

ANALISIS KANDUNGAN RADIONUKLIDA (Nd,Ce,Zr) DALAM PEB U₃Si₂/Al PASCA IRADIASI SEBAGAI MONITOR *BURN UP*

Noviarty, Erlina N., Rosika K. Sutri Indaryati
Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir

ABSTRAK

ANALISIS KANDUNGAN RADIONUKLIDA (Nd,Ce,Zr) DALAM PEB U₃Si₂/Al PASCA IRADIASI SEBAGAI MONITOR *BURN UP*, adalah kegiatan tahun ketiga dari kegiatan komponen PEMBAKUAN METODE ANALISIS RADIONUKLIDA MONITOR BURN UP (Nd, Ce, Zr) DALAM PEB U₃Si₂/Al Pasca Iradiasi dengan tahun pencapaian 2019. Kegiatan pembakuan metode pemisahan dan analisis Nd, Ce dan Zr menggunakan kolom penukar kation resin dowex 50W-X8 dan anion telah dilakukan tahun 2018. Dari hasil pemisahan tersebut ditunjukkan bahwa Zr telah terpisah secara sempurna, sehingga penelitian ini dapat dilanjutkan dengan melakukan verifikasi metode uji, sedangkan Nd dan Ce belum dapat dipisahkan secara optimal, sehingga dilakukan kaji ulang dengan menggunakan larutan elusi campuran asam nitrat dan MeOH. Selain itu pemisahan juga dilakukan dengan metode kolom penukar anion menggunakan resin dowex I-X4^[4;5]. Analisis Ce dan Nd setelah dipisahkan dilakukan dengan spektrometer X-ray fluoresen. Hasil pemisahan Nd dan Ce menggunakan metode kolom penukar dengan cara batch, memperoleh nilai faktor pisah ($\alpha=1.59$) untuk konsentrasi keasaman eluen 0,25 M, sedangkan untuk konsentrasi keasaman 2 M memperoleh nilai faktor pisah 12,28. Hal ini menunjukkan bahwa Nd dan Ce dapat dipisahkan menggunakan resin penukar kation Dowex 50 W-X8, namun perlu dioptimasi lebih lanjut. Pemisahan Nd dan Ce menggunakan kolom penukar anion dengan resin dowex I-X4 yang dilakukan dengan metode kolom, memperoleh recovery pemisahan yang cukup baik yaitu sekitar 93,15 % untuk Nd dan 83,27 % untuk unsur Ce. Metode pemisahan ini perlu diverifikasi lebih lanjut sehingga dapat diterapkan pada pemisahan Nd dan Ce yang terdapat dalam larutan PEB Pascairadiasi

Kata kunci : pemisahan Nd, Ce dan Zr, Kolom penukar kation, resin dowex I-X4

PENDAHULUAN

Analisis fisikokimia merupakan salah satu uji merusak yang dilakukan di laboratorium IRM untuk penentuan *Burn-up*. Penentuan *burn up* dilakukan antara lain dengan melakukan pemantauan terhadap keberadaan isotop hasil fisi maupun heavy element baik yang mempunyai waktu paruh panjang ataupun isotop yang mempunyai waktu paruh pendek. Isotop yang dapat digunakan sebagai monitor *burn-up* dengan waktu paruh panjang antara lain adalah ^{235}U , ^{239}Pu , ^{148}Nd , ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{143}Ce , sedangkan isotop yang mempunyai waktu paruh pendek adalah ^{103}Ru , ^{95}Zr dan ^{95}Nb . (waktu paruh isotop $^{103}\text{Ru} = 371,5$ hari, $^{95}\text{Zr} = 65$ hari dan isotop $^{95}\text{Nb} = 35$ hari). Hasil penelitian sebelumnya untuk analisis *burn-up* Pelat Elemen Bakar (PEB) $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$ di Pusat Teknologi Bahan Bakar menggunakan Isotop ^{137}Cs dan ^{235}U . [1] Dari hasil penelitian tersebut telah diperoleh *burn up* mutlak pelat elmen bakar $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$ tingkat muat uranium $2,96 \text{ gU/cm}^3$ pasca iradiasi sebesar $51,69 \%$ [2]. Menurut Aslina dkk hasil analisis *burn-up* ini sedikit berbeda dengan hasil analisis *burn-up* dengan menggunakan program *Origen Code*. Pada analisis *burn-up* oleh PRSG dengan cara tidak merusak melalui perhitungan menggunakan program *Origen Code* diketahui *burn-up* PEB $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$ tingkat muat uranium $2,96 \text{ gU/cm}^3$ adalah sebesar sebesar $50,6\%$.^[2] Untuk mendukung dan memverifikasi hasil analisis *burn-up* yang telah dilakukan menggunakan isotop ^{137}Cs dan ^{235}U oleh Aslina dkk maka dilakukan analisis *burn-up* menggunakan isotop Nd.

