

ANALISIS OPTIMASI IRADIASI ThO_2 DENGAN NEUTRON REAKTOR KARTINI UNTUK PRODUKSI ^{233}U

OPTIMIZATION ANALYSIS OF ThO_2 IRRADIATION USING NEUTRON OF KARTINI REACTOR FOR ^{233}U PRODUCTION

Puradwi Ismu Wahyono, Syarip

Pusat Sains dan Teknologi Akselerator, BATAN
Jl. Babarsari Kotak Pos 6101 ykbb, Yogyakarta 55281
E-mail: puradwii@batan.go.id

Diterima 3 April 2020, diterima dalam bentuk perbaikan 5 Mei 2020, disetujui 7 Juni 2020

ABSTRAK

ANALISIS OPTIMASI IRADIASI ThO_2 DENGAN NEUTRON REAKTOR KARTINI UNTUK PRODUKSI ^{233}U . PSTA BATAN Yogyakarta telah berhasil memisahkan thorium oksida (ThO_2) dengan tingkat kemurnian berderajat nuklir dari bahan baku monasit. Selanjutnya ThO_2 tersebut akan dimanfaatkan sebagai elemen bahan bakar reaktor nuklir berbasis thorium untuk reaktor CAMOLYP. Melalui proses iradiasi elemen bakar ThO_2 dengan neutron reaktor Kartini diharapkan akan terbentuk ^{233}U sebagai elemen bakar reaktor CAMOLYP. Tujuan penelitian ini adalah menganalisis pola iradiasi sampel ThO_2 dengan neutron reaktor Kartini dengan fluks neutron $10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ agar terbentuk ^{233}U yang optimum. Metode yang digunakan adalah perhitungan dengan bantuan paket program ORIGEN-2, dengan variasi waktu dan mode iradiasi. Telah dilakukan analisis untuk iradiasi ThO_2 secara kontinyu selama kelipatan waktu paruh peluruhan ^{233}Pa menjadi ^{233}U (27 hari) dan iradiasi secara siklik selama 6 jam, 12 jam dan 24 jam paska peluruhan ^{233}Pa menjadi ^{233}U . Hasil analisis menunjukkan bahwa iradiasi ThO_2 secara kontinyu menghasilkan produk ^{233}U yang semakin besar dan akan mulai jenuh pada iradiasi selama 150 hari. Iradiasi ThO_2 berbasis siklus paska peluruhan ^{233}Pa , akan menghasilkan produk ^{233}U terbanyak (optimum) pada siklus iradiasi paska 27 hari.

Kata kunci: Analisis, iradiasi, reaktor Kartini, elemen-thorium, produksi ^{233}U .

ABSTRACT

OPTIMIZATION ANALYSIS OF ThO_2 IRRADIATION USING NEUTRON OF KARTINI REACTOR FOR ^{233}U PRODUCTION. PSTA BATAN Yogyakarta has succeeded in purifying into nuclear grade of thorium oxide (ThO_2) from monasite. Furthermore, the ThO_2 will be used as thorium-based fuel element for CAMOLYP nuclear reactor. Through irradiation process of the ThO_2 fuel element it is expected that ^{233}U will be formed as fuel element for CAMOLYP. The aim of this study is to analyze the ThO_2 sample irradiation pattern at the Kartini reactor with a neutron flux of $10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ in order to obtain the optimum production of ^{233}U production. The method used is the calculation by using the ORIGEN-2 computer code, with variations of time and irradiation mode. An analysis of continuous ThO_2 irradiation has been carried out for the multiple half-life ^{233}Pa to ^{233}U (27 days) and cyclic irradiation for 6 hours, 12 hours and 24 hours after ^{233}Pa decays to ^{233}U decays. The analysis results show that continuous ThO_2 irradiation will produce a larger of ^{233}U products and begin to saturate at 150 days irradiation time. ThO_2 irradiation based on the time cyclic post ^{233}Pa decay time, will produce the most ^{233}U products (optimum) in 27 days post irradiation cycle.

