

PEMUNGUTAN ISOTOP HASIL FISI ^{137}Cs DAN UNSUR BERMASA BERAT DARI BAHAN BAKAR $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ PASCA IRADIASI

Aslina B. Ginting, Dian A, Noviarthy, Yanlinastuti, Arif N, Boybul, Rosika K
Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN - Serpong
E-mail untuk korespondensi: aslina@batan.go.id

ABSTRAK

PEMUNGUTAN ISOTOP HASIL FISI ^{137}Cs DAN UNSUR BERMASA BERAT DARI BAHAN BAKAR $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ PASCA IRADIASI. Telah dilakukan pemungutan dan analisis isotop ^{137}Cs dengan unsur bermassa berat yang terkandung di dalam pelat elemen bakar (PEB) $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi. Tujuan dilakukannya pemungutan adalah untuk mendapatkan kandungan isotop ^{137}Cs , ^{235}U dan ^{239}Pu di dalam PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi dan selanjutnya akan digunakan untuk perhitungan *burn up*. Pemungutan dilakukan dengan metode penukar kation menggunakan zeolit Lampung. Larutan $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi dipipet sebanyak 150 μL dan dimasukkan ke dalam vial 4 (empat) buah. Ke dalam masing-masing vial tersebut ditambahkan zeolit Lampung dengan variasi berat 300, 400, 500 dan 600 mg. Selanjutnya dilakukan proses penukar kation dengan pengocokan selama 1 jam menggunakan *shaker* dengan kecepatan 20 rpm dan dibiarkan selama 24 jam. Hasil proses penukar kation menunjukkan terpisahnya paduan ^{137}Cs -zeolit sebagai fasa padat dengan isotop U, Pu sebagai unsur bermassa berat (*heavy element*, HE) dalam fasa cair. Padatan ^{137}Cs -zeolit kemudian ditimbang dan dianalisis dengan spektrometer- γ sehingga diperoleh kandungan isotop ^{137}Cs di dalam 150 μL PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi. Untuk mengetahui kandungan isotop U dan Pu sebagai HE di dalam fasa cair dilakukan pemipetan supernatan sebanyak 250 μL dan dikenakan proses elektrodeposisi menggunakan media *buffer* $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 1M pada kondisi kuat arus 1,2 A dengan jarak elektroda 10 mm selama 2 jam. Selanjutnya dilakukan pengukuran dan analisis isotop U, Pu dengan spektrometer- α . Hasil pengukuran menunjukkan bahwa zeolit Lampung dengan berat 500 mg adalah berat optimum dan digunakan untuk memungut isotop hasil fisi (^{137}Cs) dari HE di dalam 150 μL PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi. Kandungan isotop ^{137}Cs diperoleh sebesar 0,0118 μg , isotop ^{235}U sebesar 0,3110 μg dan unsur HE sebesar 1,5611 μg . Hasil ini lebih besar bila dibandingkan dengan kandungan isotop ^{137}Cs sebesar 0,0106 μg , isotop ^{235}U sebesar 0,2795 μg dan unsur HE sebesar 1,1313 μg dengan cara pengukuran langsung.

Kata kunci : Pemungutan, $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi, isotop ^{137}Cs , U, Pu

ABSTRACT

RECOVERY OF ^{137}CS ISOTOPE AND THE HEAVY ELEMENTS IN $\text{U}_3\text{Si}_2\text{/AL}$ FUEL PLATE IRRADIATED. The recovery and analysis of ^{137}Cs isotope and heavy elements contained in the $\text{U}_3\text{Si}_2\text{/Al}$ fuel plate irradiated has been done in this work. Recovery process is carried out with a cation exchange method using zeolite Lampung. A sample of 150 mL solution is taken using a pipette and then put in a vial. This procedure is done four times until four vials containing of 150 mL sample solution respectively. Each vial is added with zeolite Lampung with variety of weight of 300, 400, 500 and 600 mg. Cation exchange process is then performed with agitation for 1 h using a shaker. The results of cation exchange process indicate that there is a separation ^{137}Cs -zeolite as a solid phase with the isotope U, Pu as heavy elements (HE) in the liquid phase. ^{137}Cs -zeolite solids are then weighed and analyzed using a spectrometer- γ in order to find out the quantity of the isotope content of ^{137}Cs in the 150 mL of $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ irradiated. Measurement and analysis of the isotope U, Pu performed using a spectrometre- α . Determination of U and Pu isotope content in the liquid phase is done using 250 mL of supernatant and then it is electrodeposition processed using buffered media $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 1M at 1.2 A current with 10 mm distance between electrodes for 2 hours. The measurement results show that 500 mg of zeolite Lampung is the optimum weight to separate the fission isotopes (^{137}Cs) with HE in the 150 mL PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ after irradiation. The content of ^{137}Cs isotope, ^{235}U isotope, HE respectively obtained at 0.0118 mg, 0.3110 mg and 1.5611 mg. This value is greater than the value obtained by direct measurement, which has a value of 0.0106 g, 0.2795 g and 1.1313 g for the isotope ^{137}Cs , ^{235}U and HE.

Keyword: Recovery of $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ fuel plate irradiated, isotop ^{137}Cs , isotop U, Pu, zeolit spectrometer- α/γ

PENDAHULUAN

Pelat elemen bakar (PEB) U_3Si_2-Al dengan TMU $2,96 \text{ gU/cm}^3$ pasca iradiasi yang telah mengalami proses pendinginan di kolam reaktor (fuel storage) akan dikirim ke Instalasi Radiometalurgi (IRM) untuk dilakukan analisis PIE (Post Irradiation Examination). PEB U_3Si_2-Al pasca iradiasi tersebut mengandung beberapa hasil fisi seperti isotop ^{137}Cs , ^{144}Ba , dan ^{90}Sr dan beberapa unsur bermassa berat (HE= heavy element) diantaranya adalah isotop $U(^{238}U, ^{235}U, ^{234}U, ^{236}U)$ dan $Pu(^{239}Pu, ^{238}Pu)$. Isotop ^{90}Kr , ^{144}Ba adalah isotop hasil fisi yang masih dapat meluruh dan menghasilkan isotop-isotop lain sebagai hasil fisi yang lebih stabil yaitu ^{90}Sr dan ^{137}Cs ^[1]. Namun karena besaran fission yield dari isotop ^{137}Cs hanya sekitar 6,2% , menyebabkan kandungan isotop ^{137}Cs di dalam bahan bakar U_3Si_2-Al pasca iradiasi lebih kecil dibandingkan dengan kandungan isotop U sebagai bahan dasar dalam pembuatan elemen bakar nuklir. Umumnya isotop tersebut pemancar radiasi sehingga untuk menentukan komposisi atom-atom isotop tersebut dapat digunakan metode spektrometri^[2].