Isotop Nd adalah salah satu produk hasil fisi dari bahan bakar nuklir uranium yang telah banyak digunakan untuk monitor *burn-up* oleh beberapa peneliti didunia seperti di Korea, Belgia dan Yugoslavia.^[3,4,5] Penentuan *burn up* menggunakan isotop Nd, dilakukan secara merusak (*Destructive Test*, DT). Teknik destruktif dilakukan berdasarkan kepada penentuan isotop spesifik yang dilakukan secara fisikokimia menggunakan peralatan spektrometer massa^[3]. Isotop Nd dalam PEB $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$ keberadaannya tercampur dengan isotop lain seperti ^{137}Cs , ^{235}U , ^{239}Pu , ^{148}Nd , ^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{143}Ce , ^{103}Ru , ^{95}Zr dan ^{95}Nb . Berdasarkan metode ASTM E 321-96 untuk menganalisis isotop Nd diperlukan pemisahan Nd dari Ce karena Isotop ^{142}Ce mengganggu pengukuran ^{142}Nd sehingga dapat mempengaruhi hasil perhitungan *burn-up*. Dalam usaha mendapatkan metode yang valid, sebelum diterapkan pada bahan bakar pasca iradiasi dilakukan simulasi pemisahan Nd, Ce dan Zr^[3].

Pemisahan unsur Nd, Ce dan Zr telah dilakukan menggunakan kolom penukar kation dengan Resin Dowex 50 W-X8^[6]. Disamping itu telah dicoba juga menggunakan kolom penukar anion dengan resin Dowex 1-x8^[7]. Pada pemisahan Nd, Ce dan Zr

dalam larutan campuran baik dengan kolom penukar kation ataupun kolom penukar anion untuk hasil pemisahan Zr telah terpisah secara sempurna, dengan recovery 96,23%.^[1] sehingga penelitian ini dapat dilanjutkan dan diterapkan pada PEB Pasca iradiasi. Sedangkan untuk pemisahan Nd dan Ce masih belum dapat dipisahkan secara optimal, sehingga pemisahan unsur ini diteliti ulang dengan menggunakan resin anion dowex I-X4^[6;8]. Penggunaan resin Dowex I-X4 untuk pemisahan Nd dan Ce telah memberikan hasil recovery yang cukup baik yaitu sekitar 93,15 % untuk Nd dan 83,27 % untuk unsur Ce^[7]. Optimasi metode proses pemisahan Nd dan Ce mengguna resin Dowex I-X4 diteliti lebih lanjut sebelum diterapkan dalam proses pemisahan Nd dan Ce dalam PEB pasca iradiasi. Penelitian tahun ini (2019) mempelajari beberapa para meter seperti jenis asam, konsentrasi asam, diameter kolom untuk mengelusi, serta penentuan pengaruh cesium terhadap pengukuran Nd dan Ce menggunakan spectrometer XRF. Selanjutnya dilakukan pemisahan Nd dan Ce dari PEB U₃Si₂/Al dengan tahapan proses mengacu pada penlitian Aslina dkk tentang " Penentuan *burn up* mutlak PEB U₃Si₂/Al tingkat muat uranium 2,96 gU/cm³ pasca iradiasi," dan Standar Operasional Prosedur (SOP) Penentuan *burn-up* PEB U₃Si₂/Al Tingkat Muat Uranium (TMU) 4,8 gU/cm³ Pasca Iradiasi. Untuk menganalisis kandungan Nd dan Ce setelah dipisahkan dilakukan dengan spektrometer X-ray fluoresen.