Keywords: Analysis, irradiation, Kartini reactor, thorium-element, ^{233}U production.

PENDAHULUAN

Potensi kandungan thorium di Indonesia lebih banyak daripada uranium. Sebagai bahan pembiak bahan bakar, thorium diklaim oleh banyak pihak sebagai bahan yang lebih ramah lingkungan dan risiko kemungkinan penggunaan limbahnya sebagai senjata nuklir sangat rendah. Thorium di Indonesia bisa dihasilkan dari bahan monasit sebagai hasil samping penambangan timah. Sebagai bahan pembiak uranium bahan bakar reaktor nuklir, maka secara tidak langsung thorium juga bisa menghasilkan radioisotop molibdenum (^{99}Mo) yang merupakan salah satu bahan pembangkit radioisotop $^{99\text{m}}\text{Tc}$ yang banyak digunakan untuk diagnostik di bidang kedokteran nuklir.

Isotop ^{99}Mo selama ini diproduksi menggunakan reaktor nuklir, yaitu melalui proses pembelahan inti ^{235}U . Lazimnya produksi ^{99}Mo dilakukan dengan teknik penembakan (iradiasi) bahan target dengan berkas neutron intensitas tinggi yang bersumber dari suatu reaktor nuklir. Bahan target tersebut berupa uranium dengan perkayaan tinggi yaitu lebih besar dari 90% ^{235}U . Bahan target yang telah diiradiasi dengan neutron kemudian dilarutkan dan selanjutnya diekstraksi untuk memperoleh produk fisi ^{99}Mo . [1,2]

PSTA sedang mengembangkan konsep sistem *critical assembly* atau reaktor produksi isotop (RPI) yang didasarkan pada proses reaksi pembelahan inti ^{233}U produk hasil dari pembiakan ^{232}Th . Berdasar konsep tersebut maka diperlukan elemen thorium yang sudah teriradiasi di medan neutron sehingga telah mengandung bahan fisil ^{233}U . Sebagaimana ^{235}U , bahan fisil ^{233}U ini juga merupakan bahan dasar produksi ^{99}Mo . Disain sistem reaktor produksi isotop ini dikembangkan dari teknologi SAMOP (*Subcritical Assembly for Molybdenum-99 Production*) yang sebelumnya sudah dibuat dan terus dikembangkan di PSTA BATAN. [3,4,5]. Kajian alternatif telah pula dilakukan untuk bahan bakar dan bahan target dari SAMOP berbasis thorium [6,7].

Pengembangan lebih lanjut dari riset SAMOP adalah meningkatkan status reaktor subkritik tersebut menjadi reaktor kritis dengan menggunakan bahan bakar berbasis thorium sehingga menjadi reaktor CAMOLYP (*Critical Assembly for Molybdenum-99 Production*) [8,9]. Langkah awal pengukuran produk ^{233}U dari iradiasi sampel ThO_2 telah berhasil dilakukan [10,11], walaupun belum dilakukan dengan pola dan waktu iradiasi yang menghasilkan ^{233}U dan ^{99}Mo secara optimal. Tujuan penelitian ini adalah menentukan pola skema iradiasi ThO_2 pada medan fluks neutron tertentu di teras reaktor Kartini untuk mendapatkan produk ^{233}U yang optimal dengan bantuan program komputer ORIGEN-2.

