

## PENENTUAN UMUR *YELLOW CAKE* SECARA RADIOKRONOMETRI

Erlina Noerpitasari, Syamsul Fatimah, Iis Haryati, Yanlinastuti,  
Jan Setiawan, Boybul, Arif Nugroho

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN  
Kawasan PUSPIPTEK Serpong Gd.20 Tangerang Selatan, Banten 15314  
e-mail: erlina@batan.go.id

(Naskah diterima: 16-5-2020, Naskah direvisi: 16-6-2020, Naskah Disetujui: 30-6-2020)

### ABSTRAK

**PENENTUAN UMUR *YELLOW CAKE* SECARA RADIOKRONOMETRI.** Penentuan umur *yellow cake* secara radiokronometri telah dilakukan. Penelitian ini bertujuan mendapatkan data umur *yellow cake* pada penyusunan basis data perpustakaan forensik nuklir. Radiokronometer yang digunakan yaitu  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ .  $^{232}\text{Th}$  merupakan thorium yang secara alami terdapat dalam *yellow cake* dan telah mencapai kesetimbangan peluruhan menjadi  $^{228}\text{Th}$ , namun pada proses produksi *yellow cake* kesetimbangannya terganggu sehingga waktu dinolkan kembali. Sampel uji yaitu *yellow cake* Cogema, hasil tambang PTBGN di Kalan dan hasil samping produk pabrik Petrokimia Gresik. Tahapan yang dilakukan yaitu pelarutan sampel, pemisahan thorium dari uranium dengan metode kromatografi pertukaran kation menggunakan resin dowex 50W-X8, elektrodeposisi thorium dan analisis isotop menggunakan spektrometer alfa. Penentuan umur dilakukan dengan perhitungan rasio aktivitas  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  dan iterasi rumus peluruhan. Berdasarkan hasil analisis isotop  $^{228}\text{Th}$  dan  $^{232}\text{Th}$  menggunakan spektrometer alfa dan hasil perhitungan umur, *yellow cake* Cogema tidak dapat ditentukan umurnya karena tidak mengandung  $^{232}\text{Th}$ . Diperoleh nilai umur *yellow cake* Petrokimia Gresik yaitu 9,90 tahun dengan bias 20,35 tahun dan nilai umur *yellow cake* PTBGN yaitu 12,85 tahun dengan bias >20,15 tahun dibandingkan dengan perkiraan waktu produksi yang diketahui. Bias yang diperoleh lebih tinggi jika dibandingkan dengan hasil penentuan umur *yellow cake* menggunakan radiokronometer  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  oleh peneliti sebelumnya yaitu dengan bias kurang dari 10 tahun.

**Kata kunci:** *Yellow Cake*, Thorium, Radiokronometri.

## **ABSTRACT**

**YELLOW CAKE AGE DETERMINATION BY RADIOCHRONOMETRY.** Radiochronometric dating of yellow cake has been carried out. The aim of this study was to obtain data on the age of yellow cake for compiling a database for nuclear forensics library. The radiochronometer used was  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ .  $^{232}\text{Th}$  is thorium which naturally co-exists in yellow cake and will reach a decay equilibrium to  $^{228}\text{Th}$ . In the yellow cake production process, however, the equilibrium is disturbed so that the "time" will be zeroed again. The test samples were yellow cake from Cogema, from PTBGN mining in Kalan, and by-products from Petrokimia Gresik. The steps of processes include dissolving the sample, separating thorium from uranium by cation exchange chromatography using dowex 50W-X8 resin, electrodeposition of thorium and isotopes analysis using an alpha spectrometer. Age determination was performed by calculating the  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  activity ratio and decay formula iteration. Based on the analysis of the  $^{228}\text{Th}$  and  $^{232}\text{Th}$  isotopes using an alpha spectrometer and the results of age calculations, the age of Cogema yellow cake was not able to be determined because it does not contain  $^{232}\text{Th}$ . The age of Petrokimia Gresik yellow cake is 9.90 years with a bias of 20.35 years and the age of PTBGN yellow cake is 12.85 years with a bias of more than 20.15 years when compared to the known estimated production time. The bias obtained is higher when compared to the results determined by previous researchers by the same method, i.e., a bias of less than 10 years.

**Keywords:** Yellow Cake, thorium, radiochronometry.

## PENDAHULUAN

Sejak awal tahun 1990, beberapa kasus temuan bahan nuklir di luar kendali regulasi telah terjadi di beberapa negara, seperti kepemilikan ilegal uranium pengkayaan tinggi, percobaan penjualan dan penyelundupan ke pembuangan yang tidak sah. Seperti yang telah diketahui uranium diperkaya merupakan komponen penting dari pembuatan senjata nuklir, yang dapat membunuh jutaan orang jika disalahgunakan. Terorisme nuklir ini merupakan ancaman internasional, oleh karena itu untuk memerangnya juga membutuhkan usaha serta kerja sama atau kolaborasi dari semua negara. Forensik nuklir dapat digunakan sebagai alat bantu investigasi hukum untuk memberikan bukti kegiatan terlarang tersebut[1]–[3].