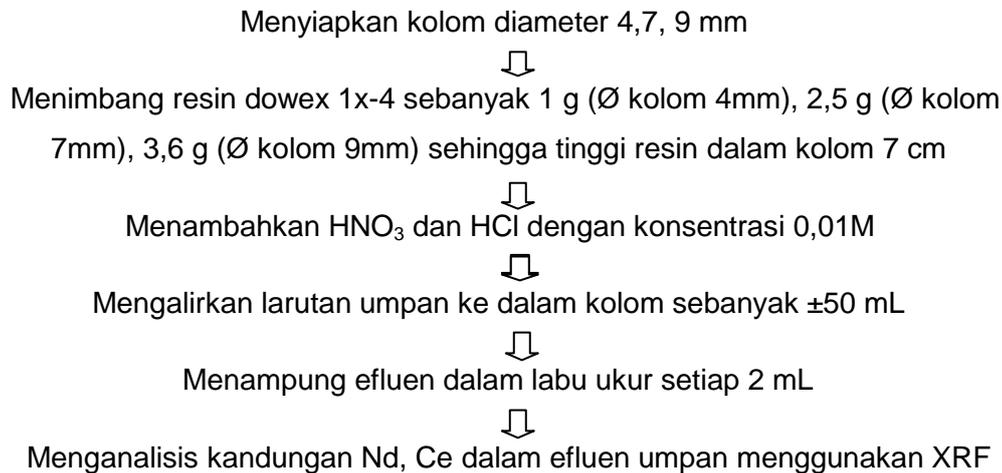
METODOLOGI

Bahan yang digunakan adalah resin dowex 1x4 yang telah dikondisikan dalam HCl encer, larutan standar Nd, Ce, Cs 10000 ppm, PEB U₃Si₂/Al tingkat muat uranium 2,96 gU/cm³, aquadest sebagai pengencer larutan, HNO₃ dan HCl konsentrasi 0.003 M; 0,01M; 0.040M; 0,080M; dan 0,300M. dicampur dengan MeOH dengan perbandingan (1:9) digunakan sebagai eluen.

Alat yang diperlukan adalah kolom dengan diameter 4mm; 7mm, dan 9 mm, vial sebagai tempat sampel, pipet *eppendorph* dan pipet volume untuk mengambil larutan, nampan sebagai wadah/alas sampel, labu ukur sebagai penampung efluen, kertas saring sebagai media efluen, XRF untuk analisis efluen dan resin.

Tata Kerja

A. Bagan proses pemisahan Nd dan Ce melalui kolom penukar anion menggunakan resin dowex 1x-4



B. Penyiapan resin dowex 1-x4

1. Resin dowex dikondisikan menggunakan HCl encer
2. Resin dikeringkan menggunakan oven pada suhu 35°C
3. Resin ditimbang dan dimasukkan ke dalam kolom dengan berat 1, 2,5 dan 3,6 g sesuai dengan diameter kolom, sehingga diperoleh tinggi kolom 7cm

C. Penyiapan larutan standar Nd, Ce 1000 ppm

1. Larutan standar Nd, Ce 10000 ppm masing-masing dipipet sebanyak 500 µL ke dalam *beaker glass*
2. Larutan poin 1 dikeringkan sampai kihat untuk menghilangkan pengotor
3. Ditambahkan 0,5 mL HNO₃ pekat dan dikeringkan sampai agak kihat
4. Ditambah 3 tetes H₂O₂ 3% dan 1 mL HNO₃
5. Larutan dikeringkan kembali

