

METODE ANALISIS FISIKOKIMIA PADA BAHAN BAKAR U₃Si₂-AL DENSITAS 4,8 GU/CM³ PASCA IRADIASI

ARIF NUGROHO, BOYBUL, DIAN ANGGRAINI, ASLINA BR. GINTING

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-Badan Tenaga Nuklir Nasional
Kawasan Puspptek Gedung 20 Serpong, 15314
E-mail untuk korespondensi : arif52@yahoo.com

ABSTRAK

METODE ANALISIS FISIKOKIMIA PADA BAHAN BAKAR U₃Si₂-AL DENSITAS 4,8 gU/cm³ PASCA IRADIASI. Untuk melakukan uji PIE (*Post Irradiation Examination*) khususnya analisis fisikokimia terhadap PEB U₃Si₂-Al dengan densitas 4,8 gU/cm³ pasca iradiasi telah dilakukan beberapa pembakuan metode. Pembakuan metode yang dilakukan antara lain metode penentuan distribusi hasil fisi, pemotongan, pelarutan PEB, sedangkan untuk pemisahan dan analisis isotop hasil fisi khususnya ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs, serta heavy element isotop U dan Pu masih perlu dilakukan pengkajian. Tujuan penelitian ini adalah untuk mendapatkan parameter distribusi isotop hasil fisi, pemisahan dan analisis isotop hasil belah Cs dari isotop U dan Pu di dalam PEB U₃Si₂-Al densitas 4,8 gU/cm³ pasca iradiasi dengan burn up. Pembakuan metode dilakukan berdasarkan metode ASTM dan hasil penelitian terhadap PEB U₃Si₂-Al dengan densitas 2,96 gU/cm³ pasca iradiasi. Analisis fisikokimia yang dilakukan terhadap PEB U₃Si₂-Al dengan densitas 2,96 gU/cm³ diperoleh kandungan isotop ¹³⁷Cs sebesar 0,000753 g/g sampel, isotop ²³⁵U sebesar 0,032839 g/g sampel dan ²³⁹Pu 0,0000109 g/g sampel. Kandungan isotop di dalam PEB U₃Si₂-Al densitas 2,96 gU/cm³ digunakan untuk perhitungan burn up. Metode yang diperoleh siap digunakan untuk analisis fisikokimia terhadap PEB U₃Si₂-Al densitas 4,8 gU/cm³ pasca iradiasi setelah pelaksanaan uji non destructive test, NDT selesai dilakukan di reaktor.

Kata kunci: Pemisahan U, Pu, kolom penukar ion, PEB U₃Si₂-Al pasca iradiasi, burn up.

ABSTRACT

THE METHOD OF PHYSICOCHEMICAL ANALYSIS ON SPENT FUEL U₃Si₂-AL DENSITY 4.8 gU/cm³. In order to perform a post irradiation examination (PIE), especially in physicochemical analysis of the fuel element plates U₃Si₂-Al with a density of 4.8 gU/cm³, it has been done some standardization methods. The standardization methods which has been done, namely, the method to analyse the distribution of fission products, cutting process, and fuel element plates dissolution, whereas the separation and analysis of fission product, in particular ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs and heavy element isotopes of U and Pu, still needs to be assessed. The purpose of this study is to obtain the distribution parameters of fission product isotopes, to separate and analyse the fission product Cs from U and Pu isotopes in the spent fuel element plates U₃Si₂-Al with a density of 4.8 gU/cm³. Standardization of the method has been done based on ASTM methods and the results of research on spent fuel element plates U₃Si₂-Al with a density of 2.96 gU/cm³. The physicochemical analysis which has been performed obtaining ¹³⁷Cs isotope content of 0.000753 g/g sample, the isotope ²³⁵U about 0.032839 g/g sample and ²³⁹Pu 0.0000109 g/g sample. The content of isotopes in the spent fuel element plates U₃Si₂-Al with a density of 2.96 gU/cm³ is used for burn-up calculations. The obtained method has been used to perform physicochemical analysis of the spent fuel element plates U₃Si₂-Al density of 4.8 gU/cm³ after the non-destructive test has been performed in the reactor.

Key words: U-Pu separation, ion exchange column, spent fuel element plates U₃Si₂-Al, burn up

PENDAHULUAN

Berdasarkan hasil penelitian dan analisis fabrikator yang didukung oleh analisis keselamatan operasi reaktor bahwa pelat elemen bakar (PEB) U_3Si_2-Al dengan densitas $2,9 \text{ gU/cm}^3$ mempunyai unjuk kerja yang baik saat digunakan sebagai bahan bakar di dalam reaktor[1,2]. Untuk PEB U_3Si_2-Al dengan densitas $4,8$ dan $5,2 \text{ gU/cm}^3$, dari data analisis menunjukkan bahwa kedua PEB tersebut tidak mengalami kendala dalam proses fabrikasi, tetapi unjuk kerjanya di dalam reaktor sedang dalam penelitian. Untuk mengetahui unjuk kerja bahan bakar PEB U_3Si_2-Al yang diradiasi di reaktor, perlu dilakukan beberapa pengujian sebagai PIE (*Post Irradiation Examination*) antara lain uji tak merusak (*Non Destructive Test* NDT) yang meliputi ketebalan PEB, distribusi hasil fisi, *swelling*, kelengkungan, cacat secara visual, dan uji merusak (*Destructive Test* DT) yang meliputi analisis metalografi, mekanik, dan analisis *burn up* secara radiokimia.