Untuk mendapatkan komposisi atom-atom isotop secara kuantitatif menggunakan metode spektrometri, terlebih dahulu harus dilakukan proses pemisahan antara isotop pemancar gamma dengan isotop pemancar alpha. Tujuan pemungutan adalah untuk mendapatkan kandungan isotop pemancar gamma maupun pemancar alpha secara akurat sekaligus mengurangi paparan radiasi gamma sebagai background. Beberapa hal yang menyebabkan hasil pengukuran kurang akurat antara lain adalah konsentrasi isotop U dalam bahan bakar lebih besar dari pada isotop Cs. Daya tembus isotop Cs lebih besar dibandingkan dengan isotop U dan Pu, walaupun energi antara isotop Cs dengan isotop U dan Pu jauh berbeda. Sehingga pada saat pengukuran dengan spektrometer- α , spektrum isotop U dan Pu masih tertutup oleh isotop Cs sebagai pemancar sinar- γ . Oleh karena itu, sebelum melakukan analisis dengan spektrometri perlu dilakukan pemisahan isotop hasil fisi ^{137}Cs dari isotop U, Pu sebagai HE.

Beberapa metode yang dapat digunakan untuk memungut isotop ^{137}Cs dari bahan bakar nuklir pasca iradiasi antara lain adalah metode ekstraksi menggunakan TBP/OK dan metode pengendapan langsung

sebagai $CsClO_4$. Namun pemungutan dengan ke dua metode tersebut belum menunjukkan hasil yang baik karena masih diperoleh besar pemungutan isotop ^{137}Cs yang kecil yaitu masing-masing sebesar $28,03\% \pm 5,33\%$ dan $52,55\% \pm 1,11\%$. Berdasarkan hasil tersebut maka pada penelitian ini akan digunakan metode penukar kation menggunakan zeolit Lampung untuk memungut isotop ^{137}Cs di dalam PEB U_3Si_2-Al pasca iradiasi. Pemilihan metode penukar kation berdasarkan kepada hasil penelitian sebelumnya, telah diketahui bahwa zeolit Lampung sangat selektif terhadap isotop ^{137}Cs bila dibandingkan dengan isotop ^{90}Sr maupun uranium di dalam larutan bahan bakar U_3O_8-Al pasca iradiasi^[3]. Untuk mengetahui kemampuan zeolit Lampung mengikat isotop ^{137}Cs di dalam PEB U_3Si_2-Al pasca iradiasi, maka dilakukan pemungutan isotop ^{137}Cs dengan isotop U, Pu sebagai HE. Pemungutan isotop ^{137}Cs dilakukan dengan penambahan zeolit Lampung dengan variasi berat 300, 400, 500 dan 600 mg dan waktu kontak selama 1 jam.

Dalam proses pemungutan dengan metode penukar kation, isotop ^{137}Cs akan terikat dengan zeolit dalam bentuk paduan ^{137}Cs -zeolit sebagai fasa padat, sehingga terpisah dengan isotop U, Pu di dalam fasa cair. Hasil pemungutan isotop ^{137}Cs dengan isotop U, Pu dengan metode penukar kation kemudian dibandingkan dengan hasil pengukuran langsung. Besar kandungan isotop ^{137}Cs dianalisis dengan spektrometer- γ dan isotop U, Pu dianalisis dengan spektrometer- α .

Hasil pengukuran isotop ^{137}Cs dengan spektrometer- γ dan isotop U, Pu dengan spektrometer- α diperoleh berupa cacahan per detik (cps), kemudian di evaluasi dengan menggunakan rumus Persamaan (1) dan (2) sehingga diperoleh komposisi isotop ^{137}Cs maupun komposisi U, Pu sebagai HE dengan berat tertentu di dalam sampel bahan bakar nuklir. Komposisi isotop tersebut dapat dihitung dengan Persamaan (1) dan Persamaan (2)^[4]

$$Eff = \frac{C_i}{A_\alpha * I_\alpha} \tag{1}$$

$$N = \frac{A}{\epsilon * I_{rel} * \lambda} \tag{2}$$

Keterangan:

- C_i : Jumlah cacahan, dihitung dari *net counts* isotop ($C - C_{bg}$)
 I_{\square} : faktor *yield* intensitas dari isotop- i (lihat daftar tabel isotop).
 N : jumlah isotop U dalam berat tertentu sampel bahan bakar nuklir
 A : keaktifan isotop U, dps atau Bq
 C : cacah isotop U, cacah/detik
 Eff : efisiensi detektor
 I_{rel} : Intensitas relatif puncak isotop-U pada energi yang diukur
 λ : konstanta peluruhan atau $(\ln 2)/T_{1/2}$
 $T_{1/2}$: waktu paruh dari isotop $^{137}\text{Cs} = 30,17$ tahun dan isotop U, ($^{234}\text{U} = 2,45 \cdot 10^5$ tahun, $^{235}\text{U} = 7,04 \cdot 10^8$ dan $^{238}\text{U} = 4,48 \cdot 10^9$ tahun, isotop $^{239}\text{Pu} = 2,41 \cdot 10^4$ tahun).