C. Penyiapan larutan Sampel Uji (PEB)

1. Larutan PEB U₃Si₂/Al prairadiasi ditambah dengan standar Nd, Ce dan Cs 10000 ppm masing-masing sebanyak 500 µL
2. Larutan kemudian ditambahkan zeolite untuk proses pemisahan Cesium
3. Supernatan zeolite di ambil 50 µL untuk di ukur dengan XRF untuk mengetahui serapan Nd dan Ce,

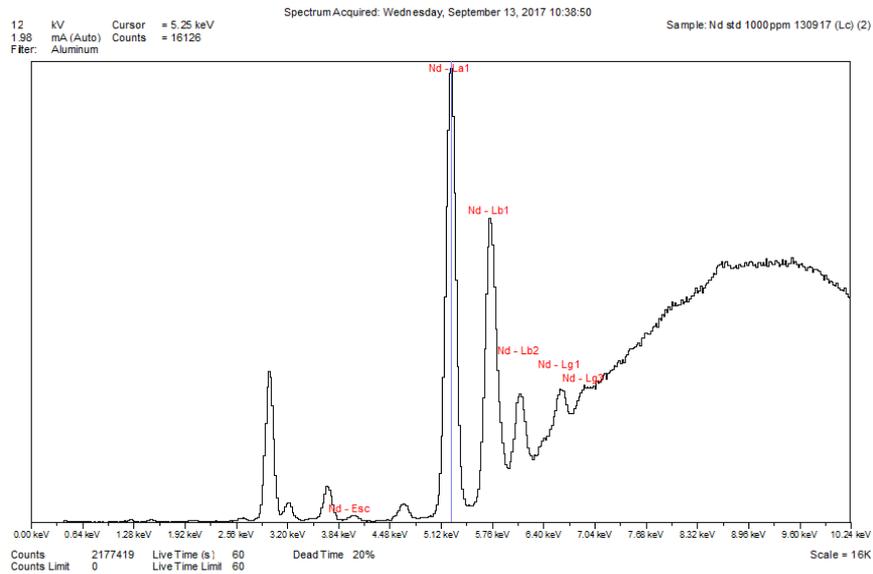
4. Supernatan dimasukan kedalam kolom resin Dowex 1.8 untuk melakukan proses pemisahan Pu selanjutnya Eluen hasil proses pemisahan Pu dipipet 50 μ L untuk di ukur dengan XRF, untuk mengetahui serapan Nd dan Ce,
5. Eluen hasil pemisahan Pu dimasukan kedalam kolom resin Dowex 1.8 untuk proses pemisahan U. Eluen hasil pemisahan U dipipet 50 μ L dan di ukur dengan XRF untuk mengetahui serapan Nd dan Ce,
6. Eluen hasil pemisahan U dimasukan kedalam kolom resin Dowex 1.4 untuk proses Nd dan Ce. Eluen hasil pemisahan Nd dan Ce selanjutnya dipipet 50 μ L untuk di ukur dengan XRF

D. Penyiapan dan pengujian menggunakan spektrometer XRF

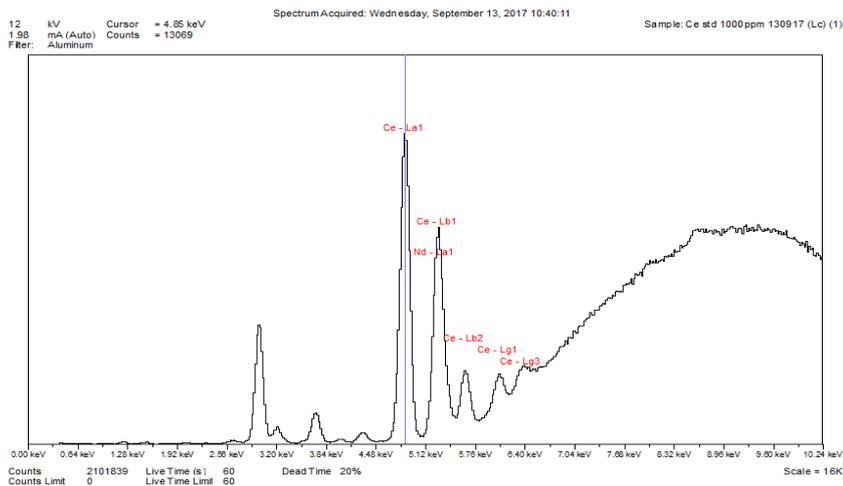
1. Kalibrasi energi XRF menggunakan standar Cu (Tembaga) pada energi 8,05 keV
2. Pembuatan kurva kalibrasi konsentrasi vs intensitas standar Nd, Ce
3. Pengujian larutan (fase cair) yang mengandung Nd, Ce

