

# PENENTUAN PARAMETER OPTIMUM PROSES PENGENDAPAN CsClO<sub>4</sub> PADA PEMISAHAN ISOTOP <sup>137</sup>Cs DARI LARUTAN PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al PASCA IRADIASI

**Dian Anggraini, Arif Nugroho, Aslina B.Ginting, Yusuf Nampira, Boybul**

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN

Kawasan Puspipstek, Serpong, Tangerang Selatan 15314

e-mail: anggraini@ymail.com

(Naskah diterima: 29 April 2013, disetujui: 27 Mei 2013)

## ABSTRAK

**PENENTUAN PARAMETER OPTIMUM PADA PROSES PENGENDAPAN CsClO<sub>4</sub> PADA PEMISAHAN ISOTOP <sup>137</sup>Cs DARI LARUTAN PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al PASCA IRADIASI.** Metode pengendapan telah dijadikan metode standar pada ASTM E 320-79 dalam bentuk garam CsClO<sub>4</sub>. Beberapa aspek metoda pengendapan tersebut diteliti dengan tujuan untuk mengetahui efektifitas metode pengendapan dan mendapatkan radionuklida <sup>137</sup>Cs murni nuklir. Aspek-aspek yang diamati adalah pengaruh senyawa pembawa CsNO<sub>3</sub> dengan sejumlah tertentu pereaksi HClO<sub>4</sub> dan tetap dalam pengendapan radionuklida <sup>137</sup>Cs serta pengaruh kepolaran bahan pencuci endapan CsClO<sub>4</sub>. Penelitian ini dilakukan dengan menggunakan larutan standar <sup>137</sup>Cs (NIST) untuk menentukan efisiensi detektor, presisi dan akurasi pengukuran serta optimasi parameter proses pengendapan. Penentuan efisiensi detektor, presisi dan akurasi metode pengukurannya dilakukan dengan 5 sampai 7 kali pengulangan dengan waktu cacah 1500 detik dan nilai efisiensi detektor, presisi, bias akurasi masing-masing sebesar  $(5,31 \pm 0,066) \times 10^{-2}\%$ , 1,119% dan 0,542%. Optimasi jumlah senyawa pembawa dilakukan dengan variasi mulai dari 100 sampai dengan 225 mg CsNO<sub>3</sub> pada temperatur pengendapan pada 0 °C selama 1 jam. Endapan CsClO<sub>4</sub> yang terbentuk kemudian diukur kandungan <sup>137</sup>Cs pada energi 661,8 keV dan diperoleh rekoveri pengendapan maksimum 83,87% pada penambahan CsNO<sub>3</sub> sebesar 225 mg. Optimasi bahan pencuci dilakukan pada endapan CsClO<sub>4</sub> dari hasil proses pengendapan larutan PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al pascairadiasi. Bahan pencuci untuk endapan CsClO<sub>4</sub> yang digunakan adalah aseton dan campuran larutan (aseton dan etanol) dengan polaritas bervariasi, yang ditunjukkan dengan nilai konstanta dielektrik larutan (20 sampai dengan 22,4). Hasil pengukuran cacahan <sup>137</sup>Cs dari endapan CsClO<sub>4</sub> dan supernatan tidak menunjukkan perbedaan yang signifikan, sehingga perbedaan polaritas bahan pencuci pada kisaran nilai 20 sampai 22,4 tidak begitu berpengaruh terhadap kelarutan CsClO<sub>4</sub>. Proses pengendapan larutan PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al pasca iradiasi menggunakan parameter hasil optimasi tersebut mendapatkan kandungan <sup>137</sup>Cs sebesar 0,011 µg/g sampel atau sebesar  $(4,415 \pm 0,035) \times 10^2$  µg/g dalam potongan PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al pasca iradiasi 3 x 3 x 1,37 mm<sup>3</sup>.

**Kata kunci:** parameter optimum pengendapan CsClO<sub>4</sub>, <sup>137</sup>Cs, larutan PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al pasca iradiasi.

## ABSTRACT

**DETERMINATION OF OPTIMUM PARAMETERS OF THE PRECIPITATION PROCESS OF CsClO<sub>4</sub> IN THE SEPARATION OF <sup>137</sup>Cs FROM IRRADIATED U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/AL FUEL PLATE.** *In this research the precipitation method refers to the ASTM E 320-79 standard, where the precipitate is in the form of CsClO<sub>4</sub> salt. Several aspects related to the precipitation process are studied in order to determine its effectiveness and to obtain relatively nuclear grade of <sup>137</sup>Cs. The precipitation was done by using HClO<sub>4</sub> at 0 °C. The aspects under examination includes the influence of CsNO<sub>3</sub> addition as a carrier and HClO<sub>4</sub> as well as the polarity of the washing agents used. The experiment used <sup>137</sup>Cs standard (NIST) for the determination of detector efficiency, measurement precision and accuracy, and optimum condition during the precipitation process. Measurement for detector efficiency, precision and accuracy was repeated at 5 to 7 times at counting time of 1500 seconds, by which values of  $(5.31 \pm 0.066) \times 10^{-2}\%$ , 1.119% and 0.542% for detector efficiency, precision bias and accuracy bias respectively was obtained. The optimum addition of the carrier was determined by varying carrier composition from 100 to 225 mg of CsNO<sub>3</sub> at 0 °C for 1 hour. The resulting CsClO<sub>4</sub> was subsequently measured for its <sup>137</sup>Cs content at 661.8 keV. The result showed that the maximum recovery precipitation obtained was 83.87% at carrier addition of 225 mg. The optimum amount of two washing agents used during the process was also studied, where acetone and a mixture of acetone and ethanol were used. The polarity of the washing agents was indicated by their dielectric constant (from 20 to 22.4). Analysis results indicate that the counts of <sup>137</sup>Cs in the CsClO<sub>4</sub> after washing and the counts of the supernatant do not show significant difference. It is therefore concluded that polarity difference within those range have no significant effect on the solubility of CsClO<sub>4</sub>. The precipitation of the irradiated U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al optimum condition results in <sup>137</sup>Cs concentration of 0.011 µg/g sample or  $(4.415 \pm 0.035) \times 10^2$  µg/g for a 3 x 3 x 1.37 mm<sup>3</sup> irradiated U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al sample.*

**Keywords:** optimum deposition parameters CsClO<sub>4</sub>, <sup>137</sup>Cs, a solution of PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al post-irradiation.

