

METODE BAKU PEMISAHAN CESIUM DARI LARUTAN BAHAN BAKAR U_3Si_2/Al TM 4,8 g/cm³ MENGUNAKAN CARA PENGENDAPAN

Dian A., Sutri Indaryati, Iis Haryati, Yanlinastuti, Syayidatul Nisa

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir

ABSTRAK

Metode baku pemisahan cesium dari larutan bahan bakar U_3Si_2/Al TM 4,8 g/cm³ telah tersusun dalam bentuk dua dokumen standar operasional prosedur (SOP) yaitu SOP Penentuan Rekoveri Pemisahan Cesium dengan metode pengendapan dan SOP Pemisahan Cesium dari larutan bahan bakar uranium U_3Si_2/Al TMU 4,8 g/cm³. Dasar penyusunan SOP adalah metode standar ASTM E-320, ASTM E-620 dan hasil-hasil penelitian bahan bakar uranium U_3Si_2/Al TMU 2,96 gU/cm³ secara radiokimia. SOP recoveri pemisahan cesium memuat tahapan proses pengendapan pada larutan standar Cs-137 SRM dengan menggunakan pereaksi $HClO_4$ pekat dan *carrier* $CsNO_3$. Proses pengendapan dilakukan pada suhu lebih rendah 0°C selama 1 jam. Analisis Cs-137 dilakukan menggunakan alat spektrometer gamma pada energi 661 keV. Rekoveri dihitung berdasarkan perbandingan kandungan Cs-137 sebelum dan sesudah proses pengendapan dan diperoleh sebesar 98,5 %. SOP pemisahan Cesium dari larutan bahan bakar uranium U_3Si_2/Al TMU 4,8 g/cm³ memuat tahapan proses pengendapan dari cuplikan larutan bahan bakar U_3Si_2/Al TMU 2,96 g/cm³ dengan 3 buah replikat (triplo). Parameter proses pengendapan disesuaikan dengan hasil optimasi. Repitibilitas metode diperoleh dari nilai *relative standard deviation* dari 3 buah replikat dan diperoleh sebesar 0,24%. SOP ini diharapkan dapat digunakan sebagai pedoman dalam melaksanakan pemisahan dan analisis Cs-137 dalam bahan bakar uranium pasca iradiasi.

Kata kunci : pembakuan metode, standar operasional prosedur (SOP), metode pemisahan cesium, metode pengendapan, bahan bakar U_3Si_2/Al TMU 4,8 gU/cm³

PENDAHULUAN

Kesepakatan pengalihan penggunaan uranium dari pengkayaan tinggi (>90% U-235) ke pengkayaan rendah (<20% U-235) telah dicanangkan pada tahun 1978 dan salah satu produk pengembangan bahan bakar dari program tersebut adalah bahan bakar uranium U_3Si_2/Al dengan TMU 4,80 g/cm³ [1]. Berkaitan dengan hal tersebut maka untuk meningkatkan efektifitas pengoperasian reaktor riset G.A Siwabessi dalam pengujian bahan dan bahan bakar nuklir telah dilakukan pengembangan bahan bakar uranium U_3Si_2/Al dengan pembuatan elemen bahan bakar uranium densitas tinggi, U_3Si_2/Al TMU 4,8 g/cm³ berbentuk pelat variasi burn up (20,40,60%) oleh PT INUKI Persero. Elemen bahan nuklir diiradiasi di dalam *core reaktor* dengan fluks neutron 10^{14} n/cm²s. Proses iradiasi menyebabkan elemen bahan bakar mengalami perubahan sifat fisis, seperti perubahan komposisi unsur, densitas dan mikrostruktur [2]. Untuk mengetahui efek perubahan terhadap unjuk kerja bahan bakar pada maka perlu dilakukan uji pasca iradiasi.