Forensik nuklir adalah pemeriksaan bahan nuklir atau bahan radioaktif lainnya, atau barang bukti yang terkontaminasi oleh bahan radioaktif, dalam konteks proses hukum berdasarkan hukum nasional atau internasional yang berkaitan dengan keamanan nuklir. Analisis bahan nuklir atau bahan radioaktif lainnya adalah usaha untuk mengidentifikasi apa bahan itu, bagaimana, kapan dan di mana bahan itu dibuat, serta apa tujuan penggunaannya. Tujuan kegiatan forensik nuklir adalah karakterisasi bahan radioaktif untuk menelusuri sumber dan rute transportasinya, dan untuk memverifikasi bahwa bahan tersebut sesuai dengan yang dideklarasikan oleh suatu negara[4],[5].

Indonesia, dalam hal ini Badan Tenaga Nuklir Nasional (BATAN) melalui Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBBN), sedang mengembangkan kegiatan forensik nuklir sebagai tindakan nyata dalam upaya memerangi terorisme nuklir dan untuk meningkatkan keamanan nasional dan internasional. Langkah awal kegiatan forensik nuklir ini adalah penyusunan basis data perpustakaan nasional forensik nuklir. Perpustakaan nasional forensik nuklir merupakan kompilasi informasi mengenai

deskripsi serta data karakteristik bahan nuklir dan bahan radioaktif lainnya yang dihasilkan atau diproduksi, digunakan, atau disimpan di dalam suatu negara [6],[7].

Salah satu investigasi penting dalam forensik nuklir yaitu mengetahui sejarah produksi dari suatu bahan nuklir. Informasi ini dapat membantu untuk membuktikan kapan bahan nuklir tersebut diproduksi dan untuk mengetahui sumber asal atau dari fasilitas mana bahan nuklir tersebut diproduksi. Waktu produksi atau waktu yang berlalu sejak pemurnian secara kimia yang terakhir dari bahan nuklir dapat ditentukan secara radiokronometri. Radiokronometri adalah metode penentuan umur bahan radioaktif yang menggunakan hubungan isotop induk dengan anak luruhnya. Ketika bahan nuklir dimurnikan saat proses produksi, kotoran dihilangkan (termasuk isotop anak luruhnya), setelah itu produk peluruhan mulai tumbuh dalam bahan melalui peluruhan radioaktif. [8],[9].

Metode penentuan umur yang umum digunakan untuk bahan uranium adalah menggunakan radiokronometer  $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$  karena pengukuran  $^{230}\text{Th}$  yang dihasilkan oleh peluruhan  $^{234}\text{U}$  dalam waktu singkat mudah dilakukan. Radiokronometer ini dapat digunakan untuk uranium dengan kemurnian tinggi, yaitu bahan bakar nuklir atau produk akhir lainnya, namun jika digunakan untuk konsentrat bijih uranium (*yellow cake*) menghasilkan bias yang besar yang disebabkan karena faktor pemisahan yang tidak sempurna. Sebagai metode alternatif penentuan umur untuk sampel yang tidak murni seperti *yellow cake*, radiokronometer  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  dapat digunakan karena didasarkan pada rasio aktivitas isotop dari unsur yang sama[10][11][12]. Peneliti sebelumnya menggunakan instrumen *Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry* (ICP-MS) untuk penentuan konsentrasi  $^{232}\text{Th}$  dan spektrometer alfa untuk penentuan rasio aktivitas  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ . Proses pemisahan thorium dari uranium

dalam *yellow cake* dilakukan dengan metode kromatografi ekstraksi menggunakan resin TEVA. Preparasi sumber alfa dilakukan dengan metode penguapan langsung. Berdasarkan 13 sampel yang dianalisis,  $^{232}\text{Th}$  sangat sedikit terdapat dalam 5 sampel *yellow cake* ( $< 3,15$  ppm), sehingga tidak dapat ditentukan umurnya karena isotop  $^{232}\text{Th}$  dan  $^{228}\text{Th}$  tidak dapat terdeteksi (lebih rendah dari limit deteksi) dengan spektrometer alfa. Hasil perhitungan umur 8 (delapan) sampel *yellow cake* lainnya mendekati tanggal produksi sebenarnya, yaitu dengan bias kurang dari 10 tahun (5 bulan, 6 bulan, 1 tahun, 2 tahun, 3 tahun, 5 tahun, 9 tahun dan 10 tahun). Hasil ini lebih baik jika dibandingkan dengan saat menggunakan radiokronometer  $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$  yaitu dengan bias 29 – 3332 tahun. Seluruh sampel diasumsikan menggunakan pelarut asam sulfat pada proses produksinya[12].

Pada prinsipnya, untuk melengkapi basis data pada perpustakaan nasional forensik nuklir, kegiatan forensik nuklir dapat dilakukan sesuai dengan fasilitas yang dimiliki oleh setiap negara, namun dengan keterbatasannya masing-masing. Pada penelitian ini, penentuan aktivitas  $^{228}\text{Th}$  dan  $^{232}\text{Th}$  dilakukan menggunakan spektrometer alfa. Pemisahan thorium dari uranium secara sederhana dilakukan menggunakan resin Dowex 50W-X8 yang diketahui dapat memurnikan thorium dengan baik[13],[14]. Parameter pemisahan pada penelitian ini menggunakan hasil optimasi yang telah diperoleh dari penelitian sebelumnya[15]. Penentuan aktivitas radioisotop dengan spektrometri alfa membutuhkan preparasi sumber yang baik. Beberapa teknik preparasi sumber untuk pengukuran spektrometri alfa adalah sublimasi vakum, penguapan langsung, elektrodeposisi dan mikro-kopresipitasi. Teknik elektrodeposisi merupakan metode yang sangat berguna untuk preparasi uranium dan transurium,