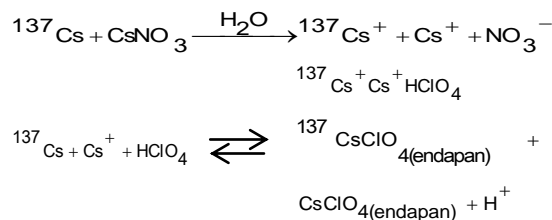
## PENDAHULUAN

*Burn up* atau fraksi bakar merupakan bagian dari kegiatan *Post Irradiation Examination* (PIE), yang memiliki peranan penting dalam menentukan sisa umur bahan bakar serta bahan struktur yang digunakan dalam reaktor. Selain itu digunakan juga sebagai umpan balik kepada desainer, *fabricator* dan operasi reaktor<sup>[1]</sup>. Penentuan fraksi bakar dilakukan melalui analisis radionuklida hasil fisi dan unsur-unsur berat (U/Pu) yang terkandung di dalam bahan bakar pasca iradiasi dan salah satu radionuklida hasil fisi yang digunakan dalam perhitungan fraksi bakar yang dikenal sebagai monitor fraksi bakar adalah <sup>137</sup>Cs<sup>[2]</sup>. Oleh karena itu, dalam penentuan kandungan radionuklida <sup>137</sup>Cs diperlukan metode yang tepat agar diperoleh data yang

akurat. Analisis radioisotop <sup>137</sup>Cs dalam bahan bakar yang mengandung radioisotop lain dalam jumlah besar dengan konsentrasi bervariasi, sehingga terlebih dahulu dilakukan proses pelarutan dalam suatu media asam. Pada larutan tersebut selanjutnya ditambahkan isotop atau nonisotop untuk memisahkan dan memurnikan unsur yang jumlahnya sedikit agar bisa dianalisis secara akurat. Metode pemisahan yang umum dilakukan adalah pengendapan, ekstraksi, kromatografi elektrolisis<sup>[3]</sup>.

Proses pemisahan dan pemurnian radioisotop <sup>137</sup>Cs dalam bahan bakar pasca iradiasi dengan menggunakan metode pengendapan telah di tertuang dalam ASTM E-320<sup>[4]</sup>. Dasar dari metode ini adalah pengendapan Cs dalam bentuk endapan

Cs-Chlorat (CsClO<sub>4</sub>), yang dilakukan dengan menggunakan *carrier* atau senyawa pembawa diantaranya adalah CsNO<sub>3</sub>. Kegunaan senyawa pembawa adalah untuk meningkatkan konsentrasi ion Cs<sup>+</sup> dalam larutan, sehingga saat ion Cs diendapkan sebagai garam CsClO<sub>4</sub> dan secara langsung juga dapat mengadsorpsi <sup>137</sup>Cs aktif yang jumlahnya sedikit, sehingga endapan CsClO<sub>4</sub> yang diperoleh dapat ditimbang. Selanjutnya endapan tersebut dikenakan proses pencucian menggunakan larutan non polar untuk menghilangkan ion-ion yang terlarut dalam endapan. Metode ini menghasilkan rekoveri isotop <sup>137</sup>Cs dalam kisaran 60% sampai 90%<sup>[4]</sup>. Perolehan nilai rekoveri isotop <sup>137</sup>Cs tersebut tergantung dari parameter yang berpengaruh pada proses penggendapan, diantaranya adalah jumlah senyawa CsNO<sub>3</sub> dan bahan pencuci endapan CsClO<sub>4</sub>. Reaksi penggendapan CsClO<sub>4</sub> yang terjadi antara Cs<sup>+</sup>dengan HClO<sub>4</sub>adalah;



Bila jumlah penambahan senyawa CsNO<sub>3</sub> semakin banyak maka reaksi akan bergeser ke kiri sehingga jumlah CsClO<sub>4</sub> yang terendapkan akan bertambah, dan hal ini memungkinkan jumlah <sup>137</sup>Cs yang ikut terendapkan juga akan meningkat. Bila ditinjau dari perhitungan stoikhiometri persamaan reaksi penggendapan CsNO<sub>3</sub> dan HClO<sub>4</sub> serta data kelarutan endapan CsClO<sub>4</sub> sebesar 8,0 mg/mL pada 0 °C<sup>[5]</sup> dengan pengambilan derajat kepercayaan 95% maka rekoveri penggendapan didapatkan sekitar 92% pada penambahan senyawa pembawa (CsNO<sub>3</sub>) sekitar 300 mg. Besaran nilai rekoveri tersebut masih dipengaruhi oleh sifat polaritas bahan pencuci yang digunakan dalam proses pencucian

endapan untuk menghilangkan ion-ion seperti Cl<sup>-</sup>, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>. Endapan CsClO<sub>4</sub> bersifat polar sehingga jenis bahan pencuci yang digunakan harus memiliki polaritas rendah untuk meminimalkan kehilangan Cs dalam proses pencucian.

