

## Penentuan *burn up* mutlak pelat elmen bakar $U_3Si_2$ -Al tingkat muat uranium 2,96 gU/cm<sup>3</sup> pasca iradiasi

Aslina Br Ginting, Yanlinastuti, Noviarthy, Boybul, Arif N, Dian A , Rosika  
Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-BATAN,  
Kawasan Puspiptek-Serpong, Tangerang Selatan 15314, Banten, Indonesia  
e-mail : aslina@batan.go.id  
(Naskah diterima 16-06-2015 disetujui 30-06-2015)

### Abstract

*Absolut burn-up determination of  $U_3Si_2$ -Al irradiated fuel plate with loading 2.96 gU/cm<sup>3</sup>. Absolute burn up measurement of  $U_3Si_2$ -Al irradiated fuel element with loading of 2.96 gU/cm<sup>3</sup> with RI-SIE 2 code has been done. The burn up calculation of  $U_3Si_2$ -Al irradiated fuel element is based on the content of <sup>137</sup>Cs, <sup>235</sup>U and <sup>239</sup>Pu isotopes which is obtained by radiochemical analysis after an appropriate separation. The purpose of the separation a monitoring of the fission product (<sup>137</sup>Cs isotope) and the heavy elements (uranium and plutonium) is to get the amount of <sup>235</sup>U isotope accurately. Separation and analysis of <sup>137</sup>Cs isotope had been done by cation exchange using zeolit Lampung and spectrometre-x. While the separation both of isotop <sup>235</sup>U and <sup>239</sup>Pu had been done by anion exchange column using Dowex 1 x 8 resin. The efluen of U in the column anion exchanger was eluted by using HNO<sub>3</sub> 8N and the efluent of Pu was eluted by HCl 0.1N + HF 0.036N. Both of isotopes were analyzed by using a spectrometre-γ. The analysis result showed that the content of <sup>137</sup>Cs isotope in  $U_3Si_2$ -Al irradiated fuel element was 0.000716 g/g sample, while the content of <sup>235</sup>U, <sup>239</sup>Pu and <sup>238</sup>Pu were 0.032824 g/g sample, 0.000011g/g sample and 0.000005 g/g sample respectively. The result of measurement <sup>235</sup>U isotope compared with initially content of isotop <sup>235</sup>U (fabrication data) for being used in the absolute burn up measurement. The result of absolute burn up calculation of  $U_3Si_2$ -Al irradiated fuel  $U_3Si_2$ -Al with loading of 2.96 gU/cm<sup>3</sup> with RI-SIE 2 code was 51.69 %.*

**Keyword** : Separation and analysis of isotopes (Cs, U, Pu), cation and anion exchange,  $U_3Si_2$ -Al irradiated fuel element, burn up..

## Abstrak

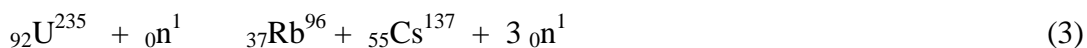
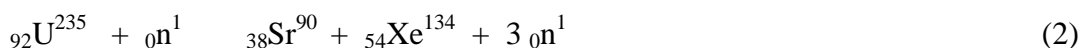
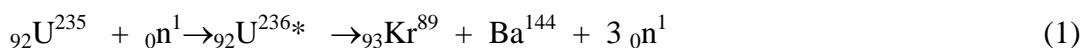
**Penentuan *burn up* mutlak pelat elemen bakar  $U_3Si_2$ -Al tingkat muat uranium 2,96 gU/cm<sup>3</sup> pasca iradiasi.** Telah dilakukan perhitungan *burn up* mutlak bahan bakar PEB  $U_3Si_2$ -Al tingkat muat uranium (TMU) 2,96 gU/cm<sup>3</sup> pasca iradiasi dengan kode RI-SIE 2. Perhitungan dilakukan melalui hasilpemisahan dan analisis isotop <sup>137</sup>Cs isotop, <sup>235</sup>U, dan Pu di dalam PEB  $U_3Si_2$ -Al pasca iradiasi secara radiokimia. Tujuan pemisahan isotop hasil fisi khususnya isotop <sup>137</sup>Cs dengan unsur *heavy element* (uranium dan plutonium) adalah untuk mendapatkan kandungan isotop <sup>235</sup>U sisa (tidak terbakar) secara akurat. Pemungutan isotop <sup>137</sup>Cs dilakukan dengan metode penukar kation menggunakan zeolit Lampung dan analisisnya menggunakan spektrometer- $\gamma$ , sedangkan pemungutan isotop <sup>235</sup>U dan <sup>239</sup>Pu dilakukan dengan metode kolom penukar anion menggunakan resin Dowex 1x8. Efluen U di dalam kolom dielusi menggunakan HNO<sub>3</sub> 8N dan efluen Pu dielusi dengan HCl 0,1N+HF 0,036N dan dianalisis menggunakan spektrometer-. Hasil analisis menunjukkan bahwa kandungan isotop <sup>137</sup>Cs di dalam PEB  $U_3Si_2$ -Al pasca iradiasi diperoleh sebesar 0,000716 g/g sampel, sedangkan kandungan isotop U dan Pu diperoleh masing-masing sebesar <sup>235</sup>U= 0,032824 g/g sampel, <sup>239</sup>Pu= 0,000011g/g sampel dan <sup>238</sup>Pu=0,000005 g/g sampel. Kandungan isotop <sup>235</sup>U hasil pengukuran selanjutnya dibandingkan dengan kandungan isotop <sup>235</sup>U mula-mula (data pabrikasi) untuk digunakan dalam perhitungan *burn up* mutlak. Hasil perhitungan *burn up* mutlak bahan bakar PEB  $U_3Si_2$ -Al TMU 2,96 gU/cm<sup>3</sup> pasca iradiasi dengan kode RI-SIE 2 diperoleh sebesar 51,69 %.

**Kata kunci :** Pemisahan dan analisis isotop (Cs, U, Pu), penukar kation dan anion, PEB  $U_3Si_2$ -Al pasca iradiasi, *burn up*.