METODOLOGI

Peralatan utama yang digunakan dalam penelitian ini adalah program komputer ORIGEN-2. Bahan yang digunakan sebagai obyek perhitungan adalah bahan target atau sampel ThO_2 hasil pemurnian PSTA BATAN [12]. Dengan massa 5 g, yaitu massa memungkinkan untuk diimplementasikan dalam eksperimen dengan reaktor Kartini dengan fluks neutron rerata sebesar $1 \times 10^{12} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ [13]. Variabel iradiasi sampel ThO_2 mengikuti pola skema kontinyu dan siklik yang dilakukan menjadi 3 skenario seperti yang ditunjukkan pada Tabel 1, yaitu:

- (1). Iradiasi kontinyu selama kelipatan waktu paruh peluruhan ^{233}Pa menjadi ^{233}U (27 hari).
- (2). Iradiasi berdurasi 6 jam, 12 jam dan 24 jam paska ^{233}Pa satu kali waktu paruh peluruhan ^{233}Pa menjadi ^{233}U .
- (3). Iradiasi berdurasi 1 hari atau 24 jam paska kelipatan waktu paruh ^{233}Pa menjadi ^{233}U (27 hari). Kelipatan waktu paruh peluruhan adalah 27 hari, 54 hari, dan seterusnya sampai 6 kali lipat yaitu 162 hari.

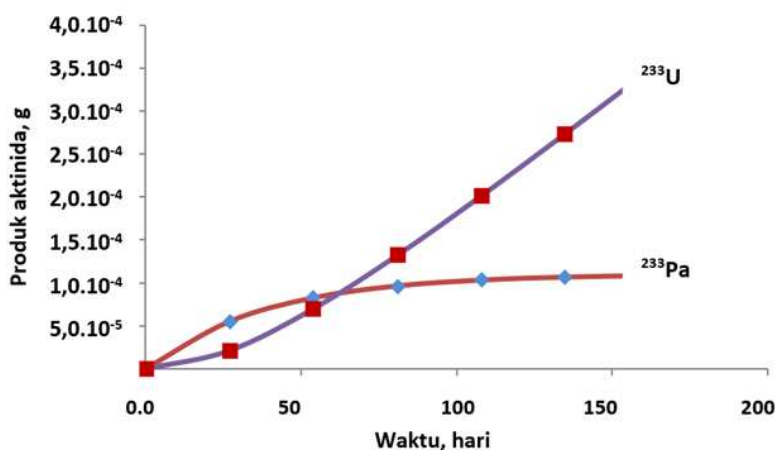
Tabel 1. Skema pola iradiasi sampel ThO_2

Skema Iradiasi	Waktu Iradiasi (T) dan Paska Kelipatan Waktu Paruh Peluruhan ($KT_{1/2}$)											
	T_I	$KT_{1/2}$ (hari)	T_{II}	$KT_{1/2}$ (hari)	T_{III}	$KT_{1/2}$ (hari)	T_{IV}	$KT_{1/2}$ (hari)	T_V	$KT_{1/2}$ (hari)	T_{VI}	$KT_{1/2}$ (hari)
(1). Kontinyu (hari)	27	-	54	-	81	-	108	-	135	-	162	-
(2). Jam	6		6		6		6		6		6	
	12	27	12	27	12	27	12	27	12	27	12	27
	24		24		24		24		24		24	
(3). Hari		27		27		27		27		27		27
	1	54	1	54	1	81	1	-	1	-	1	-
		81		81		-		-		-		-

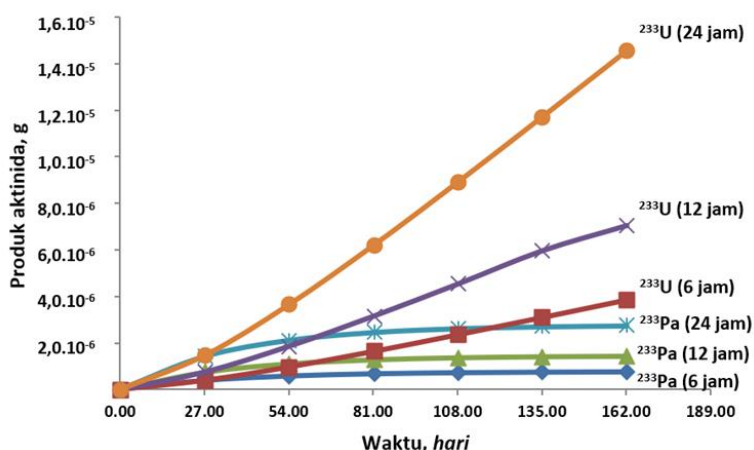
Perhitungan pembentukan nuklida produk aktivasi neutron pada sampel ThO_2 dilakukan dengan menggunakan paket program komputer ORIGEN-2. Secara umum program ORIGEN-2 menyelesaikan sistem besar persamaan diferensial biasa, linear, orde satu dengan koefisien konstan. Persamaan diferensial tersebut merepresentasikan laju perubahan jumlah nuklida sebagai fungsi waktu. Penyelesaian dari himpunan persamaan diferensial simultan tersebut di atas menghasilkan jumlah setiap nuklida yang ada pada akhir setiap langkah atau interval integrasi [14,15].

