

## PEMBAKUAN METODE UJI FISIKOKIMIA PIN BAHAN BAKAR PWR PASCAIRADIASI

Noviarty, S. Fatimah, Sutri Indaryati, Iis Haryati, Erlina Noerpitasari

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir

### ABSTRAK

Telah dilakukan pembakuan metoda uji fisikokimia pin bahan bakar PWR pascairadiasi. Penelitian ini bertujuan untuk mendapatkan metode baku uji fisikokimia pin bahan bakar PWR, khususnya pemisahan isotop  $^{137}\text{Cs}$  dan uranium. Hingga saat ini, pin bahan bakar PWR masih diiradiasi di reaktor, sehingga pembakuan metode fisikokimia dilakukan secara simulasi. Simulasi dilakukan menggunakan bahan baku serbuk  $\text{UO}_2$  deplesi dicampurkan dengan standar  $^{137}\text{Cs}$  sebagai hasil fisi dan unsur Nd sebagai *heavy element*. Larutan  $\text{UO}_2$  sebanyak 150  $\mu\text{L}$  dan ditambahkan unsur Nd sebanyak 750  $\mu\text{L}$  dengan konsentrasi 100 ppm dan larutan standar isotop  $^{137}\text{Cs}$  sebanyak 2 mL. Dasar pemilihan unsur tersebut karena unsur tersebut di atas merupakan isotop monitor *burn up*. Pada penelitian ini dilakukan pembakuan metode pemisahan  $^{137}\text{Cs}$  dan uranium dalam larutan  $\text{UO}_2$  tanpa dan dengan penambahan Nd. Pemisahan cesium ( $^{137}\text{Cs}$ ) dari uranium (U) dan hasil fisi lainnya dilakukan menggunakan metode pengendapan dan penukar kation menggunakan zeolit Lampung, sedangkan pemisahan uranium dilakukan dengan metode kolom penukar anion menggunakan resin Dowex. Hasil pemisahan cesium dengan metode penukar kation menggunakan zeolit Lampung diperoleh recoveri pemisahan sebesar 90,92% dengan adanya penambahan unsur Nd dan 86,95% untuk sampel tanpa penambahan Nd. Sementara itu, pemisahan cesium menggunakan metode pengendapan diperoleh recoveri pemisahan sebesar 85,66% untuk sampel yang tidak mengandung Nd dan 81,89% untuk sampel yang mengandung Nd. Besar recoveri pemisahan uranium dengan metode kolom penukar anion diperoleh sebesar 64,27%. Dari hasil simulasi pembakuan metode fisikokimia dapat disimpulkan bahwa adanya unsur Nd menyebabkan recoveri pemisahan  $^{137}\text{Cs}$  menjadi berkurang, sehingga sebelum dilakukan pengukuran  $^{137}\text{Cs}$  dengan spektrometer gamma unsur Nd harus dipisahkan terlebih dahulu. Pemisahan  $^{137}\text{Cs}$  menggunakan metode penukar kation jauh lebih baik dibandingkan dengan penggunaan metode pengendapan. Sementara itu, untuk pemisahan uranium menggunakan kolom penukar anion masih perlu mencari parameter yang lebih optimum yaitu pemilihan resin, bahan elusi yang lebih baik.

**Kata kunci :** pin bahan bakar PWR, simulasi, pemisahan U, Cs, Nd, penukar kation, pengendapan

### PENDAHULUAN

Pin bahan bakar PWR merupakan bahan bakar reaktor daya yang cukup penting untuk dipelajari dan diteliti pengembangan teknologinya, sehingga kehandalan sebagai bahan bakar dapat diketahui. Pengembangan teknologi fabrikasi maupun uji pascairadiasi Pin bahan bakar PWR merupakan tugas pokok Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBBN). Oleh karena itu, perlu dilakukan pengujian Pin bahan bakar PWR untuk mengetahui unjuk kerja (*performance*) melalui pengujian pra iradiasi maupun pascairadiasi (*Post Irradiation Examination, PIE*). Salah satu kegiatan uji pascairadiasi melalui uji merusak secara fisikokimia adalah penentuan derajat bakar atau *burn up*. Penentuan *burn up* secara merusak dapat dilakukan melalui pemisahan hasil fisi (seperti Cs) dengan *heavy element* (U dan Nd)<sup>[1]</sup>.

