

PENENTUAN ISOTOP ^{137}Cs DAN UNSUR Cs DALAM LARUTAN AKTIF CsNO_3

Dian Anggraini⁽¹⁾, Rosika Kriswarini⁽¹⁾

1. Pusat Teknologi Bahan bakar Nuklir-BATAN
Kawasan Puspipetek, Serpong, Tangerang

ABSTRAK

PENENTUAN ISOTOP ^{137}Cs DAN UNSUR CS DALAM LARUTAN SAMPEL STANDAR AKTIF CsNO_3 Telah dilakukan penelitian penentuan isotop ^{137}Cs dan unsur Cs dalam larutan aktif CsNO_3 dengan tujuan untuk identifikasi unsur Cs serta isotopnya yang terkandung dalam larutan yang diragukan komposisi atau labelnya. Aktivitas dan konsentrasi ^{137}Cs dari larutan sampel standar aktif CsNO_3 yang berada di Laboratorium Kimia Fisika di BPR, PTBN ditentukan dengan cara mengukur cacahan gamma dari isotop Cs menggunakan spectrometer- α , dan dengan penambahan 50 mg CsNO_3 pro-analisa sebagai standar pembanding untuk mendapatkan rekoveri unsur Cs dalam larutannya sesuai dengan metode standar ASTM E692-00 dan ASTM E320-79. Dari hasil kegiatan ini diharapkan komposisi larutan teridentifikasi secara jelas sehingga larutan aktif CsNO_3 dapat dimanfaatkan untuk kegiatan selanjutnya. Prinsip dasar metode ini adalah pengendapan isotop ^{137}Cs melalui Cs-carrier sebagai pembawa dalam proses pengendapan pada temperatur dibawah 4°C , sebagai CsClO_4 dari reaksi CsNO_3 dengan asam perklorat. Dari cara ini diduga rekoveri Cs dari larutan baku CsNO_3 dapat diperoleh sempurna pada batas penyimpangan 10-16% berdasarkan perhitungan kelarutan CsClO_4 yang pada temperatur 0°C adalah 8 mg/mL.^[1] Nilai aktivitas ^{137}Cs ditentukan dari pengukuran cacahan endapan CsClO_4 menggunakan spektrometer- γ . Hasil analisis menunjukkan bahwa rekoveri Cs sekitar 85,42 % dengan presisi metode 0,79 %, masih berada di antara batas penyimpangan yang dikehendaki. Rekoveri dan presisi metode tersebut juga di dalam batas nilai acuan dari ASTM yaitu antara 60-90%, sehingga hasil analisis tersebut dapat diterima. Hasil penentuan konsentrasi Cs-non aktif yang terkandung dalam larutan sampel standar aktif CsNO_3 adalah 0,0817 g/mL atau 0,0782 g Cs/g-larutan, sedangkan isotop Cs yang ada dalam larutan tersebut hanya ada ^{137}Cs dengan konsentrasi keaktifan ^{137}Cs sebesar $607,00 \pm 57,01$ Bq/mL atau $650,13 \pm 57,56$ Bq/g larutan.

Kata kunci : Penentuan isotop, pengendapan, spektrometri- α , ^{137}Cs , CsClO_4 .

ABSTRACT

^{137}Cs AND Cs ELEMENT DETERMINATION IN ACTIVE CsNO_3 SAMPLE STANDARD. The analyses of isotop Cs and Cs element in an unknown active solution of CsNO_3 has been carried out with the main goal of identification of Cs element and that contained isotopes. The unknown active solution of CsNO_3 was available in the Physical Chemistry Laboratory-Radiometalurgy Development Division (BPR)-at the Centre for Nuclear Fuel Technology (PTBN). The Cs isotope activity and Cs-non active concentration were determined by spectrometry- α and using Cs-carrier addition of 50 mg CsNO_3 p.a. as a reference standard to recover Cs from the solution according to the standard

methods of ASTM E692-00 and ASTM E320-79. From this analysis is expected that the Cs composition can be identified along with its concentration clearly for the other experimental usage. The principle of method is the Cs-isotope precipitation along with Cs-carrier at the temperature of 4°C as CsClO₄ as a result of CsNO₃ with perchloric acid reaction. The Cs precipitated from CsNO₃ standard solution is hypothesized to be completely recovered within the discrepancies of 10-16% that is based on the CsClO₄ solubility i.e. 8 mg/mL at temperature of 0°C. The ¹³⁷Cs activity was determined using spectrometer-α by measuring of ¹³⁷Cs counts in form of CsClO₄ precipitate. The results showed that Cs recovery was 85.42% with the precision of method of 0.79% was appropriate within the expected discrepancies values. This value was also in agreement under the reference ASTM limit acceptable value which is 60% to 90%. The determination of unknown concentration of CsNO₃ active solution results the Cs concentration is 0.0817g/mL or 0,0782 g of Cs/g-solution, and the ¹³⁷Cs activity is 607,00± 57,01 Bq/mL or 650,13 ± 57,56 Bq/g of solution