HASIL DAN PEMBAHASAN

Kegiatan penelitian Analisis Kandungan radionuklida (Nd, Ce, Zr) dalam PEB U₃Si₂/Al pasca iradiasi sebagai monitor *burn up yang dilakukan* masih menggunakan sampel bahan bakar PEB U₃Si₂/Al prairadiasi secara simulasi dengan penambahan Larutan Nd, Ce dan Cs ke dalam larutan bahan bakar. Hasil optimasi alat XRF untuk pengukuran larutan standar Nd dan Ce berupa konfirmasi puncak spektrum Nd dan Ce ditunjukkan dalam Gambar 1 dan 2.



Gambar 1. Puncak spektrum Nd pada sampel uji larutan PEB Prairadiasi



Gambar 2. Puncak spektrum Ce pada sampel uji larutan PEB Prairadiasi

Gambar 1 menunjukkan bahwa puncak spektrum unsur Nd pada sampel uji larutan PEB Prairadiasi berada pada energi 5,25 keV ($L\alpha$) dan 5,721 keV ($L\beta$). Sedangkan pada Gambar 2 terlihat bahwa puncak spektrum unsur Ce berada pada energi 4,85 keV ($L\alpha$) dan 5,26 keV ($L\beta$). Hasil konfirmasi selanjutnya digunakan dalam penentuan nilai KD dari Nd dan Ce

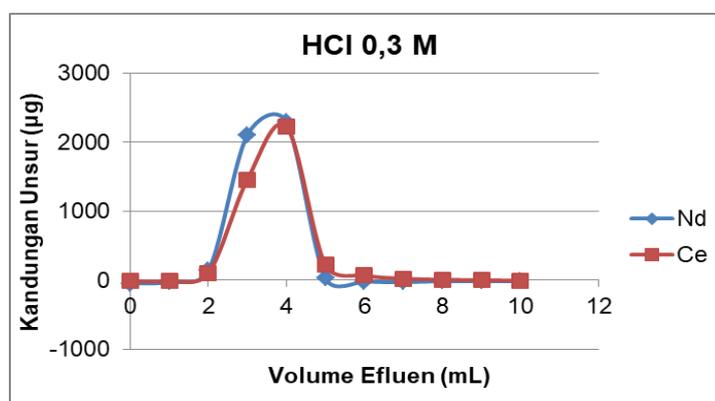
Penentuan nilai KD. Nd dan Ce menggunakan eluen HNO_3 dan HCl dengan variasi konsentrasi 0,003, 0,010, 0,040, 0,080 dan 0,300M. Hasil penentuan nilai KD Nd dan Ce ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel. 1. Nilai KD Nd dan Ce dengan variasi konsentrasi asam HNO₃ dan HCl

Konsentrasi asam (M)	Nilai KD			
	HNO ₃		HCl	
	Nd	Ce	Nd	Ce
0,003	0,47	0,61	1,08	0,85
0,010	1,09	0,56	0,53	1,21
0,040	1,96	0,27	1,86	0,42
0,080	1,10	0,08	1,04	0,48
0,300	1,60	0,60	1,52	0,27