Dalam melakukan pemungutan dan analisis isotop ^{137}Cs dengan isotop U dan Pu di dalam bahan bakar $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi banyak aspek pengerjaan secara sistematis yang dapat menyebabkan penyimpangan hasil perhitungan. Aspek tersebut tersebut antara lain adalah proses pemungutan isotop ^{137}Cs yang dilakukan dengan penukar kation menggunakan zeolit Lampung. Tujuan dilakukannya pemungutan isotop ^{137}Cs adalah untuk memahami proses penukar kation menggunakan zeolit Lampung dan untuk mengetahui kandungan isotop ^{137}Cs , ^{235}U dan ^{239}Pu di dalam PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi. Agar diperoleh kandungan isotop ^{137}Cs , ^{235}U dan ^{239}Pu secara sempurna, maka dilakukan optimasi pemungutan ^{137}Cs di dalam PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi dengan cara penambahan zeolit Lampung dengan variasi berat 300, 400, 500 dan 600 mg. Dalam proses penukar kation, isotop ^{137}Cs akan terikat dengan zeolit berupa padatan ^{137}Cs -zeolit sebagai fasa padat dan isotop U, Pu sebagai supernatan dalam fasa cair. Hasil optimasi ini akan diperoleh kandungan isotop ^{137}Cs , ^{235}U dan ^{239}Pu yang lebih akurat yang ditandai dengan tidak diperolehnya kandungan isotop ^{137}Cs dalam supernatan. Selain aspek pemisahan yang sangat berpengaruh adalah aspek proses elektrodiposisi dilakukan dengan mengikuti metode ASTM C-1000-90 dan C-1000, aspek pengukuran dengan spektrometri serta aspek evaluasi spektrum isotop ^{137}Cs dan isotop U, Pu sebagai hasil analisis dengan

menggunakan spektrometer- α/γ $\square\square\square$. Data-data isotop hasil pemungutan selanjutnya akan digunakan untuk perhitungan *burn up* mutlak bahan bakar PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi.

METODE

Bahan

Standar isotop ^{137}Cs dari NIST

Standar campuran AMR 43 (^{239}Pu , ^{241}Am , ^{244}Cm)

Standar U_3O_8 (^{238}U , ^{235}U , ^{234}U)

PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ TMU 2,96 gU/cm^3 pasca iradiasi

Zeolit Lampung yang telah teraktivasi

ABM : air bebas mineral

Buffer elektrolit NH_4HSO_4

Peralatan

Peralatan gelas

Timbangan analitis

Sheaker dan Pemanas (*Hot Plate*)

Peralatan Elektrodiposisi

Spektrometer- α dan Spektrometer- γ

Cara Kerja:

a. Penentuan efisiensi detektor spektrometer - α/γ

Sebelum melakukan pemungutan dan analisis isotop ^{137}Cs dengan U, Pu di dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi, terlebih dahulu harus diketahui parameter optimum pengukuran menggunakan spektrometer- γ maupun spektrometer- α . Kalibrasi energi pengukuran spektrometer- γ dilakukan dengan menggunakan standar *point* ^{60}Co . Untuk mengetahui parameter pengukuran dengan spektrometer- γ dilakukan dengan mengukur sampel standar isotop ^{137}Cs . Penentuan parameter pengukuran spektrometer- α dilakukan dengan melakukan pengukuran sampel standar isotop AMR-43 dan sampel standar U_3O_8 20%. Hasil analisis terhadap sampel standar ^{137}Cs dan isotop AMR-43 masing-masing digunakan untuk mengetahui efisiensi detektor spektrometer- α/γ dan hasil analisis terhadap sampel standar U_3O_8 20% digunakan untuk mengetahui besar pemungutan (% recovery) isotop ^{235}U dengan perhitungan konsentrasi U dalam larutan berdasarkan sertifikat.

b. Pemungutan kembali isotop ^{137}Cs dengan metode penukar kation

Setelah diperoleh parameter analisis yang optimun, kemudian dilanjutkan dengan pemungutan dan analisis isotop ^{137}Cs dengan isotop U, Pu dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi. Pemungutan isotop ^{137}Cs dan isotop U, Pu dilakukan dengan metode penukar kation menggunakan zeolit Lampung. Larutan $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi dipipet sebanyak 150 μL dan masing-masing di masukkan ke dalam 4 (empat) buah vial yang telah diberi label. Kemudian ke dalam masing-masing vial tersebut ditambahkan zeolit Lampung seberat 300, 400, 500 dan 600 mg. Selanjutnya dilakukan proses penukar kation dengan pengocokan selama 1 jam menggunakan *shaker* dengan kecepatan 20 rpm dan didiamkan selama 24 jam. Hasil proses penukar kation menunjukkan terjadinya pemisahan antara paduan ^{137}Cs -zeolit sebagai fasa padat dengan isotop U, Pu dalam fasa cair [6,7].

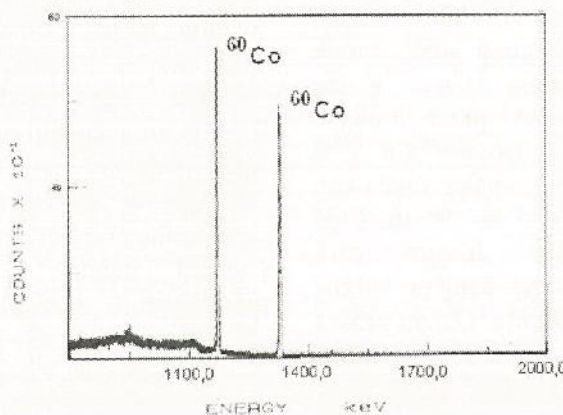
c. Pengukuran dan analisis isotop ^{137}Cs , isotop U, Pu dengan spektrometer- α/γ

Padatan paduan ^{137}Cs -zeolit hasil pemisahan kemudian di keringkan dan ditimbang, selanjutnya untuk mengetahui kandungan isotop ^{137}Cs dilakukan pengukuran menggunakan spektrometer- γ dengan waktu

cacah 1500 detik pada jarak detektor dan sampel sejauh 25 cm. Sementara larutan supernatan yang mengandung isotop U dan Pu di pipet sebanyak 250 μL untuk dikenakan proses elektrodiposisi. Proses elektrodiposisi dilakukan dengan menggunakan media *buffer* $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 1M yang dapat diendapkan pada kondisi kuat arus 1,2 A dengan jarak elektroda 10 mm selama 2 jam^[8,9]. Selanjutnya dilakukan pengukuran dan analisis isotop U, Pu menggunakan spektrometer- α pada rak ke-2 dengan waktu cacah 20000 detik. Hasil analisis berupa cacahan per detik (cps) kemudian di evaluasi dengan menggunakan rumus Persamaan (1) dan (2). Hasil analisis isotop ^{137}Cs maupun U, Pu dengan metode penukar kation dibandingkan dengan kandungan isotop ^{137}Cs dan U, Pu yang diperoleh secara pengukuran langsung.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Kalibrasi energi alat spektrometer- γ dilakukan dengan menggunakan standar isotop ^{60}Co dengan waktu cacah 1500 detik. Hasil kalibrasi energi menggunakan standar isotop ^{60}Co terdapat dua spektrum pada energi 1173,24 keV dan 1332,5 keV seperti yang terlihat pada Gambar 1.