Pin bahan bakar PWR masih diiradiasi di reaktor, namun Instalasi Radiometalurgi (IRM) harus menyiapkan metode baku yang valid untuk melakukan uji pascairadiasi

khususnya analisis fisikokimia agar nantinya digunakan untuk perhitungan *burn up*. Hal ini dilakukan untuk mengantisipasi bila mana Pin bahan bakar PWR tersebut telah berada di IRM. Metode baku yang dipersiapkan adalah parameter parameter yang berpengaruh dalam pemisahan hasil fisi dengan *heavy element* maupun analisisnya, sehingga diperoleh kandungan hasil fisi dan *heavy element* yang akurat. Pembakuan metode dilakukan secara simulasi menggunakan bahan baku serbuk  $\text{UO}_2$  depleksi dicampurkan dengan beberapa standar hasil fisi sebagai monitor *burn up* antara lain adalah unsur Cs, U dan Nd. Pada penelitian ini digunakan standar isotop  $^{137}\text{Cs}$  dari NIST dan standar Nd dari SPEX.

Pemisahan Cs dengan U, Nd dilakukan dengan menggunakan metode pengendapan dengan penambahan serbuk  $\text{CsNO}_3$  dan  $\text{HClO}_4$  serta metode penukar kation menggunakan zeolit Lampung. Sementara itu, untuk pemisahan U dilakukan dengan metode kolom penukar anion menggunakan resin Dowex. Hal yang sangat penting diketahui untuk pemisahan Cs menggunakan metode penukar kation menggunakan zeolite Lampung adalah parameter optimum meliputi berat zeolite, dan waktu pengocokan, sedangkan parameter optimum pemisahan Cs menggunakan metode pengendapan adalah berat serbuk  $\text{CsNO}_3$ , temperature dan waktu pengendapan. Parameter optimum yang penting untuk pemisahan U dan Nd menggunakan metode kolom penukar anion adalah berat resin, waktu tinggal dan kecepatan alir. Hasil pembakuan metode akan diperoleh besar recoveri masing masing pemisahan. Oleh karena itu, pada kegiatan ini dilakukan optimasi parameter metode pemisahan maupun analisis yang berkaitan dengan parameter uji fisikokimia khususnya pemisahan isotop Cs dengan uranium. Kandungan isotop Cs dengan uranium nantinya akan digunakan untuk perhitungan *burn up* mutlak. Dalam melakukan perhitungan *burn up* mutlak yang paling utama yang harus diketahui adalah parameter pemisahan isotop cesium sebagai hasil fisi dengan isotop uranium sebagai *heavy element*. Pemisahan Cs dengan U ,Nd dilakukan dengan menggunakan metode pengendapan  $\text{CsClO}_4$  dan penukar kation menggunakan zeolit Lampung, sedangkan untuk pemisahan U dari larutan Pin bahan bakar PWR dilakukan dengan metode kolom penukar anion menggunakan resin Dowex<sup>[1,2,3,4]</sup>.

Hasil pemisahan isotop  $^{137}\text{Cs}$  dengan menggunakan metode pengendapan akan diperoleh endapan  $^{137}\text{CsClO}_4$ , sedangkan dengan menggunakan metode penukar kation diperoleh  $^{137}\text{Cs}$ -zeolit dalam fasa padat. Sementara itu, di dalam fasa cair akan diperoleh U maupun Nd sebagai supernatan. Besar kandungan isotop  $^{137}\text{Cs}$  yang terendapkan di dalam  $^{137}\text{CsClO}_4$  maupun yang terserap dalam  $^{137}\text{Cs}$ -zeolit diukur dan dianalisis menggunakan spektrometer gamma<sup>[5]</sup>. Kandungan isotop  $^{137}\text{Cs}$  dalam sampel dihitung dengan menggunakan persamaan :

$$A_t(dps) = A_0e^{-0,693t/t_{1/2}} \quad \dots (1)$$

$$A_t (dps) = \frac{Cps}{Y(E) \cdot \epsilon(E)} \quad \dots (2)$$

$$\epsilon (E) = \frac{Cps}{Y(E) \cdot A_t (dps)} \quad \dots (3)$$

dimana :

- A<sub>0</sub> = Aktivitas awal (sertifikat)
- A<sub>t</sub> = Aktivitas pada saat pengukuran (dps)
- T = waktu A<sub>0</sub> ke waktu A<sub>t</sub>
- t<sub>1/2</sub> = waktu paro
- ε(E) = Efisiensi
- Y(E) = yield (tabel)
- Cps = cacah per detik (dari pencacahan)