Pada penelitian sebelumnya telah dilakukan pengujian PIE khususnya perhitungan *burn up* secara radiokimia terhadap PEB U_3Si_2-Al dengan densitas $2,9 \text{ gU/cm}^3$. Perhitungan *burn up* diperoleh melalui penentuan komposisi atom hasil belah ^{137}Cs dan *heavy element* isotop ^{235}U serta ^{239}Pu . Isotop-isotop tersebut terdapat di dalam PEB U_3Si_2-Al dengan densitas $2,9 \text{ gU/cm}^3$ pasca iradiasi terlebih dahulu harus dipisahkan dengan menggunakan metode penukar kation dan anion. Hasil perhitungan *burn up* PEB U_3Si_2-Al dengan densitas $2,9 \text{ gU/cm}^3$ diperoleh sebesar $51,71\%$. Besaran *burn up* ini lebih kecil dibandingkan dengan *burn up* yang dihitung menggunakan program *Origen Code* oleh PRSG (Pusat Reaktor Serba Guna) yaitu sebesar 56% . Perbedaan besaran ini disebabkan di dalam perhitungan *burn up* secara radiokimia banyak faktor-faktor yang diabaikan, antara lain faktor pada saat diradiasi di reaktor, waktu tinggal di *hotcell* IRM selama ± 17 tahun, maupun faktor pemisahan ataupun *recovery* pemugutan isotop ^{137}Cs , ^{235}U maupun ^{239}Pu yang terdapat di dalam PEB U_3Si_2-Al dengan densitas $2,9 \text{ gU/cm}^3$ pasca iradiasi. Untuk menindaklanjuti hasil penelitian sebelumnya, maka pada penelitian lanjutan ini akan dilakukan pembakuan metode untuk analisis fisikokimia terhadap PEB U_3Si_2-Al

dengan densitas $4,8 \text{ gU/cm}^3$. Pembakuan metode yang dipersiapkan meliputi metode penentuan distribusi hasil belah, pemisahan hasil fisi dengan *heavy element* (unsur bermassa berat) ^{235}U dan ^{239}Pu , analisis hasil fisi ratio antara isotop $^{134}Cs/^{137}Cs$, pemisahan isotop ^{235}U dengan ^{239}Pu sebagai variasi *burn up* PEB U_3Si_2-Al dari reaktor sebesar 20% , 40% dan 60% . Penelitian ini dilakukan dengan tujuan untuk menguasai metode pemisahan isotop hasil fisi $^{134}Cs/^{137}Cs$ dengan unsur bermassa berat ^{235}U dan ^{239}Pu secara radiokimia serta untuk mendapatkan kandungan isotop tersebut secara kuantitatif. Kandungan isotop selanjutnya digunakan dalam perhitungan *burn up* bahan bakar PEB U_3Si_2-Al dengan densitas $4,8 \text{ gU/cm}^3$ pasca iradiasi.

Dalam melakukan perhitungan *burn up* harus diketahui beberapa kandungan isotop sebagai monitor *burn up* antara lain kandungan isotop ^{235}U yang terbakar dan kandungan ^{235}U yang mengalami reaksi fisi maupun reaksi fertil menghasilkan hasil fisi $^{134}Cs/^{137}Cs$ dan unsur bermassa berat ^{235}U juga ^{239}Pu . Besarnya *burn-up* dinyatakan sebagai persentase atau fraksi atom fisi ^{235}U (juga ^{239}Pu) yang terbakar yang dinyatakan dalam (%) atau dalam satuan energi (MWD = *megawatt day*). Walau pada kenyataannya bahwa di dalam reaktor itu tidak hanya terjadi reaksi fisi dari ^{235}U saja, namun juga dari reaksi fertil ^{238}U yang menghasilkan ^{239}Pu yang selanjutnya mengalami reaksi fisi secara berantai. Oleh karena itu, pada perhitungan *burn-up* yang paling tepat adalah menentukan komposisi isotop-isotop bahan bakar yang tersisa setelah iradiasi dan isotop-isotop hasil fisinya, sehingga diperoleh konsentrasi menjadi jumlah isotop U dengan berat tertentu dalam sampel bahan bakar nuklir.

METODE

Bahan PEB U_3Si_2-Al densitas $4,8 \text{ gU/cm}^3$ pasca iradiasi yang telah mengalami proses pendinginan di kolam reaktor (*fuel storage*), kemudian di kirim ke IRM untuk dilakukan uji distribusi hasil fisi dan perhitungan *burn up*. Analisis distribusi hasil fisi dilakukan menggunakan *Gamma Scanning* dan analisis distribusi hasil fisi untuk PEB U_3Si_2-Al dengan densitas $4,8 \text{ gU/cm}^3$ dilakukan

oleh kelompok NDT di fasilitas PRSG. Untuk perhitungan *burn up* dilakukan melalui pemisahan isotop hasil fisi $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ dari ^{235}U serta ^{239}Pu . Pemisahan isotop $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ dilakukan menggunakan metode penukar kation (zeolit) Lampung [Amini, 1998][1]. Pemisahan isotop ^{235}U dan ^{239}Pu dilakukan menggunakan metode kolom penukar anion (resin Dowex 1×8). Hasil proses penukar kation menunjukkan terjadinya pemisahan antara paduan $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -zeolit dari isotop U dan Pu dalam supernatan. Kandungan isotop $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -zeolit dianalisis menggunakan piranti Spektrometer- γ dan isotop-isotop U dan Pu dianalisis menggunakan piranti Spektrometer- α [3]. Tahapan penelitian dilakukan seperti berikut :

Penentuan distribusi hasil fisi PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ densitas 4,8 gU/cm³ pasca iradiasi

Distribusi hasil fisi PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ densitas 4,8 gU/cm³ ditentukan dengan menggunakan *Gamma Scanning*. Penentuan distribusi hasil fisi dilakukan dengan 3 (tiga) posisi yaitu *bottom*, *middle*, dan *top* dari bahan bakar di *hotcell* (HC) 103. Setelah diketahui distribusi hasil fisi pada masing-masing posisi PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ densitas 4,8 grU/cm³, selanjutnya dilakukan pemotongan pencuplikan sampel di HC 103 untuk uji metalografi, mekanik maupun sampel uji *burn up* secara radiokimia. Pemotongan sampel PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ dengan densitas 4,8 gU/cm³ untuk uji *burn up* secara radiokimia dibutuhkan cuplikan sampel dengan dimensi 3×3×1,37 mm³.

Pelarutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ densitas 4,8 gU/cm³ pasca iradiasi

Sampel PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ dengan dimensi 3×3×1,37 mm³, kemudian dikirim ke *hotcell* (HC) 109 untuk dilakukan penimbangan dan pelarutan. Pelarutan dilakukan menggunakan HCl 6N dan HNO₃ 6N di dalam labu ukur 25 mL[4]. Setelah PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ terlarut, kemudian ditimbang selanjutnya dilakukan pipet ke dalam vial dan di transfer ke R.135 (laboratorium aktivitas sedang) untuk dilakukan proses pemisahan isotop.

Pemisahan isotop $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ dengan metode penukar kation

Dalam usaha untuk menghindari paparan radiasi selama melakukan pemisahan isotop tersebut, dilakukan dengan jalan memipet 1 mL larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi, kemudian diencerkan dalam labu ukur 10 mL. Selanjutnya larutan tersebut dipipet sebanyak 150 μL untuk digunakan sebagai larutan umpan dalam proses pemisahan isotop Cs dari U dan Pu. Pemisahan isotop Cs dari ^{235}U dan ^{239}Pu menggunakan metode penukar kation menggunakan zeolit Lampung. Larutan sebanyak 150 μL dari 10 mL dimasukkan ke dalam vial tersebut ditambahkan zeolit Lampung 700 mg yang telah diaktifasi terlebih dahulu dengan NH₄Cl. Selanjutnya dilakukan proses penukar kation dengan pencocokan selama 1 jam menggunakan *shaker* dengan kecepatan 20 rpm dan kemudian dидiamkan selama 24 jam. Hasil proses penukar kation menunjukkan terjadinya pemisahan antara paduan $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -zeolit sebagai fasa padat dengan isotop U dan Pu dalam fasa cair. Padatan $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ -zeolit hasil pemisahan kemudian dikeringkan dan ditimbang dan untuk mengetahui kandungan isotop $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ dilakukan pengukuran menggunakan piranti Spektrometer- γ pada waktu cacah 1500 detik pada jarak detektor 25 cm dari detektor.

Pemisahan isotop U dan Pu dengan metode kolom penukar anion

Pemisahan isotop ^{235}U dengan Pu (^{238}Pu dan ^{239}Pu) dilakukan dengan metode kolom penukar anion menggunakan resin Dowex 1 × 8-NO₃. Dimensi kolom yang digunakan sebesar 0,9 cm ID × 3 cm dengan 15 mL reservoir dan jumlah resin Dowex 1×8 sebanyak 2 g mengikuti ASTM[2,5]. Pemisahan dilakukan dengan cara memipet supernatan sebanyak 250 μL , kemudian dimasukkan ke dalam kolom dan dielusi menggunakan HNO₃ 8N. Dari proses ini, efluen yang keluar dari kolom adalah isotop U, sedangkan isotop Pu terikat dengan resin di dalam kolom. Untuk mengeluarkan isotop Pu yang terikat di dalam kolom dilakukan elusi menggunakan HCl 0,1N + HF 0,036N, sehingga diperoleh efluen Pu. Efluen U kemudian dikondisikan dalam suasana asam dengan menambahkan HCl 6N, kemudian dikenakan proses penukar anion dengan resin Dowex 1x8 Cl. Isotop U di elusi

menggunakan air hangat H₂O 50°C sehingga diperoleh efluen U dalam suasana asam. Efluen Pu dan U dikisatkan hingga kering di atas *hot plate*, kemudian dikenakan proses elektrodeposisi (ED). Proses ED dilakukan menggunakan media *buffer* (NH₄)₂SO₄ 1M yang dapat diendapkan pada kondisi kuat arus 1,2 Ampere dengan jarak elektroda 10 mm selama 2 jam mengikuti ASTM[6]. Besarnya kandungan isotop ¹³⁷Cs, ²³⁵U, dan Pu (²³⁹Pu, ²³⁹Pu) yang terdapat di dalam PEB U₃Si₂-Al pasca iradiasi dianalisis dengan menggunakan piranti Spektrometer-α pada *tray* kedua dengan waktu cacah 20000 detik. Penggunaan waktu cacah dan jarak *tray* sampel dengan detektor digunakan berdasarkan hasil optimasi yang dilakukan terhadap isotop ²³⁵U di dalam standar U₃O₈.

Perhitungan *burn up* PEB U₃Si₂-Al TMU 4,8 grU/cm³ pasca iradiasi

Setelah diketahui komposisi atom isotop ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs dari ²³⁵U dan ²³⁹Pu di dalam PEB U₃Si₂-Al densitas 4,8 gU/cm³ pasca iradiasi secara kuantitatif, hal lain yang harus diketahui adalah isotop ²³⁵U mula-mula dari data fabrikasi. Selanjutnya dilakukan perhitungan *burn up* bahan bakar tersebut dengan Persamaan (1) sebagai berikut:

$$\%BU = \frac{U_o - U_i}{U_o} \times 100\% \quad (1)$$

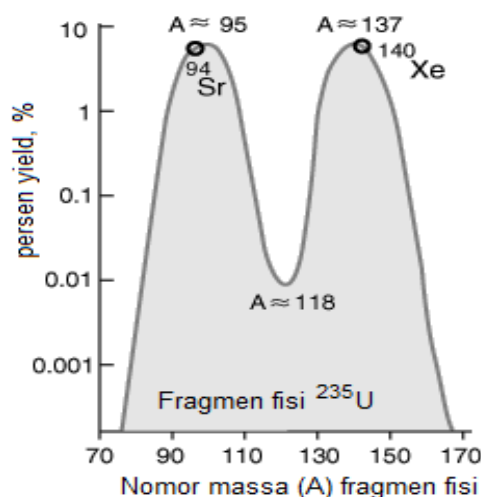
Keterangan :

- BU : *Burn up* (%)
- U_o : Jumlah atom ²³⁵U awal
- U_i : Jumlah atom ²³⁵U sisa

HASIL DAN PEMBAHASAN

Penentuan distribusi hasil fisi PEB U₃Si₂-Al densitas 4,8 gU/cm³ pasca iradiasi

Penentuan distribusi hasil fisi dari PEB U₃Si₂-Al densitas 4,8 gU/cm³ didasarkan kepada proses terjadinya reaksi fisi antara ²³⁵U dalam bahan bakar dengan neutron di dalam reaktor yang akan menghasilkan beberapa hasil fisi dengan *fission yield* tertentu seperti yang ditunjukkan pada Gambar 1.