Key words: Isotope-¹³⁷Cs, CsClO₄, determination, precipitation.

PENDAHULUAN

Uji pasca irradiasi elemen bakar nuklir secara kimia di Bidang Pengembangan Radiometalurgi-PTBN-BATAN antara lain meliputi penentuan fraksi bakar bahan fisil ²³⁵U dari bahan bakar reaktor riset maupun reaktor daya. Penentuan nilai fraksi bakar berdasarkan pada atom fisil ²³⁵U yang terbakar (serta koreksi dari atom fertil ²³⁸U yang dapat bakar dan menghasilkan atom-atom berat lainnya maupun reaksi fisi) juga diperoleh dari angka banding isotop-isotop hasil fisi. Isotop hasil fisi yang dihasilkan dari reaksi fisi U₃O₈ neutron termal dengan ²³⁵U diantaranya adalah ¹³⁷Cs (6,3%) dan ¹³⁴Cs (7,68%) sebagai hasil aktivasi ¹³³Xe (6,8%) yang juga dihasilkan dari proses fisi. Isotop Cs tersebut digunakan sebagai salah satu cara untuk menentukan fraksi bakar ²³⁵U karena isotop ¹³⁷Cs memiliki umur paruh yang panjang (30,13 tahun) dan tidak tergantung pada parameter lain yang terpisah dari spektrum neutron sehingga nilai angka banding ¹³⁴Cs/¹³⁷Cs akan berbanding lurus dengan fluks neutron yang mengiradiasi elemen bakar^[2]. Data tersebut selanjutnya akan digunakan sebagai asupan dalam mendesain pengembangan bahan bakar nuklir.

Penentuan isotop ¹³⁷Cs dalam bahan bakar nuklir pasca irradiasi mengacu pada metode standar ASTM - E320-79^[3] dan E692-00^[4]. Prinsip dasar dari kedua metode di atas adalah proses pemisahan Cs melalui proses pengendapan sebagai CsClO₄. Dalam proses diperlukan penambahan bahan CsNO₃ atau CsCl sebagai bahan *carrier* dengan tujuan agar isotop ¹³⁷Cs yang jumlahnya tidak banyak sedapat mungkin dapat terbawa dalam larutan non-aktif serta dapat dianalisis secara kuantitatif. Persamaan reaksi yang terjadi adalah :



Endapan CsClO₄ yang diperoleh dari reaksi di atas memiliki daya larut pada temperatur 25°C sebesar 1.974 g/ 100 mL dan pada temperatur 0°C sebesar 0.8 g / 100 mL ^[1]. Hal ini menunjukkan bahwa pada temperatur 0°C jumlah CsClO₄ yang terlarut lebih rendah dari pada temperatur kamar sehingga dimungkinkan pada temperatur rendah proses pengendapan CsClO₄ akan lebih sempurna. Fenomena tersebut menjadikan dasar dalam metode ini yang menetapkan kondisi proses pengendapan dalam analisis isotop ¹³⁷Cs pada temperatur rendah (0°C atau di bawah titik beku air yaitu 4°C).