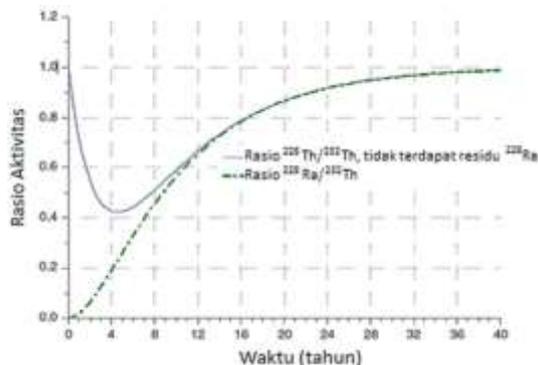
dan merupakan metode terbaik untuk membuat sumber yang seragam untuk pengukuran dengan spektrometer alfa[16]. Parameter proses elektrodeposisi pada penelitian ini menggunakan hasil optimasi yang telah diperoleh dari penelitian sebelumnya[17].

Isotop  $^{228}\text{Th}$  ( $T_{1/2} = 1,91$  tahun) adalah salah satu isotop dari rantai peluruhan  $^{232}\text{Th}$  yang terbentuk dari  $^{232}\text{Th}$  yang berumur panjang ( $T_{1/2} = 1,41 \times 10^{10}$  tahun) melalui  $^{228}\text{Ra}$  ( $T_{1/2} = 5,75$  tahun) dan  $^{228}\text{Ac}$  ( $T_{1/2} = 6,13$  jam). Pada bahan bijih dan mineral alami, spesies ini berada dalam kesetimbangan (rasio aktivitasnya sama dengan 1) jika bahan sudah berumur cukup lama (lebih dari 40 tahun). Saat proses pengolahan bijih uranium menjadi *yellow cake*, terdapat tahap pemurnian secara kimia menggunakan pelarut asam sulfat, karena kelarutan radium sulfat sangat rendah, maka radium terpisah dari uranium. Pada saat itu kesetimbangan peluruhan terganggu dan  $^{228}\text{Th}$  mulai meluruh relatif terhadap  $^{232}\text{Th}$ . Bersamaan dengan peluruhan  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{232}\text{Th}$  membentuk  $^{228}\text{Ra}$  baru yang akan meluruh menjadi  $^{228}\text{Th}$ ,  $^{228}\text{Th}$  mulai terbentuk kembali dalam sampel, dan setelah beberapa tahun akan mencapai kesetimbangan kembali. Berbeda dengan metode  $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ , metodologi ini didasarkan pada pemisahan radium dengan thorium, bukan pada pemisahan thorium dengan uranium. Radium dan thorium memiliki sifat kimia yang sangat berbeda, sehingga diharapkan diperoleh fraksinasi yang tinggi pada saat proses produksi *yellow cake*. Keuntungan lain dari metode ini adalah preparasi hanya dilakukan untuk analisis isotop dari unsur yang sama (thorium), sehingga faktor kesalahannya kecil karena rasio aktivitas isotop  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  akan tetap di dalamnya[12].

Secara matematis rumus peluruhan  $^{232}\text{Th}$  menjadi  $^{228}\text{Th}$  dinyatakan sebagai berikut:

$$\frac{A_t^{228}\text{Th}_{\text{peluruhan}}}{A_0^{232}\text{Th}} = 1 + \lambda_2 \lambda_3 \left( \frac{e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2 (\lambda_2 - \lambda_3)} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{\lambda_3 (\lambda_3 - \lambda_2)} \right) + e^{-\lambda_3 t} \quad (1)$$

nilai  $t$  adalah waktu yang telah berlalu sejak pemisahan kimia,  $A_t^{228}\text{Th}_{\text{peluruhan}}/A_0^{232}\text{Th}$  adalah rasio aktivitas  $^{228}\text{Th}$  dan  $^{232}\text{Th}$  pada  $t = t$ .  $\lambda_1$ ,  $\lambda_2$  dan  $\lambda_3$  adalah konstanta peluruhan  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  dan  $^{228}\text{Th}$ , berturut-turut. Karena waktu paruh  $^{232}\text{Th}$  sangat panjang, maka aktivitasnya dapat diasumsikan konstan ( $A_0^{232}\text{Th} = A_t^{232}\text{Th}$ ) dan juga konstanta peluruhannya ( $\lambda_1$ ) diabaikan karena waktu paruhnya lebih lama dibandingkan dengan  $\lambda_2$  dan  $\lambda_3$ . Oleh karena itu jika  $A_t^{228}\text{Th}/A_t^{232}\text{Th}$  diukur dalam sampel, nilai  $t$  dapat ditentukan dari persamaan tersebut.