HASIL DAN PEMBAHASAN

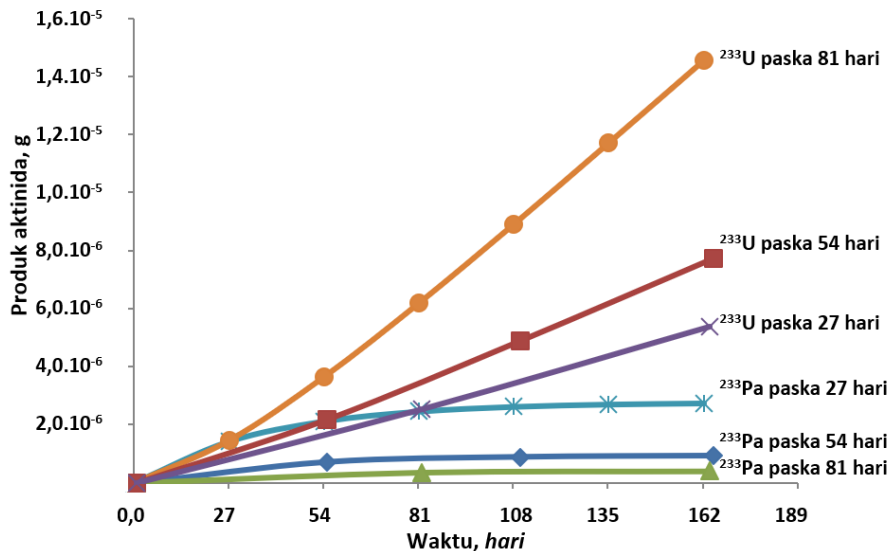
Hasil perhitungan produk aktinida dari iradiasi 5 g sampel ThO_2 untuk mode iradiasi kontinyu pada fluks neutron maksimum reaktor Kartini yaitu dalam orde $10^{12} \text{ n/cm}^2\cdot\text{s}$, disajikan pada Gambar 1. Dapat dilihat bahwa dari hasil iradiasi 5 g ThO_2 secara kontinyu selama kelipatan waktu paruh peluruhan yaitu selama 27, 54, 81, 108, 135 dan 162 hari menghasilkan produk ^{233}U antara $2,4 \times 10^{-5} \text{ g}$ s/d $3,5 \times 10^{-4} \text{ g}$. Produk ^{233}Pa akan mulai jenuh pada waktu iradiasi 150 hari. Oleh karena itu waktu iradiasi 150 hari dapat dijadikan acuan sebagai waktu iradiasi ThO_2 yang optimum untuk produksi ^{233}U sebagai bahan fisil (bahan bakar) CAMOLYP. Hal ini selaras dengan hasil perhitungan simulasi yang telah dilakukan dengan TRIGA 2000 dengan fluks neutron total $1,07 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2\cdot\text{s}$ [16]. Pada tingkat fluks neutron lebih tinggi akan memberikan produk ^{233}U yang lebih banyak. Pada fluks neutron tersebut dengan iradiasi ThO_2 selama 300 hari kontinyu operasi, ^{233}U yang dihasilkan adalah 0,45 g. Asumsi fluks yang lebih tinggi seperti halnya di RSG GAS dan durasi iradiasi yang lebih lama akan menghasilkan ^{233}U yang lebih banyak.