Sehubungan dengan fenomena tersebut maka pada penelitian ini dilakukan optimasi parameter proses penggendapan CsClO<sub>4</sub> dengan penambahan *carrier* CsNO<sub>3</sub> dan jenis larutan pencuci berdasarkan sifat polaritas, untuk mendapatkan rekoveri penggendapan maksimum sehingga dapat diketahui efektivitas proses penggendapan CsClO<sub>4</sub> dalam pemisahan <sup>137</sup>Cs. Hasil penelitian ini kemudian diterapkan pada pemisahan <sup>137</sup>Cs dari larutan pelat elemen bakar U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al tingkat muat uranium (TMU) 2,96 gU/cm<sup>3</sup> pasca iradiasi. Hasil kegiatan ini diharapkan dapat membantu dalam mendapatkan isotop <sup>137</sup>Cs dan dapat mengurangi paparan radiasi yang terdapat dalam larutan limbah pasca iradiasi.

## TATA KERJA

### Bahan dan peralatan

Optimasi parameter proses penggendapan dilakukan menggunakan bahan larutan standar radionuklida <sup>137</sup>Cs (CRM NIST) dengan jumlah bahan standar 12,5 µL untuk setiap parameter. Senyawa pembawa berupa bahan CsNO<sub>3</sub> (pa) digunakan sesuai dengan variasi percobaan yakni 100, 125, 150, 200, 225 dan 250 mg. Proses penggendapan dilakukan dalam peralatan gelas vial dengan menggunakan bahan larutan HClO<sub>4</sub> pekat sebanyak 4 mL pada setiap parameter uji dan dilakukan dalam penangas es pada temperatur 0 °C selama 1 jam. Kemudian didiamkan selama 1 jam agar penggendapan lebih sempurna.

Pada proses pencucian digunakan bahan pencuci aseton dan campuran aseton dengan etanol pada perbandingan 9:1, 8:2, 7:3, 6:4, 5:5. Perbandingan aseton dan

etanol yang bervariasi untuk mendapatkan bahan pencuci dengan sifat polaritas yang berbeda. Pelaksanaan pencucian dilakukan menggunakan *shaker* selama 10 menit. Pemisahan endapan dan larutan (supernatan) dilakukan dengan menggunakan pipet untuk mengambil supernatan. Kemudian supernatan dimasukkan dalam vial dan endapan  $\text{CsClO}_4$  didiamkan sampai kering. Endapan  $\text{CsClO}_4$  dan supernatan selanjutnya dianalisis menggunakan spektrometer- $\gamma$ . Hasil optimasi ke dua parameter tersebut kemudian diterapkan pada larutan sampel PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$  pasca iradiasi dengan jumlah sebanyak 50  $\mu\text{L}$ .

Pengukuran radionuklida kualitatif dan kuantitatif radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  menggunakan alat spektrometer gamma. Sebelum digunakan untuk pengukuran radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  terlebih dahulu di kalibrasi menggunakan sumber Co-60, yang memiliki energi 1173,24 keV dan 1332,50 keV. Penentuan unjuk kerja alat spektrometer gamma (presisi dan akurasi) dilakukan dengan menggunakan larutan standar radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  dari NIST.

Radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  merupakan nuklida tidak stabil, yang dalam peluruhannya memancarkan sinar  $\beta$  menjadi radionuklida  $^{137(\text{m})}\text{Ba}$  dengan waktu paruh 2,5 menit, kemudian dengan memancar sinar  $\gamma$  pada energi 661,6 keV meluruh menjadi unsur  $^{137}\text{Ba}$  stabil<sup>[6]</sup>. Energi sinar gamma pada 661 keV adalah karakteristik radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  sehingga digunakan sebagai identifikasi dalam analisis kualitatif menggunakan spektrometer- $\gamma$ .

Analisis secara kuantitatif dilakukan berdasarkan metoda komparatif dengan menggunakan standar  $^{137}\text{Cs}$  bersertifikat. Pengukuran larutan standar  $^{137}\text{Cs}$  akan menghasilkan nilai efisiensi detektor yang merupakan faktor koreksi dalam pengukuran sampel larutan PEB. Perhitungan efisiensi detektor mengikuti persamaan (1)<sup>[7]</sup>,

$$\text{eff} = \frac{C_i}{\text{Akt} \cdot \text{Yield}} \quad (1)$$

dengan  $C_i$  = jumlah cacahan, dihitung dari *net counts* isotop ( $C - C_{\text{bg}}$ ), Akt = keaktifan isotop  $^{137}\text{Cs}$ , dps atau Bq, yang telah terkoreksi hingga waktu pengukuran, Yield = Faktor intensitas dari isotop  $^{137}\text{Cs}$ , Cff = efisiensi detektor.

Nilai efisiensi detektor selanjutnya digunakan dalam perhitungan aktivitas dan kandungan suatu radionuklida dalam sampel dengan menggunakan persamaan (2),

$$N = \frac{\text{Akt}}{\epsilon \cdot I_{\text{rel}} \cdot \lambda} \quad (2)$$

dengan N = jumlah isotop  $^{137}\text{Cs}$  dalam berat tertentu sampel bahan bakar nuklir, Akt = keaktifan isotop  $^{137}\text{Cs}$ , dps atau Bq,  $I_{\text{rel}}$  = Intensitas relatif puncak isotop  $^{137}\text{Cs}$  pada energi yang diukur,  $\lambda$  = konstanta peluruhan atau  $(\ln 2)/t_{1/2}$ ,  $t_{1/2}$  = waktu paruh dari isotop  $^{137}\text{Cs}$ .