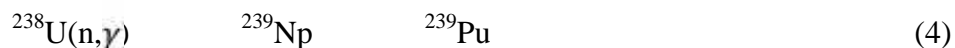
## 1. Pendahuluan

*Burn up* merupakan salah satu parameter *Post Irradiation Examination* (PIE) yang penting diketahui dalam mempelajari unjuk kerja bahan bakar selama dilakukan di dalam reaktor. Peningkatan distribusi temperatur di dalam bahan bakar rata-rata sebesar 120°C menjadi 170°C, dapat menyebabkan terjadinya *hot spot* pada posisi tertentu di dalam bahan bakar<sup>[1]</sup>. Peningkatan distribusi temperatur disebabkan oleh radiasi yang berkorelasi dengan lamanya bahan bakar di dalam reaktor dengan *burn up* tertentu, sehingga menyebabkan kandungan hasil fisi dan unsur bermassa berat (*heavy element*, HE) meningkat. Fenomena ini

biasa dikenal dengan reaksi fisi <sup>235</sup>U dengan neutron dan hal ini yang mendasari beroperasinya reaktor nuklir dengan *burn up* tertentu. *Burn up* merupakan prosentase atau fraksi atom fisil <sup>235</sup>U juga <sup>239</sup>PU yang terbakar (%) yang dihasilkan dari proses reaksi fisi <sup>235</sup>U dengan neutron, walaupun pada kenyataannya bahwa di dalam reaktor tidak hanya terjadi reaksi fisi dari <sup>235</sup>U saja, namun juga dari reaksi <sup>238</sup>U *fertile* yang dapat menghasilkan <sup>239</sup>Pu yang selanjutnya mengalami reaksi fisi. Hasil reaksi fisi utama dari <sup>235</sup>U dengan neutron adalah <sup>90</sup>Sr dan <sup>137</sup>Cs<sup>[2,3]</sup>



sedangkan melalui reaksi aktivasi  $^{238}\text{U}$  dengan menangkap neutron termal (energi neutron)



*Burn up* bahan bakar yang diizinkan oleh Badan Pengawas Tenaga Nuklir Nasional (BAPETEN) maupun *International Atomic Energy Agency* untuk pengoperasian RSG-GAS di Serpong adalah 56%. Setelah diiradiasi di reaktor dengan *burn up* tertentu bahan bakar tersebut dikirim ke *hotcell* IRM-PTBBN-BATAN untuk dilakukan pengujian PIE, antara lain adalah penentuan *burn up* mutlak. Analisis *burn up* mutlak dilakukan di dalam *hotcell* menggunakan metode merusak secara radiokimia dengan tujuan untuk membuktikan besarnya kandungan atom isotop  $^{235}\text{U}$  yang telah terbakar atau isotop  $^{235}\text{U}$  sisa serta kandungan atom isotop hasil fisi yang terbentuk telah mencapai *burn up* sebesar yang telah ditetapkan melalui perhitungan program *Origen Code* [4].

PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  TMU  $2,96 \text{ gU/cm}^3$  pasca iradiasi mengandung beberapa hasil fisi seperti isotop  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{144}\text{Ba}$ , dan  $^{90}\text{Sr}$  dan unsur bermassa berat (HE= *heavy element*) diantaranya adalah isotop U ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ ) dan Pu ( $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ). Isotop  $^{144}\text{Ba}$  adalah isotop hasil fisi yang masih dapat meluruh dan menghasilkan isotop lain sebagai hasil fisi yang lebih stabil yaitu  $^{90}\text{Sr}$  dan

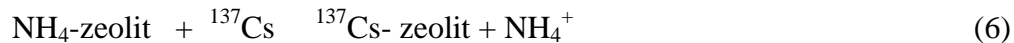
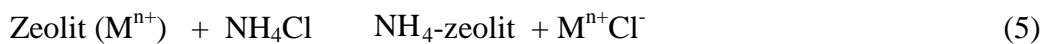
termal  $0,025 \text{ eV}$ ) akan mengalami reaksi fertile.

$^{137}\text{Cs}$  [5]. Hasil fisi yang digunakan dalam menghitung *burn-up* PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  pasca iradiasi TMU  $2,96 \text{ gU/cm}^3$  adalah jumlah isotop  $^{235}\text{U}$  yang terbakar menjadi beberapa hasil fisi (salah satunya adalah isotop  $^{137}\text{Cs}$ ) serta  $^{235}\text{U}$  sisa yang akan dibandingkan dengan jumlah  $^{235}\text{U}$  mula-mula. Di beberapa negara di dunia perhitungan *burn up* secara radiokimia dilakukan oleh para peneliti bahan bakar menggunakan beberapa isotop hasil fisi sebagai monitor *burn up*. Di Korea menggunakan isotop Nd, U dan Pu sebagai monitor *burn up*, di Chili menggunakan isotop  $^{95}\text{Zr}$  dan di India maupun Amerika menggunakan isotop Cs, U dan Pu sebagai monitor *burn up* [4,5,6]. BATAN-Indonesia akan menggunakan isotop Cs, U dan Pu (waktu paruh 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, serta isotop  $^{239}\text{Pu} = 2,41 \times 10^4$  tahun) untuk perhitungan *burn up* bahan bakar PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  pasca iradiasi. Hal ini sesuai dengan yang pernah dilakukan oleh peneliti sebelumnya yang didukung oleh ASTM [7,8].

Beberapa metode yang dapat digunakan untuk memungut isotop  $^{137}\text{Cs}$  dalam bahan bakar PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  pasca iradiasi antara lain adalah metode ekstraksi menggunakan TBP/OK dan metode pengendapan langsung sebagai  $\text{CsClO}_4$ . Namun pemungutan isotop  $^{137}\text{Cs}$  dengan kedua metode tersebut belum menunjukkan hasil yang baik karena isotop  $^{137}\text{Cs}$  yang dapat diambil masih rendah yaitu masing-masing sebesar  $28,03 \pm 5,33\%$  dan  $83,87 \pm 1,11\%$ <sup>[9]</sup>, sedangkan dengan metode penukar kation menggunakan zeolit diperoleh isotop  $^{137}\text{Cs}$  sebesar  $97,55 \pm 0,1\%$ <sup>[10]</sup>, sehingga pada penelitian ini untuk memisahkan isotop  $^{137}\text{Cs}$  dari isotop lainnya maupun dengan

unsur berat U, Pu digunakan metode penukar kation dengan penambahan zeolit Lampung<sup>[11,12]</sup>. Isotop  $^{137}\text{Cs}$  berada dalam fasa padat dan isotop U maupun Pu berada dalam fasa cair (supernatan), selanjutnya isotop  $^{235}\text{U}$  dipisahkan dengan isotop  $^{239}\text{Pu}$  dengan metode kolom penukar anion menggunakan resin DOWEX 1x8 mengikuti ASTM C 1001<sup>[13,14]</sup>.

Fenomena yang terjadi dalam proses reaksi pertukaran kation untuk memisahkan isotop  $^{137}\text{Cs}$  dalam larutan bahan bakar PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  pasca iradiasi menggunakan zeolit Lampung terjadi mengikuti persamaan reaksi kimia sbb:



keterangan: M = logam alkali dan alkali tanah (kation dari zeolit alam)  
n = elektron valensi logam.