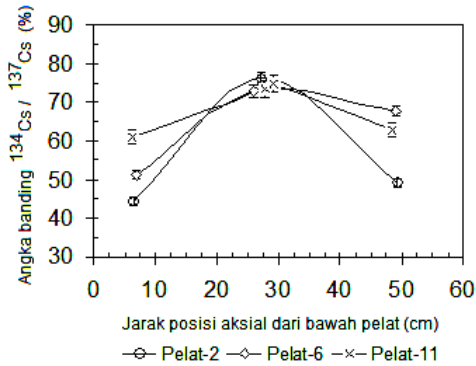


Gambar 1. Distribusi massa hasil fisi ²³⁵U dan ²³⁹Pu dengan neutron *thermal*

Gambar 1 menunjukkan bahwa proses pembelahan ²³⁵U terjadi dengan pola distribusi massa yang tidak sama, sehingga plot *fission yield* (%) dengan nomor massa menghasilkan dua bentuk kurva. Kurva pertama menunjukkan distribusi massa dari isotop-isotop dengan nomor massa antara 90 sampai dengan 100 dan kurva ke dua distribusi massa isotop dengan nomor massa 130 sampai dengan 140. Fenomena ini penting untuk mengetahui isotop-isotop yang memiliki *fission yied* relatif tinggi sebagai salah satu bahan pertimbangan dalam selektifitas isotop dalam penentuan *burn up*.

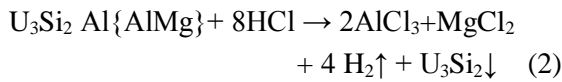
Gambar 1 menunjukkan bahwa isotop Cs yang mempunyai nomor massa 137 memiliki *fission yield* sekitar 6,2 %, relatif lebih tinggi dari isotop lainnya sesama pemancar radiasi-γ. Hal ini berarti bahwa setiap 100× reaksi pembelahan akan menghasilkan kurang lebih 6 atom ¹³⁷Cs. Fenomena ini menunjukkan bahwa di dalam bahan bakar pasca iradiasi kandungan isotop ¹³⁷Cs sebagai pemancar sinar-γ lebih dominan dari pada isotop hasil fisi pemancar sinar-γ lainnya. Untuk mengetahui jenis isotop yang terdapat di dalam PEB U₃Si₂-Al pasca iradiasi, selanjutnya dilakukan pengukuran distribusi hasil fisi menggunakan *Gamma Scanning* secara tidak merusak. Peneliti sebelumnya telah melakukan penentuan distribusi hasil fisi dengan cara pengukuran nilai angka banding isotop ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs dari PEB U₃O₈-Al kode RIE 01 seperti yang terlihat pada Gambar 2 [7]. Berdasarkan hipotesis bahwa *burn up* atom U dalam suatu bahan bakar berkorelasi dengan

nilai angka banding isotop $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$, sehingga dengan mengetahui nilai angka banding isotop Cs dari pelat atau perangkat elemen bakar pasca iradiasi, maka jumlah uranium di dalam bahan bakar dapat diketahui.

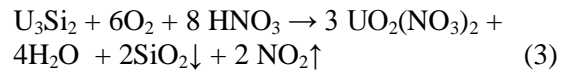


Gambar 2. Nilai angka banding isotop $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ pada posisi aksial dari PEB RIE01

Pelarutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ densitas $4,8 \text{ gU/cm}^3$ pasca iradiasi. Pelarutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ densitas $4,8 \text{ gU/cm}^3$ pasca iradiasi terjadi secara bertahap. Tahap pertama adalah pelarutan terhadap kelongsong AlMg2 dan matrik Al dengan HCl 6 N. Reaksi kimia yang terjadi pada proses pelarutan kelongsong dan matrik bahan bakar adalah sebagai berikut [8]:



Setelah kelongsong AlMg dan matrik Al terlarut, selanjutnya dilakukan pelarutan serbuk bahan bakar U_3Si_2 . Reaksi kimia yang terjadi antara serbuk bahan bakar U_3Si_2 dengan asam nitrat adalah sebagai berikut[9]:



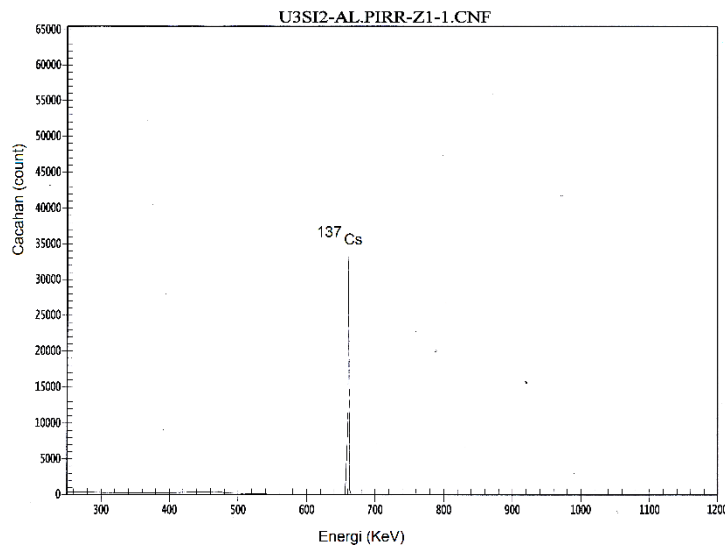
Setelah PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ TMU $4,8 \text{ gU/cm}^3$ pasca iradiasi terlarut, kemudian dilakukan pemisahan isotop ^{137}Cs , ^{235}U maupun ^{239}Pu yang terkandung di dalam bahan bakar tersebut.