Dalam metode tersebut analisis dilakukan menggunakan bahan *carrier* CsNO_3 dalam jumlah sekitar 50 mg. Jumlah penambahan CsNO_3 akan berpengaruh terhadap besaran rekoveri Cs, yang selanjutnya pada penentuan jumlah Cs dan ^{137}Cs dalam sampel. Berdasarkan ASTM [3] diterangkan bahwa nilai rekoveri bervariasi dari 60% sampai dengan 90%. Untuk mengetahui nilai rekoveri Cs pada penambahan 50 mg CsNO_3 maka pada kegiatan ini akan dilakukan analisis terhadap larutan aktif CsNO_3 yang tidak diketahui konsentrasinya dengan jelas, dengan pembandingan bahan baku CsNO_3 p.a. Larutan aktif CsNO_3 ini berada di laboratorium Kimia Fisika, Bidang Pengembangan Radiometalogi dalam waktu cukup lama sehingga identifikasi/labelnya diragukan. Larutan ini merupakan sisa larutan standar ^{137}Cs dari kegiatan analisis sebelumnya. Label wadah mencantumkan komposisi larutan yang terdiri dari 0.1016g larutan standar ^{137}Cs dan 3,6651g CsNO_3 dengan volume larutan semula diduga ada 50mL. Untuk memastikan identifikasi larutan tersebut maka pada kegiatan ini dilakukan analisis dengan dua tahapan yaitu penentuan rekoveri Cs melalui perhitungan jumlah Cs pembandingan standar sebelum dan sesudah proses pengendapan, kemudian nilai rekoveri tersebut digunakan sebagai faktor koreksi dalam tahapan berikutnya pada penentuan kandungan Cs dan ^{137}Cs . Dari hasil kegiatan analisis ini diharapkan dapat diketahui secara jelas komposisi larutan sampel standar aktif CsNO_3 tersebut agar dapat dimanfaatkan kembali sebagai bahan standar dalam analisis ^{137}Cs berikutnya.

TATA KERJA

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah serbuk standar CsNO_3 sebagai bahan *pembawa*, larutan standar aktif Cs NO_3 yang mengandung isotop ^{137}Cs dan unsur CsNO_3 dan bahan standar isotop ^{137}Cs - CRM 4233C-26. Sebagai bahan

pembandingan, bahan CsNO_3 dibuat duplo dengan berat masing-masing sebesar 0.0528 g dan 0.0585 g dilarutkan dengan HNO_3 1,5M volume 2 mL. Kemudian diukur dengan spektrometer gamma sebagai koreksi latar. Setelah itu dilakukan perlakuan sesuai dengan prosedur seperti yang tertuang dalam ASTM E692-00 dan E320-79, melalui cara pengendapan sebagai CsClO_4 dan diukur cacahannya menggunakan alat spektrometer- γ . Hasil dari perlakuan terhadap Cs-standar, selanjutnya digunakan sebagai pembandingan, jumlah endapan CsClO_4 yang terbentuk secara teoritis dapat dihitung dan dibandingkan dengan hasil percobaan yang selanjutnya dievaluasi untuk menghitung rekoveri metode.

Sebagai bahan *carrier*, ditambahkan serbuk CsNO_3 sebanyak 50 mg ke dalam larutan standar aktif CsNO_3 dan larutan standar isotop Cs-137 CRM 4233C-26 dengan volume masing-masing larutan tersebut sebesar 2 mL dan dibuat duplo. Selanjutnya, larutan didinginkan menggunakan penangas-es sehingga temperatur percobaan diharapkan 0°C sesuai prosedur, kemudian ditambahkan HClO_4 pekat sebanyak 1 mL dan dibiarkan sampai proses endapan CsClO_4 menjadi sempurna. Pengerjaan selanjutnya dilakukan sentrifugasi selama 5 menit, pemisahan supernatant dari endapan dengan menggunakan pipet, supernatant dimasukkan ke tabung reaksi yang kosong. Endapan dicuci dengan alkohol dan terakhir dengan dietil-eter, hasil cucian dipisahkan dalam tabung/bejana terpisah. Endapan dikeringkan pada temperatur kamar, lalu ditimbang dan dicacah dengan menggunakan alat spektrometer gama.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Penentuan isotop ^{137}Cs meliputi penentuan rekoveri metode pengendapan dan pengukuran isotop ^{137}Cs . Perhitungan rekoveri metode dilakukan melalui perbandingan berat endapan CsClO_4 yang dihitung

secara teoritis dengan berat endapan CsClO_4 dari hasil percobaan. Data hasil perhitungan

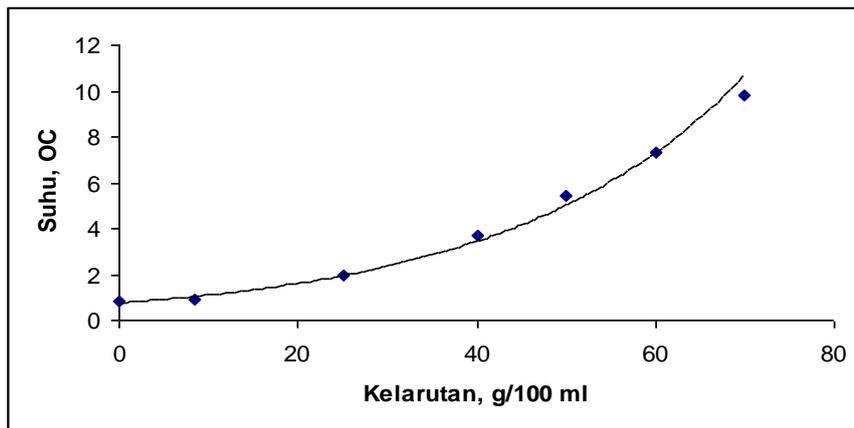
tersebut dapat dilihat pada Tabel 1.