Gambar 1. Rasio Aktivitas  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  dan  $^{228}\text{Ra}/^{232}\text{Th}$  sebagai fungsi waktu setelah pemisahan  $^{228}\text{Ra}$  dari thorium[12]

Persamaan 1 biasanya memberikan dua nilai umur untuk pasangan isotop induk-anak tertentu (Gambar 1), masalah ini dapat diselesaikan dengan: (i) pengukuran rasio  $^{228}\text{Ra}/^{232}\text{Th}$  dalam sampel, yang meningkat sebagai fungsi dari waktu (Gambar 1); (ii) pengulangan pengukuran sampel setelah beberapa bulan untuk mengidentifikasi pertumbuhan; atau (iii) menggunakan informasi tambahan pada bahan, yaitu dari waktu produksi yang diketahui (misalnya jika sampel diketahui berusia lebih dari 5 tahun)[12]. Persamaan ini tidak dapat diselesaikan secara perhitungan untuk  $t$ , nilai umur dapat diperoleh secara grafis dari Gambar 1 atau dengan iterasi. Untuk menentukan umur bahan, harus dihitung dua jenis rasio aktivitas, yaitu  $A_t^{228}\text{Th}_{\text{peluruhan}}/A_0^{232}\text{Th}$  dan  $A_t^{228}\text{Ra}_{\text{sisa}}/A_0^{232}\text{Th}$ .

Nilai rasio peluruhan  $A_t^{228}\text{Th}_{\text{peluruhan}}/A_0^{232}\text{Th}$  sama dengan rasio  $A_t^{228}\text{Th}_{\text{pengukuran}}/A_0^{232}\text{Th}$  jika pengaruh  $^{228}\text{Ra}$  diabaikan (diasumsikan pemisahannya sempurna), sehingga dapat dengan lugas ditentukan secara spektrometri alfa. Pada penelitian ini, efek  $^{228}\text{Ra}$  diabaikan karena ketiga sampel *yellow cake* yang diuji diketahui tanggal produksinya lebih dari 5 tahun, sehingga sudah tidak terdapat pengaruh dari sisa  $^{228}\text{Ra}$ .

## METODOLOGI

Sampel *yellow cake* yang diuji yaitu *yellow cake* yang berasal dari Cogema Perancis, *yellow cake* hasil penambangan oleh PTBGN di Kalan, dan *yellow cake* yang berasal dari hasil samping pabrik pupuk Petrokimia Gresik. Tahap yang dilakukan untuk penentuan umur *yellow cake* yaitu pelarutan sampel *yellow cake*, pemisahan thorium dari uranium untuk memperoleh fraksi thorium yang murni, preparasi sumber alfa menggunakan teknik elektrodeposisi untuk memperoleh lapisan tipis thorium di atas permukaan planset, analisis isotop thorium menggunakan spektrometer alfa untuk memperoleh nilai cacah isotop  $^{228}\text{Th}$  dan  $^{232}\text{Th}$ . Tahap terakhir yaitu perhitungan umur *yellow cake*.

### Preparasi Sampel *Yellow Cake*

Pelarutan *yellow cake* dilakukan dengan menimbang sampel sebanyak 5 g ke dalam gelas piala 25 mL, kemudian sampel dilarutkan menggunakan 10 mL asam nitrat 4 M. Kemudian dilakukan pemanasan di atas *hot plate* pada suhu  $90^\circ\text{C}$  hingga sampel larut sempurna, lalu didinginkan pada suhu kamar. Setelah dingin, larutan dimasukkan ke dalam labu takar 25 mL dan volume ditetapkan dengan air bebas mineral.

### Pemisahan Thorium dari Uranium

Pemisahan thorium dari uranium yang merupakan matriks utama *yellow cake* dilakukan dengan metode kromatografi pertukaran kation menggunakan resin Dowex 50W-X8 pada kolom pemisah[15]. Saat

sampel dimasukkan ke dalam kolom, uranium dan thorium akan terikat oleh resin. Uranium lebih dahulu dielusi menggunakan 60 mL asam nitrat 4M, efluen uranium yang keluar dari ujung kolom ditampung dalam gelas piala 100 mL. Setelah tidak ada cairan yang menetes dari ujung kolom, gelas piala tersebut diangkat. Kemudian thorium dielusi menggunakan 150 mL asam nitrat 6M, efluen thorium ditampung dalam gelas piala 250 mL, kemudian diuapkan hingga kiat.

### Elektrodeposisi Thorium

Residu efluen thorium dilarutkan menggunakan 10 mL larutan elektrolit natrium asetat 1 M dan dimasukkan ke dalam sel elektrodeposisi. Proses deposisi dilakukan secara elektrokimia ke atas permukaan plangset berbahan *stainless steel* dengan arus 0,4 A selama 105 menit. Pada akhir elektrodeposisi, sebanyak 1 mL ammonium hidroksida pekat ditambahkan dan didiamkan selama satu menit. Setelah proses elektrodeposisi selesai, plangset dicuci dengan ammonium hidroksida encer dan etanol[17].

### Analisis Isotop Thorium dan Perhitungan Umur *Yellow Cake*

Sebelum dilakukan deteksi  $^{232}\text{Th}$  dan  $^{228}\text{Th}$  dengan spektrometer alfa, terlebih dahulu dilakukan kalibrasi energi- $\alpha$  menggunakan standar AMR-43 yang mengandung isotop campuran  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$ , dan  $^{243}\text{Cm}$  yang diketahui aktivitasnya dari sertifikat. Besaran efisiensi detektor dihitung menggunakan persamaan 2:

$$Eff = \frac{cps}{A \times yield} \times 100\% \quad (2)$$

nilai cps adalah cacah per satuan detik, A merupakan aktivitas yang dapat dihitung dari sertifikat, dan *yield* merupakan kelimpahan isotop yang diperoleh dari tabel isotop.