Pengujian pasca iradiasi dilakukan dengan menggunakan dua metode yaitu uji merusak dan tidak merusak. Beberapa pengujian tidak merusak terhadap PEB U_3Si_2/Al dengan burn up 20% dan 40% telah dilakukan oleh peneliti sebelumnya, diantaranya yaitu penyapuan gamma, uji visual, ketebalan [2], sedangkan pelaksanaan uji merusak elemen bakar U_3Si_2/Al TMU 4,8 gU/cm^3 seperti uji kimia belum terlaksana. Hal ini disebabkan masih berlangsung proses dekontaminasi dan revitalisasi pada beberapa fasilitas uji pasca iradiasi (*hot cell*). Untuk mendukung kegiatan tersebut maka dilakukan persiapan pengujian melalui penyusunan dan pembuatan metode baku uji dalam bentuk standar operasional prosedur (SOP). Penyusunan SOP diperlukan untuk memberikan pedoman dalam mengidentifikasi, mengevaluasi, mengembangkan kegiatan analisis dan meminimalkan tingkat kesalahan serta meningkatkan efisiensi pekerjaan. Kegiatan di fokuskan pada penyusunan SOP analisis *burn up*, khususnya dalam proses pemisahan cesium.

SOP merupakan dokumen kendali mutu yang disusun dengan mengacu pada metode standar seperti ASTM sehingga hasil analisis layak diinterpretasikan sesuai persyaratan analisis. Penyusunan SOP pemisahan isotop Cs-137 dari larutan bahan bakar uranium U_3Si_2/Al TMU 4,8 gU/cm^3 berdasarkan ASTM E-320 [3] dan ASTM E-692 [4] dan hasil dari beberapa penelitian bahan bakar U_3Si_2/Al TMU 2,96 gU/cm^3 [5,6]. ASTM E-320 merupakan metode standar pemisahan cesium dari larutan bahan bakar uranium menggunakan metode pengendapan dengan pereaksi perkhlorat. Proses pengendapan cesium perkhlorat cukup selektif karena dalam media perkhlorat hanya ion cesium yang memiliki kelarutan rendah pada suhu 0°C (ksp 0,83 g/100 ml), diantara isotop-isotop hasil fisi lainnya dalam larutan bahan bakar pasca iradiasi. Fenomena proses pengendapan ini dijadikan dasar dalam metode pemisahan Cs dari radionuklida lainnya [7]. Reaksi pengendapan yang terjadi sebagai berikut:



ASTM E-692 adalah metode pengukuran isotop Cs-137 menggunakan spektrometer gamma. Isotop Cs-137 memancar sinar gamma dalam peluruhannya pada energi 661 keV. Energi ini berada diluar daerah copmton (500keV) sehingga dapat dianalisis dengan baik. Penerapan kedua SOP telah dilakukan pada larutan bahan bakar uranium U_3Si_2/Al TMU 2,96 g/cm^3 dan sesuai dengan persyaratan keselamatan fasilitas dan pekerja radiasi maka terdapat beberapa modifikasi pada tahapan kegiatan.

SOP pemisahan cesium dari larutan bahan bakar U_3Si_2/Al TMU 4,8 g/cm^3 terdiri dari SOP penentuan rekoveri sebagai bagian dari validasi metode dan SOP pengujian. SOP rekoveri merupakan langkah kegiatan dengan menggunakan larutan standar untuk

mendapatkan akurasi atau rekoverti, sedangkan SOP pengujian Cs-137 dari larutan bahan bakar U_3Si_2/Al TMU $4,8 \text{ g/cm}^3$ untuk mengetahui jumlah kandungan isotop Cs-137 dengan reprodusibilitas yang memenuhi persyaratan analisis.

TATA KERJA

SOP rekoverti pemisahan Cs-137 dan SOP pengujian Cs-137 dalam bahan bakar U_3Si_2/Al TMU $4,8 \text{ g/cm}^3$ berdasarkan metode baku ASTM, hasil pengujian PEB U_3Si_2/Al TMU $2,96 \text{ gU/cm}^3$ dan manual alat analisis spektrometer gamma. Format SOP secara teknis dan administrasi mengacu pada format yang telah ditetapkan oleh unit jaminan mutu PTBBN. Tahapan kegiatan rekoverti pemisahan cesium sesuai petunjuk validasi metode menggunakan bahan standar berupa larutan standar Cs-137 bersertifikat (CRM) sebanyak 50 μL . Metode pemisahan sesuai ASTM E-320 menggunakan proses pengendapan dengan pereaksi $HClO_4$ pekat dan senyawa $CsNO_3$ sebagai senyawa pembawa agar endapan $CsClO_4$ yang terbentuk dapat ditimbang dengan tepat. Analisis Cs-137 sebelum dan sesudah proses pengendapan dilakukan dengan menggunakan alat spektrometer gamma Gennie 2000 secara kualitatif maupun kuantitatif dengan tahapan sesuai manual alat spektrometer gamma yang telah disusun dalam bentuk SOP Pengoperasian Alat Spektrometer Gamma Genie 2000. Analisis secara kualitatif berdasarkan energi sinar gamma Cs-137 yaitu 661 keV dan analisis kuantitatif menggunakan jumlah cacahan selama waktu pengukuran dengan kesalahan sekitar 1%.