Pemisahan dan pemungutan ^{137}Cs dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi Sebelum melakukan pemisahan isotop ^{137}Cs di dalam bahan bakar PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi, terlebih dahulu dilakukan optimasi parameter pemisahan terhadap standar isotop ^{137}Cs kode SRM 4233E sebanyak $50 \mu\text{L}$. Pemisahan dilakukan dengan metode penukar kation menggunakan zeolit Lampung seberat 700 mg . Hasil pemisahan diperoleh isotop ^{137}Cs terikat dengan zeolit dalam padatan ^{137}Cs -zeolit dan isotop lainnya dalam fasa cair (supernatan). Padatan ^{137}Cs -zeolit, kemudian diukur kandungan isotop ^{137}Cs menggunakan piranti Spektrometer- γ . Spektrum isotop ^{137}Cs di dalam standar isotop ^{137}Cs , kemudian di evaluasi sehingga diperoleh aktivitas isotop ^{137}Cs sebesar $12099,66 \text{ Bq}$ di dalam $50 \mu\text{L}$ dengan nilai akurasi sebesar $3,27 \%$ seperti yang ditunjukkan dalam Tabel 1.

Metode pemisahan yang dilakukan terhadap standar isotop ^{137}Cs selanjutnya digunakan untuk pemisahan isotop ^{137}Cs di dalam bahan bakar PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi. Hasil pemisahan diperoleh berupa padatan paduan ^{137}Cs -zeolit dengan berat kering 678 mg , kemudian diukur kandungan isotop ^{137}Cs menggunakan piranti Spektrometer- γ . Hasil pengukuran diperoleh spektrum isotop ^{137}Cs pada energi 661 keV seperti yang ditunjukkan dalam Gambar 3.

Tabel 1. Aktivitas isotop ^{137}Cs di dalam $50 \mu\text{L}$ SRM 4233E, Waktu cacah =1500 detik , jarak detektor 16 cm

Jenis Isotop	Net Area (cacah)	Cacah per detik (cps)	I_γ tabel (%)	Efisiensi Detektor (%)	Aktivitas Pengukuran (Bq)	Aktivitas Sertifikat (Bq)	Akurasi (%)
^{137}Cs	23915	16,0422	85,1	0,1507	12099,66	12508,46	3,27
	24084						
	24192						
	24061						



Gambar 3. Spektrum isotop ^{137}Cs dalam PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi

Gambar 3 menunjukkan bahwa dengan waktu cacah 1500 detik, hanya diperoleh spektrum isotop ^{137}Cs pada energi 661,46 keV dan tidak terlihat adanya spektrum isotop pemancar sinar- γ selain isotop ^{137}Cs . Fenomena ini menunjukkan bahwa zeolit Lampung yang digunakan dalam proses penukar kation sangat selektif dan mampu memisahkan isotop ^{137}Cs dari isotop lainnya. Senyawa 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 dan Pu tidak terikat di dalam zeolit sebagai fasa padat, namun isotop U dan Pu ikut lolos sebagai supernatan di dalam fasa cair.

Luasan spektrum isotop ^{137}Cs pada energi 661,46 keV, kemudian dievaluasi dan diperoleh kandungan isotop ^{137}Cs dalam 150 μL larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi. Kandungan isotop ^{137}Cs diperoleh sebesar 0,01509 μg , besaran ini selanjutnya dikonversi terhadap faktor pelarutan dan pengenceran dalam berat PEB yang dipotong, sehingga diperoleh kandungan isotop ^{137}Cs dalam PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi dengan dimensi $3 \times 3 \times 1,37$ mm³ yaitu sebesar 753,1144 $\mu\text{g/g}$ sampel seperti ditunjukkan dalam Tabel 2.

Tabel 2. Kandungan isotop ^{137}Cs di dalam PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi, Waktu cacah =1500 detik, jarak detektor 16 cm

Jenis Isotop	Net Area (cacah)	Cacah per detik (cps)	I_γ tabel (%)	$T_{1/2}$ (detik)	Efisiensi Detektor (%)	Kand. ^{137}Cs (μg)	Kand. ^{137}Cs $3 \times 3 \times 1,33$ mm ³ ($\mu\text{g/g}$ PEB)
^{137}Cs	97432	64,8593	85,1	952104860	0,1579	0,01509	753,1144
	96989						
	97446						
	97289						

Tabel 3. Kandungan isotop ^{137}Cs di dalam supernatan, Waktu cacah =5000 detik , jarak detektor 16 cm

Jenis Isotop	Net Area (Cacah)	Cacah per detik (cps)	I_γ (%)	$T_{1/2}$ (detik)	Efisiensi Detektor (%)	Kand. ^{137}Cs (μg)
^{137}Cs	40	0,0081	85,1	952104860	0,1579	0,000002

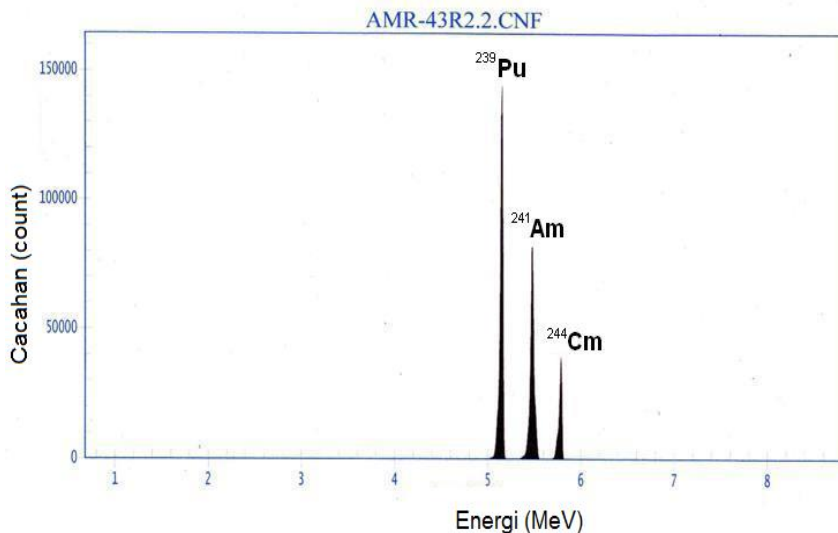
Selektifitas zeolit Lampung terhadap isotop ^{137}Cs didukung oleh analisis isotop ^{137}Cs yang terdapat di dalam supernatan atau isotop ^{137}Cs yang terikut dalam fasa cair. Kandungan isotop ^{137}Cs di dalam supernatan diperoleh sangat kecil yaitu sekitar 0,000002 μg seperti yang ditunjukkan dalam Tabel 3.