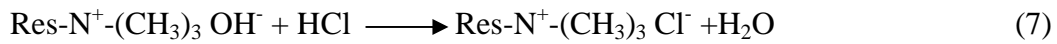
Dari literatur diketahui jari-jari ion Na = 358 pm,  $\text{NH}_4 = 331$  pm, Cs = 329 pm dan Sr = 412 pm, sehingga  $\text{Cs}^+$  lebih mudah bertukar dengan  $\text{NH}_4^+$ , bila dibandingkan dengan pertukaran Cs atau Sr dengan Na di dalam kerangka zeolit<sup>[2,12]</sup>.

Fenomena pemungutan isotop  $^{235}\text{U}$  maupun  $^{239}\text{Pu}$  dengan metode kolom pertukaran anion terjadi berdasarkan perbedaan kekuatan interaksi ion terlarut dengan bahan padat. Bila senyawa terlarut berinteraksi lemah dengan

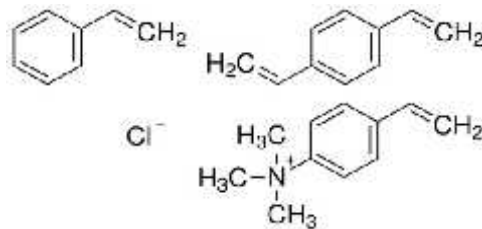
adanya ion fase larutan, ion terlarut akan keluar lebih awal dari kolom, sedangkan senyawa terlarut yang berinteraksi kuat dengan fase padat berarti lebih kuat terikat di dalam resin dan menyebabkan keluar belakangan dari kolom<sup>[13]</sup>. Resin mengandung gugus fungsional yang sudah diionisasi dan melekat pada suatu kerangka polimer hidrokarbon (*base particle*) yang sukar larut. Gugus fungsional mengandung ion yang dapat dipertukarkan dengan ion lain yang terdapat

dalam larutan. Resin penukar anion memiliki gugus amine yang berisi khlorida ( $\text{Cl}^-$ ) atau hidroksil ( $\text{OH}^-$ )<sup>[14]</sup>. Bentuk resin tipe ini bila

direndam dengan HCl akan membentuk resin anion khlorida dengan reaksi sebagai berikut:



Struktur resin atau  $\text{Res-N}^+$  sebagai penukar anion  $\text{Cl}^-$  ditunjukkan pada Gambar 1.



Gambar.1. Struktur molekul resin penukar anion  $\text{Cl}^-$ <sup>[14]</sup>

Pemungutan uranium menggunakan resin penukar anion basa kuat khlorida terlebih dahulu diubah menjadi anion uranium kompleks, uranium dalam bentuk kation ( $\text{UO}_2$ )<sup>2+</sup> dan plutonium dalam kompleks Pu nitrat resin  $[\text{Pu}^{4+}(\text{NO}_3)_6]^{2-}$ . Senyawa kompleks uranium - HCl yang terbentuk sangat bervariasi dan sangat tergantung pada

konsentrasi HCl<sup>[14]</sup>. Namun untuk pemungutan isotop U di dalam bahan bakar  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  pasca iradiasi, isotop U dibuat dalam senyawa kompleks bervalensi IV karena lebih stabil. Beberapa senyawa kompleks U bervalensi IV atau U(IV) pada berbagai konsentrasi HCl ditunjukkan pada Tabel 1

Tabel.1. Senyawa kompleks U (IV) pada berbagai konsentrasi HCl<sup>[14]</sup>

Molalitas HCl (M)	0,5- 2	2-6	6 - 9	9 - 12
Senyawa kompleks U (IV) - HCl	$\text{U}^{4+}$	$\text{UCl}^{3+}$	$\text{UCl}_2^{2+}$	$\text{UCl}_6^{2-}$

Tabel 1 menunjukkan bahwa konsentrasi (HCl) pada 9-12 M menghasilkan senyawa kompleks anion  $\text{UCl}_6^{2-}$ , yang memiliki muatan massa besar sehingga dapat bertukar dengan ion  $\text{Cl}^-$  yang massanya lebih rendah. Hal ini didukung oleh beberapa pustaka<sup>[13,14]</sup> yang menyatakan adsorpsi resin penukar anion basa

kuat paling besar terjadi pada konsentrasi  $[\text{HCl}]$  9 -12 M dengan senyawa kompleks terikat kuat,  $\text{UCl}_6^{2-}$ . Fenomena ini didukung oleh angka banding koefisien distribusi (Kd) U(IV) dan juga ion adsorpsi resin penukar anion terhadap ion yang ditukarkan secara

kuantitatif untuk U(IV) terjadi pada konsentrasi [HCl] 9-12 M. Nilai Kd untuk U dan beberapa logam aktinida pada resin penukar anion basa kuat – Cl ditunjukkan pada Tabel 2. Dari

Tabel 2 diketahui bahwa Kd dari U(IV) berbeda cukup signifikan dengan U(VI) sehingga keduanya dapat dipisahkan dengan metode penukar anion Cl.

Tabel 2. Kd U dan aktinida pada resin penukar anion basa kuat –Cl<sup>[13,14]</sup>

**Distributin Coefficients of Actinides and Metal Ions on Strong Base Anion Exchange Resins in Pure Aqueous HCL Solution**

Metal Ion	Molarity of HCL						
	1	2	4	6	8	10	12
Np (III)	←			No adsorption	→		
	~ 1	~ 1	~ 2	~ 40	300	~ 500	-
Np (IV)	<1	<1	<1	~ 20	~ 700	>10 <sup>3</sup>	>10 <sup>3</sup>
	<1	<1	<1	~ 10	~ 700	~ 2x10 <sup>3</sup>	~ 8x10 <sup>3</sup>
Pu (III)	←			No adsorption	→		
Pu (IV)	<1	<1	<1	~ 30	>10 <sup>3</sup>		
Pu (VI)	Strongly adsorbed from HCL > 6M						
Trivalent trans-Pu elements	Slight Adsorption						

Metal Ion	Molarity of HCL						
	1	2	4	6	8	10	12
Ac (III)	←			No adsorption	→		
Th (IV)	←			No adsorption	→		
Pa (IV)	←			No adsorption	→		
Pa(V)	~ 20	~ 20	~ 100	2x10 <sup>3</sup>	~ 2x10 <sup>4</sup>	10 <sup>5</sup>	-
	<1	<1	<1	~ 100	~ 500	~ 10 <sup>3</sup>	~ 10 <sup>3</sup>
U(VI)	~ 1	~ 10	~ 100	~ 500	~ 10 <sup>3</sup>	~ 10 <sup>3</sup>	~ 10 <sup>3</sup>
	~ 2	~ 10	~ 180	~ 800	~ 10 <sup>3</sup>	~ 10 <sup>3</sup>	~ 800
	~ 2	~ 50	~ 200	~ 600	~ 800	~ 600	~ 300
U (IV)	<1	<1	<1	~ 1	~ 50	>10 <sup>2</sup>	>10 <sup>2</sup>
U (III)	←			No adsorption	→		