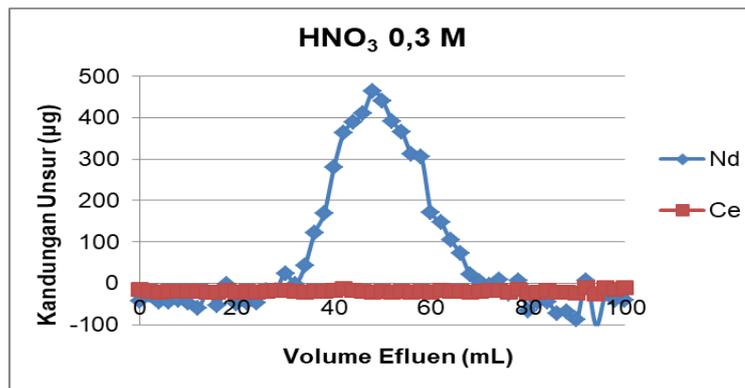
Hasil penentuan nilai KD dari Nd dan Ce menunjukkan perbedaan yang tidak signifikan, sehingga untuk melihat kemampuan HNO₃ dan HCl sebagai eluen untuk pemisahan Nd dan Ce, dilakukan dengan pengamatan profil pemisahan.

Pengamatan profil pemisahan Ce dan Nd menggunakan eluen campuran (HNO₃ + MeOH) maupun campuran (HCl + MeOH) dengan variasi konsentrasi HNO₃ dan HCl 0,003, 0,010, 0,040, 0,080 dan 0,300 M. Hasil pengamatan profil elusi pemisahan Nd, Ce menggunakan eluen HCl + MeOH seperti ditunjukkan dalam Gambar 3. Puncak spektrum Nd, Ce dalam Gambar 3 terlihat berdempet. Pada penggunaan eluen campuran (HNO₃ + MeOH) diketahui bahwa Nd dan Ce akan terpisah secara sempurna pada konsentrasi HNO₃ sebesar 0,3M seperti ditunjukkan dalam Gambar 4



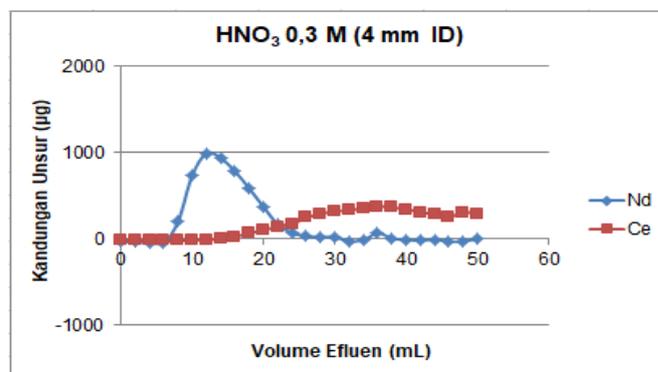
Gambar 3. Profil pemisahan Nd dan Ce dengan Eluen HCL+MeOH

Hasil pengamatan profil elusi menggunakan eluen campuran (HNO_3 + MeOH) diketahui bahwa Nd dan Ce akan terpisah secara sempurna pada konsentrasi HNO_3 sebesar 0,3M seperti ditunjukkan dalam Gambar 4

