-Kerosin segar/hasil *recovery* dipompa oleh P-502 (kapasitas 123 L/Jam) dan diatur pada posisi 26%. ABM sebagai pencuci dialirkan secara berlawanan dengan kecepatan 2 L/Jam dan ekstraktan yang membawa uranium dalam fasa organik dialirkan menuju MS-402 untuk di re-ekstraksi dengan laju alir 32 L/Jam sedangkan rafinat dialirkan ke tanki V-402 A/B. Ekstraktan yang masuk ke MS-402 lalu dikontakkan dengan nitrat encer 0,05 M sehingga uranium dari fasa organik dikembalikan ke fase anorganik untuk dapat diolah lebih lanjut, rafinat yang berupa fasa organik TBP-kerosin bekas ditampung pada V-405 A/B. Uranium hasil reekstraksi ditampung dalam V-404 A/B dan setelah dianalisis diperoleh kadar U hasil ekstraksi re-ekstraksi 44,47 g U/L, terjadi penurunan kadar uranium dibandingkan umpan hal ini kemungkinan disebabkan karena umpan uranil nitrat mengandung uranium dengan kadar yang relatif rendah (77,51 gr U/L).

Alur jalannya umpan dan pelarut dalam *Mixer Settler* MS-401 dan 402 disajikan dalam Gambar 3.



Gambar 3. Ilustrasi proses ekstraksi-stripping di MS-401 & 402

Hasil analisis unsur pengotor sebelum dan sesudah proses pemurnian dibandingkan dengan ASTM C 788-98 disajikan dalam tabel 1.

Tabel 1. Data Kandungan Impuritas Uranil Nitrat Umpan Pemurnian dan Hasil Pemurnian

| No | Impuritas | Impuritas maksimal sesuai ASTM C 788-98 ($\mu\text{g/gU}$) | Hasil analisis impuritas ($\mu\text{g/gU}$) | |
|-----|-----------|--|---|--------------------------|
| | | | Umpan (V-401) | Hasil Pemurnian (V-404C) |
| 1. | Al | 150 | 509,92 | 119,62 |
| 2. | Ca + Mg | 150 | 2701,59 | 159,42 |
| 3. | Cr | 150 | 121,16 | 45,53 |
| 4. | Co | 80 | 36285,12 | 7,52 |
| 5. | Cu | 200 | 97,51 | 22,73 |
| 6. | Fe | 200 | 1490,46 | 306,08 |
| 7. | Pb | 200 | 13,21 | 1,53 |
| 8. | Mn | 200 | 236,91 | 59,59 |
| 9. | Ni | 150 | 52,13 | 29,28 |
| 10. | Zn | 200 | 109,02 | 6,57 |

Dari data hasil analisis diatas dapat dihitung Persen pemisahan impuritas dari proses ekstraksi dan re-ekstraksi dengan rumus sebagai berikut :

$$\text{Persentase pemisahan impuritas (ekstraksi-reekstraksi)} = \frac{(V-401)-(V-404C)}{V-401} \times 100\% \dots\dots\dots (1)$$

Sehingga diperoleh persentase pemisahan *impurities* seperti pada tabel 2

Tabel 2. Persen Pemisahan Impuritas Hasil Pemurnian (%)

| NO | Unsur | V-401 (Umpan) ($\mu\text{g/g}$) | V-404C (Ekstrak) ($\mu\text{g/g}$) | Persen pemisahan impuritas (%) |
|-----|---------|-----------------------------------|--------------------------------------|--------------------------------|
| 1. | Al | 509,92 | 119,62 | 76,54 |
| 2. | Ca + Mg | 2701,59 | 159,42 | 94,09 |
| 3. | Cr | 121,16 | 45,53 | 62,41 |
| 4. | Co | 36285,12 | 7,52 | 99,97 |
| 5. | Cu | 97,51 | 22,73 | 76,68 |
| 6. | Fe | 1490,46 | 306,08 | 79,46 |
| 7. | Pb | 13,21 | 1,54 | 88,34 |
| 8. | Mn | 236,91 | 59,59 | 74,84 |
| 9. | Ni | 52,13 | 29,28 | 43,82 |
| 10. | Zn | 109,02 | 6,57 | 93,96 |