Gambar1. Spektrum ^{60}Co pada energi 1173,24 keV dan 1332,5 keV

Setelah dilakukan kalibrasi energi, selanjutnya dilakukan penentuan efisiensi detektor dengan melakukan pengukuran terhadap sampel standar larutan isotop ^{137}Cs . Pengukuran dilakukan beberapa kali pengulangan dengan waktu cacah

1500 detik dan jarak 25 cm. Hasil cacahan kemudian dihitung dengan menggunakan

Persamaan (1), sehingga diperoleh besaran efisiensi detektor hasil perhitungan sebesar 0,053 % seperti ditunjukkan pada Tabel 1.

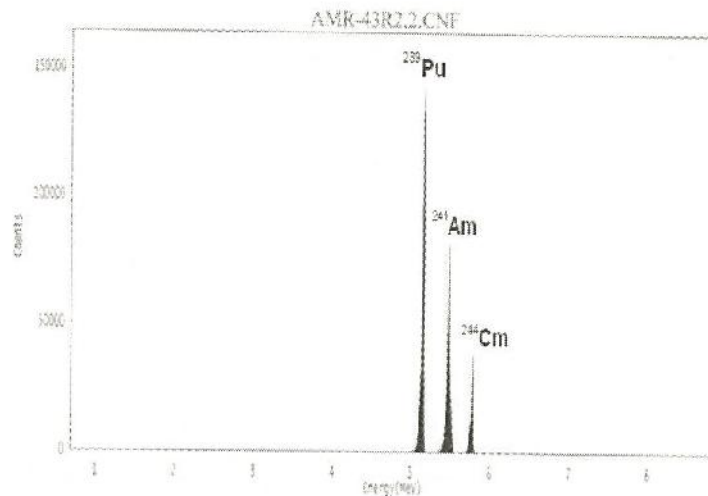
Untuk perhitungan efisiensi detektor spektrometer- α dilakukan dengan mengukur standar AMR-43 yang mengandung isotop campuran ^{241}Am , ^{243}Cm dan ^{239}Pu . Pengukuran AMR-43 dilakukan 3 (tiga) kali pengulangan

dengan waktu cacah 5000 detik pada rak 2. Hasil pengukuran isotop AMR-43 diperoleh 3

(tiga) spektrum yaitu ^{241}Am , ^{243}Cm dan ^{239}Pu seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2.

Tabel 1. Data perhitungan efisiensi detektor spektrometer- γ

Aktivitas standar ^{137}Cs , Bq		Net Area	Cacah per detik (Cps)	I γ (tabel) (%)	Efisiensi Detektor (%)
Tahun 2009	Tahun 2011				
		21853			
		22309			
34148	32802,57	22714	14,8613	85,1	0,053
		22292			



Gambar 2. Spektrum isotop standar AMR-43 (isotop ^{239}Pu , ^{241}Am , dan ^{244}Cm)

Dari hasil pengukuran ^{241}Am , ^{243}Cm dan ^{239}Pu dilakukan perhitungan efisiensi detektor menggunakan Persamaan (1) dan

diperoleh efisiensi detektor sebesar 31,4 % seperti yang ditunjukkan pada Tabel 2.

Tabel 2. Data perhitungan efisiensi detektor spektrometer- α

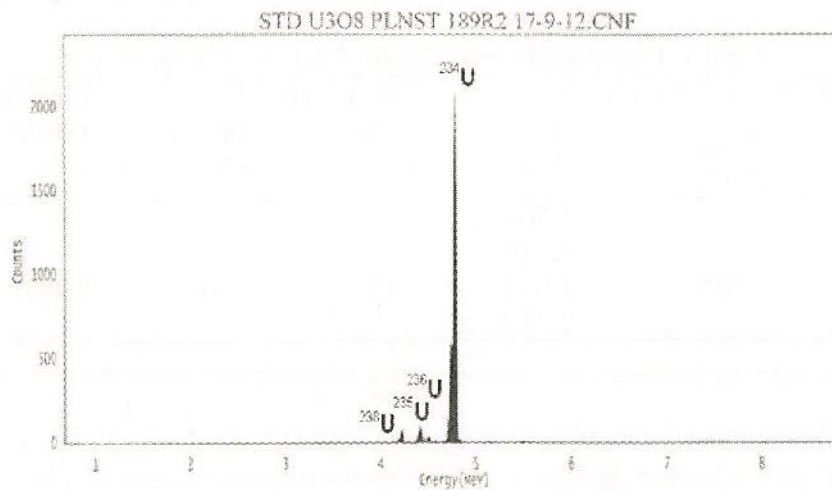
Aktivitas Standard AMR-43, (Bq)			Net Area			Cacah per detik (Cps)	I α (tabel) (%)	Efisiensi detektor (%)
Tahun	^{241}Am	^{244}Cm	^{239}Pu	^{241}Am	^{244}Cm			
1990	1720	1430	2220	1879853	743697	2541846		
2011	1665	654	2216	1876205	744023	2542400	508,16	73
				1863150	737692	2538179		
				1873069	741804	2540808		

Setelah diperoleh efisiensi detektor spektrometer- α , kemudian dilakukan pengukuran standar U_3O_8 20% yang mengandung isotop ^{238}U , ^{235}U dan ^{234}U . Tujuan pengukuran standar ini adalah untuk mengetahui kondisi parameter proses elektrodiposisi yang optimal dan besar

pemungutan (%) isotop U, Pu di dalam bahan bakar. Besaran efisiensi detektor sebesar 31,4% digunakan untuk menghitung besar aktivitas atau konsentrasi isotop ^{238}U , ^{235}U dan ^{234}U di dalam larutan standar U_3O_8 20% maupun di dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi. Efisiensi detektor dapat juga

digunakan untuk mengubah cps (*counts per second*) menjadi konsentrasi atau berat isotop ^{235}U yang terdapat di dalam sampel bahan

bakar nuklir dengan cara mengikuti Persamaan (2).