Aktivitas isotop <sup>137</sup>Cs hasil pemisahan dengan metode penukar kation dan isotop <sup>235</sup>U danPu (<sup>239</sup>Pu, <sup>239</sup>Pu) dengan kolom penukar anion selanjutnya diukur menggunakan

spektrometri- maupun spektrometri- . Hasil pengukuran isotop <sup>137</sup>Cs , <sup>235</sup>U danPu (<sup>239</sup>Pu, <sup>239</sup>Pu) kemudian diestimasi menjadi besaran *burn up* menggunakan rumus<sup>[6]</sup>:

$$BU = \frac{U_o - U_i}{U_o} \times 100\%$$

dengan:

BU : *Burn up*

$U_o$ : Jumlah atom  $^{235}\text{U}$  awal

$U_i$  : Jumlah atom  $^{235}\text{U}$  yang tersisa atau

$U_i$ ; Jumlah atom  $^{235}\text{U}$  awal – jumlah atom  $^{235}\text{U}$  yang terbakar menjadi  $^{137}\text{Cs}$  dan  $^{239}\text{Pu}$

## 2. Metodologi

### 2.1. Bahan

- Standar isotop  $^{137}\text{Cs}$  dari SRM 4233E
- Stándar  $\text{U}_3\text{O}_8$  20% ( $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ )
- PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  TMU 2,96 gU/cm<sup>3</sup> kode RI SIE 2 pelat ke 20 dimensi 3x3x1,37 mm<sup>3</sup>
- Zeolit Lampung, Resin DOWEX 1x8-NO<sub>3</sub> dan resin DOWEX 1x8- Cl
- Bahan eluen yang digunakan HNO<sub>3</sub> 8N ; HCl 0,1N dan HF 0,036 N untuk isotop Pu dan HCl 6N ; HCl 0,1 N untuk isotop U.
- ABM : air bebas mineral danuffer NH<sub>4</sub>HSO<sub>4</sub>

### 2.2. Peralatan

- Timbangan analitis, Pemanas (*Hot Plate*)
- *Shaker*, peraltan gelas, sipet, efendrop, vial-botol
- Peralatan Elektrodiposisi, Kolom

penukar anion

- Spektrometer- $\gamma$  dengan detektor type HPGe
- Spektrometer – dengan detektor type PIPS

## 2.3. Cara Kerja

### 2.3.1. *Recovery isotop $^{137}\text{Cs}$ dan $^{235}\text{U}$*

Penentuan *recovery* isotop  $^{137}\text{Cs}$  dilakukan terhadap standar dari SRM 4233E (*Standars References Material*) sebanyak 50  $\mu\text{L}$  menggunakan metode penukar kation dengan menambahkan 700 mg zeolit Lampung<sup>[1]</sup>. Hasil proses penukar kation menunjukkan terjadinya pemisahan antara paduan  $^{137}\text{Cs}$ -zeolit sebagai fasa padat dengan unsur pengotor dalam fasa cair atau supernatan. Paduan  $^{137}\text{Cs}$ -zeolit kemudian diukur aktivitasnya menggunakan spektrometer- $\gamma$ , sehingga diperoleh kandungan isotop  $^{137}\text{Cs}$  di dalam 50  $\mu\text{L}$  isotop standar. Nilai *recovery* merupakan perbandingan kandungan isotop standar  $^{137}\text{Cs}$  dari sertifikat dengan kandungan isotop isotop  $^{137}\text{Cs}$  dari pengukuran<sup>[15]</sup>. Sementara itu, penentuan *recovery* isotop  $^{235}\text{U}$  dilakukan terhadap standar  $\text{U}_3\text{O}_8$  20% yang mengandung isotop ( $^{235}\text{U}=19,11\%$ ,  $^{234}\text{U}=0,123\%$ ,

$^{238}\text{U}=79,85\%$  dan  $^{236}\text{U}=0,210\%$ ). Sampel  $\text{U}_3\text{O}_8$  20% dipipet sebanyak 500  $\mu\text{L}$  kemudian dilakukan pemisahan dengan metode kolom penukar anion dengan menambahkan resin Dowex 1x8- $\text{NO}_3$  seberat 2 gram. Efluen U yang keluar dari kolom, kemudian dikenakan proses elektrodeposisi<sup>[20]</sup>. Kandungan isotop  $^{235}\text{U}$  selanjutnya dianalisis menggunakan spektrometer- $\alpha$ . Hasil optimasi *recovery* ini digunakan untuk perhitungan pemungutan isotop  $^{137}\text{Cs}$  maupun isotop  $^{235}\text{U}$  dalam  $\text{PEBU}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  pasca iradiasi TMU 2,96  $\text{gU/cm}^3$  di *hotcell* IRM.

### 2.3.2. Pemungutan isotop $^{137}\text{Cs}$ dari hasil fisi lainnya menggunakan zeolit Lampung

Larutan PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  pasca iradiasi dipipet sebanyak 150  $\mu\text{L}$  atau 0,154 g larutan kemudian ditambahkan zeolit Lampung sebesar 700 mg. Metode penambahan zeolit Lampung dilakukan secara triplo (PIr-Z1, PIr-Z2 dan PIr-Z3). Proses pertukaran kation dilakukan dengan cara pengocokan menggunakan *shaker* dengan kecepatan 1000 rpm selama 1 jam, sehingga terpisah antara  $^{137}\text{Cs}$ -zeolit (sebagai fasa padat) dengan isotop U dan Pu sebagai supernatan (fasa cair). Padatan  $^{137}\text{Cs}$ -zeolit yang sudah kering ditimbang dan selanjutnya diukur aktivitasnya menggunakan spektrometer- $\gamma$  pada energi 661 keV dengan waktu cacah 1500 detik dan jarak detektor dengan sampel 16 cm<sup>[15]</sup>.

### 2.3.3. Pemungutan isotop U di dalam supernatan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ dengan metode kolom penukar anion menggunakan resin DOWEX 1x8.