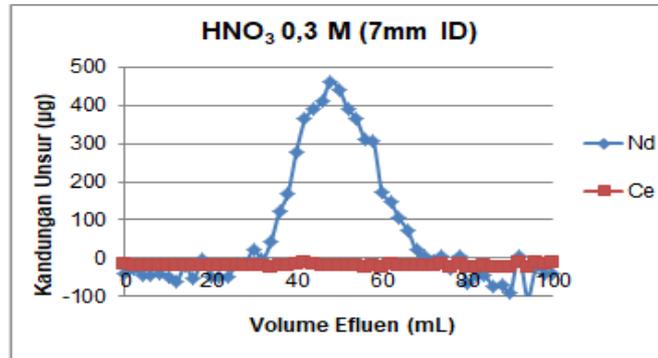


Gambar 4. Profil pemisahan Nd dan Ce menggunakan HNO_3 +MeOH

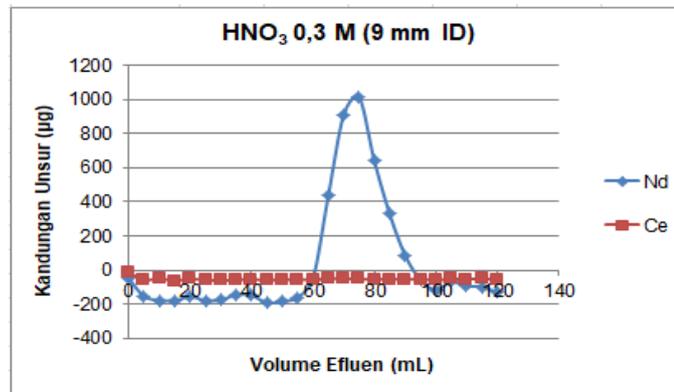
Berdasarkan hasil pengamatan profil elusi maka untuk pemisahan Nd dan Ce selanjutnya adalah dengan menggunakan eluen campuran HNO_3 +MeOH pada konsentrasi 0,3M. Selanjutnya dilakukan penentuan profil elusi dengan variasi diameter kolom yaitu 4mm, 7 mm dan 9mm. Kandungan Nd dan Ce dalam efluen setiap 2mL hasil elusi menggunakan eluen campuran HNO_3 dan MeOH dengan 3 variasi diameter kolom dianalisis menggunakan XRF sehingga diperoleh profil elusi. Hal ini ditunjukkan pada Gambar 5, 6, 7.



Gambar 5 Profil elusi Nd, Ce diameter kolom 4mm



Gambar 6 Profil elusi Nd, Ce diameter kolom 7mm



Gambar 7 Profil elusi Nd, Ce diameter kolom 9mm

Berdasarkan Gambar 5,6,7 maka profil elusi Nd, Ce dengan variasi diameter kolom memberikan hasil yang berbeda. Pada diameter kolom 4mm Nd dan Ce terpisah pada volume efluen 26mL. Untuk diameter kolom 7mm, Nd terelusi lebih dahulu sampai volume efluen 80mL sedangkan Ce sampai dengan volume 100mL belum terelusi. Sedangkan pada diameter kolom 9mm, proses pemisahan yang terjadi hampir sama diameter kolom 7mm, tetapi Nd habis terelusi pada volume efluen 100mL. Berdasarkan profil yang dihasilkan dapat disimpulkan bahwa untuk pemisahan Nd dengan Ce, maka parameter yang optimal untuk digunakan adalah kolom anion berdiameter 7 mm dengan eluen campuran (HNO₃ + 99,6% MeOH) konsentrasi HNO₃ 0,3M.

Pemisahan Nd, Ce dalam larutan simulasi bahan bakar pra iradiasi.

Pemisahan dilakukan dengan menambahkan Nd, Ce ke dalam larutan PEB pra iradiasi. Selanjutnya dilakukan tahap proses pemisahan Cs melalui metode

pertukaran kation menggunakan zeolit pada kondisi optimal sesuai dengan yang telah dilakukan peneliti sebelumnya^[9]. Efluen yang diperoleh kemudian dikondisikan untuk tahap proses pemisahan Pu dan U, proses pemisahan dilakukan menggunakan kolom berisi resin dowex 1-X8 [9]. Pemisahan Nd dan Ce menggunakan resin dowex 1-X4 dengan parameter optimal yang telah diperoleh. Hasil pemisahan Nd dan Ce dari larutan PEB U_3Si_2/Al yang dilakukan secara simulasi ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 2. Kandungan dan *recovery* Nd dalam larutan pra iradiasi U_3Si_2/Al

Kandungan (μg) Nd		<i>Recovery</i> (%)
Teoritis	Terukur	
5000	1716,45	34,32

Tabel 2 menunjukkan bahwa hasil *recovery* pemisahan Nd dan Ce secara simulasi dari larutan PEB U_3Si_2/Al pra iradiasi masih sangat rendah yaitu 34.32%. Kehilangan Nd dan Ce selama tahap proses pemisahan isotop Cs, Pu dan U cukup besar lebih dari 50% . Hal ini kemungkinan disebabkan oleh Nd yang ikut terikat dalam zeolite, atau hilang pada tahapan proses pemisahan Pu dan U. Metode pemisahan ini belum dapat diterapkan pada pemisahan Nd dan Ce dalam PEB U_3Si_2/Al TMU 2.96 gU/cm^3 pasca iradiasi, dan perlu diteliti lebih lanjut. Dengan demikian penelitian ini akan berlanjut pada penentuan *recovery* pemisahan Nd dan Ce pada setiap tahapan proses pemisahan Cs, Pu dan U.