Tabel 1. Data berat endapan CsClO_4 (g) dari perhitungan teori dan percobaan

Berat, g CsNO_3	Berat Endapan CsClO_4 (teoritis), g	Berat endapan CsClO_4 (percobaan), g	Berat yang hilang, g	% Rekoverti metode
0.0528	0.0603	0.0512	0,0091	84,87
0.0585	0.0664	0.0571	0,0093	85,98
Hasil rerata berat yang hilang = 0,0092 g				85,42% \pm 0,79%

Berat endapan CsClO_4 secara teori dihitung berdasarkan stoikiometri persamaan reaksi (1) yaitu 1g CsNO_3 akan menghasilkan endapan CsClO_4 sebanyak 1,923 g. Berdasarkan temperatur proses yang makin rendah.^[1] Berdasarkan pustaka tersebut ditunjukkan bahwa kelarutan CsClO_4 pada temperatur 0°C sebesar 0.008 g/mL (Pada percobaan ini volume larutan sekitar 3 mL sehingga jumlah CsClO_4 yang terlarut pada temperatur 0°C sebesar 0.024 g. Kalau

ditinjau dari berat CsClO_4 dengan penimbangan secara optimal antara 0,15g hingga 0,2 g, maka kehilangan CsClO_4 atau penyimpangan hasil dari cara tersebut adalah antara 10-16%. Namun, dari percobaan diperoleh kehilangan berat CsClO_4 lebih kecil dari 0.024 g yaitu sebesar 0.0092 g. Berdasarkan fakta tersebut maka nilai kelarutan CsClO_4 sebesar 0.0092 g/mL kemungkinan terjadi pada temperatur lebih rendah dari 0°C .



Gambar.1. Hubungan kelarutan CsClO_4 dengan temperature

Jumlah CsClO_4 yang terlarut tersebut diduga terambil pada waktu proses pemisahan supernatant dengan endapan. Berdasarkan ASTM, nilai rekoveryi proses pengendapan Cs berada dalam kisaran 60% sampai 90% sehingga nilai rekoveryi metode yang didapat dari kegiatan ini masih memenuhi kriteria penerimaan. Besaran presisi metode ditunjukkan oleh nilai *relative standard deviation* (RSD), yang diperoleh dari nilai rata-rata hasil analisis dibagi standar deviasi, dari percobaan ini diperoleh sebesar 0,79%. Nilai tersebut masih memenuhi

kriteria karena berada dibawah nilai acuan ASTM sebesar 1,7 %^[3].

Untuk menentukan jumlah CsNO_3 dalam larutan aktif CsNO_3 dihitung berdasarkan jumlah endapan CsClO_4 yang terbentuk. Jumlah endapan CsClO_4 ditentukan dari selisih berat endapan yang terbentuk dengan jumlah kandungan CsNO_3 yang dihitung secara teoritis. Sementara itu, berat CsNO_3 dalam larutan aktif diperoleh dari berat CsClO_4 dikali faktor rekoveryi sesuai yang tercantum pada Tabel 1 dan hasil perhitungan tersebut seperti yang dituangkan pada Tabel 2.

Tabel 2. Data Berat Endapan CsClO_4 , CsNO_3 dan ^{137}Cs dalam Larutan Standar Aktif CsNO_3