Pemungutan isotop U dan Pu yang terdapat di dalam supernatan PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  pasca iradiasi menggunakan metode kolom penukar anion dengan resin DOWEX 1x8- $\text{NO}_3$ . Isotop Pu terikat dengan resin, sedangkan isotop U keluar dari kolom sebagai efluen. Isotop Pu yang terikat di resin dielusi menggunakan HCl 0,036N encer dan HF 0,1 N sehingga keluar dari kolom sebagai efluen Pu<sup>[12]</sup>. Efluent U dan Pu dikenakan proses elektrodeposisi<sup>[16]</sup>, kemudian diukur aktivitasnya menggunakan spektrometer- dengan waktu cacah 20000 detik. Hasil pengukuran menggunakan spektrometer diperoleh berupa cacahan per detik (cps) yang selanjutnya diestimasi menjadi besaran berat isotop Pu maupun U.

### 2.3.4. Perhitungan *Burn up* mutlak PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ TMU 2,96 $\text{gU/cm}^3$ pasca iradiasi.

Kandungan isotop-isotop di dalam 150  $\mu\text{L}$  larutan bahan bakar PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  kemudian dikonversikan terhadap bahan bakar PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  dengan dimensi 3x3x1,37mm atau di dalam 25 mL, sehingga diperoleh berat (jumlah) isotop  $^{137}\text{Cs}$  maupun U dalam berat tertentu di dalam sampel bahan bakar nuklir<sup>[6,17]</sup>. Dalam perhitungan *burn up* bahan bakar yang harus diketahui adalah kandungan



isotop  $^{235}\text{U}$  mula-mula (Uo),  $^{235}\text{U}$  sisa atau isotop  $^{235}\text{U}$  yang terbakar (U) menjadi isotop  $^{137}\text{Cs}$  atau  $^{239}\text{Pu}$  secara kuantitatif. Kandungan isotop ini, selanjutnya digunakan untuk perhitungan *burn up* dengan rumusan di atas.

### 3. Hasil Dan Pembahasan

#### 3.1. Recovery isotop $^{137}\text{Cs}$ dari SRM 4233E dan isotop $^{235}\text{U}$ dalam standar $\text{U}_3\text{O}_8$ 20%

*Recovery* isotop  $^{137}\text{Cs}$  menggunakan metode penukar kation dan *recovery* isotop  $^{235}\text{U}$

menggunakan kolom penukar anion diperoleh sebesar 97,55 % untuk isotop  $^{137}\text{Cs}$  dan 78,74% isotop  $^{235}\text{U}$  [17].

#### 3.2. Pemungutan $^{137}\text{Cs}$ dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi

Hasil pemungutan isotop  $^{137}\text{Cs}$  di dalam PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  pasca iradiasi menggunakan metode penukar kation diperoleh padatan  $^{137}\text{Cs}$ -zeolit (PIr-Z1,PIr-Z2 dan PIr-Z3).

Tabel 3. Kandungan isotop  $^{137}\text{Cs}$  dalam larutan 150  $\mu\text{L}$  dan 25 mL PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  pasca iradiasi dengan *recovery* 97,545 %

Kode Sampel	Berat padatan $^{137}\text{Cs}$ -zeolit (mg)	Isotop $^{137}\text{Cs}$ dalam larutan 150 $\mu\text{L}$ ( $\mu\text{g/g}$ lar)	Isotop $^{137}\text{Cs}$ dalam larutan 25mL ( $\mu\text{g/g}$ PEB)	Isotop $^{137}\text{Cs}$ Rerata ( $\mu\text{g/g}$ PEB)
Padatan PIr-Z1	693,8	0,0142	0,000709	0,000716
Padatan PIr-Z2	699,2	0,0142	0,000725	
Padatan PIr-Z3	699.6	0,0143	0,000715	

Pengukuran dilakukan dengan waktu cacah 1500 detik dan jarak detektor dengan sampel 16 cm. Hasil analisis kandungan isotop  $^{137}\text{Cs}$  di dalam 150  $\mu\text{L}$  PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  pasca iradiasi seperti yang ditunjukkan pada Tabel 3. Hasil analisis ini, dibandingkan juga dengan hasil perhitungan kandungan isotop  $^{137}\text{Cs}$  secara teoritis. Perhitungan teoritis di dalam PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  didasarkan kepada kandungan U total di dalam dimensi  $3 \times 3 \times 1,37 \text{ mm}^3$  dari hasil analisis kimia menggunakan

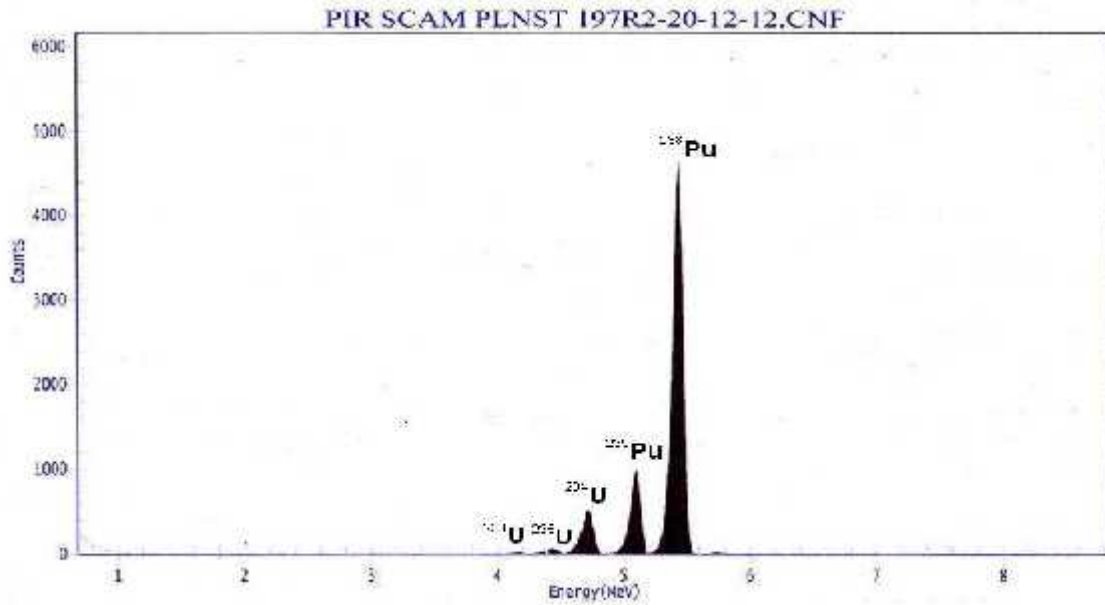
titroprocessor diperoleh kandungan U total sebesar 0,01154 g seperti perhitungan yang dilakukan pada penelitian sebelumnya [12].