Gambar 3. Spektrum standar U_3O_8 (isotop ^{238}U , ^{235}U , ^{236}U dan ^{234}U)

Hasil analisis kandungan U-total berupa spektrum isotop ^{238}U , ^{235}U , ^{236}U dan ^{234}U sebagai hasil pengukuran standar U_3O_8 20% dengan spektrometer- α ditunjukkan pada Gambar 3. Spektrum standar U_3O_8 yang terdiri

dari isotop (^{238}U , ^{235}U , ^{236}U dan ^{234}U) diperoleh berupa cacahan per detik (cps) yang selanjutnya diestimasi menjadi satuan berat (μg) seperti yang terdapat pada Tabel 3.

Tabel 3. Kandungan isotop ^{235}U dalam standar U_3O_8 20% dan % pemungutan

Kandungan	Perhitungan (μg)	Pengukuran (μg)	Pemungutan (%)
U-total	39,1783	33,4482	85,3745
^{235}U	9,7202	8,9992	92,5818

Dalam larutan standar U_3O_8 20 % diperoleh konsentrasi U-total sebesar 39,1783 μg (hasil perhitungan), sedangkan hasil pengukuran dan analisis diperoleh konsentrasi U-total sebesar 33,4482 μg . Demikian juga hasil analisis isotop ^{235}U di dalam larutan standar U_3O_8 20% diperoleh sebesar 9,7202 μg (perhitungan) dan konsentrasi isotop ^{235}U hasil pengukuran standar U_3O_8 20 % diperoleh sebesar 8,9992 μg . Tabel 3 menunjukkan konsentrasi U-total dan ^{235}U hasil perhitungan (sertifikat) lebih besar dibandingkan dengan konsentrasi U hasil pengukuran dengan besar pemungutan masing-masing sebesar 85,3745% dan 92,5818 %. Hasil tersebut dianggap telah memenuhi persyaratan karena telah menghasilkan ketepatan hasil atau presisi yang dapat dipercaya pada keberterimaan 95%. Parameter proses ED maupun parameter pengukuran terhadap standar U_3O_8 20 % kemudian digunakan untuk menganalisis kandungan isotop U dan Pu di dalam larutan

supernatan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ TMU 2,96 gU/cm^3 pasca iradiasi. Hasil pemisahan isotop ^{137}Cs , U dan Pu yang dilakukan dengan metode penukar kation akan dibandingkan dengan hasil pengukuran langsung.

a. Pengukuran Langsung

Pengukuran isotop ^{137}Cs dan ^{235}U maupun ^{239}Pu di dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi dilakukan secara pengukuran langsung (tanpa pemisahan). Dalam melakukan analisis isotop ^{137}Cs dipipet 150 μl larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi dan dimasukkan ke dalam vial, selanjutnya diukur langsung dengan menggunakan spektrometer- γ dengan waktu cacah 1500 detik dan jarak detektor 25 cm. Hasil pengukuran dengan 3 (tiga) kali pengulangan menunjukkan kandungan isotop ^{137}Cs di dalam 150 μl PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi sebesar 0,0106 μg seperti yang ditunjukkan pada Tabel 4.

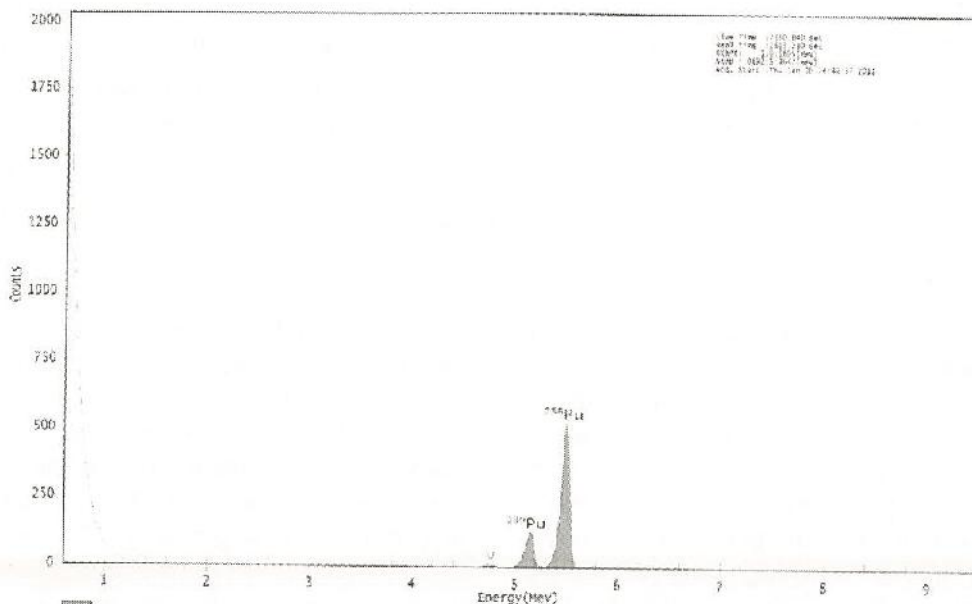
Untuk pengukuran isotop ^{235}U maupun ^{239}Pu dilakukan dengan cara memipet

larutan PEB U_3Si_2-Al pasca iradiasi sebanyak 250 μL , kemudian dilanjutkan dengan proses ED (mengikuti metoda ASTM E-219-1990) hingga terbentuk endapan tipis di atas planset stainless stell. Planset tersebut kemudian di

ukur dengan spektrometer- α pada rak 2 dengan waktu cacah 20000 detik. Hasil pengukuran isotop ^{235}U maupun ^{239}Pu diperoleh 3(tiga) spektrum seperti ditunjukkan pada Gambar 4.