Analisis isotop  $^{228}\text{Th}$  dan  $^{232}\text{Th}$  dilakukan dengan melakukan pencacahan terhadap plangset hasil elektrodeposisi thorium menggunakan spektrometer alfa.

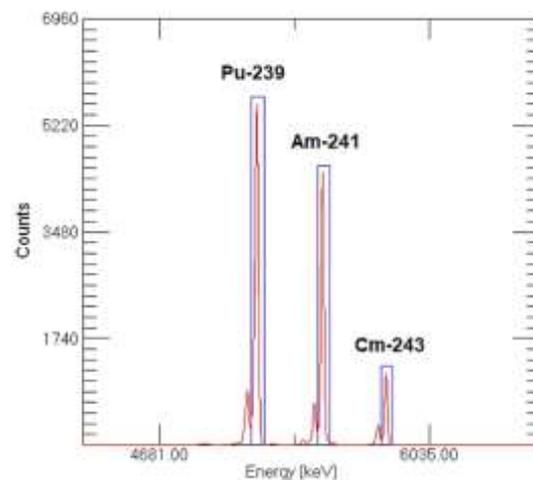
Pencacahan dilakukan pada rentang energi 3-8 MeV. Setelah diperoleh hasil cacah, dilakukan perhitungan aktivitas (A) isotop  $^{228}\text{Th}$  dan  $^{232}\text{Th}$  menggunakan persamaan 3:

$$A = \frac{cps}{Eff \times yield} \times 100\% \quad (3)$$

nilai Eff merupakan efisiensi detektor yang diperoleh dari pencacahan standar AMR-43. Umur *yellow cake* dapat diperoleh secara iterasi dengan memasukkan nilai rasio aktivitas  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  ke dalam grafik pada Gambar 1.

### HASIL DAN PEMBAHASAN

Spektrum alfa hasil pencacahan standar AMR-43, ditunjukkan pada Gambar 2. Nilai energi masing-masing isotop dari sertifikat adalah 5,155 MeV untuk isotop  $^{239}\text{Pu}$ , 5,484 MeV untuk isotop  $^{241}\text{Am}$ , dan 5,806 MeV untuk isotop  $^{243}\text{Cm}$ .



Gambar 2. Spektrum alfa standar AMR-43

Penentuan besaran efisiensi detektor yang dihasilkan dari pengukuran standar AMR-43, dilakukan pada tingkatan rak 1, yaitu pada rak yang berjarak paling dekat dengan detektor yang menghasilkan efisiensi paling besar. Begitu pula dengan pencacahan sampel dilakukan pada tingkatan rak 1. Hasil pencacahan standar AMR-43 dan hasil penghitungan besaran efisiensi detektor yang diperoleh terhadap salah satu isotop yaitu  $^{239}\text{Pu}$  tercantum pada Tabel 1.

Tabel 1. Besaran Efisiensi Detektor Spektrometer Alfa

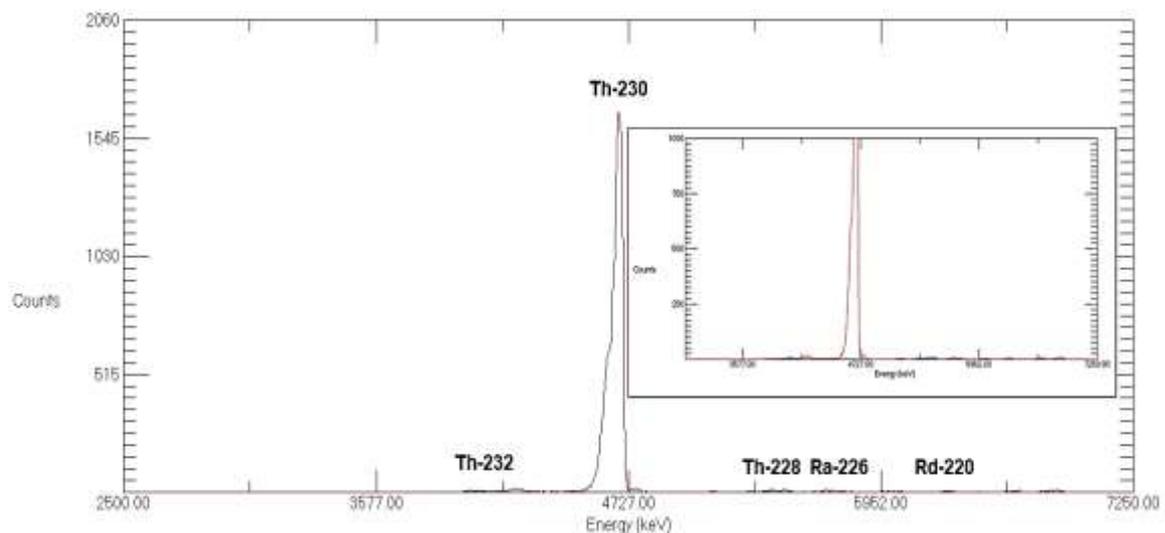
Pengulangan	Nilai cacah (cps)
1	629,55
2	623,71
3	623,30
4	625,34
5	624,18
Rerata	625,22
Aktivitas	2212,77
Yield	0,73
Efisiensi detektor	0,3871