Untuk mendapatkan berat  $^{137}\text{Cs}$  dalam cuplikan digunakan persamaan (3),

$$W = \frac{N \cdot \text{BA}}{\text{NA}} \quad (3)$$

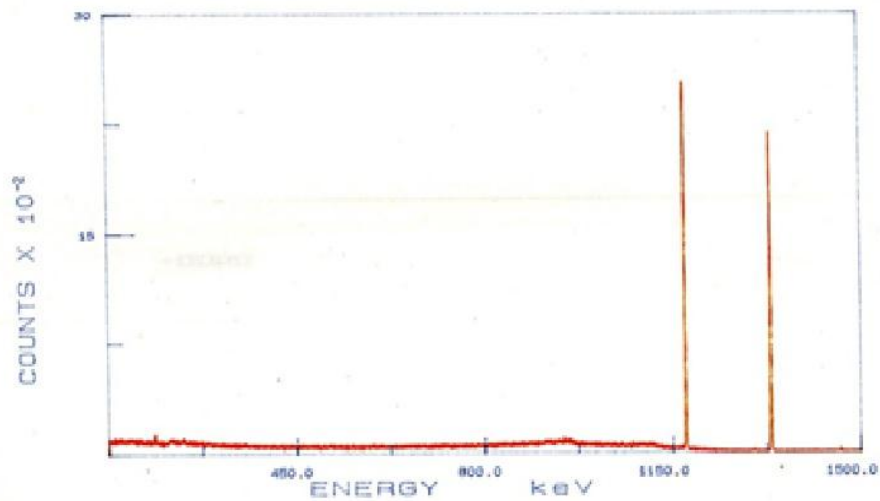
dengan W = jumlah kandungan  $^{137}\text{Cs}$  cuplikan (g), BA = berat atom, NA = bilangan Avogadro ( $6,02 \times 10^{23}$ ).

## HASIL DAN PEMBAHASAN

Analisis bahan standar CRM radioaktif ( $^{60}\text{Co}$  dan  $^{137}\text{Cs}$ ) dilakukan untuk menentukan parameter kinerja alat spektrometer gamma secara kualitatif dan kuantitatif. Analisis kualitatif dilakukan melalui kalibrasi energi, menggunakan

bahan standar titik  $^{60}\text{Co}$  dengan energi gamma 1173,24 keV dan 1332,50 keV. Hasil

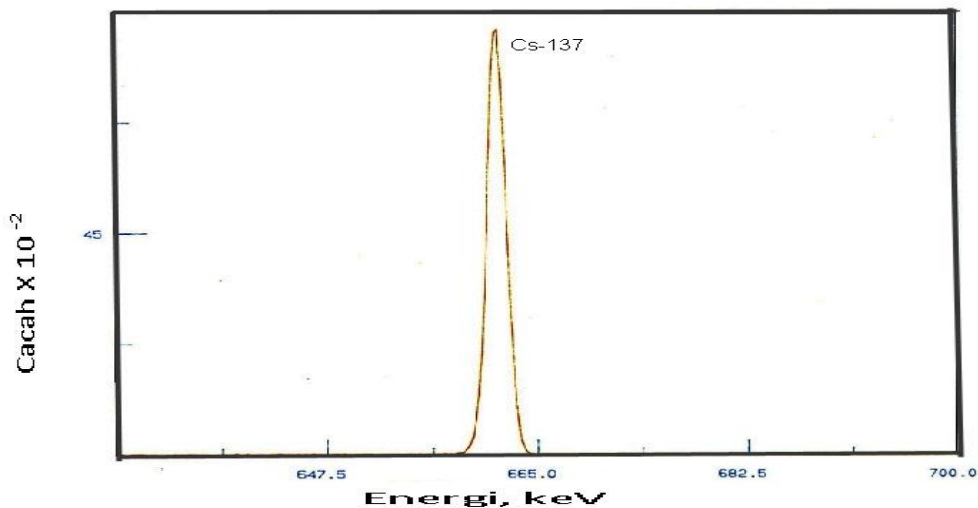
kalibrasi energi ditunjukkan seperti yang terlihat pada Gambar 1.



Gambar 1. Spektrum  $^{60}\text{Co}$  pada energy 1173,24 keV dan 1332,5 keV.

Untuk menentukan parameter kuantitatif berupa efisiensi detektor, selanjutnya dilakukan pengukuran larutan standar  $^{137}\text{Cs}$  (aktifitas 31,525 kBq) dengan 3 (tiga) kali pengulangan, waktu cacah 1500 detik dan jarak antara larutan dan detektor

sebesar 25 cm. Hasil pengukuran menunjukkan bahwa spektrum  $^{137}\text{Cs}$ , seperti yang terlihat pada Gambar 2 berada pada energi 661,8 keV, berdekatan dengan nilai energi yang tercantum dalam Tabel *Radionuclides* sebesar 661,657 keV.



Gambar 2. Spektrum  $^{137}\text{Cs}$

Jumlah cacahan (*net area*) spektrum  $^{137}\text{Cs}$  kemudian di substitusikan ke dalam persamaan (1) dan (2) dan diperoleh nilai efisiensi detektor seperti yang tercantum pada Tabel.1. Tabel.1 menunjukkan bahwa

efisiensi detektor (%) diperoleh sebesar  $(5,31 \pm 0,066) \cdot 10^{-2}$  dan selanjutnya nilai tersebut digunakan dalam proses pengukuran secara kuantitatif.

Tabel 1. Efisiensi detektor spektrometer gamma (661,8 keV).