SOP pemisahan dan analisis isotop Cs-137 dari larutan bahan bakar U_3Si_2/Al TMU $4,8 \text{ g/cm}^3$ dibuat berdasarkan tahapan kegiatan pemisahan isotop Cs-137 pada bahan bakar uranium U_3Si_2/Al TMU $2,96 \text{ g/cm}^3$. Larutan sampel analisis berasal dari hasil pelarutan potongan PEB U_3Si_2/Al pasca iradiasi dengan dimensi $3 \times 3 \times 1,7 \text{ cm}$ dengan langkah sesuai SOP Pelarutan bahan bakar. Pelarutan dilakukan dalam *hot cell*, kemudian sebanyak 1 mL ditransfer dari *hot cell* ke laboratorium dengan langkah sesuai SOP Transfer. Jumlah cuplikan larutan (3 replikat) yang digunakan sebanyak 150 μL yang ditambah larutan HCl 0,1N sebanyak 2 mL. Proses pengendapan dilakukan dengan menggunakan larutan asam perklorat pekat pada suhu lebih rendah 0°C selama 1 jam. Endapan $CsClO_4$ dan supernatan yang telah terpisah, masing-masing dianalisis isotop Cs-137 menggunakan spektrometer gamma. Pengukuran dilakukan selama 500 detik dengan jarak sampel dari detektor 16 cm, dengan dead time $< 1\%$. Hasil cacah Cs-137 yang diperoleh dari pengukuran larutan standar Cs-137 sebelum dan sesudah proses pengendapan di konversi ke dalam satuan aktivitas dan berat dengan menggunakan persamaan sebagai berikut:

$$1. A = \{Cps_{(sebelum\ pengendapan)} / Cps_{(sesudah\ pengendapan)}\} \times At \quad (1)$$

Dengan :

A = Aktivitas Cs-137 dalam larutan standar sesudah pengendapan, Bq

At = Aktivitas Cs-137 dalam larutan standar saat pengukuran (sebelum proses pengendapan)

Cps = Cacah per detik

$$2. W = (A \times BA) / \lambda NA \quad (2)$$

Dengan :

W = Kandungan Cs-137 , mg

A = aktivitas Cs-137, Bq

BA = Berat atom Cs-137

$\lambda = 0,693 / T_{1/2}$ ($T_{1/2} = 30,17$ tahun = 938407680 detik)

NA = Bilangan avogadro ($3,17 \cdot 10^{-13}$)

Nilai aktivitas saat pengukuran (A_t) dihitung berdasarkan nilai aktivitas sertifikat dan periode waktu (t) dari tanggal sertifikat sampai waktu pengukuran kemudian substitusikan ke dalam persamaan sebagai berikut:

$$At = Ao e^{-\lambda t} \quad (3)$$

Dengan :