Dari hasil perhitungan Tabel 2 dapat dilihat bahwa persentase pemisahan impuritas unsur Al sebesar 76,54%; Ca dan Mg 94,09%; Cr 62,41%; Co 99,97%; Cu 76,68%; Fe 79,46% ; Pb 88,34% ; Mn 74,84%; Ni 43,82%; Zn 93,96%. Kandungan

impuritas Fe menurun sebesar 79,46% jika dibandingkan dengan kandungan awal namun belum memenuhi spesifikasi uranil nitrat nuclear grade. Begitu juga unsur Ca dan Mg setelah melewati proses pemurnian impuritasnya turun sebesar 94,09% namun melewati batas spesifikasi *Nuclear Grade Uranyl Nitrate solution*_[3]

Kadar impuritas Al,Cr,Co,Cu,Pb,Mn,Ni,Si dan Zn dapat memenuhi spesifikasi *Nuclear Grade Uranyl Nitrate solution*, namun untuk impuritas Ca,Mg dan Fe belum memenuhi spesifikasi uranil nitrat *nuclear grade*. Hal ini kemungkinan disebabkan karena kadar unsur tersebut yang sudah tinggi di proses sebelumnya yaitu proses pelarutan atau proses *crushing* dan *grinding* sebelum pelarutan, serta belum maksimalnya proses pemurnian.

Tabel 3. Data Kadar Uranium Sebelum dan Sesudah Proses Pemurnian

| No. | Kadar U sebelum pemurnian (gr U/L) | Laju aliran (L/Jam) | Massa U sebelum pemurnian (gr U/L) | Kadar U sesudah pemurnian (gr U/L) | Laju aliran hasil (L/Jam) | Massa U sesudah (gr U/Jam) |
|-----------|------------------------------------|---------------------|------------------------------------|------------------------------------|---------------------------|----------------------------|
| 1. | 77.58 | 42 | 3258.36 | 46.4725 | 32 | 1487.120 |
| 2. | 77.58 | 42 | 3258.36 | 45.683 | 32 | 1461.856 |
| 3. | 77.58 | 42 | 3258.36 | 44.6452 | 32 | 1428.646 |
| 4. | 77.58 | 42 | 3258.36 | 45.0905 | 32 | 1442.896 |
| Rata-rata | 77.58 | 42 | 3258.36 | 46.4725 | 32 | 1455.129 |

Dari data Tabel 3 diatas dapat dihitung jumlah uranium yang terrecovey dari proses pemurnian (ekstraksi dan reekstraksi).

$$\text{Uranium yang terrecovey} = \frac{\text{Massa U sebelum proses}}{\text{Massa U sesudah proses}} = \frac{1455,12}{3258,36} \times 100\% = 44,65\% \dots \dots \dots (2)$$

Recovery uranium pada proses pemurnian diperoleh 44,65% relative rendah, hal ini dimungkinkan oleh kadar TBP awal 30% turun karena sudah dilakukan regenerasi berkali-kali dengan kemampuan TBP (30%) dalam mengikat uranium maksimal 120 gU/L, jika TBP terdegradasi menjadi *Dibutyl Phospate* (DBP) dan *Monobutyl Phospate* (MBP) atau mengalami penurunan kadar menyebabkan kemampuannya mengikat uranium kurang dari 120 gU/L sehingga menurunkan jumlah uranium yang *terrecovey*. Sisa uranium yang lain kemungkinan berada dalam fasa organik karena belum optimumnya proses. Faktor lain yang mempengaruhi rendahnya *recovery* uranium lainnya antara lain belum maksimalnya kontak, serta kecepatan pengadukan yang belum optimal. Selain itu juga dipengaruhi oleh keasaman umpan