Gambar 1. Produksi aktinida (^{233}Pa and ^{233}U) dari 5 g sampel ThO_2 pada fluks neutron $10^{12} \text{ n/cm}^2\cdot\text{s}$ dengan iradiasi kontinyu.



Gambar 2. Produk aktinida (^{233}Pa dan ^{233}U) dari 5 g sampel ThO_2 pada fluks neutron $10^{12} \text{ n/cm}^2\cdot\text{s}$ waktu iradiasi 6, 12, 24 jam dengan siklus 27 hari pasca peluruhan.



Gambar 3. Produk aktinida (²³³Pa dan ²³³U) hasil iradiasi 24 jam dari 5 g sampel ThO₂ pada fluks neutron 10¹² n/cm².s, siklus 27, 54, dan 81 hari paska peluruhan.

Hasil perhitungan produk aktinida dari 5 g sampel ThO₂ pada fluks neutron 10¹² n/cm².s dengan skema waktu iradiasi 6, 12, 24 jam dan dengan siklus 27 hari paska peluruhan, disajikan pada Gambar 2. Berdasarkan Gambar 2 dapat dilihat bahwa iradiasi 5 g sampel ThO₂ selama 6, 12 dan 24 jam paska kelipatan waktu paruh peluruhan kelipatan 27 hari menghasilkan produk ²³³U rata-rata masing-masing 6,5×10⁻⁷ g, 1,2×10⁻⁶ g dan 2,5×10⁻⁶ g. Selanjutnya pada hari ke 54, 81, 108, 135 dan 162, produk ²³³Pa mulai jenuh karena meluruh menjadi ²³³U, sehingga pada waktu-waktu tersebut produk ²³³U semakin bertambah secara cukup signifikan. Hasil perhitungan produk aktinida dari 5 g ThO₂ dengan skema iradiasi selama 24 jam paska kelipatan waktu paruh peluruhan 27, 54, dan 81 hari, disajikan pada Gambar 3. Berdasar skema ini dapat dihasilkan produk ²³³U berorde rata-rata 2,56 ×10⁻⁶ g. Waktu pengamatan produk hasil iradiasi ²³³U sampai dengan 162 hari dengan siklus paska iradiasi 27, 54 dan 81 hari tersebut menunjukkan bahwa dalam 162 hari, ThO₂ telah teriradiasi sebanyak 6 kali, 3 kali dan 2 kali. Jumlah produk ²³³U yang terbentuk dengan waktu iradiasi yang sama tersebut menghasilkan jumlah terbesar ²³³U pada penerapan iradiasi dengan siklus paska 27 hari. Hasil analisis ini juga menunjukkan bahwa iradiasi sampel ThO₂ seberat 5 g dapat dengan selamat secara radiologis dilakukan di reaktor Kartini [9].

KESIMPULAN

Berdasarkan pada tiga skenario iradiasi sampel ThO₂ seperti pada metode penelitian ini, dapat disimpulkan bahwa iradiasi ThO₂ secara kontinyu adalah yang paling besar menghasilkan produk ²³³U sesuai lama iradiasi, semakin lama iradiasi ThO₂ semakin besar produk ²³³U. Produk ²³³Pa sebagai isotop yang akan meluruh menjadi ²³³U akan mencapai jenuh pada waktu iradiasi sampel 150 hari. Sedangkan iradiasi ThO₂ berbasis siklus paska peluruhan ²³³Pa, akan menghasilkan produk ²³³U terbanyak pada siklus iradiasi paska 27 hari.