At = Aktivitas Cs-137 pada saat pengukuran, Bq

Ao = Aktivitas Cs-137 tercantum dalam sertifikat, Bq

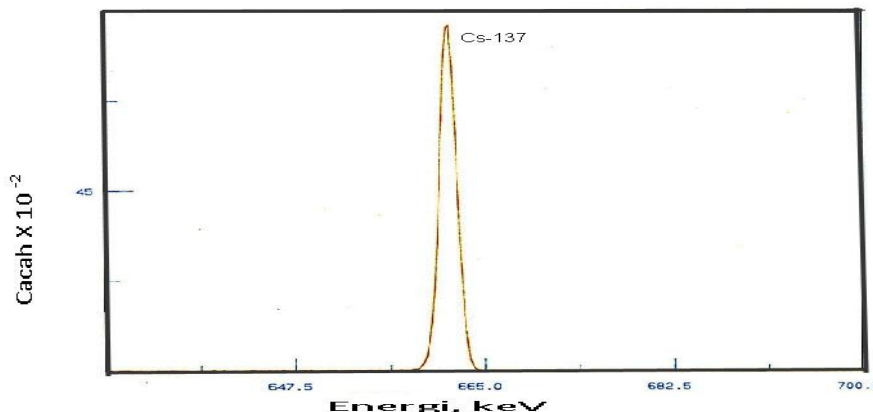
$\lambda = 0,693 / T_{1/2}$

t = periode waktu dari tanggal dalam sertifikat sampai tanggal saat pengukuran, tahun

$T_{1/2}$ = Waktu paro isotop Cs-137 (30,17 tahun)

HASIL DAN PEMBAHASAN

Unjuk kerja alat uji spektrometer gamma diperoleh berdasarkan pengukuran standar SRM 4322C dan SRM 4322E dengan jarak 16 cm dari detektor selama 500 detik. Hasil pengukuran kualitatif mendapatkan spektrum Cs-137 pada energi 661,8 keV, seperti yang terlihat pada Gambar 1.



Gambar 1. Spektrum Cs-137 pada energi 661,8 keV

Parameter unjuk kerja lainnya adalah akurasi dan presisi dari pengukuran larutan standar Cs-137 dengan 5 kali pengulangan diperoleh masing- masing sebesar 0,375% dan 1,875% serta efisiensi detektor 0,1561 %. Hal ini menunjukkan bahwa alat uji memenuhi persyaratan untuk digunakan untuk analisis isotop Cs-137.

Rekoveri pemisahan cesium ditentukan berdasarkan perbandingan jumlah isotop Cs-137 sebelum dan sesudah proses pengendapan. Hasil pengukuran isotop Cs-137 dalam larutan Cs-137 sebelum proses pengendapan dan dalam endapan CsClO₄ yang terbentuk serta supernatan seperti yang ditunjukkan pada Tabel 1.

| Replikat sampel | Kandungan Isotop Cs-137 | | Rekoveri (%) |
|-----------------|-------------------------|----------------|--------------|
| | Sebelum proses | Sesudah proses | |
| 1 | 0,0037847 | 0,00372 | 97,07 |
| 2 | 0,0037847 | 0,00378 | 97,70 |
| 3 | 0,0037847 | 0,00373 | 98,01 |
| Rerata | | | 97,59 |
| SD | | | 0,479 |
| RSD (%) | | | 0,49 |

Rekoveri merupakan salah satu parameter validasi metode, yang dilakukan untuk mendapatkan unsur yang dianalisa bebas dari unsur lainnya agar diperoleh hasil analisis yang akurat. Nilai rekoveri digunakan sebagai koreksi terhadap data analisis jika hasil uji t_{ukur} mendapatkan nilai t_{ukur} lebih besar dari t_{tabel} . Pada pemisahan Cs-137 dengan metode pengendapan diperoleh nilai rekoveri rata- rata sebesar 97,59 dengan standar deviasi (SD) sebesar 0,479. t_{hitung} ditentukan berdasarkan rumus [8]:

$$t_{\text{hitung}} = (1 - \text{Rec}_{\text{rerata}}) / \mu_{\text{rec}} \quad (4)$$

$$\mu_{\text{rec}} = (SD / \sqrt{n}) \quad (5)$$

dengan :

SD = standar deviasi pengukuran

n = jumlah replikat (3)

Setelah nilai SD dan n disubstitusikan ke dalam persamaan (5) maka diperoleh μ_{rec} sebesar 0,283. Nilai t_{hitung} ditentukan berdasarkan persamaan (4) dengan mensubstitusi nilai $\text{Rek}_{\text{rerata}}$ dan μ_{rec} masing-masing berurutan sebesar 97,59 dan 0,283 dan diperoleh t_{hitung} sebesar 0,106. Berdasarkan t tabel pada derajat kepercayaan 95% dengan derajat kebebasan 2 diperoleh $t_{0,05,2}$ sebesar 4,3 [9]. Fakta ini menunjukkan bahwa $t_{\text{hitung}} < t_{\text{tabel}}$ sehingga data analisis yang telah di evaluasi tidak perlu dikoreksi dengan nilai rekoveri.