Tabel 4. Kandungan isotop ^{137}Cs di dalam 150 μl PEB U_3Si_2-Al pasca iradiasi

Sampel	Net Area	cps	Eff detektor (%)	I γ (tabel) (%)	At (Bq)
150 μL PEB U_3Si_2-Al pasca Irr	22903	15,3007	0,053	85,1	33743,3578
	22996	Bg=0,0814			
	22954	15,2193			
Rerata	22951				
T1/2	952104860	detik			
BA	137				
Avogadro (NA)	6,02E+23				
$\lambda=0,693/T1/2$	7,2786E-10				
A= cps/eff xyield	33743,3578	Bq/g			
N=A/ λ	4,636E+13				
W= NxBA/NA (g)	1,055E-08	gram			
Kand. ^{137}Cs	0,0106	μg			



Gambar 4. Spektrum isotop ^{235}U dan Pu (^{239}Pu , ^{238}Pu) dari PEB U_3Si_2-Al pasca iradiasi dengan pengukuran langsung

Gambar 4 menunjukkan bahwa selain isotop ^{235}U pada $E_{\alpha}=4,679$ MeV, masih terdapat isotop-U lainnya (spektrumnya berimpit dan sulit untuk diidentifikasi) yaitu isotop ^{238}U ($E_{\alpha}=4,039$ MeV), isotop ^{236}U ($E_{\alpha}=4,499$ MeV) dan ^{234}U ($E_{\alpha}=4,856$ MeV). Untuk mengetahui jumlah masing-masing isotop-U (^{234}U , ^{235}U ,

^{236}U dan ^{238}U) dalam sampel, dilakukan perhitungan cacahan masing-masing spektrumnya dengan menggunakan Persamaan (1) dan (2). Selain isotop U tersebut diperoleh juga 2 (dua) spektrum isotop Pu yaitu ^{239}Pu ($E_{\alpha}=5,136$ MeV), ^{238}Pu ($E_{\alpha}=5,5251$ MeV) sebagai HE seperti ditunjukkan pada Gambar

4. Hasil analisis dengan pengukuran langsung diperoleh kandungan isotop ^{235}U sebesar 0,2795 μg dan unsur HE sebesar 1,1313 μg seperti yang terlihat pada Tabel 5. Apabila dibandingkan antara spektrum hasil analisis isotop U dalam standar U_3O_8 20 % yang terdapat pada Gambar 3 dengan spektrum isotop U yang terdapat di dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi pada Gambar 4, menghasilkan spektrum yang berbeda resolusinya. Hal tersebut diduga karena pada

Gambar 4 masih ada unsur-unsur logam lain dari PEB (Al dan Mg) yang mungkin dapat berpengaruh pada pelapisan hasil elektrodaposisi logam U. Di samping itu masih banyak isotop dan hasil fisi lain yang belum terpisahkan secara sempurna. Pengaruh adanya unsur Al dari matrik bahan bakar dan konsentrasi uranium dalam sistem ED yang tinggi diduga dapat mempengaruhi pengukuran radioaktifitas sinar- γ dari isotop uranium.

Tabel 5. Kandungan isotop U dan Pu di dalam 150 μl PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca radiasi

Isotop	^{238}U	^{235}U	^{236}U	^{234}U	^{239}Pu	^{238}Pu
Net Area	60	60	144	9683	464356	1033995
	53	60	159	1095	465724	1042557
	53	60	156	9825	466543	1046725
Rerata	55	60	153	6867.67	465541	1041092
cps	0,004	0,004	0,010	0,458	31,036	69,406
Eff detektor	0,314					
Intensitas, I_a (%)	77	57	74	72	73	71
T1/2 (detik)	1,4E+17	2,2E+16	7,4E+14	7,7E+12	7,6E+11	2,8E+09
BA	238	235	236	234	239	238
Avogadro (NA)	6E+23					
$\lambda=0,693/T1/2$	4,9E-18	3,1E-17	9,4E-16	9E-14	9,12E-13	2,5E-10
cps/eff xyield	0,0153	0,0223	0,0439	2,0251	134,8444	310,8843
$N=A/\lambda$	3,1E+15	7,2E+14	4,7E+13	2,1E+13	1,5E+14	1,2E+12
$W=N \times BA/NA$ (g)	1,2E-06	2,8E-07	1,8E-08	8,8E-09	5,9E-08	4,9E-10
$W=N \times BA/NA$ (μg)	1,2264	0,2795	0,0184	0,0088	0,0588	0,0005
HE(μg)						1,1313

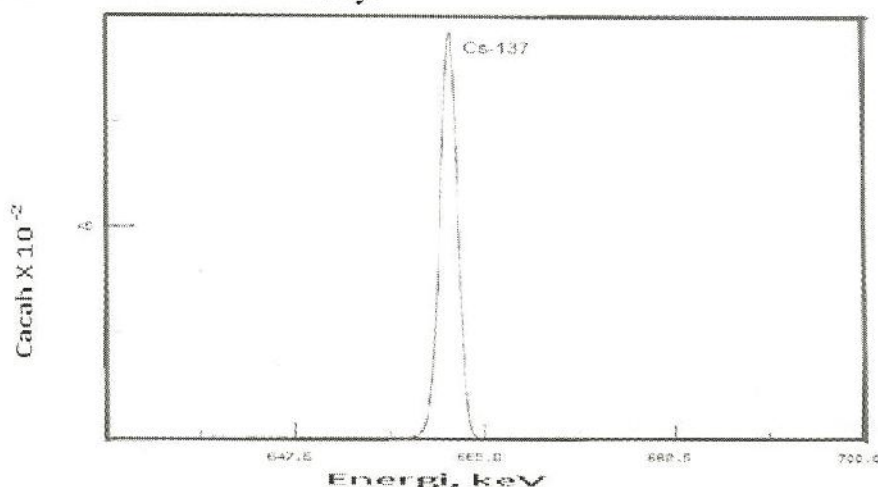
b. Metode penukar kation dengan zeolit Lampung