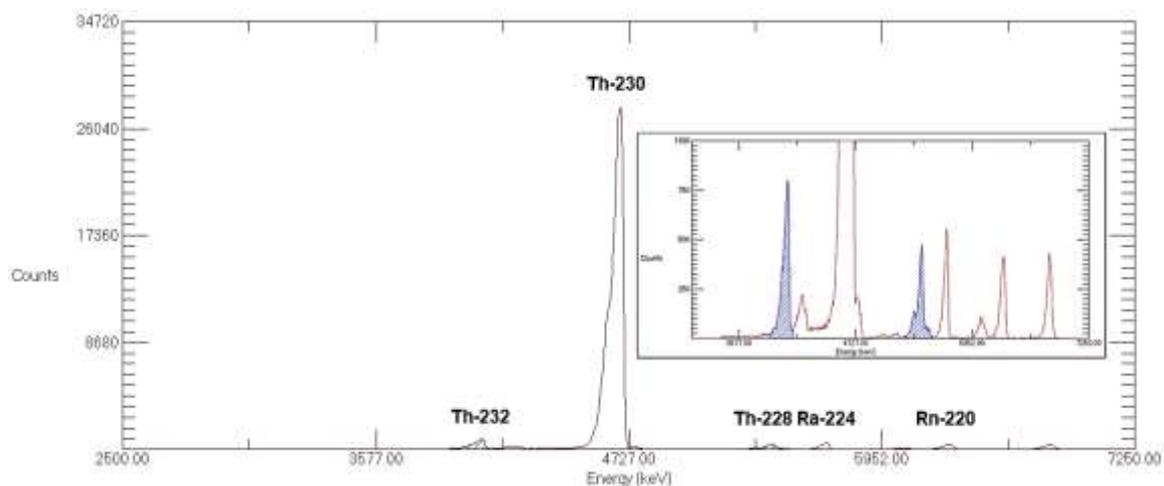
Pada data peluruhan nuklida,  $^{232}\text{Th}$  dapat dideteksi pada energi 3,9485 MeV dengan *yield* 21,0%, dan energi 4,0112 MeV dengan *yield* 78,9%[18]. Sedangkan  $^{228}\text{Th}$  dapat dideteksi pada energi 5,3404 MeV dengan *yield* 26,0%, dan energi 5,4232 MeV dengan *yield* 73,4%[19].

Planset yang mengandung thorium dari sampel *yellow cake* hasil elektrodeposisi

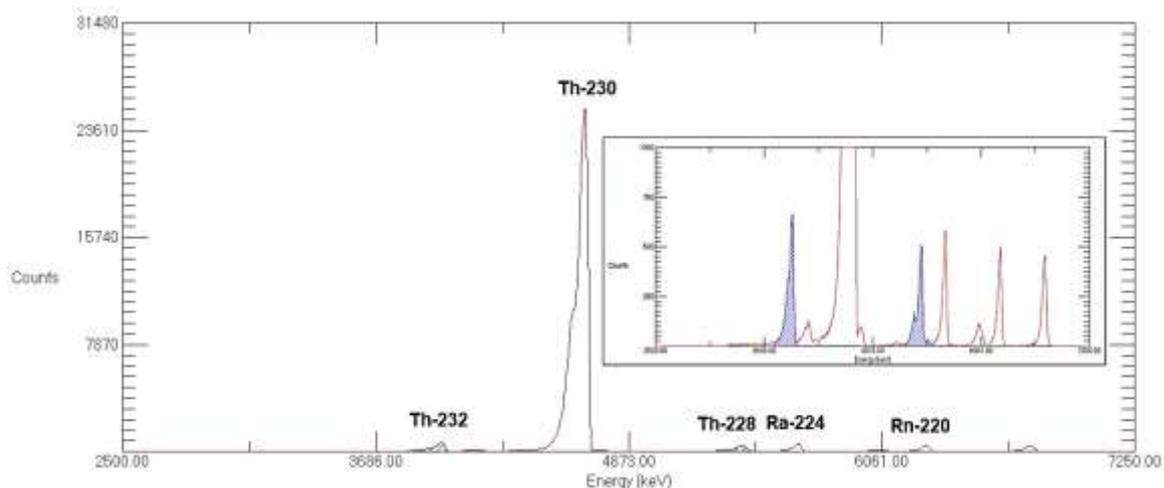
diukur dengan spektrometer alfa pada rentang energi 3-8 MeV. Diperoleh spektrum alfa thorium yang terdapat pada Gambar 3 untuk sampel *yellow cake* Cogema, Gambar 4 untuk sampel *yellow cake* Petrokimia Gresik, dan Gambar 5 untuk sampel *yellow cake* Kalan.