Pemisahan isotop isotop U dan Pu dengan metode kolom penukar anion

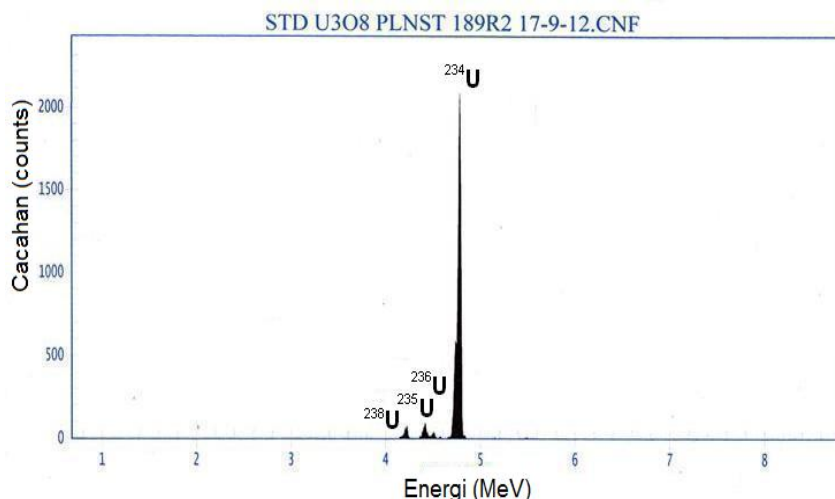
Sebelum melakukan pemisahan dan analisis terhadap isotop U dan Pu dalam supernatan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi terlebih dahulu dilakukan analisis terhadap sampel standar campuran AMR-43 yang mengandung isotop ^{239}Pu , ^{241}Am dan ^{243}Cm . Pengukuran dilakukan menggunakan alat

spektrometer- α dengan waktu cacah 1000 detik. Hasil analisis sampel standar isotop AMR-43 diperoleh berupa spektrum campuran isotop ^{239}Pu , ^{241}Am dan ^{243}Cm seperti yang terlihat dalam Gambar 4.

Hasil evaluasi spektrum isotop ^{239}Pu , ^{241}Am dan ^{243}Cm , kemudian digunakan untuk mengkalibrasi alat dan menghitung efisiensi detektor spektrometer- α . Besarnya efisiensi detektor merupakan fungsi jarak detektor dengan sampel diperoleh 38,34 %. Efisiensi detektor digunakan untuk menghitung besarnya berat atau konsentrasi isotop ^{238}U , ^{235}U , ^{236}U dan ^{234}U di dalam larutan standar U_3O_8 20%. Spektrum standar isotop ^{238}U , ^{235}U , ^{236}U dan ^{234}U hasil pengukuran dengan spektrometer- α di tunjukkan dalam Gambar 5.



Gambar 4. Spektrum isotop AMR-43 (isotop ^{239}Pu , ^{241}Am , dan ^{244}Cm)



Gambar 5 . Spektrum standar U_3O_8 (isotop ^{238}U , ^{235}U , ^{236}U dan ^{234}U)

Spektrum standar U_3O_8 yang terdiri dari isotop (^{238}U , ^{235}U , ^{236}U dan ^{234}U) dan standar isotop ^{233}U sebagai hasil pengukuran dengan spektrometer- α diperoleh berupa cacahan per detik (cps) yang selanjutnya diestimasi menjadi satuan berat kandungan isotop ^{238}U , ^{235}U , ^{236}U

dan ^{234}U (μg). Secara lengkap hasil evaluasi untuk perhitungan besar pemungutan (%) dan kandungan isotop ^{238}U , ^{235}U , ^{236}U dan ^{234}U baik secara teoritis maupun secara pengukuran dituangkan dalam Tabel 4.

Tabel 4. Kandungan isotop U dalam U_3O_8 sebanyak 300 μL atau 0,3030 g larutan, Waktu cacah =20000 detik

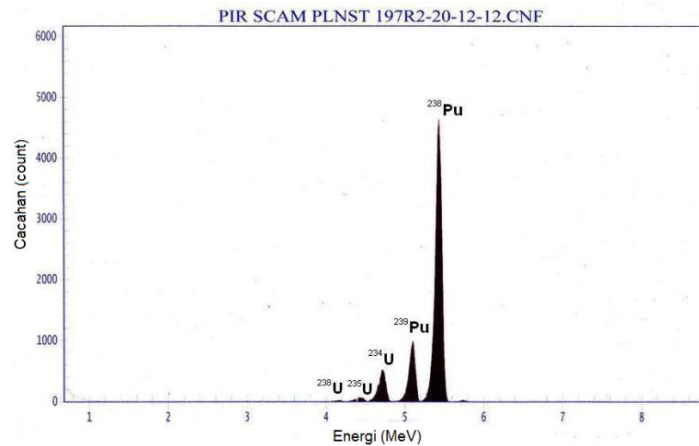
Jenis Isotop	Net Area (cacah)	Cacah per detik (cps)	$I\alpha$ tabel (%)	$T_{1/2}$ (detik)	Kand. Isotop, Pengukuran (μg)	Kand. Isotop, Teori (μg)	Recovery (%)
^{238}U	416	0,0208	77	1,4E+17	5,3386	11,1049	48,0743
^{235}U	766	0,0383	57	2,2E+16	2,0930	2,6580	78,7415
^{236}U	190	0,0167	74	7,4E+14	0,0240	0,0249	96,4812
^{234}U	11368	0,5684	72	7,7E+12	0,0085	0,0171	49,8524

Larutan standar U_3O_8 20 % yang dipipet sebanyak 300 μL atau 0,3030 g larutan mempunyai kandungan ^{235}U sebesar 2,658 μg secara teoritis atau sertifikat, sedangkan dari hasil pengukuran diperoleh sebesar 2,094 μg . Hasil perbandingan kandungan ^{235}U secara pengukuran dengan ^{235}U secara teoritis adalah nilai recovery (%) sebesar 78,74 %, seperti yang ditunjukkan pada Tabel 4.