No	Net Area (cacah)	Cps	Yield	Efisiensi Detektor(%)
1.	21220	14,1466	0,851	0,0527
2.	21366	14,2440	0,851	0,0523
3.	21599	14,3993	0,851	0,0536
Rerata				$(5,31 \pm 0,066) \times 10^{-2}$

Penentuan akurasi dan presisi pengukuran dilakukan dengan mengukur larutan standar radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  sebanyak 12,5  $\mu\text{L}$  atau setara dengan berat 2,377 g

dan aktifitas sebesar 14,103 kBq/g. Metode pengukuran dengan 7 kali pengulangan dan data hasil pengukuran serta perhitungan dapat dilihat pada Tabel 2.

Tabel 2. Akurasi dan Presisi Pengukuran Standar  $^{137}\text{Cs}$  (E= 661,8keV).

No	Net Area (cacah)	Cps	Aktifitas Pengukuran (Bq/g)	Aktifitas Sertifikat $^{137}\text{Cs}$ (Bq/g)
1.	21853	14,568	13588,93	14,103 x 10 <sup>3</sup>
2.	22309	14,872	13872,48	
3.	22614	15,076	14062,14	
4.	22259	14,839	13841,39	
5.	22394	14,929	13925,34	
6.	22422	14,948	13942,75	
7.	22292	14,843	13891,91	
Rerata	22306	14,870	14108,12	
Akurasi(%)			0,542	
Presisi (%)			1,119	

Tabel 2 menunjukkan bahwa perbedaan nilai aktifitas radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  hasil pengukuran dan nilai aktifitas yang tercantum dalam sertifikat, yang dinyatakan dalam besaran akurasi/ ketelitian pengukuran sebesar 0,542%. Berdasarkan kaidah statistic melalui uji t dengan mengambil derajat kepercayaan 95% diperoleh bahwa nilai perbedaan tersebut menghasilkan nilai t sebesar 0,00095 lebih kecil dari nilai  $t_{\text{tabel}}$  sebesar 4,3 (*critical value of student's distribution*,  $t_{0,05}$ )<sup>[7]</sup>. Hal ini

menunjukkan bahwa tidak ada perbedaan yang signifikan antara nilai aktifitas hasil pengukuran dan sertifikat sehingga akurasi pengukuran spektrometer gamma memenuhi persyaratan analisis. Nilai presisi atau ketepatan pengukuran diperoleh sebesar 1,119% lebih kecil dari 5% sehingga masih memenuhi kriteria keberterimaan kaidah statistik. Berdasarkan data perhitungan tersebut menunjukkan bahwa unjuk kerja spektrometer gamma

memenuhi keberterimaan analisis dalam pengukuran  $^{137}\text{Cs}$  sehingga selanjutnya dapat digunakan dalam menganalisis  $^{137}\text{Cs}$  dalam sampel PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$  pasca iradiasi.

Rekoveri proses penggendapan dilakukan melalui perbandingan kandungan radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  sebelum dan sesudah

proses penggendapan. Data awal kandungan radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  didapatkan dari pengukuran larutan standar  $^{137}\text{Cs}$  sebanyak 12,5  $\mu\text{L}$  dengan waktu cacah 1500 detik. Hasil pengukuran dan perhitungan aktifitas dan kandungan radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  tercantum pada Tabel 3.

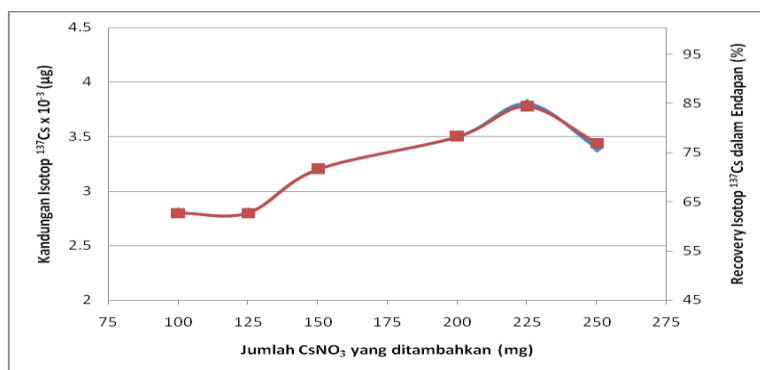
Tabel 3. Kandungan radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  dalam larutan standar  $^{137}\text{Cs}$  (NIST).

No	Cacah	Cps	Yield	Efisiensi detektor (%)	Kandungan Isotop $^{137}\text{Cs}$ ( $\mu\text{g}$ )
1.	29103	19,402	0,851	0,053	0,0045
2.	29194	19,462	0,851	0,053	0,0045
3.	29199	19,466	0,851	0,053	0,0045
Rerata					0,0045

Tabel 3. menunjukkan bahwa kandungan radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  dalam larutan standar NIST (12,5  $\mu\text{L}$ ) sebesar 0,0045  $\mu\text{g}$ .

Penentuan rekoveri maksimum dari proses penggendapan  $\text{CsClO}_4$  dilakukan melalui pengukuran aktifitas  $^{137}\text{Cs}$  dalam

endapan  $\text{CsClO}_4$  dan supernatan dengan variasi berat *carrier*  $\text{CsNO}_3$ . Hasil perhitungan dari kandungan radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  dan % rekoveri dalam endapan  $\text{CsClO}_4$  ditunjukkan pada Gambar 3.