KESIMPULAN

Dari hasil pelaksanaan Kegiatan penelitian ini dapat disimpulkan bahwa metode yang dilakukan belum bisa diacu untuk digunakan pada pemisahan Nd dan Ce, karena *recovery* pemisahan Nd dan Ce yang diperoleh hanya 34.32%. Kehilangan Nd dan Ce pada proses pemisahan cukup besar yaitu lebih dari 50%, sehingga metode ini perlu diteliti lebih lanjut.

PUSTAKA

1. Yanlinastuti, Noviarty, Iis Haryati, Samsul Fatimah, Boybul, Aslina Br.Ginting” Optimasi Parameter Pemisahan Zr Dalam PEB U3Si2/Al Pra Iradiasi Menggunakan Metode Kromatografi Penukar Anion” *Urania* Vol. 25 No. 2, Juni 2019: 71–140
2. A. B. Ginting, Boybul, A. Nugroho, D. Anggraini, R. Kriswarini, ” Penentuan *burn up* mutlak pelat elmen bakar U3Si2-Al tingkat muat uranium 2,96 gU/cm³ pasca iradiasi,” *Jurnal Teknologi Bahan Nuklir* vol. 11, no. 2, Juni 2015. 83-98.
3. Jung Suk KIM , Young Shin JEON , Soon Dal PARK , Sun Ho HAN & Jong Goo KIM ‘Burnup Determination of High Burnup and Dry Processed Fuels Based on Isotope Dilution Mass Spectrometric Measurements” *Journal of NUCLEAR SCIENCE and TECHNOLOGY*, Vol. 44, No. 7, p. 1015–1023 (2007)
4. P De Regge, R Boden S.C.K.C.E.N ” Determination Of Neodymium Isotopes As Burnup Indicator Of Highly Irradiated U,Pu)O₂ LMFBR Fuel” *Journal Of Radioanalytical Chemistry*, Vo..35 (1977) 173-184
5. KRTIL, F.Sus, V Bulovic, E.Klosofa, Z. Maksimovic, “ Experience With The Neodymium Method For Determination Of Nuclear Fuel Burn-Up” *Journal Of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Articles 83/1 (1984) 61-66
6. Noviarty, dkk,”Penentuan Parameter Proses Pemisahan Dan Analisis Nd,Ce dan Zr Menggunakan Metode Penukar Kation” *Prosiding Hasil-hasil Penelitian Tahun 2017* ISSN 0854-5561 hal 130-141, Oktober 2018
7. Noviarty, Erlina N., Rosika K. Sutri Indaryati,” Pembakuan Metode Pemisahan Dan Analisis Nd, Ce, Zr Menggunakan Metode Kolom Penukar Kation Dan Anion” *Prosiding Hasil-hasil Penelitian Tahun 2018* ISSN 0854-5561 hal 130-141, Juli 2019
8. Jung Suk Kim et al, ”Burn-up Measurement of Irradiated Uranium Dioxida Fuel by Chemical Methods” *Journal of the Korean Nuclear Society* 1, Januari 2006
9. Aslina B. G. Boybul, Yanlinastuti, Dian Anggraini, Arif Nugroho, Rosika

Kriswarini, "Analisis Kandungan Cesium dan Uranium Dalam Bahan Bakar U₃Si₂/Al Pasca Iradiasi," pp. 107–116, 2017.

10. Arif N. Boybul, Yanlinastuti, Sutri Indaryati, Iis Haryati, "Penentuan Kandungan Isotop ²³⁵U dalam PEB U₃Si₂-Al Tmu 2,96 gU/cm³ Untuk Perhitungan *Burn-Up*," pp. 141–150, 2015.