serta kadar uranium dalam umpan yang relative rendah, HNO_3 dalam proses ini selain sebagai pelarut juga merupakan *salting out agent* (agen yang mampu mengeluarkan garam/*impurities* dari solvenanya) [7]. Dengan adanya *salting out agent* ini maka impuritas akan didorong menuju fase anorganik (rafinat), sehingga diperoleh uranium dalam fase organik nuclear grade yang selanjutnya di reekstraksi. Selain itu keasaman umpan tidak boleh kurang dari 3N karena akan menyebabkan TBP terdegradasi menjadi DBP dan MBP yang menyebabkan terhidrolisisnya kerosin menjadi senyawa kompleks HNO_3 -TBP, namun jika keasaman umpan kurang dari 3N impuritas akan lebih banyak terikut ke fase organik sehingga mengakibatkan impuritas yang terpisah kurang maksimal [8]

Kesimpulan

Telah dilakukan proses pemurnian uranil nitrat di instalasi PCP menggunakan umpan uranil nitrat berkadar 77,58 gr U/L dimana efisiensi pemisahan impuritas unsur Al sebesar 76,54%; Ca dan Mg 94,09%; Cr 62,41%; Co 99,97%; Cu 76,68%; Fe 79,46% ; Pb 88,34% ; Mn 74,84%; Ni 43,82%; Zn 93,96%. Recovery uranium yang diperoleh dalam proses pemurnian di instalasi PCP sebesar 44,65%. Unsur-unsur pengotor yang memenuhi keberterimaan ASTM C 788-98 Standard Specification for Nuclear Grade Uranyl Nitrate solution (Annual book of ASTM standards 2002 section twelve, Vol 12.01) antara lain Al,Cr,Co,Cu,Pb,Mn,Ni,Si dan Zn, sedangkan unsur Ca,Mg dan Fe masih berada diatas nilai keberterimaan.

Ucapan Terimakasih

Ucapan Terimakasih kami persembahkan untuk seluruh tim PCP yang selalu solid selama proses pemurnian ini berlangsung, tim Kendali Kualitas yang selalu menganalisis material dalam proses baik *raw material* sampai menjadi produk

Daftar Pustaka

- [1] Anwar Muchsin & Ghaib Widodo " Proses Ekstraksi-Stripping $\text{UO}_2(\text{NO}_3)_2$ Berimpuritas Hasil Pelarutan dari Yellow Cake" , 2017, Urania 2017
- [2] Marwoto, "Pabrik Pilot Konversi Tinjauan Atas Seksi Pelarutan Konsentrat Uranium dan Pemurniannya (Seksi 300 & 400)", 1997,Kumpulan prosiding penelitian PSTA
- [3] ASTM C 788-98 Standard "Specification for Nuclear Grade Uranyl Nitrate solution" (Annual book of ASTM standards 2002 section twelve, Vol 12.01)

- [4] BENEDICT, M., PIGFORD, and LEVI, H. W., "Nuclear Chemical Engineering", Mc., Graw Hill Book, W., New York, 1981.
- [5] Ghaib Widodo, Sigit "Pengaruh Keasaman Umpan, Pengadukan, Waktu, dan Suhu Terhadap Efisiensi Proses Ekstraksi-Stripping Uranium Molibdenum /Aluminium", Jurnal Ilmiah 'URANIA' PTBBN-BATAN, Vol 19, No. 3, 2014
- [6] Standar Operasional Prosedur Pemurnian Uranil Nitrat dan Pemulihan Solven (Seksi 400 & 500 *Pilot Conversion Plant*, No. Dok SOP 000.003/BN 02 04/BBN 2, 2018
- [7] Jamal Stas, Ajaj Dahdouh and Habib ShlewiT "Extraction of Uranium (VI) Nitric Acid and Nitrate Solutions By Tributylphosphate and Kerosene", Department of Chemistry Atomic Energy Commission of Syria, Damascus, P.O.Box 6091, Syria
Received : Oct . 11, 2004. ; S. Yu. Skripchenkoa), S. M. Titova, A. L. Smirnov And V. N. Rychkov, (2016)