Metode yang digunakan untuk memungut isotop hasil fisi (khususnya isotop ^{137}Cs) dari isotop ^{235}U , ^{239}Pu di dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi adalah metode penukar kation dengan penambahan zeolit Lampung. Zeolit Lampung yang digunakan dengan variasi berat 300, 400, 500 dan 600 mg. Ke dalam masing-masing variasi berat zeolit ditambahkan larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi sebanyak 150 μL , kemudian dilakukan proses pertukaran kation hingga terbentuk padatan ^{137}Cs -zeolit. Zeolit akan mengikat isotop cesium dalam fasa padat sehingga isotop cesium terpisah dengan isotop (U, Pu) di dalam fasa cair. Proses pertukaran kation terjadi karena zeolit yang telah

teraktivasi dalam bentuk NH_4 -zeolit mempunyai jari-jari ion sebesar 331 pm, sedangkan Cs^+ mempunyai jari-jari ion sebesar 329 pm. Hal ini menyebabkan Cs^+ lebih mudah bertukar dengan NH_4^+ dalam kerangka zeolit, sedangkan isotop U dan Pu mempunyai jari-jari atom masing-masing $\text{Pu}^{6+} = 81$ pm, $\text{U}^{6+} = 97$ pm, $\text{U}^{4+} = 80$ pm, sehingga pada saat proses pemisahan dengan metode penukar kation isotop U, Pu tidak terikat di dalam zeolit sebagai fasa padat, namun isotop U, Pu ikut lolos sebagai supernatan di dalam fasa cair. Fenomena inilah yang terjadi di dalam proses penukar kation untuk memungut isotop ^{137}Cs dari U, Pu dalam bahan bakar pasca iradiasi. Isotop ^{137}Cs terikat dengan zeolit dalam bentuk padatan paduan ^{137}Cs -zeolit, selanjutnya dianalisis dengan spektrometer- γ . Pengukuran

dilakukan dengan waktu cacah 1500 detik pada jarak 25 cm. Spektrum isotop ^{137}Cs hasil pengukuran dengan spektrometer- γ ditunjukkan pada Gambar 5 dan besarnya

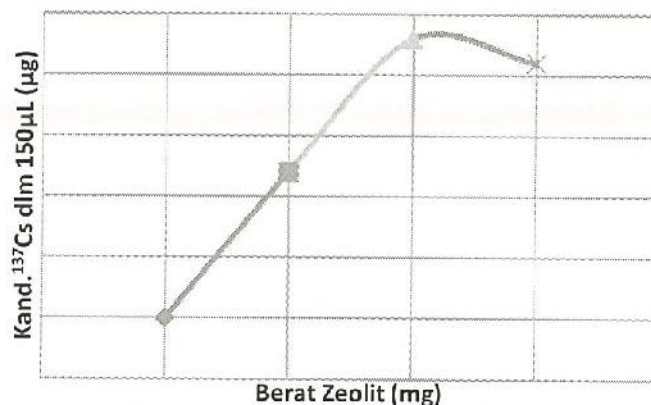
kandungan isotop ^{137}Cs di dalam 150 μL dengan variasi penambahan zeolit Lampung ditunjukkan pada Tabel 6 dan Gambar 6.



Gambar 5. Spektrum isotop ^{137}Cs dalam 150 μL PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi dengan metode penukar kation

Tabel 6. Kandungan isotop ^{137}Cs dengan variasi berat zeolit Lampung

Berat Zeolit (mg)	Net Area	cps	Eff detektor (%)	I γ (%)	Kand. ^{137}Cs (μg)
300	20810	13,8489	0,053	85,1	0,0095
	20748				
	20762				
400	23127	15,3670	0,053	85,1	0,0107
	23209				
	23182				
500	25735	17,0728	0,053	85,1	0,0118
	25734				
	25725				
600	25150	16,7684	0,053	85,1	0,0116
	25148				
	25160				

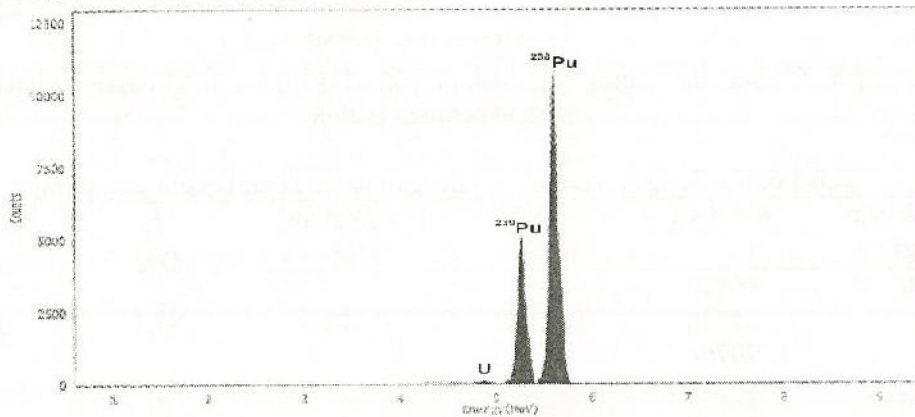


Gambar 6. Kandungan isotop ^{137}Cs dalam 150 μL variasi penambahan zeolit Lampung

Hasil pemungutan isotop ^{137}Cs dengan menggunakan variasi berat zeolit Lampung menunjukkan bahwa kandungan isotop ^{137}Cs paling banyak terikat dengan zeolit dengan berat 500 mg. Tabel 6 dan Gambar 6 menunjukkan bahwa kandungan isotop ^{137}Cs terikat semakin besar dengan zeolit dengan bertambahnya berat zeolit. Fenomena ini terlihat mulai dari berat zeolit 300 mg, 400 mg hingga berat zeolit 500 mg, namun penggunaan zeolit dengan berat 600 mg, terjadi sedikit penurunan kandungan isotop ^{137}Cs dari 0,0118 μg (untuk berat zeolit 500 mg) menjadi 0,0116 μg . Hal ini disebabkan karena kapasitas tukar kation (KTK= meq/g zeolit) untuk 600 mg telah berlebih untuk mengikat isotop ^{137}Cs yang terkandung di dalam 150 μL larutan PEB

$\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi, sehingga kelebihan berat zeolit tidak berpengaruh terhadap proses penyerapan isotop ^{137}Cs .

Analisis kandungan isotop U dan Pu di dalam supernatan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ dilakukan dengan melakukan pemipetan 250 μL . Selanjutnya dikenakan proses elektrodiposisi (ED) dan dilakukan pengukuran dengan spektrometer- α dengan waktu cacah 20000 detik pada rak 2. Hasil pengukuran berupa cacahan kemudian dievaluasi untuk mengetahui besar kandungan isotop U dan Pu di dalam PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi. Hasil pengukuran diperoleh spektrum ^{235}U dan 2 (dua) spektrum isotop Pu (^{239}Pu dan ^{238}Pu) seperti yang ditunjukkan pada Gambar 7.