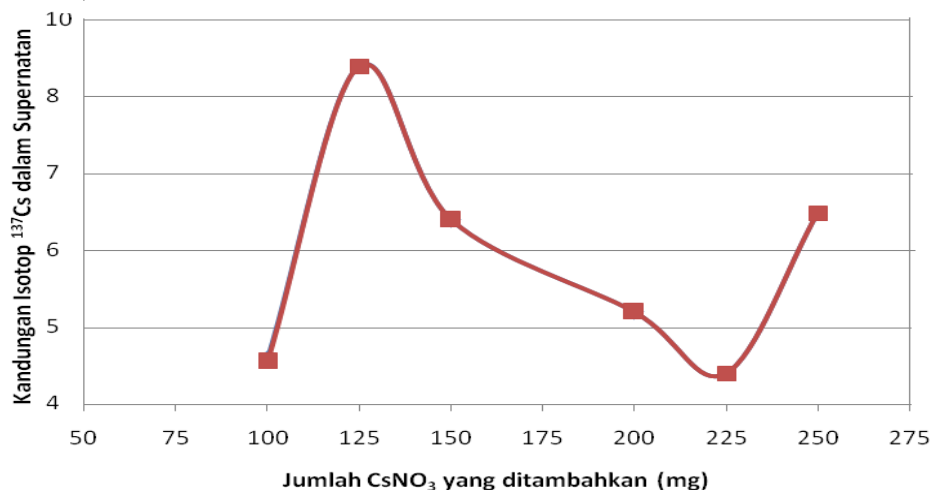
Gambar 3. Pengaruh penambahan  $\text{CsNO}_3$  terhadap kandungan  $^{137}\text{Cs}$  dan rekoveri penggendapan (%).

Gambar 3. menunjukkan bahwa jumlah kandungan  $^{137}\text{Cs}$  meningkat secara signifikan pada penambahan senyawa pembawa ( $\text{CsNO}_3$ ) lebih besar dari 125 mg dan maksimum pada penambahan  $\text{CsNO}_3$  sebanyak 225 mg. Penambahan  $\text{CsNO}_3$  dalam kisaran 100 mg dan 125 mg tidak begitu memperlihatkan peningkatan rekoveri  $^{137}\text{Cs}$ , hal ini karena jumlah  $\text{CsNO}_3$  yang ditambahkan belum cukup untuk dapat

mengadsorpsi  $^{137}\text{Cs}$  yang ada dalam sampel. Pada penambahan  $\text{CsNO}_3$  lebih besar dari 250 mg, nilai rekoveri menurun menjadi 76,47%. Kondisi ini dimungkinkan karena pada penambahan  $\text{CsNO}_3$  sebanyak 250 mg menyebabkan terjadinya kompetisi antara  $^{137}\text{Cs}$  aktif dengan  $\text{Cs}$  tidak aktif. Adanya kompetisi tersebut menyebabkan penurunan  $\text{Cs}$  aktif yang ikut dalam

pengendapan  $\text{CsClO}_4$ . Fakta ini didukung juga oleh data hasil pengukuran radionuklida

$^{137}\text{Cs}$  dalam supernatan, yang dapat dilihat pada Gambar 4.



Gambar 4. Pengaruh jumlah  $\text{CsNO}_3$  terhadap kandungan radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  dalam supernatant.

Gambar 4. menunjukkan bahwa jumlah radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  dalam supernatan hasil pencucian endapan  $\text{CsClO}_4$  pada penambahan  $\text{CsNO}_3$  250 mg lebih besar dari pada dalam supernatan hasil pencucian endapan dengan 225 mg  $\text{CsNO}_3$ . Hal ini disebabkan karena jumlah  $^{137}\text{Cs}$  yang mengendap pada penambahan  $\text{CsNO}_3$  sebanyak 225 mg lebih banyak dari pada penambahan  $\text{CsNO}_3$  250 mg. Berdasarkan kondisi ini maka dapat disimpulkan bahwa rekovery maksimum dari

endapan Cs diperoleh pada penambahan  $\text{CsNO}_3$  sebanyak 225 mg.

Berdasarkan perhitungan stoikiometri dari reaksi pengendapan  $\text{CsNO}_3$  dan  $\text{HClO}_4$  serta data kelarutan endapan  $\text{CsClO}_4$  sebesar 8,0 mg/ml pada  $0^\circ\text{C}$  dengan pengambilan derajat kepercayaan 95% atau kesalahan analisis sekitar  $2\sigma$  maka penambahan senyawa  $\text{CsNO}_3$  sampai dengan berat 250 mg masih mampu mengendapkan Cs lebih banyak, seperti yang terlihat pada Tabel 4.

Tabel 4. Data rekovery pengendapan  $\text{CsClO}_4$  berdasarkan teori dan percobaan.

Penambahan $\text{CsNO}_3$ (mg)	Rekovery pengendapan $\text{CsClO}_4$ (%)	
	Teori	Percobaan
100	75,18	62,22
125	84,12	62,22
150	89,42	71,11
200	88,09	77,78
225	89,42	83,87
250	90,47	76,47



Adanya perbedaan nilai rekoveri pengendapan (%) secara perhitungan teori dan percobaan, kemungkinan disebabkan oleh beberapa faktor antara lain adanya Cs yang hilang dalam proses pencucian yang memungkinkan terjadinya proses pelarutan  $\text{CsClO}_4$  oleh bahan pencuci. Faktor lainnya disebabkan temperatur pada proses pengendapan sulit dipertahankan, tetapi bila dilihat dari pengaruh temperatur terhadap tingkat kelarutan  $\text{CsClO}_4$ , maka kenaikan temperatur tidak banyak berpengaruh pada proses pengendapan tersebut. Pengaruh

sifat polaritas bahan pencuci endapan  $\text{CsClO}_4$  dipelajari dengan memvariasi larutan pencuci etanol dan acetone yang memiliki polaritas berbeda, yang ditunjukkan oleh nilai konstanta dielektrik masing-masing sebesar 20,7 dan 24,3. Perbedaan polaritas tidak terlalu besar namun kedua larutan ini relatif aman bagi keselamatan pekerja laboratorium. Hasil pengukuran  $^{137}\text{Cs}$  yang terdapat dalam endapan  $\text{CsClO}_4$  setelah dicuci dan dalam supernatan berupa cacahan per detik (cps) seperti yang tercantum pada Tabel 5.