SOP pengujian Cs-137 dalam larutan bahan bakar PEB $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$ TMU 4,8 gU/cm^3 berdasarkan langkah atau prosedur yang dilakukan pada penentuan Cs-137 pada larutan bahan bakar $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$ TMU 2,96 gU/cm^3 yang diperoleh hasil verifikasi ASTM dan optimasi parameter proses pengendapan sesuai dengan persyaratan dari fasilitas pengujian. Jumlah cuplikan yang digunakan sebanyak 150 μL hasil dari proses pengenceran 1 mL larutan yang keluar dari hot cell menjadi 10 mL. Sedikitnya jumlah cuplikan yang digunakan dalam metode ini berdasarkan pertimbangan keselamatan personil terhadap bahaya radiasi dan meminimalkan faktor kesalahan akibat *self absorpton* pada pengukuran isotop Cs-137 dengan spektrometer gamma. Spektrometer gamma merupakan alat analisis menggunakan metode relative yaitu menentukan aktivitas cuplikan dengan cara membandingkan dengan aktivitas standar Hal ini menjadikan faktor geometri seperti ukuran dan bentuk cuplikan dan standar harus sama^[10]. Untuk itu maka pada metode ini dilakukan penambahan larutan HCl 0,1N sejumlah 2 mL pada cuplikan sesuai dengan standar Cs-137 yang memiliki volume 2 mL

Jumlah isotop Cs-137 dalam sampel sangat sedikit sehingga untuk meningkatkan jumlah endapan cesium klorat yang terbentuk, ditambahkan senyawa CsNO_3 . Penambahan senyawa CsNO_3 sebanyak 700 mg merupakan hasil optimasi penelitian sebelumnya, yang menghasilkan endapan CsClO_4 dapat ditimbang akurat dengan hasil rekoveri pengendapan maksimal^[5]. Proses pengendapan pada metode ini menggunakan asam perklorat sebanyak 4 mL sedikit berlebih dari stokhiometri reaksi, suhu 0°C dan waktu 1 jam dan diperoleh pengendapan CsClO_4 cukup baik terpisah dari supernatan yang terlihat bening.

Analisis Cs-137 pada hasil proses pengendapan menggunakan spektrometri gamma dengan jarak 16 cm mendapatkan nilai *dead time* berkisar pada nilai < 1%. Kondisi pengukuran ini akan memberikan hasil yang akurat karena menghindari adanya efek penjumlahan pulsa yang mengakibatkan kesalahan pada analisa kuantitatif [10]. Pada pengukuran selama 200 detik dihasilkan spektrum Cs-137 berbentuk spektrum dengan jumlah cacahan dalam kisaran 20.000 sampai 200 000/ menit sesuai dengan ASTM. Hasil pengukuran isotop Cs-137 pada parameter metode dan pengukuran diatas menghasilkan data seperti yang tercantum pada Tabel 2.

Tabel 2. Kandungan isotop ¹³⁷Cs di dalam PEB U₃Si₂-Al TMU 2,96 gU/cm³ pasca iradiasi

| Replikat | Cacah/detik | Kandungan Cs-137 dalam PEB(W), ug | Keterangan |
|----------|-------------|-----------------------------------|--|
| 1 | 344,98 | 1266,7 | Eff detektor=0,1561 (%) I _γ =85,1 (%) T1/2 -30,17 |
| 2 | 344,43 | 1260,93 | |
| 3 | 343,65 | 1263,16 | |

Data kandungan Cs-137 dalam PEB diperoleh dengan mensubstitusi nilai cacah/ detik ke dalam persamaan 1 dan 3. Presisi metode yang ditunjukkan dari 3 buah replikat PEB diperoleh sebesar 0,24%. Presisi metode merupakan nilai *relative standard deviation* (RSD) yang diestimasi berdasarkan nilai *standard deviasi* (SD) dari pengukuran 3 replikat dibagi dengan nilai rerata. Presisi metode yang dihasilkan dalam metode ini memenuhi persyaratan analisis dengan pengambilan derajat kepercayaan 95% atau bias sebesar 5%.