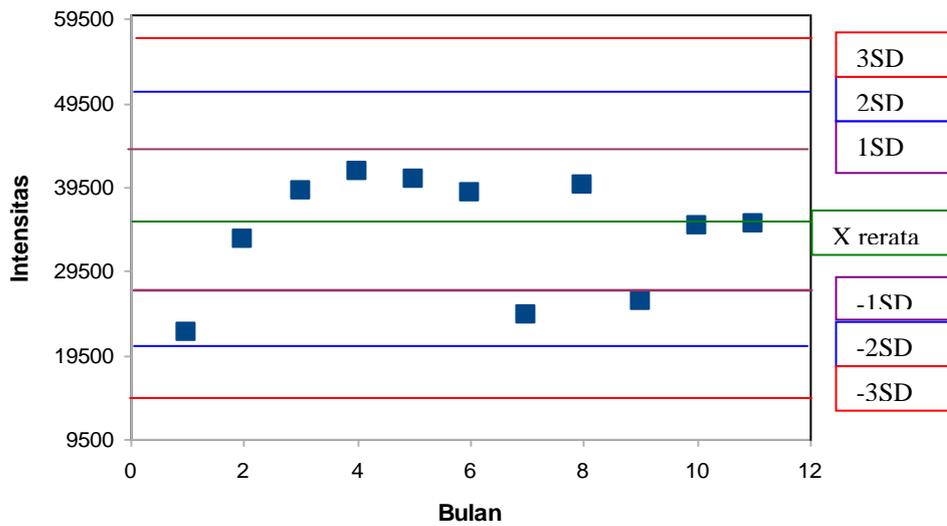
No.	Berat Standar CsNO_3 Yang ditambahkan.	Berat Endapan CsClO_4 yang terbentuk	Berat CsClO_4 (Teori)	Berat CsClO_4 Dalam Larutan Aktif.	Berat CsNO_3 Dalam Larutan aktif CsNO_3
1	0.0528	0.2406	0.0538	0.1868	0.1567
2	0.0585	0.2623	0.0596	0.2027	0.1700
Rata-rata					$0.1634 \pm 0,0094$
RSD					0,0577

Pada Tabel 2 tersebut terlihat bahwa berat CsNO_3 dalam larutan aktif 2 mL sebanyak 0.1634 g ($0,0817 \pm 0,0047$ g/mL) atau 4,085 g dalam volume 50 mL. Sedangkan dari label tercantum 3.6651 g dalam larutan dengan volume sekitar 50 mL (tidak diukur secara tepat) atau sekitar 0.0733 g/mL. Perbedaan berat ini dimungkinkan karena volume larutan aktif tidak diukur secara akurat, hanya dari pengamatan secara visual sehingga kemungkinan volume larutan aktif lebih rendah 50 mL

Penentuan aktivitas isotop ^{137}Cs dilakukan dengan menggunakan spektro-

meter gamma, dari energi gamma secara kualitatif dapat ditunjukkan bahwa di dalam larutan sampel standar, hanya ada ^{137}Cs . Dalam penggunaan alat spektrometer gamma terlebih dahulu dilakukan kalibrasi energi. Kalibrasi energi dilakukan dengan menggunakan sumber standar Co-60 yang memiliki dua energi yaitu 1173,24 keV dan 1332,5 keV dalam waktu 1000 detik. Hasil cacahan Co- 60 pada energi 1173,24 Kev sebesar 34970. Nilai tersebut bila di plotkan pada *Qontrol Chart* seperti terlihat pada Gambar 2 masih dalam distribusi normal yaitu pada nilai simpangan lebih kecil dari 1- SD pada batas kepercayaan di atas 95%.

Kalibrasi Co-60 E=1773.24 keV



Gambar.2 Qontrol Chart cacahan bahan standar Co-60

Besaran presisi pengukuran dan metode dilakukan dengan pengukuran cacahan dari larutan standar ^{137}Cs - CRM sebanyak 50 μl (duplo) dan diencerkan dengan larutan HCl 1M sampai volume 2 mL. Kemudian larutan tersebut dicacah dengan menggunakan spektrometer gamma. Hasil cacahan dari kedua larutan tersebut tercantum pada Tabel 3.

Pada Tabel 3. terlihat bahwa presisi pengukuran berada dibawah nilai simpangan baku 2 SD atau dalam batas daerah kepercayaan 95% sehingga masih dalam daerah yang dapat diterima. Nilai aktivitas larutan aktif CsNO_3 diperoleh dari nilai rerata cacahan per detik dengan nilai rerata cacahan larutan standar serta aktivitas

standar larutan isotop ^{137}Cs - CRM 4233C-26, menggunakan rumus ^[5]:

$$A_1 = (C_1 / C_{\text{standar}}) \times A_0 \dots\dots\dots(2)$$

- dengan :
- A1 = Aktivitas larutan CsCNO_3
 - Ao = Aktivitas larutan ^{137}Cs standar CRM pada bulan November tahun 2008 sebesar 2281 \pm 122 Bq/g atau 2329 \pm 113 Bq/mL
 - C1 = Cacahan dari pengukuran larutan CsNO_3
 - C_{standar} = Cacahan dari pengukuran larutan standar isotop ^{137}Cs CRM 4233 C-26