#### 3.3. Pemungutan isotop U dan Pu di dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi

Hasil analisis isotop U dan Pu di dalam supernatan PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  TMU 2,96  $\text{gU/cm}^3$  pasca iradiasi sebelum diberi resin DOWEX 1x8 ditunjukkan pada Gambar 2. Hasil pengukuran menggunakan spektrometer- $\alpha$

dengan waktu cacah 20000 detik diperoleh 4 (empat) spectrum isotop-U yaitu  $^{238}\text{U}$  (E=4,194MeV),  $^{235}\text{U}$  (E=4,397MeV), isotop  $^{236}\text{U}$  (E=4,494 MeV) dan isotop  $^{234}\text{U}$  (E=4,777 MeV). Dengan menghitung cacahan masing-masing luas spektrum diperoleh kandungan

masing-masing isotop-U ( $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$  dan  $^{238}\text{U}$ ) di dalam 200  $\mu\text{L}$  sampel supernatan PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ . Selain isotop U diperoleh juga 2 (dua) spektrum isotop Pu yaitu  $^{239}\text{Pu}$  (E=5,155MeV),  $^{238}\text{Pu}$  (E=5,486MeV) seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2 .



Gambar 2. Spektrum isotop-U ( $^{234}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$  dan  $^{238}\text{U}$ ) dan isotop Pu ( $^{239}\text{Pu}$  dan  $^{238}\text{Pu}$ ) sebelum resin<sup>[1,11]</sup>

Dari hasil evaluasi dari spektrum tersebut  $^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  dan  $^{238}\text{Pu}$  seperti yang ditunjukkan diperoleh kandungan isotop  $^{235}\text{U}$ ,  $^{236}\text{U}$ , pada Tabel 4.

Tabel 4. Hasil analisis isotop U dan Pu dalam 200  $\mu\text{L}$  supernatan sebelum diberi resin

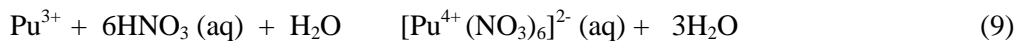
Isotop	Energi (MeV)	Net Area (cacah)	cps	Yield (Tabel)	Aliquot Pengukuran ( $\mu\text{g}$ )
$^{238}\text{U}$	4,194	55	0,004	0,77	1,2264
$^{235}\text{U}$	4,397	60	0,004	0,57	0,2795
$^{236}\text{U}$	4,494	153	0,010	0,74	0,0184
$^{234}\text{U}$	4,777	6867	0,458	0,72	0,0088
$^{239}\text{Pu}$	5,155	465541	31,036	0,73	0,0588
$^{238}\text{Pu}$	5,499	1041092	69,406	0,71	0,0005

Untuk mendapatkan kandungan isotop U dan Pu secara akurat maka perlu dilakukan pemisahan menggunakan metode kolom penukar anion. dengan penambahan resin DOWEX 1x8-NO<sub>3</sub> yang selektif terhadap isotop Pu dan DOWEX 1x8-Cl selektif terhadap isotop U yang didasarkan kepada prosedur ASTM C1411-01 dan ASTM C1415-01.

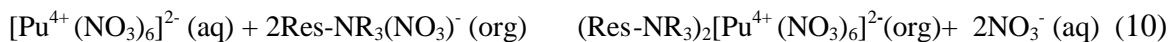
Pemisahan isotop U dari isotop Pu dilakukan dengan memipet supernatan PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>-Al pasca iradiasi sebanyak 200 µl atau 0,2497 g larutan sebagai umpan. Umpan ini kemudian di masukkan ke dalam kolom penukar anion yang telah berisi resin Dowex 1x8-NO<sub>3</sub>

sebanyak 1,2 g dan selanjutnya di elusi menggunakan larutan HNO<sub>3</sub> 8N. Dalam proses pemungutan ini diharapkan isotop Pu terikat dengan resin Dowex 1x8-NO<sub>3</sub> di dalam kolom, sehingga yang keluar dari kolom adalah efluen U. Isotop Pu yang terikat dengan resin di dalam kolom selanjutnya dielusi dengan larutan HCl 0,1N dan HF 0,036N sehingga isotop Pu keluar dari kolom. Adapun langkah-langkah terjadinya proses pemungutan isotop Pu di dalam kolom penukar anion terjadi seperti reaksi kimia berikut ini:

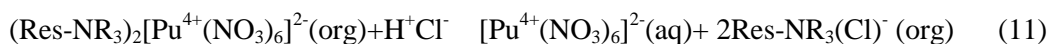
Pembentukan ion Pu terjadi dalam bentuk kompleks nitrat melalui reaksi redoks (8) dan (9):



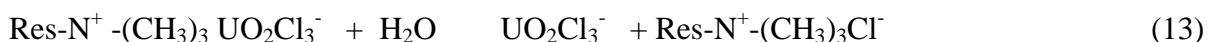
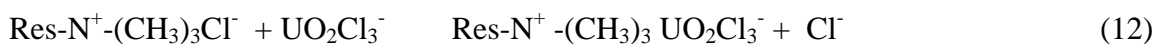
Selanjutnya terjadi reaksi pertukaran anion dengan resin (10) menjadi kompleks Pu nitrat resin:



Proses elusi resin kompleks Pu-nitrat resin dilakukan dengan menggunakan eluen HCl sehingga ion Pu lepas dari resin seperti pada reaksi (11):

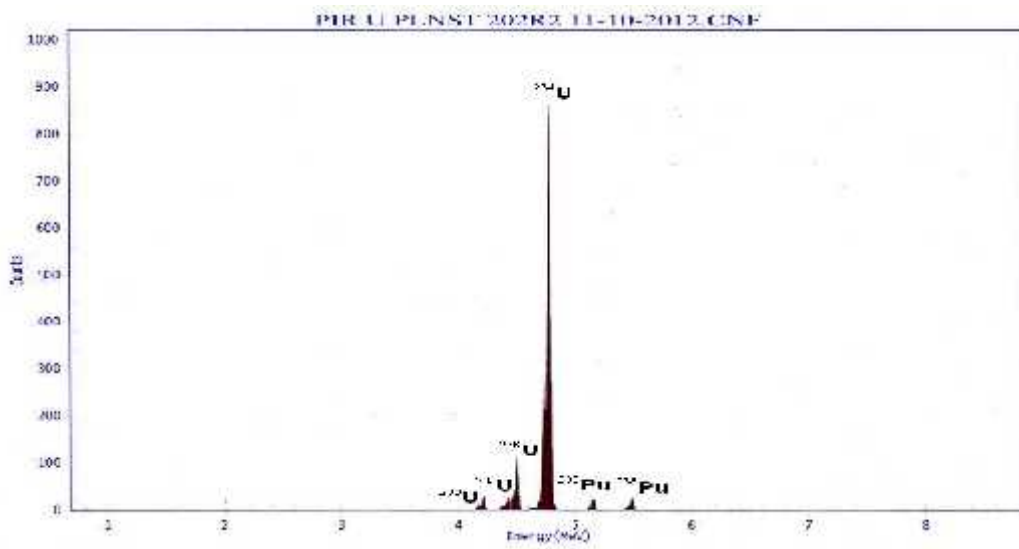


Efluen U selanjutnya dimasukkan kembali ke dalam kolom yang telah diberi resin Dowex 1x8-Cl dan dielusi menggunakan H<sub>2</sub>O hangat 50°C. Reaksi pemungutan isotop U dalam proses kolom penukar anion terjadi seperti reaksi kimia (12) dan (13).