Kandungan uranium dalam larutan supernatan hasil pemisahan cesium, dianalisis menggunakan spektrofotometri UV-Vis dengan menggunakan pengomplek arsenazo III. Hal ini dilakukan karena ketersediaan perangkat alat analisis untuk isotop uranium sangat terbatas (Spektrometer alpha hanya mampu mengukur satu sampel/hari). Kandungan uranium dalam supernatan dapat dihitung dengan menggunakan persamaan linier mengikuti persamaan 4. Besaran ini diperoleh dari kurva kalibrasi standar, sehingga recoveri pemisahan uranium dapat diketahui<sup>[7,8]</sup>.

$$y = ax + b \quad \dots (4)$$

Dengan :

- y = intensitas larutan
- x = konsentrasi
- a = slope
- b = intercept

Besarnya recoveri pemisahan dihitung dengan menggunakan persamaan (5).

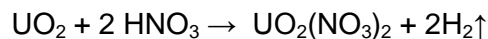
$$\text{recoveri} = \frac{\text{Jumlah uranium secara teoritis}}{\text{Jumlah uranium hasil analisis}} \times 100\% \quad \dots (5)$$

**METODOLOGI**

**Proses Pelarutan UO<sub>2</sub>**

Sampel serbuk UO<sub>2</sub> ditimbang dengan berat 0,0912 gram, kemudian ditambahkan 5 ml HNO<sub>3</sub> 6N ke dalam beaker 100 mL. Campuran larutan tersebut dipanaskan di dalam

lemari asap hingga semua sampel terlarut sempurna, selanjutnya hasil pemanasan dimasukkan ke dalam labu ukur 10 mL dan ditepatkan hingga tanda batas dengan HNO<sub>3</sub> 3N. Pada pelarutan terjadi reaksi kimia antara serbuk UO<sub>2</sub> dengan HNO<sub>3</sub> 6N mengikuti persamaan reaksi sebagai berikut:



#### **Pemisahan Cesium Dari Larutan UO<sub>2</sub> Menggunakan Metode Pengendapan**

Kedalam vial kosong yang sudah diketahui beratnya dipipet larutan UO<sub>2</sub> sebanyak 150 µL, kemudian ditambahkan unsur Nd sebanyak 750 µL dengan konsentrasi 100 ppm dan tambahkan secara perlahan-lahan larutan standar isotop <sup>137</sup>Cs sebanyak 2 mL yang sudah diketahui aktivitasnya. Ke dalam campuran larutan diatas tambahkan serbuk CsNO<sub>3</sub> kemudian diendapkan dengan 3 mL HClO<sub>4</sub> dalam ice bath pada temperatur (-4°C) selama 1 jam, sehingga terbentuk endapan CsClO<sub>4</sub>. Endapan CsClO<sub>4</sub> dipisahkan dari supernatan dengan cara dekantasi. Endapan CsClO<sub>4</sub> dan supernatan yang telah dipisahkan masing-masing diukur aktivitas <sup>137</sup>Cs menggunakan spektrometer gamma. Dengan langkah dan metode yang sama dilakukan juga pemisahan <sup>137</sup>Cs dalam UO<sub>2</sub> tanpa unsur Nd.

#### **Pemisahan Cesium Dari Larutan UO<sub>2</sub> Menggunakan Metode Penukar Kation**

Kedalam vial kosong yang sudah diketahui beratnya dipipet larutan UO<sub>2</sub> sebanyak 150 µL, kemudian ditambahkan unsur Nd sebanyak 750 µL dengan konsentrasi 100 ppm dan tambahkan secara perlahan-lahan larutan standar isotop <sup>137</sup>Cs sebanyak 2 mL yang sudah diketahui aktivitasnya. Ke dalam campuran larutan diatas tambahkan zeolit Lampung seberat 200 mg kemudian dilakukan proses penukar kation dengan pengocokan menggunakan *sheaker* selama 2 jam. Untuk menyempurnakan proses pertukaran kation <sup>137</sup>Cs dengan zeolit, larutan dibiarkan selama 1 hari sehingga padatan <sup>137</sup>Cs-zeolit terpisah dengan supernatan secara sempurna. Padatan <sup>137</sup>Cs-zeolit dan supernatan dipisahkan dengan cara dekantasi kemudian masing-masing diukur aktivitasnya menggunakan spektrometer gamma. Dengan langkah dan metode yang sama dilakukan juga pemisahan <sup>137</sup>Cs dalam UO<sub>2</sub> tanpa mengandung unsur Nd.