Besar pemungutan isotop ^{235}U sebesar 78,7415 % telah dianggap memenuhi persyaratan analisis, karena dari ASTM diperoleh pemungutan sebesar 70 %. Disamping itu, parameter proses ED (tegangan, arus, waktu dan buffer elektrolit) maupun parameter pengukuran dengan alat spektrometer- α (jarak, dead time, efisiensi detektor) yang digunakan adalah parameter yang optimal, sehingga hasil pengukuran yang

diperoleh juga sudah maksimum. Parameter proses yang optimal, kemudian digunakan untuk pemisahan dan menganalisis kandungan isotop U dan Pu di dalam larutan supernatan PEB U_3Si_2-Al densitas 4,8 gU/cm^3 pasca iradiasi sebelum dan sesudah pemisahan dengan metode penukar anion menggunakan resin Dowex 1 \times 8[10].

Hasil pengukuran isotop U dan Pu sebelum mengalami pemisahan menggunakan spektrometer- α diperoleh 4 (empat) spektrum isotop-U yaitu ^{238}U ($E_\alpha = 4,194 MeV$), ^{235}U ($E_\alpha=4,397 MeV$), isotop ^{236}U ($E_\alpha= 4,494 MeV$) dan isotop ^{234}U ($E_\alpha=4,777 MeV$) dan 2 (dua) spektrum isotop Pu yaitu ^{239}Pu ($E_\alpha= 5,155 MeV$), ^{238}Pu ($E_\alpha= 5,486 MeV$) seperti yang terlihat dalam Gambar 6.



Gambar 6 . Spektrum isotop-U (^{234}U , ^{235}U , ^{236}U dan ^{238}U) dan isotop Pu (^{239}Pu dan ^{238}Pu) sebelum resin

Spektrum hasil pengukuran isotop U (^{234}U , ^{235}U , ^{236}U dan ^{238}U) serta isotop Pu (^{239}Pu dan ^{238}Pu) di dalam 600 μL atau 0,6010 g larutan supernatan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ kemudian dievaluasi sehingga diperoleh kandungan masing-masing isotop tersebut dituangkan dalam Tabel 5.

Dari Tabel 5 diketahui bahwa hasil analisis kandungan isotop U (^{234}U , ^{235}U , ^{236}U dan ^{238}U) serta kandungan isotop Pu (^{239}Pu dan ^{238}Pu) belum menunjukkan hasil yang baik, karena hasil yang diperoleh masih relatif kecil. Perhitungan secara teoritis diperoleh kandungan isotop ^{235}U di dalam 600 μL atau 0,6010 g larutan supernatan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ sebesar 2,630 μg dan ^{239}Pu sebesar 0,141 μg . Namun hasil pengukuran diperoleh kandungan isotop ^{235}U hanya sebesar 0,798 μg dan isotop ^{239}Pu sebesar 0,00087 μg . Hasil pengukuran isotop ^{239}Pu sebesar 0,00087 μg masih relatif kecil bila

dibanding dengan kandungan isotop ^{239}Pu secara teoritis yaitu sebesar 0,141 μg . Perbedaan kandungan isotop ^{239}Pu yang dihasilkan kemungkinan disebabkan karena terjadi kompetisi antara isotop U dengan isotop Pu yang saling mempengaruhi dalam pengukuran. Hal ini disebabkan karena spektrum isotop ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U dan ^{238}U saling berdekatan, sehingga dalam mengevaluasi spektrum isotop U mengalami beberapa kendala antara lain adalah dalam menentukan batas kiri dan kanan energi dari masing-masing spektrum isotop ^{234}U , ^{235}U , ^{236}U dan ^{238}U . Untuk mengatasi fenomena ini perlu dilakukan pemisahan antara isotop U dengan isotop Pu sebelum dilakukan proses ED dan pengukuran dengan spektrometer- α . Data hasil pemisahan isotop Pu dan U menggunakan kolom penukar anion ditunjukkan dalam Tabel 6 dan Tabel 7.

Tabel 5. Kandungan isotop U dan Pu dalam 600 μL atau 0,6010 g larutan supernatan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ (Sebelum Resin) Waktu cacah =20000 detik

Jenis Isotop	Net Area Cacah	Cacah per detik (cps)	I_α tabel (%)	$T_{1/2}$ (detik)	Kand. Isotop, Pengukuran (μg)
^{238}U	270	0,0046	77	1,4E+17	1,204
^{235}U	292	0,0146	57	2,2E+16	0,798
^{236}U	772	0,0132	74	7,4E+14	0,0185
^{234}U	7100	0,3550	72	7,7E+12	0,0053
^{239}Pu	11749	0,5875	73	7,61E+11	0,00087
^{238}Pu	58272	2,9136	71	2,77E+09	0,0000161

Tabel 6. Kandungan isotop Pu dan U dalam larutan supernatan PEB U_3Si_2-Al dielusi menggunakan HCl 0,1 N dan HF 0,036N, Waktu cacah =20000 detik

Jenis Isotop	Net Area Cacah	Cacah per detik (cps)	$I\alpha$ tabel (%)	$T_{1/2}$ (detik)	Kand. Isotop, Pengukuran (μg)
^{235}U	24	0,0012	57	2,2E+16	0,0655765
^{236}U	110	0,0055	74	7,4E+14	0,0000809
^{234}U	829	0,0415	72	7,7E+12	0,0006217
^{239}Pu	1063	0,0532	73	7,61E+11	0,0000787
^{238}Pu	136471	6,8236	71	2,77E+09	0,00003772