Efluen Pu dalam bentuk Pu<sup>4+</sup>(NO<sub>3</sub>)<sub>6</sub><sup>2-</sup>(aq) dan efluen U dalam bentuk UO<sub>2</sub>Cl<sub>3</sub><sup>-</sup>, selanjutnya dikenakan proses elektrodeposisi untuk diukur kandungan isotop Pu dan U-nya menggunakan spektrometer-α. Hasil pengukuran efluen U

diperoleh isotop U (<sup>234</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>236</sup>U dan <sup>238</sup>U) dengan larutan HNO<sub>3</sub> 8N sebagai bahan elusi (pencuci) ditunjukkan pada Gambar 3 dan Tabel 5.



Gambar 3. Spektrum efluen isotop-U dan Pu setelah diberi resin

Fenomena ini menunjukkan bahwa isotop Pu  $^{235}\text{U}$  di dalam 200  $\mu\text{l}$  atau 0,2497 g supernatan telah terikat dengan resin Dowex 1x8- $\text{NO}_3$  di dalam kolom, sehingga efluen U yang keluar dari kolom mempunyai kandungan isotop U yang lebih besar bila dibandingkan dengan kandungan isotop  $^{239}\text{Pu}$ . Kandungan isotop  $^{235}\text{U}$  diperoleh sebesar 0,180336  $\mu\text{g}$  dan kandungan isotop  $^{239}\text{Pu}$  relative lebih kecil yaitu sebesar  $3,0 \times 10^{-6} \mu\text{g}$  seperti yang ditunjukkan pada Tabel 5.

Tabel 5. Hasil analisis isotop U dalam 200  $\mu\text{L}$  supernatan setelah diberi resin

Isotop	Energi (MeV)	Net Area	cps	Yield (Tabel)	Aliquot pengukuran ( $\mu\text{g}$ )
$^{235}\text{U}$	4,397	66	0,0033	0,57	0,180336
$^{236}\text{U}$	4,494	121	0,0061	0,74	0,008530
$^{234}\text{U}$	4,777	926	0,0463	0,72	0,000694
$^{239}\text{Pu}$	5,155	45	0,0023	0,73	0,000003
$^{238}\text{Pu}$	5,499	2131	0,1066	0,71	0,000001

Isotop Pu yang telah terikat dengan resin Dowex 1x8-NO<sub>3</sub> di dalam kolom, dikeluarkan dengan proses elusi menggunakan larutan HCl 0,1 N dan 0,036HF, sehingga diperoleh efluen Pu. Efluen Pu yang keluar dari kolom

kemudian dikenakan proses elektrodeposisi dan diukur aktivitas isotop Pu menggunakan spektrometer- . Hasil analisis efluen Pu dengan spektrometer- ditunjukkan pada Tabel 6.

Tabel 6. Hasil analisis efluen isotop Pu di eluesi menggunakan HCl 0,1N dan HF 0,036 N

Isotop	Energi (MeV)	Net Area	cps	Yield (Tabel)	Aliquot Pengukuran (µg)
<sup>235</sup> U	4,397	24	0,0012	0,57	0,0656765
<sup>236</sup> U	4,494	110	0,0055	0,74	0,0000809
<sup>234</sup> U	4,777	829	0,0415	0,72	0,0006217
<sup>239</sup> Pu	5,155	1063	0,0532	0,73	0,0000787
<sup>238</sup> Pu	5,499	136471	6,8236	0,71	0,0000377

Tabel 6 menunjukkan bahwa hasil pemungutan isotop Pu dari efluen isotop U menggunakan metode kolom penukar ion dengan HCl 1N dan HF 0,036 N sebagai bahan elusi menunjukkan hasil yang baik, karena kandungan isotop Pu yang diperoleh lebih besar dibandingkan dengan kandungan isotop Pu pada Tabel 5, walaupun masih mengandung isotop U. Hal ini menunjukkan bahwa isotop Pu belum terikat secara sempurna oleh resin Dowex 1x8-NO<sub>3</sub> di dalam

kolom, sehingga pada saat di elusi, isotop U masih keluar bersama sama dengan isotop Pu dari dalam kolom sebagai efluen. Hasil yang diharapkan adalah diperolehnya kandungan isotop Pu yang lebih besar dari kandungan isotop U. Kandungan isotop U dan Pu yang diperoleh pada Tabel 5 dan 6 dijumlahkan, sehingga diperoleh kandungan isotop U dan Pu di dalam 0,036 g atau dimensi 3x3x1,37mm<sup>3</sup> PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>-Al seperti yang ditunjukkan pada Tabel 7.

Tabel 7. Kandungan isotop U dan Pu di dalam PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>-Al dengan *recovery* 78,74 %

Isotop	Elusi I (HNO <sub>3</sub> 8N) (µg)	Elusi II (HCl 0,1 N+ HF 0,036N) (µg)	Kandungan dalam 200 µL atau 0,2497 g larutan (g/g larutan)	Kandungan. dalam 3x3x1,37 mm PEB U <sub>3</sub> Si <sub>2</sub> -Al (g/g sampel)
<sup>235</sup> U	0,1803360	0,0655765	0,3123095	0,032824
<sup>239</sup> Pu	0,0000033	0,0000787	0,0001041	0,000011
<sup>238</sup> Pu	0,0000006	0,0000377	0,0000476	0,000005

### 3.4. Perhitungan *Burn up* mutlak PEB $U_3Si_2-Al$ TMU 2,96 gU/cm<sup>3</sup> pasca iradiasi

Dalam melakukan perhitungan *burn up*, data isotop yang harus diketahui adalah isotop <sup>235</sup>U mula-mula dan <sup>235</sup>U sisa, sehingga diperoleh fraksi isotop <sup>235</sup>U yang terbakar. Perhitungan

*burn up* mutlak ini didasarkan hanya kepada kandungan isotop <sup>235</sup>U sisa yang terkandung di dalam PEB  $U_3Si_2-Al$  TMU 2,98 gU/cm<sup>3</sup> pasca iradiasi. Hasil perhitungan *burn up* mutlak secara radiokimia (cara merusak) PEB  $U_3Si_2-Al$  TMU 2,96 gU/cm<sup>3</sup> pasca iradiasi yang ditunjukkan pada Tabel 8.