Berdasarkan data – data di atas maka dapat disusun SOP rekoveri pemisahan cesium dengan metode pengendapan dan SOP pemisahan Cs-137 dari bahan bakar PEB U₃Si₂/Al TMU 4,8 gU/cm³ dengan nomor masing- masing adalah 046.003/ BN 02 06/BBN 3.5 dan 045 003/ BN 02 06/BBN 3.5.

KESIMPULAN

Metode pemisahan cesium dari larutan bahan bakar U₂Si₃/Al TMU 4,8 g/cm³ telah tersusun dalam bentuk standar operasional prosedur (SOP) Penentuan Rekoveri Pemisahan Cesium Dari Larutan bahan Bakar U₃Si₂/Al TMU 4,8 g/cm³ dengan metode pengendapan dan Pemisahan Cesium dalam bahan bakar U₃Si₂/Al TMU 4,8 g/cm³ dengan metode pengendapan. Dasar pembuatan ke dua SOP mengacu pada ASTM E-320 dan ASTM E-620 serta kegiatan peneltian secara radiokimia pada bahan bakar U₃Si₂/AL TMU 2,96 g/Cm³. Rekoveri pemisahan cesium diperoleh sebesar 98,2% dan

repitebilitas (RSD) metode pemisahan cesium diperoleh sebesar 0,24%. SOP ini selanjutnya dapat digunakan sebagai pedoman dalam melaksanakan analisis Cs-137 dalam bahan bakar uranium pasca iradiasi.

UCAPAN TERIMAKASIH

Ucapan terimakasih disampaikan kepada seluruh staf kelompok fisika kimia dan semua pihak yang telah banyak membantu dalam pelaksanaan kegiatan ini sampai penyelesaian makalah ini.

DAFTAR PUSTAKA

1. Supardjo, 2011, Pengembangan Paduan Uranium Berbasis UMo Sebagai Kandidat bahan bakar Reaktor Riset Menggantikan Bahan Bakar Dispersi U_3Si_2/Al , Prosiding Seminar Nasional pengembangan Energi Nuklir IV, Pusat pengembangan Energi Nuklir, BATAN
2. Yusuf Nampira dan Sri Ismarwanti, 2014, "Uji tidak merusak bahan bakar U_3Si_2/Al tingkat muat uranium $4,8 \text{ g/cm}^3$ pasca iradiasi fraksi bakar 20% dan 40%, Jurnal Teknologi bahan Nuklir, vol 10, No 2, ISSN 1907-2635
3. AMERICAN STANDARD TEST METHODES, (2000), *Standard Test Methode For Determination the content of cesium -137 in Irradiated Nuclear Fuels by High Resolution Gamma ray Spectral Analysis*, ASTM E-692
4. AMERICAN STANDARD TEST METHODS, (2000), *Standard Test Method For Cesium -137 in Nuclear Fuel Solutions by Radiochemical Analysis*, E-320-00
5. Aslina Br Ginting, A. Nugroho, Boybul, (2012), Pemisahan dan Analisis Radionuklida ^{137}Cs di dalam PEB U_3Si_2-Al TMU $2,96 \text{ gU/cm}^3$ Pasca Iradiasi, Jurnal teknologi bahan Nuklir, Vol 8 No1.
6. Dian Anggraini, Rosika Kriswarini, (2009), Penentuan Isotop Cs dari unsur Cs dalam larutan aktif $CsNO_3$, URANIA, Jurnal Teknologi Bahan Bakar Nuklir, Vol 15, No 1, PTBN-BARAN, ISSN 1907-2635
7. Anonim, (2008), *Hygroscopic Crystal in Solid State Soluble in Water and Alkohol*,
8. Yulia Kartasubrata, (2014), *recovery*, Diktat Pelatihan, Pusat Penelitian LIPI
9. Robert L Anderson, (1987), *Practical Statistics For Analytical Chemist*, Van Nostrand Reinhold Company.
10. Hermawan Candara, Pujadi, Gatot Wurdiantoro, (2010), Pengaruh Efek Geometri Pada Kalibrasi Efisiensi Detektor Semi Konduktor hp Ge Menggunakan Spektrometer Gamma, Prosiding Pertemuan Ilmiah XXIV HFI & DIY