Gambar 7. Spektrum isotop ^{235}U dan Pu (^{239}Pu , ^{238}Pu) dari supernatan $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi dengan penukar kation

Tabel 7. Kandungan isotop U dan Pu di dalam 250 μl PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca radiasi

Berat zeolit (mg)	Kandungan isotop (μg)					
	^{238}U	^{235}U	^{236}U	^{234}U	^{239}Pu	^{238}Pu
300	1,1985	0,1677	0,0165	0,0084	0,0672	0,0005
HE(μg)			1,2911			
400	1,2896	0,1910	0,0185	0,0085	0,0795	0,0005
HE(μg)			1,3956			
500	1,4266	0,3110	0,0255	0,0105	0,0979	0,0006
HE(μg)			1,5611			
600	1,3884	0,2710	0,0212	0,0095	0,0850	0,0005
HE(μg)			1,5046			

Dari Gambar 7 terlihat jelas spektrum isotop ^{235}U dan Pu (^{239}Pu , ^{238}Pu), namun selain itu masih terdapat spektrum isotop U lainnya yang mempunyai resolusi atau daya pisah yang sangat kecil. Spektrum isotop U dan Pu tersebut, kemudian dievaluasi dengan cara

menghitung cacahan dan luas puncak masing-masing sehingga diperoleh kandungan isotop ^{235}U dan HE seperti yang ditunjukkan pada Tabel 7. Tabel 7, menunjukkan bahwa setelah dilakukan pemungutan isotop Cs dengan isotop U, Pu menggunakan metode penukar kation,

diperoleh hasil kandungan ^{235}U maupun HE lebih besar bila dibandingkan dengan kandungan ^{235}U maupun HE dengan pengukuran langsung. Hal ini disebabkan karena pada pengukuran langsung masih terjadi kompetisi isotop Cs yang mempunyai daya tembus lebih besar dibanding isotop U dan Pu, sehingga pada saat pengukuran dengan spektrometer- α , spektrum isotop U dan Pu masih tertutup oleh isotop Cs sebagai pemancar sinar- γ yang mempunyai daya tembus lebih besar. Fenomena ini membuktikan bahwa zeolit Lampung selektif terhadap isotop ^{137}Cs dibandingkan dengan isotop lainnya yang terdapat di dalam bahan bakar pasca iradiasi. Namun demikian, dalam melakukan analisis isotop U dan Pu di dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi masih diperoleh hasil yang belum tepat karena terkadang spektrum isotop-U dengan energi (MeV) yang berdekatan tidak terpisah dengan baik. Hal ini kemungkinan disebabkan oleh preparasi sampel yang belum sempurna dan masih harus terus dipelajari.

KESIMPULAN

Zeolit Lampung dengan berat 500 mg adalah berat yang optimum digunakan untuk memungut isotop hasil fisi (^{137}Cs) dari U dan Pu di dalam 150 μL larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi. Kandungan isotop ^{137}Cs di dalam 150 μL larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi sebesar 0,0118 μg , isotop ^{235}U sebesar 0,3110 μg dan unsur HE sebesar 1,5611 μg . Hasil ini lebih besar bila dibandingkan dengan cara pengukuran langsung yang diperoleh kandungan isotop ^{137}Cs sebesar 0,0106 μg , isotop ^{235}U sebesar 0,2795 μg dan unsur HE sebesar 1,1313 μg dengan. Hasil percobaan menunjukkan bahwa metode penukar kation menggunakan zeolit Lampung mampu memisahkan dan memungut isotop ^{137}Cs sebagai hasil fisi dari isotop U, Pu di dalam PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi.

DAFTAR PUSTAKA

1. Siti Amini, Lukman Hakim, Antonio Gogo, Hudi Hastowo, Amir Hamzah, J.Sitorus Pane, Analisis Fraksi Bakar Elemen Bakar Silisida (RISIE2) Secara Pengukuran $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$, Prosidings Seminar Sains dan Teknologi Nuklir, PPTN-BATAN, Bandung 21-22 Maret.(1995)

2. S. AMINI, Studi Zeolit Untuk Penukuran Ion Cs, Sr dan U, Hasil-Hasil Penelitian Elemen Bakar Nuklir P2TBDU-BATAN, ISSN 0854-5561, Serpong.(1998)
3. S. Amini, D.Anggraini, Yusuf Nampira, Rosika, Noviarti, dan A.Nugroho, Keselektifan Zeolit Lampung Terhadap Kation-kation Matrik Hasil Fisi Uranium, Jurnal Zeolit Indonesia, ISSN 1411-6723.(2003)
4. K.Venugopal Chetty, P.M.Mapara, A.G.Godbole, R.Swaup, Effect of Mixed Solvent Media on The Sorption and Separation of Uranium and Plutonium on Macroporous Resins, Fuel Chemistry Division Bhabha Atomic Research Center, Trombay, Bombay 400-085, India.(1997)
5. Myung Ho Lee, Cheol Ju Kim, Bong Hyun Boo, Electrodeposition of Alpha-Emitting Nuclides from Ammonium Oxalate-Ammonium Sulfate Electrolyte, Bull. Korean Chem.Soc. Vol 21 No.2 page 175.(2000)
6. American Standar Test Methods, Standar Test Method for Radiochemical Determination of Uranium Isotopes in Soil by alpha Spectrometry, Designation: C 1000-90.Vol. 12.01 page 521-524.(1992)
7. American Standar Test Methods, ASTM-E 320-79, Standar Test Methods for Cesium-137 in Nuclear Fuel Solutions by Radiochemical Analysis, Standar Test Method For Nuclear Material, USA, Vol. 12.1(1990)
8. American Standar Test Methods, Standar Practice for The Ion Exchange Separation of Uranium and Plutonium Prior to Isotopic Analysis: ASTM No C-1411-01.Vol. 12.01.(1992)
9. American Standar Test Methods, Standar Test Methods for ^{238}Pu Isotopic Abundance By Alpha Spectrometry, ASTM No C-1415-01. Vol. 12.1.(1992)
10. American Standar Test Methods, ASTM-E 692-00, Standar Test Methods for Determining The Content Of Cesium-137 In Irradiated Nuclear Fuels By High Resolution Gamma-Ray Spectral Analysis, Standar Test Method For Nuclear Material, USA, Vol. 12.1.(2000)