Tabel 8. Perhitungan *burn up* mutlak untuk PEB  $U_3Si_2-Al$  TMU 2,96 gU/cm<sup>3</sup>

Isotop	Kandungan isotop (g/g sampel)	Kandungan isotop (atom)
<sup>235</sup> U awal = (U <sub>0</sub> )	0,06350	1,6275E+20
<sup>235</sup> U sisa	0,032824	8,4127E+19
<i>Burn up</i> mutlak(fraksi bakar)	<b>51,69 %</b>	

Dari Tabel 8 terlihat bahwa nilai *burn up* mutlak yang diperoleh sebesar 51,69%. Hasil perhitungan *burn up* ini mengabaikan faktor-faktor yang berpengaruh antara lain faktor pada saat fabrikasi, pada saat diiradiasi di reaktor maupun faktor waktu tinggal di *hotcell* IRM selama ± 18 tahun. Namun nilai ini tidak jauh berbeda dengan *burn up* yang diperoleh dari hasil perhitungan menggunakan program Origen Code (cara tidak merusak) oleh PRSG yaitu sebesar 50,6%.

### 4. Kesimpulan

*Burn up* mutlak PEB  $U_3Si_2-Al$  TMU 2,96 gU/cm<sup>3</sup> pasca iradiasi dengan kode fabrikasi RI SIE-02 yang dilakukan secara radiokimia diperoleh sebesar 51,69%. Data *burn up* mutlak yang diperoleh sebagai umpan balik kepada RSG-GAS untuk persyaratan dalam

perizinan bila ingin meningkatkan *burn up* pengoperasian reaktor kepada BAPETEN serta untuk meningkatkan waktu tinggal bahan bakar di dalam teras reaktor.

### 5. Ucapan Terimakasih

Penulis menyampaikan terimakasih kepada seluruh staf BUR PTBBN yang telah membantu pelaksanaan penelitian sehingga dapat berjalan dengan baik.

### 6. Daftar Pustaka

1. I. P. Hastuti, T. M. Sembiring, Suparjo, Suwardi, (2010). LAK Insersi Elemen Bakar Uji Silisida 3 pelat Tingkat Muat 4,8 dan 5,8 gU/cm<sup>3</sup> di Teras RSG-GAS, PRSG-BATAN
2. S.Amini, (2009), Isolasi Isotop Cs Dari Pasca-Iradiansi Elemen Bakar Nuklir Untuk Penggunaan Sumber- $\gamma$  di Industri,

- Program *Block Grant* tahun 2009, DIKTI-BATAN.
3. A.Nugroho, Boybul, A.Br.Ginting, (2014), Pemungutan Isotop Hasil Fisi  $^{137}\text{Cs}$  Dan Unsur Bermassa Berat Dari Bahan Bakar  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  Pasca Iradiasi, Jurnal Teknologi Bahan Nuklir, Vol. 10, No.1,
  4. Anonim, (2013), Laporan Analisis Keselamatan, Pusat Reaktor Serba Guna-BATAN.
  5. C. Pereda, C. Henriquez, J. Medel, J. Klein, G. Navaro,(2002), "Zr-95 Fuel Burn up Measurement using Gamma Spectrometry Technique", Commission Chilena de Energia, Santiago de Chile, Chile, Universidad Diego Portales, Escuela de Ingenieria, Santiago de Chile, Chile.
  6. N.Sivaraman, S.Subramaniam, T.G.Srinivasan, P.R.PasudevaRao, (2001), Burn up Measurment on Nuclear Spent Fuel using Performance Liquid Chromatography, Fuel Chemistry Division, Chemical Group, Indira Gandhi Center for Atomic Research Kalpakkam-India.
  7. American Standar Test Methods,.(1992).Standar Practice for The Ion Exchange Separation of Uranium and Plutonium Prior to Isotopic Analysis: ASTM No C-1411-01.Vol. 12.01.
  8. American Standar Test Methods,. (1992), Standar Test Methods for  $^{238}\text{Pu}$  Isotopic Abundance By Alpha Spectrometry, ASTM No C- 1415-01. Vol. 12.1.
  9. B.S.Matteson,. (2010),The Chemistry of Acetohydroxame Acid Related to Nuclear Fuel Reprocessing, In Partial Fulfilment of The Requirement for The Degree of Doctor of Philosophy, Oregon State University.
  10. A. Br. Ginting, D.Anggraini, Boybul, A.Nugroho, R.Kriswarini, (2014), Bunga Rampai, Proseding Hasil penelitian Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir, Pusat Teknologi Bahan bakar Nuklir-BATAN, ISBN:978-602-71975-0-3.
  11. A.Br.Ginting, Y. Nampira, A.Nugroho, D.Anggraini, Rosika, Boybul, (2012), Pemisahan dan Analisis Radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  di Dalam PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  Tingkat Muat Uranium  $2,96 \text{ gU/cm}^3$  Pasca Iradiasi",Jurnal Teknologi Bahan Nuklir. Vol.8 No.1,
  12. A.Br.Ginting, (2011), Pengaruh Penambahan Zeolit Terhadap Pemisahan Isotop  $^{137}\text{Cs}$  dalam Pelat Elemen Bakar  $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$  Pasca Iradiasi, Jurnal Teknologi Bahan Bakar Nuklir- PTBN-BATAN, Vol.7, No.2,.

13. R.Sudewo,(2014), Analytical Chemistry of Uranium and Plutonium, Radiochemistry Webinars
14. K.Sawada, Y.Enokida, M.Kamiya, T.Koyama, And K.Aoki, (2009), Distribution Coefficients of U(VI), Nitric Acid and FP Elements in Extraction from Concentrated Aqueous Solutions of Nitrates by 30% Tri-n-butylphosphate Solution, Journal of Nuclear Science and Technology, Vol.46, No.1,.
15. A.H.Orabi,. (2013). Determination of Uranium After Separation Using Solvent Extraction from Slightly Nitric Acid Solution and Spectrophotometric Detection, Journal of Radiation Research and Applied Sciences, Volume 6, Issue 2.
16. M.Ho Lee, C.JuKim, B.HyunBoo, (2000), Electrodeposition of alpha-emitting nuclides from Ammonium Oxalate-Ammonium Sulfate Electrolyte, Bull. Korean Chem.Soc. Vol 21 No.2.
17. A.Br.Ginting, (2011), Analisis Isotop Transurium dalam Bahan Bakar  $U_3Si_2$ -Al Pasca Iradiasi Menggunakan Spektrometer Alpha, URANIA, Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir, Vol. 17 No.2,.