#### **Pemisahan Uranium Dengan Metode Kolom Penukar Anion**

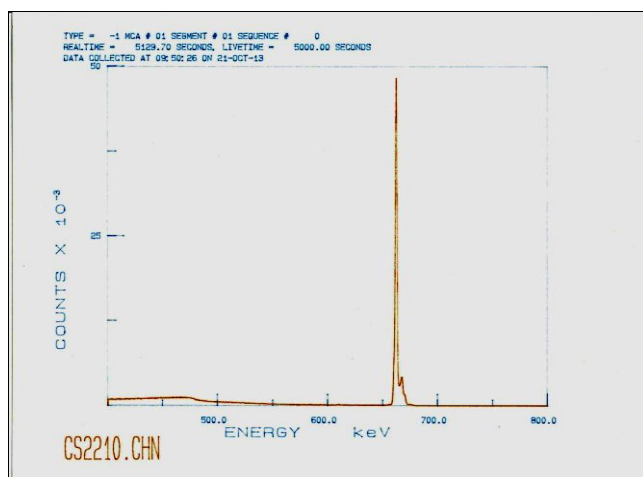
Pemisahan uranium dalam supernatan dilakukan dengan metode kolom penukar anion menggunakan resin Dowex1x8-NO<sub>3</sub>. Supernatan sebanyak 300 µL sebagai umpan dimasukkan ke dalam kolom yang telah diberi resin Dowex1x8-NO<sub>3</sub> seberat 1,2 g. Kolom kemudian dielusi menggunakan HNO<sub>3</sub> 8N, unsur U keluar dari kolom sebagai efluen U

dan unsur lainnya tinggal dan terserap oleh resin di dalam kolom. Efluen U yang keluar, kemudian diukur dengan UV-VIS menggunakan Arzenazo-III sebagai pengompleks.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Pemisahan <sup>137</sup>Cs Dengan Metode Pengendapan

Hasil pengukuran isotop <sup>137</sup>Cs dengan spektrometer gamma diperoleh spektrum seperti yang ditunjukkan pada Gambar 1.



Gambar 1 . Spektrum isotop <sup>137</sup>Cs menggunakan spektrometer gamma

Dari hasil pengukuran isotop <sup>137</sup>Cs selanjutnya dihitung besar recoveri isotop <sup>137</sup>Cs yang dapat terpisah dari larutan UO<sub>2</sub>. Hasil perhitungan recoveri pemisahan isotop cesium baik dengan penambahan Nd maupun tanpa penambahan Nd. Besarnya recoveri pemisahan isotop <sup>137</sup>Cs menggunakan metode pengendapan tanpa penambahan Nd ditunjukkan pada Tabel 1 dan dengan penambahan Nd ditunjukkan pada Tabel 2.

Tabel 1. Rekoveri pemisahan cesium dari larutan UO<sub>2</sub> tanpa penambahan Nd

Pengulangan	Area (cps)		Recoveri (%)	
	Sebelum proses	Setelah proses	Terukur	Rerata
1	2,373	2,135	89,97	85,66
2		1,985	83,65	
3		1,978	83,35	

Tabel 2. Rekoveri pemisahan cesium dari larutan UO<sub>2</sub> dengan penambahan Nd

Pengulangan	Area (cps)		Recoveri (%)	
	Sebelum proses	Setelah proses	Terukur	Rerata
1	2,401	2,034	84,71	81,89
2		1,930	80,38	
3		1,935	80,59	

Pada Tabel 1 dan 2 terlihat besar recoveri isotop cesium hasil pemisahan dari larutan  $\text{UO}_2$  diperoleh sebesar 85,66% untuk sampel yang tidak mengandung unsur Nd dan 81,89% untuk sampel yang mengandung Nd. Hasil ini menunjukkan bahwa keberadaan Nd pada larutan sampel sangat berpengaruh kepada pemisahan isotop  $^{137}\text{Cs}$ , kandungan isotop  $^{137}\text{Cs}$  yang terendapkan lebih kecil dibandingkan dengan tidak adanya Nd. Hal ini menunjukkan bahwa unsur Nd adalah unsur yang stabil sehingga sangat berpengaruh kepada metode pemisahan  $^{137}\text{Cs}$ .