Tabel 7. Kandungan isotop U dan Pu dalam larutan supernatan PEB U_3Si_2-Al dielusi menggunakan H_2O 50°C, Waktu cacah =20000 detik

Jenis Isotop	Net Area Cacah	Cacah per detik (cps)	$I\alpha$ tabel (%)	$T_{1/2}$ (detik)	Kand. Isotop, Pengukuran (μg)
^{235}U	66	0,0033	57	2,2E+16	0,1803360
^{236}U	121	0,00605	74	7,4E+14	0,0085330
^{234}U	926	0,0463	72	7,7E+12	0,0006944
^{239}Pu	45	0,0023	73	7,61E+11	0,0000033
^{238}Pu	2131	0,1066	71	2,77E+09	0,0000006

Dari Tabel 6 dan 7 diperoleh hasil bahwa pemisahan isotop U dan Pu di dalam supernatan PEB U_3Si_2-Al pasca iradiasi masih belum sempurna, karena pada pemungutan isotop Pu masih terkandung isotop U demikian juga sebaliknya. Hal ini menunjukkan bahwa metode pemisahan isotop U dan Pu yang digunakan belum sempurna, sehingga masih diperlukan metode yang valid untuk pemisahan untuk kedua isotop tersebut. Oleh karena itu, selanjutnya akan dilakukan evaluasi parameter yang meliputi jumlah resin, waktu tinggal di dalam kolom, kecepatan alir dan sebagainya. Data pemisahan terhadap isotop ^{137}Cs , isotop U dan Pu, selanjutnya digunakan sebagai dasar dalam perhitungan *burn up* PEB U_3Si_2-Al densitas 4,8 gU/cm^3 pasca iradiasi.

Perhitungan *Burn up* mutlak PEB U_3Si_2-Al densitas 2,96 gU/cm^3 pasca iradiasi

Isotop hasil fisi (isotop ^{137}Cs) maupun isotop unsur bermassa berat (isotop U,Pu) di dalam PEB U_3Si_2-Al densitas 2,96 gU/cm^3 pasca iradiasi telah berhasil dipisahkan, kemudian ditentukan komposisi isotopnya, sehingga diperoleh konsentrasi (jumlah) isotop hasil fisinya, isotop U dan Pu dalam satuan berat yang terkandung di dalam sampel bahan bakar PEB U_3Si_2-Al dengan dimensi $3 \times 3 \times 1,37$ mm^3 tersebut. Kandungan isotop yang harus

diketahui dalam perhitungan *burn up* adalah isotop ^{235}U mula-mula, ^{235}U sisa dan isotop yang terbakar menjadi isotop ^{239}Pu . Data isotop yang diperoleh kemudian digunakan untuk perhitungan *burn up* bahan bakar.

KESIMPULAN

Telah dipersiapkan metode pengujian dalam analisis fisikokimia yang meliputi metode penentuan distribusi hasil fisi, pemotongan, pelarutan PEB, pemisahan, dan analisis isotop hasil fisi $^{134}Cs/^{137}Cs$, *heavy element* isotop U dan Pu serta perhitungan *burn up*. Persiapan metode ini dilakukan untuk mendukung uji fisikokimia terhadap PEB U_3Si_2-Al dengan densitas 4,8 gU/cm^3 pasca iradiasi. Pembakuan metode dilakukan berdasarkan kepada metode ASTM dan hasil penelitian terhadap PEB U_3Si_2-Al dengan densitas 2,96 gU/cm^3 pasca iradiasi. Namun pemisahan dan analisis kandungan isotop ^{137}Cs , isotop ^{235}U dan ^{239}Pu di dalam PEB U_3Si_2-Al densitas 4,8 gU/cm^3 pasca iradiasi belum dapat dilakukan karena sedang menunggu uji *non destructive test*, NDT dari reaktor.

DAFTAR PUSTAKA

1. Amini,S., Studi Zeolit Untuk Penukaran Ion Cs, Sr dan U, Hasil-Hasil Penelitian Elemen Bakar Nuklir P2TBDU-BATAN, ISSN 0854-5561, Serpong, 1998.

2. Ginting, A.Br., Analisis Isotop Transuranium dalam Bahan Bakar U3Si2-Al Pasca Iradiasi Menggunakan Spektrometer Alpha, URANIA, Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir, Vol. 17 No.2, Juni 2011, Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir - BATAN, 2011.
3. Venugopal Chetty K., 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.
4. Nampira.Y, Dkk, Rancangan metode analisis derajat bakar mutlak uranium silisida, Hasil-hasil Penelitian Elemen Bakar Nuklir, Pusat Pengembangan Teknologi Bahan Bakar Nuklir dan Daur Ulang (P2TBDU-BATAN), ISSN 0854-556, Serpong, 1999.
5. 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.
6. American Standar Test Methods, Standar Test Methods for ²³⁸Pu Isotopic Abundance By Alpha Spectrometry, ASTM No C- 1415-01. Vol. 12.1, 1992.
7. Amini.S, Amin D.L, Nampira.Y, Sunarto.A, Martoyo, Nugroho.A, Analisis Fraksi Bakar Mutlak Uji Pasca Iradiasi Pelat Elemen Bakar Dispersi Tipe Oksida RIE01, Pusat Pengembangan Teknologi Bahan Bakar Nuklir dan Daur Ulang P2TBDU-BATAN, 2005.
8. Indaryati S., Yanlinastuti, “Pemungutan Uranium Dari Gagalan Pelat Elemen Bakar U3Si2-Al Dengan Cara Pelarutan”, Prosiding Seminar Pengelolaan Perangkat Nuklir, PTBN-BATAN, Tangerang, 2007.
9. Anonym, Reduced Enrichment for Reasearch and Test Reactor (RERTR), 1992.
10. Lee M.H., Kim C. J., and Boo B.H., Electrodeposition of alpha-emitting nuclides from Ammonium Oxalate-Ammonium Sulfate Electrolyte, Bull. Korean Chem.Soc. Vol 21 No.2 175, 2000