Tabel 5. Jumlah cacah radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  dalam endapan  $\text{CsClO}_4$  dan supernatan.

Bahan pencuci	Endapan $\text{CsClO}_4$			2 mL Supernatan		
	Berat (g)	Cacah $^{137}\text{Cs}$	Cacah/g endapan	Berat (g)	Cacah $^{137}\text{Cs}$	Cacah/g larutan
Aseton	0,251	69752 ± 266	277896,4	2,3205	572 ± 41	246.5
Aseton:Etanol						
9 : 1	0,2465	68266 ± 267	276941,2	1,9688	480 ± 38	243.8
8 : 2	0,2408	66436 ± 260	275897,0	2,2986	556,5 ± 37	242.1
7 : 3	0,2475	65502 ± 262	272735,4	2,2666	573 ± 38	252.8
6 : 4	0,2487	67342 ± 263	270776,0	2,1788	552,5 ± 37,3	253.6
5 : 5	0,2478	66488 ± 251	268313,2	1,9103	488,5 ± 38	255.7
4 : 6	0,2803	66323 ± 263	236614	1,9034	493,1 ± 23	256,4

Pada Tabel 5. terlihat bahwa nilai cacah  $^{137}\text{Cs}$  dalam endapan  $\text{CsClO}_4$  setelah dicuci dengan aseton maupun campuran aseton dan etanol cenderung menurun namun tidak signifikan. Fenomena yang sama juga terlihat pada kandungan  $^{137}\text{Cs}$  dalam supernatan, kecuali pada cacahan  $^{137}\text{Cs}$  dalam supernatant dengan perbandingan aseton/etanol hingga 7:3 cenderung meningkat tetapi tidak signifikan.

Hal ini menunjukkan bahwa perbedaan polaritas aseton dan etanol sebesar 3,6 atau 0,4 pada setiap penambahan etanol sebesar 10% volume

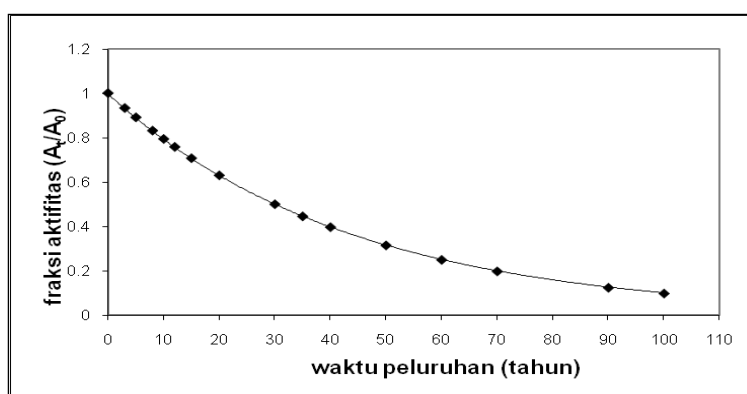
(seperti yang terlihat pada Tabel.7) tidak begitu banyak berpengaruh terhadap besarnya kandungan  $^{137}\text{Cs}$  dalam supernatant. Berdasarkan fakta tersebut maka pencucian endapan menggunakan aseton dan etanol dengan perbandingan 1:1 cukup efektif dengan rekoveri pengendapan  $\text{CsClO}_4$  maksimum dicapai 83,87%. Nilai konstanta dielektrik pada Tabel.6 diperoleh dari hasil perhitungan penjumlahan dari fraksi volume dikalikan dengan nilai konstanta dielektrik aseton (20,7) dan etanol (24,3)<sup>[8]</sup>.

Tabel 6. Hubungan polaritas terhadap kandungan  $^{137}\text{Cs}$  dalam supernatan.

Bahan pencuci	Konstanta dielektrik	Kandungan $^{137}\text{Cs}$ dalam supernatant cacahan/g larutan
Aseton	20	246.5
Perbandingan aseton/etanol :		
9:1	20.4	243.8
4:1	20.8	242.1
7:3	21.2	252.8
3:2	21.6	253.6
1:1	22	255.7
2:3	22.4	259,3

Data tersebut kemudian digunakan pada pemisahan Cs dari larutan PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$  pasca iradiasi. Larutan PEB tersebut merupakan hasil dari proses pelarutan PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$  TMU  $2,96\text{ gU/cm}^3$  yang telah keluar reaktor 15 tahun lalu. Berdasarkan perhitungan secara teori dengan menggunakan data-data iradiasi dan pendinginan diperoleh kandungan

radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  sebanyak  $593\text{ }\mu\text{g/g}$ . Koreksi peluruhan  $^{137}\text{Cs}$  terhadap waktu, maka dalam waktu 15 tahun kandungan radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  yang tersisa dalam bahan bakar pasca iradiasi secara teoritis sekitar 80%, seperti yang terlihat pada Gambar 5, sehingga kandungan radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  saat ini diprediksi sebesar  $474,75\text{ }\mu\text{g/g}$ .



Gambar 5. Kurva peluruhan radionuklida  $^{137}\text{Cs}$ .

Pemisahan radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  di dalam PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$  pasca iradiasi menggunakan metode pengendapan dilakukan secara duplo dengan kode sampel adalah larutan 1 dan larutan 2 sebanyak  $150\text{ }\mu\text{L}$  atau  $0,154\text{ g}$  di dalam  $2\text{ mL H}_2\text{O}$  kemudian di tambahkan serbuk  $\text{CsNO}_3$  sebanyak  $225\text{ mg}$  sebagai senyawa pembawa dan  $\text{HClO}_4$ . Endapan  $\text{CsClO}_4$  yang terbentuk kemudian diukur menggunakan spektrometer gamma.