### Pemisahan $^{137}\text{Cs}$ Dengan Metode Penukar Kation

Hasil pemisahan  $^{137}\text{Cs}$  dengan metode penukar kation diperoleh berupa padatan  $^{137}\text{Cs}$ -zeolit. Besar aktivitas  $^{137}\text{Cs}$  dalam  $^{137}\text{Cs}$ -zeolit yang diukur menggunakan spektrometer gamma Genni 2000 diperoleh berupa cacahan seperti yang dituangkan pada Tabel 3 dan 4.

Tabel 3. Rekoveri pemisahan cesium dari larutan  $\text{UO}_2$  tanpa penambahan Nd

Pengulangan	Area (cps)		Recoveri (%)	
	Sebelum proses	Setelah proses	Terukur	Rerata
1	2,409	2,213	91,8638	90,92
2		2,219	92,1129	
3		2,139	88,7920	

Tabel 4. Rekoveri pemisahan cesium dari larutan  $\text{UO}_2$  dengan penambahan Nd

Pengulangan	Area (cps)		Recoveri (%)	
	Sebelum proses	Setelah proses	Terukur	Rerata
1	2,414	2,167	89,7680	86.95
2		2,066	85,5841	
3		2,064	85,5012	

Pada Table 3 dan 4 dapat dilihat bahwa recoveri pemisahan cesium dengan menggunakan metode penukar kation diperoleh hasil lebih baik dibandingkan dengan menggunakan metode pengendapan. Hal ini disebabkan karena zeolit Lampung sangat selektif terhadap cesium karena mempunyai kapasitas tukar kation (KTK) yang besar<sup>[4]</sup>. Pada penelitian sebelumnya telah diketahui besar KTK zeolit Lampung secara teoritis seperti yang ditunjukkan pada Tabel 5.

Tabel 5. Nilai Koefisien Keselektifan (K<sub>0,5</sub>) zeolit Lampung<sup>[4]</sup>

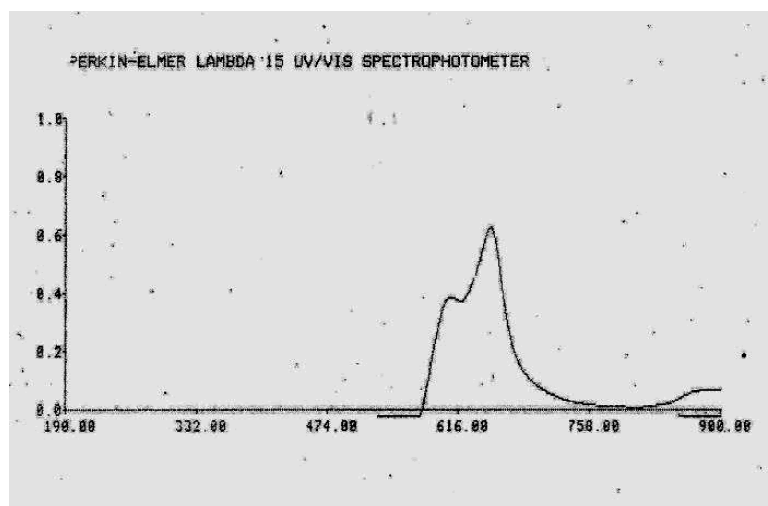
Sistim Pertukaran dengan kation M	Cs (meq.g <sup>-1</sup> )	Sr (meq.g <sup>-1</sup> )	Ba (meq.g <sup>-1</sup> )	Ce (meq.g <sup>-1</sup> )
Na/M	1.44	1.22	1.22	1.1
K/M	1.20	1.04	1.10	1.0
Na/M-campur Cs+Sr+Ba+Ce	1.40	1.04	1.12	1.0
(K+Na)/M-campur	1.22	1.08	1.10	1.0

Tabel 5 menunjukkan bahwa zeolit Lampung sangat selektif terhadap ion Cs bila dibandingkan dengan ion Sr, Ba dan Ce.

Berdasarkan besar perolehan rekoveri ini dapat dinyatakan bahwa metoda penukar kation untuk pemisahan cesium dari bahan bakar nuklir UO<sub>2</sub> lebih baik untuk digunakan.

**Pemisahan Uranium Dengan Metode Penukar Kation**

Pengukuran kandungan uranium total dalam sampel standar UO<sub>2</sub> dilakukan menggunakan spektrometer UV-Vis. Spektrum hasil pengukuran uranium menggunakan spektrometer UV-Vis ditunjukkan dalam Gambar 2 . Hasil analisis kandungan uranium dalam UO<sub>2</sub> sebelum dipisahkan dengan metode kolom penukar anion diperoleh yaitu sebesar 1,6613 ppm, sedangkan kandungan uranium sesudah dipisahkan dengan metode kolom penukar anion diperoleh yaitu sebesar 1.0678 ppm.