UCAPAN TERIMA KASIH

Kegiatan penelitian ini merupakan bagian dari Program Insinas Kemitraan Ristek Dikti : *Pengembangan Prototip Reaktor Produksi Isotop Untuk Kedokteran Nuklir Berbasis Thorium Lokal (CAMOLYP)* periode 2019-2021.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] Maroor Raghavan et.al., Sustained Availability of $^{99\text{m}}\text{Tc}$: Possible Paths Forward, J Nucl Med, vol 54, pp 313–323, 2013, DOI: 10.2967/jnumed.112.110338 (J of Nuclear Medicine Sponsored on July 29, 2015).
- [2] International Atomic Energy Agency (IAEA), "Homogeneous Aqueous Solution Nuclear Reactors for the Production of Mo-99 and Other Short-Lived Radioisotopes" 2008 IAEA TECDOC Report 1601, Vienna, Austria
- [3] Syarif, et al., "Design and Development of Subcritical Reactor by Using Aqueous Fuel for Mo-99 Production", Proceedings of the Pakistan Academy of Sciences: A. Physical and Computational Sciences vol 55 (1), pp 21–26, 2018.
- [4] Syarif, et al., "Commissioning Preparation of a Subcritical Experimental Facility for ^{99}Mo Production", J. Phys.: Conf. Ser. 1198 022023, 2019, <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1198/2/022023>.
- [5] M. Iqbal Farezza, and Syarif, "Mo-99 Isotope Production Calculation of SAMOP Reactor Experimental Facility", J. Phys.: Conf. Ser. 1090 012013, 2018, <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1090/1/012013>.
- [6] Syarif, E Togatorop, "Molybdenum-99 Production Calculation Analysis Of SAMOP Reactor Based On Thorium Nitrate Fuel", Journal of Physics: Conference Series 978 (1), 012072, 2018.
- [7] F. Yassar, et al., "Neutronic analysis of subcritical assembly for ^{99}Mo isotope production based on thorium nitrate fuel", J. Phys.: Conf. Ser. 1080 012021, 2018, <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1080/1/012021>.
- [8] B Delphito and Syarif, "Neutronic analysis of critical assembly for moly-99 production reactor based on mixed Th-U fuels", J. Phys.: Conf. Ser. 1436 012102, 2020.
- [9] Puradwi Ismu Wahyono, Syarif, "Analisis Keselamatan Iradiasi Thorium di Reaktor Kartini", 2019, Prosiding Seminar Keselamatan Nuklir, pp 17, 2019.
- [10] Syarif et al., "Measurement and analysis of ^{233}U from local thorium by using gamma spectrometry and DNCS methods", J. Phys.: Conf. Ser. 1204 012005, 2019.
- [11] Syarif and Tegas Sutondo, "Analytical Method of Atomic Density Determination of Uranyl Nitrate Solution", J. Phys.: Conf. Ser. 1090 012036, 2018. <https://doi.org/10.1088/1742-6596/1090/1/012036>.
- [12] Susilo W, et al.. "Dari Pasir Monasit ke Thorium: Bahan Baku Bahan Bakar Nuklir dan Radioisotop Medik, Pustaka Pelajar", Cetakan Kedua, Yogyakarta, 2019.
- [13] Tegas S, Syarif S, "Karakteristik berkas pada *beam port* tembus dan singgung reaktor Kartini", Ganendra Majalah Iptek Nuklir, vol 17, no 2, pp 83-90, 2014.
- [14] Allen G. Croff, "A User's Manual For The ORIGEN2 Computer Code", ORNL/TM-7175 (CCC-371), Oak Ridge National Laboratory, 1980.
- [15] S Ludwig, ORIGEN2, Version 2.1 (8-1-91) Released Notes, 1999.
- [16] Rasito et al., "Comparison of Irradiation Effect of ThO_2 and ThZrH on Neutronic Parameter of TRIGA 2000 Reactor", ICANSE 2018, J.Phys.:Conf.Ser.1493(2020)012017.<https://doi.org/10.1088/1742-6596/1493/012017>.