Pengukuran dilakukan dengan waktu cacah  $1500$  detik dan jarak detektor dengan sampel  $25\text{ cm}$ . Hasil analisis radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  di dalam  $150\text{ }\mu\text{L}$  PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$  pasca iradiasi telah di hitung berdasarkan berat PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$  pasca iradiasi. Data aktivitas dan kandungan radionuklida  $^{137}\text{Cs}$  dalam larutan PEB  $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$  pasca iradiasi dengan berat  $0,036\text{ g}$  yang diperoleh dengan menggunakan metode pengendapan  $\text{CsClO}_4$  tercantum pada Tabel 7.

Tabel 7. Kandungan Radionuklida <sup>137</sup>Cs dalam Endapan CsClO<sub>4</sub>.

Sampel	Cacah	Cps	Yield	Eff detektor	Aktivitas (Bq/g)	N=A/λ	W (μg)	Kandungan <sup>137</sup> Cs dlm 0,036 g PEB(μg/g)
Latar	407	0,0814						
Larutan 1	21416	14,273	0,851	0,047	31473,98	4,9E+13	0,0111	444
Larutan 2	21258	14,172	0,851	0,047	31292,82	4,8E+13	0,0110	439
Rerata					31383,40		0,0111	(4,415 ± 0,035) x 10 <sup>2</sup>

Tabel 7. menunjukkan bahwa kandungan radionuklida <sup>137</sup>Cs di dalam PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al pasca iradiasi dengan dimensi 3 x 3 x 1,37 mm<sup>3</sup> (berat 0,036 g) diperoleh sebesar (4,415±0,035) 10<sup>2</sup> μg/g. Hasil analisis berbeda sekitar 6,9% dengan data perhitungan secara teoritis yaitu 474,75 μg/g.

## SIMPULAN

Metode pengendapan CsClO<sub>4</sub> dengan bahan pembawa CsNO<sub>3</sub> pada pemisahan radionuklida <sup>137</sup>Cs dari larutan PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al pasca iradiasi cukup efektif dengan rekoveri sebesar 83,87%. Kondisi ini diperoleh pada parameter optimum proses pengendapan yaitu jumlah senyawa pembawa CsNO<sub>3</sub> sebanyak 225 mg dan bahan pencuci endapan CsClO<sub>4</sub> berupa campuran aseton dan etanol dengan perbandingan volume 1:1. Proses pengendapan dilakukan pada temperatur 0 °C dalam penangas es selama satu jam. Dengan menggunakan kondisi optimum diperoleh kandungan radionuklida <sup>137</sup>Cs dalam potongan PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al pasca iradiasi dengan dimensi 3 x 3 x 1,73 mm<sup>3</sup> (atau dalam PEB U<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Al seberat 0,036 g) yaitu sebesar (4,415±0,035) x 10<sup>2</sup> μg/g. Bias akurasi dan presisi pengukuran radionuklida <sup>137</sup>Cs dengan menggunakan spektrometer gamma pada energi 661,8 keV masing-masing sebesar 0,542% dan 1,119%.

## DAFTAR PUSTAKA

- [1]. Anonim. (2005). Analysis of Nuclear Fuel Burn Up and Spent Fuel, Key Nuclides, Scientific Report. URL <http://www.sckcen.be, Radiochemica>.
- [2]. Jungsuk Kim, Young Skin Jeon. (2008). Burn Up Determination Of High Burn Up PWR Fuel By Nd And Cs Isotope Monitor Methods Based On Isotope Dilution Mass Spectrometre Measurement, Nuclear Chemistry research Division Korea Atomic Energy Research Institute, IKAERI/GP-272/2008, Korea.
- [3]. American Standard Test Methods. (2000). Standard Test Methods for Cesium-137 in Nuclear Fuel Solutions by Radiochemical Analysis, Standard Test Method For Nuclear Material, ASTM E 692-79, USA, Vol 12.2.
- [4]. Anonim. (n.d). Hygroscopic Crystal in Solid State Soluble in Water and Alcohol. URL <http://www.hygroscopic crystal in solid state soluble in sater and alcohol>.
- [5]. Anonim. (n.d). Enviromental Protection Agency Bulletin, Wikipedia, Cesium 137.
- [6]. Wisnu Susetyo. (1988). Spektrometer Gamma. Gajah Mada University Press.
- [7]. Robert L. Anderson. (1987). Practical Statistics For Analytical Chemist. Van

- 
- Nostrand Reinhold Company, New York.
- [8]. Anonim. (n.d). Liquid Dielectric Constant. URL <http://www.engineeringtoolbox.com/liquid-dielectric-constant/html>.
- [9]. Jung Suk Kim, Young Skin Jeon. (2006). Dissolution and Burn Up Determination of Irradiated U-Zr Alloy Nuclear Fuel by Chemical Methods. Korea Atomic Energy Research Institute.
- [10]. R.I.Dobrin, T, Craciunescu, and M. Pavelescu. (2010). Candu and Triga Fuel Burn-up Determination Using Axial and Tomographic Gamma Scanning. Institute for Nuclear Research Pitesti, P.O.Box 78, Campului Str.1, Mioveni, Rumania.
- [11]. S. Amini. (2009). Isolasi Isotop Cs Dari Pasca Iradiasi Elemen bakar Nuklir, Laporan Akhir kegiatan block grand Dikti, Pusat Teknologi bahan Nuklir-BATAN, Serpong.
- [12]. Roberth Perry Don Dreen. (1984). Perry's Chemical Engineer's Hand Book, Sixth Edition, Mc Graw Hill.