Tabel 3. Data hasil pencacahan larutan standar CRM ^{137}Cs dan larutan aktif CsNO_3

Jenis Larutan	Berat (g)		Cacahan per detik				
	Berat 50 μL larutan induk	Berat larutan dalam 2 mL HCl 1M	1	2	3	Rerata	RSD (%)
Standar ^{137}Cs Standar CRM (1)	0,0514	2,0356	377.13	376.27	376.35	376.58	0.13
Standar ^{137}Cs Standar CRM (2)	0,048	2,0501	340.87	339.05	340.996	340.31	0.32
Larutan Aktif CsNO_3	-	2,142	20.298	19.756	20.086	20.047	1.13

Dari hasil perhitungan diperoleh aktivitas rata-rata isotop ^{137}Cs dari pengukuran duplo sebesar $606 \text{ Bq/g} \pm 57,01$ larutan atau $650,13 \pm 57,56 \text{ Bq/mL}$, sedangkan konsentrasi ion Cs-carrier dalam larutan aktif tersebut adalah $0,0817\text{g/mL}$ dengan pengabaian jumlah isotop ^{137}Cs yang terdapat didalam larutan sebanyak $0,000041 \mu\text{g}$ ($41 \text{ pg } ^{137}\text{Cs}$) dalam volume 1 mL larutan. Penggunaan satuan konsentrasi aktifitas dari larutan yaitu $607,00 \pm 57,01 \text{ Bq/g}$ larutan maupun $650,13 \pm 57,56 \text{ Bq/mL}$, tidak berbeda signifikan, setelah dibuktikan oleh uji $t_{hitung,2,\infty} = 1,31$ yang masih lebih kecil daripada nilai $t_{tabel} = t_{0,05/2,\infty} = 1,96$, sehingga data tersebut dapat diterima pada batas kepercayaan 95%.

SIMPULAN

Penentuan isotop ^{137}Cs yang telah dilakukan sesuai dengan metode standar ASTM-E692-00 dan E320-79, mempunyai

penyimpangan sekitar 14,58% dari hasil teoritis yang diharapkan (100%). Parameter analisis yaitu rekovery metoda diperoleh sebesar 85,42%, sedangkan presisi metode sebesar 0,79%. Hasil verifikasi data, ternyata nilai rekovery metoda yaitu $85,42\% \pm 0,79\%$ itu masih dapat diterima sesuai dengan batas ketelitian ASTM yang berada antara 60%-90%.

Hasil analisis larutan aktif CsNO_3 menunjukkan bahwa komposisi larutan aktif CsNO_3 mengandung CsNO_3 dan hanya isotop ^{137}Cs dengan konsentrasi aktivitas isotop ^{137}Cs sebesar $607,00 \pm 57,01 \text{ Bq/mL}$ atau $650,13 \pm 57,56 \text{ Bq/g}$ larutan, sedangkan konsentrasi ion Cs-carrier dalam larutan aktif tersebut adalah $0,0817\text{g/mL}$.

DAFTAR PUSTAKA

1. <http://www.> "Hygroscopic Crystal in Solid State Soluble in Water and Alcohol", di akses Desember 2008.
2. SITI AMINI, "Penentuan Burn Up Bahan Bakar Dispersi U₃O₈-Al", Laporan Teknis, PTBN- BATAN, 2007.
3. AMERICAN STANDARD TEST METHODS, ASTM-E 320-79, "Standard Test Methods for Cesium-137 in Nuclear Fuel Solutions by Radiochemical Analysis", Standard Test Method For Nuclear Material, USA, Vol. 12.1,1990.
4. AMERICAN STANDARD TEST METHODS, ASTM-E 692-00, "Standard Test Methods for Determining the Content of Cesium-137 in Irradiated Nuclear Fuels by High Resolution Gamma-Ray Spectral Analysis", Standard Test Method For Nuclear Material, USA, Vol. 12.1, 2000.
5. WISNU SUSETYO, "Spektrometer Gamma", Gadjah Mada University Press, 1988

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada DR. Siti Amini yang telah memberikan

sumbangsih pemikiran dan saran dalam penulisan makalah ini.