Gambar 2 . Spektrum uranium menggunakan spektrometer UV-VIS

Dari kandungan uranium yang diperoleh dilakukan perhitungan recoveri pemisahan uranium dengan membandingkan kandungan uranium sebelum dan setelah

proses pemisahan. Hasil perhitungan diperoleh recoveri pemisahan uranium diperoleh sebesar 64.27% seperti ditunjukkan pada Tabel 6.

Tabel 6 . Rekoveri pemisahan uranium dari larutan  $UO_2$

Sampel	Kandungan uranium (ppm)		Recoveri (%)
	sebelum pemisahan	setelah pemisahan	
$UO_2$	1,6613	1,0678	64,27

Besar rekoveri hasil pengukuran uranium menggunakan metode spectrometer UV-Vis Lambda 15 dengan pengomplek Arsenazo III yang diperoleh sangat kecil. Kandungan uranium sebelum dilakukan pemisahan diperoleh sebesar 1,6613 ppm, sedangkan setelah pemisahan diperoleh sebesar 1,0678 ppm. Hasil ini menunjukkan bahwa ke depan masih perlu mencari parameter optimun untuk melakukan pemisahan uranium dengan menggunakan metode kolom penukar anion. Parameter yang masih perlu dikaji ulang adalah pemilihan resin, bahan elusi yang lebih baik.

## KESIMPULAN

Pemisahan isotop cesium dalam larutan  $UO_2$  telah diperoleh metode yang optimal dengan menggunakan metode penukar kation dengan zeolit Lampung dengan recoveri pemisahan cesium sekitar 90,92%. Sementara itu, metode pemisahan uranium dengan kolom penukar kation diperoleh recoveri sebesar 64,27%. Hasil analisis ini menunjukkan masih perlu mencari parameter antara lain adalah pemilihan resin, bahan elusi yang lebih baik.

## UCAPAN TERIMAKASIH

Ucapan terima kasih disampaikan kepada Ir. Sungkono M.T, Drs.Purwadi K.P dan Aslina Br. Ginting atas terlaksananya kegiatan penelitian ini, sehingga dapat dibuat menjadi makalah.

## DAFTAR PUSTAKA

1. Clement J. Rodden, *Analysis of Essential Nuclear Reactor Material* New Brunswick Laboratory U.S. Atomic Energy Commission, Chapter 6, 1964.
2. Siti Amini, Penentuan Burn up Bahan Bakar Dispersi  $U_3O_8-Al$ , Laporan Teknis, PTBN- BATAN, 2007.



3. Aslina Br Ginting, Penentuan Burn-up Mutlak PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al Tingkat Muat 2,96 gU/cm<sup>3</sup> Pasca Irradiasi" Jurnal Teknologi Bahan Nuklir Vo.11, No.2, Juni 2015 ISSN 1907-2365.
4. Jung Suk Kim dkk., *Dissolution and Burnup Determination Of Irradiated U-Zr Alloy Nuclear Fuel By Chemical Methods*, Nuclear Engineering And Technology Vol. 38 No.3, April 2006.
5. American Standard Test Methods, ASTM-E 692-00, *Standard Test Methods for Determining the content of cesium-137 in irradiated nuclear fuels by high resolution gamma-ray spectral analysis*, Standard Test Method For Nuclear Material, USA, Vol. 12.1( 2000).
6. Wisnu Susetyo, *Spektrometer Gamma*, Gadjah Mada University Press, 1988.
7. American Standard Test Methods, ASTM-E 320-79, *Standar Test Methods for Radiochemical Determination of Uranium Isotopes in Soil by Alpha Spectrometry*, Designation:C1000-90.Vol. 12.01 page 521-524. 1990.
8. R.A. Day, JR. and A.L. Underwood., *Analisa Kimia Kuantitatif*, Edisi Ke 2 Penerjemah Drs. R. Soendoro, Universitas Airlangga-Surabaya, Penerbit Erlangga, Jakarta 1983.
9. Perkin Elmer & Co Gmbh, *Manual Operation UV-Vis Spektrofotometer*, Lambda 15, April 1992.
10. Robert L. Anderson, *"Practical statistics for Analytical chemists*, Van Nostrand Reinhold Company, New York, 1987.