Pada ketiga gambar spektrum tersebut terdeteksi isotop thorium yaitu puncak  $^{232}\text{Th}$  pada energi 4,0149 MeV (gabungan energi 3,9485 MeV dan 4,0112 MeV dengan *yield* total 99,9%) dan puncak  $^{228}\text{Th}$  pada energi 5,4240 MeV (gabungan energi 5,3404 MeV dan 5,4232 MeV dengan *yield* total 99,4%). Dari nilai area puncak-puncak tersebut, dapat dihitung aktivitas  $^{232}\text{Th}$ , aktivitas  $^{228}\text{Th}$ , dan rasio aktivitas  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ . Nilai umur *yellow cake* diperoleh secara iterasi dengan memasukkan nilai rasio aktivitas  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  ke dalam grafik pada Gambar 1. Hasil perhitungan rasio aktivitas  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  dan nilai umur sampel *yellow cake* tercantum pada Tabel 2.

Gambar 3. Spektrum alfa thorium sampel *yellow cake* Cogema



Gambar 4. Spektrum alfa thorium sampel *yellow cake* Petrokimia Gresik



Gambar 5. Spektrum alfa thorium sampel *yellow cake* Kalan

Tabel 2. Hasil Perhitungan Rasio Aktivitas  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  dan Umur Sampel *Yellow Cake*

Sampel <i>Yellow Cake</i>	Isotop	Aktivitas (dps)	Rasio Aktivitas $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$	Umur Produksi dengan radiokronometer $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ (Tahun)	Umur Produksi yang diketahui (Tahun)
Cogema	$^{232}\text{Th}$	0,0026	-	-	> 34[20]
	$^{228}\text{Th}$	0,0052			
Petrokimia Gresik	$^{232}\text{Th}$	0,0705	0,5872	9,90	30,25[21]
	$^{228}\text{Th}$	0,0414			
Kalan	$^{232}\text{Th}$	0,0593	0,6960	12,85	33 - 38[22]
	$^{228}\text{Th}$	0,0413			

Berdasarkan hasil perhitungan pada Tabel 2, nilai umur sampel *yellow cake* yang berasal dari Cogema Perancis tidak dapat dihitung, karena seperti terlihat pada spektrum yang diperoleh pada Gambar 4,

tidak terdapat puncak isotop  $^{232}\text{Th}$  dan  $^{228}\text{Th}$ , hanya terdapat sinyal seperti *noise*. Hal ini menunjukkan bahwa dalam sampel *yellow cake* yang berasal dari Cogema Perancis tidak mengandung thorium alam yaitu  $^{232}\text{Th}$ ,

sehingga umurnya tidak dapat ditentukan menggunakan radiokronometer  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ . Sampel lainnya yaitu *yellow cake* yang berasal dari hasil samping proses pemurnian asam fosfat Petrokimia Gresik, diperoleh nilai umur 9,90 tahun. Fasilitas pemurnian asam fosfat Petrokimia Gresik diketahui beroperasi pada bulan April hingga Juli 1989[21], sehingga *yellow cake* tersebut telah berumur 30,25 tahun pada saat penelitian ini dilakukan. Nilai umur yang diperoleh memiliki bias yang besar yaitu 20,35 tahun dibandingkan dengan waktu produksi yang sebenarnya. Begitu juga dengan nilai umur sampel *yellow cake* hasil penambangan oleh PTBGN di Kalan yaitu 12,85 tahun, memiliki bias yang besar yaitu >20,15 tahun jika dibandingkan dengan nilai umur perkiraan (>33 tahun). Proses pengolahan bijih uranium oleh PTBGN diketahui dilaksanakan pada tahun 1981-1986[22]. Bias yang diperoleh pada penelitian ini lebih besar jika dibandingkan dengan hasil penentuan umur *yellow cake* menggunakan radiokronometer  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  oleh peneliti sebelumnya yaitu dengan bias kurang dari 10 tahun[12]. Penyimpangan nilai yang diperoleh tersebut menunjukkan bahwa penentuan umur kedua sampel *yellow cake* menggunakan radiokronometer  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  memiliki akurasi yang rendah. Hal ini kemungkinan terjadi disebabkan karena pada proses produksi sampel *yellow cake* tersebut tidak menggunakan pelarut asam sulfat sehingga radium tidak terpisahkan dari thorium, sehingga radiokronometer  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  tidak dapat digunakan untuk penentuan umur sampel *yellow cake* tersebut. Akurasi penentuan umur *yellow cake* menggunakan radiokronometer  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  untuk validitas metode belum dapat diketahui karena memerlukan bahan acuan bersertifikat yang saat ini belum tersedia secara komersil. Nilai umur yang diperoleh tidak dapat dimasukkan ke dalam basis data perpustakaan forensik nuklir.

## SIMPULAN

Telah diperoleh nilai umur *yellow cake* yang berasal dari penambangan oleh PTBGN di Kalan dan hasil samping pabrik pupuk Petrokimia Gresik menggunakan radiokronometer  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ . Terdapat penyimpangan nilai umur yang diperoleh dengan perkiraan waktu produksi *yellow cake* yang diketahui sehingga nilai umur tersebut tidak dapat dimasukkan ke dalam basis data perpustakaan forensik nuklir. Metode penentuan umur dengan radiokronometer  $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  hanya dapat digunakan untuk sampel *yellow cake* yang mengandung thorium alam ( $^{232}\text{Th}$ ) dan *yellow cake* yang pada proses produksinya menggunakan pelarut asam sulfat. Perlu penelitian lebih lanjut mengenai radiokronometer lain yang dapat digunakan untuk penentuan umur *yellow cake*.

## UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terima kasih penulis sampaikan kepada Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir yang telah memfasilitasi penelitian ini melalui anggaran forensik nuklir DIPA tahun 2019.

## DAFTAR PUSTAKA

- [1] K. Mayer and A. Glaser, *Nuclear forensics*, vol. 2. Elsevier Inc., 2015.
- [2] E. Keegan, M. J. Kristo, K. Toole, R. Kips, and E. Young, "Nuclear Forensics: Scientific Analysis Supporting Law Enforcement and Nuclear Security Investigations," *Anal. Chem.*, vol. 88, no. 3, pp. 1496–1505, 2016, doi: 10.1021/acs.analchem.5b02915.
- [3] G. R. Eppich, "Nuclear forensics: How science helps stop the trafficking of nuclear materials," *Bull. At. Sci.*, vol. 76, no. 5, pp. 263–270, 2020, doi: 10.1080/00963402.2020.1806587.
- [4] Z. Karpas, *Analytical Chemistry of Uranium*. New York: CRC Press, 2015.
- [5] International Atomic Energy Agency, "Nuclear Forensics in Support of

- Investigations,” *IAEA Nucl. Secur. Ser.*, no. 2-G, pp. 1–80, 2015.
- [6] IAEA, “Development of a National Nuclear Forensics Library : A System for the Identification of Nuclear or Other Radioactive Material out of Regulatory Control,” *IAEA Non-serial Publ.*, 2018.
- [7] B. Briyatmoko, “Pengembangan Metoda Forensik Nuklir,” in *Hasil-Hasil Penelitian EBN Tahun 2015*, 2015, pp. 133–143.
- [8] K. C. Treinen *et al.*, “Improved protactinium spike calibration method applied to  $^{231}\text{Pa}$ – $^{235}\text{U}$  age-dating of certified reference materials for nuclear forensics,” *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 318, no. 1, pp. 209–219, 2018, doi: 10.1007/s10967-018-6149-x.
- [9] J. S. Denton *et al.*, “International cooperation in age-dating uranium standards for nuclear forensics using the  $^{231}\text{Pa}/^{235}\text{U}$  radiochronometer,” *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 324, no. 2, pp. 705–714, 2020, doi: 10.1007/s10967-020-07084-x.
- [10] T. M. Kayzar and R. W. Williams, “Developing  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{227}\text{Ac}$  age-dating techniques for nuclear forensics to gain insight from concordant and non-concordant radiochronometers,” *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 307, no. 3, pp. 2061–2068, 2016, doi: 10.1007/s10967-015-4435-4.
- [11] K. Mayer, M. Wallenius, and Z. Varga, “Nuclear forensic science: Correlating measurable material parameters to the history of nuclear material,” *Chem. Rev.*, vol. 113, no. 2, pp. 884–900, 2013, doi: 10.1021/cr300273f.
- [12] Z. Varga, M. Wallenius, K. Mayer, and E. Hrncsek, “Alternative method for the production date determination of impure uranium ore concentrate samples,” *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 290, no. 2, pp. 485–492, 2011, doi: 10.1007/s10967-011-1233-5.
- [13] P. V Achuthan *et al.*, “Studies on The Separation of Thorium and Uranium on Various Crosslinked Dowex 50W Resin,” Bombay, India, 1993.
- [14] A. Bhattacharyya, P. K. Mohapatra, P. N. Pathak, and V. K. Manchanda, “Cation-exchange separation of uranium from thorium in nitric acid medium,” *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 268, no. 2, pp. 323–328, 2006, doi: 10.1007/s10967-006-0168-8.
- [15] E. Noerpitasari, S. Fatimah, A. Nugroho, P. Teknologi, and B. Bakar, “Metode Uji Radiochronometry Uranium dan Thorium,” in *Hasil-Hasil Penelitian EBN Tahun 2018*, 2019, pp. 114–127.
- [16] M. H. Lee and C. W. Lee, “Preparation of alpha-emitting nuclides by electrodeposition,” vol. 447, no. November 1999, pp. 593–600, 2000.
- [17] E. Noerpitasari, A. Saefumillah, and B. Briyatmoko, “Preparation of thorium alpha source using electrodeposition method Preparation of Thorium Alpha Source Using Electrodeposition Method,” in *3rd International Symposium on Current Progress in Mathematics and Sciences 2017 (ISCPMS2017)*, 2018, vol. 020089, no. 2023, doi: <https://doi.org/10.1063/1.5064086>.
- [18] LNE-LNHB/CEA, “Table de Radionucleides for Th-232,” pp. 1–6, 2012.
- [19] LNE-LNHB/CEA, “Table de Radionucleides for Th-228,” 2013.
- [20] *Uranium in Concentrates Form Purchase Contract*. Velizy: Cogema Group CEA.
- [21] M. Daryoko, “Strategi Dekomisioning Fasilitas Pemurnian Asam Fosfat Petrokimia Gresik,” in *Seminar Nasional Teknologi Pengolahan Limbah VI*, 2008, pp. 173–179.
- [22] “Pra Studi Kelayakan Pertambangan Uranium Bukit Eko Remaja - Kalan - Kalimantan Barat.”