

METODE PENGENDAPAN DAN PENUKAR KATION UNTUK PEMISAHAN CESIUM DALAM BAHAN BAKAR U_3Si_2-Al

Aslina Br. Ginting, Dian Anggraini

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-BATAN

Kawasan Puspiptek, Serpong, Tangerang Selatan, 15314

e-mail: aslina@batan.go.id

(Naskah diterima : 23-04-2016, Naskah direvisi: 16-05-2016, Naskah disetujui: 24-05-2016)

ABSTRAK

METODE PENGENDAPAN DAN PENUKAR KATION PADA PROSES PEMISAHAN CESIUM DALAM BAHAN BAKAR U_3Si_2-Al . Isotop ^{137}Cs salah satu hasil fisi yang dapat digunakan sebagai monitor *burn up* untuk mempelajari kinerja bahan bakar selama iradiasi dalam reaktor. Untuk menganalisis isotop ^{137}Cs dalam pelat elemen bakar (PEB) U_3Si_2-Al pasca iradiasi diperlukan metode yang valid agar diperoleh data yang akurat. Beberapa metode dapat digunakan untuk pemisahan ^{137}Cs dalam PEB U_3Si_2-Al , antara lain adalah metode pengendapan dalam bentuk garam $CsClO_4$ sesuai dengan ASTM E 320-79 dan metode penukar kation menggunakan zeolit Lampung. Proses pengendapan dilakukan dengan menggunakan serbuk $CsNO_3$ sebagai senyawa pembawa (*carrier*) dan pereaksi $HClO_4$, sedangkan proses penukar kation dilakukan dengan penambahan zeolit Lampung. Tujuan penelitian adalah mendapatkan metode valid untuk pemisahan ^{137}Cs dalam PEB U_3Si_2-Al pasca iradiasi, khususnya aspek pengaruh berat serbuk $CsNO_3$ dan berat zeolit Lampung yang ditambahkan. Proses pengendapan isotop ^{137}Cs dilakukan dengan memipet larutan PEB U_3Si_2-Al sebanyak 150 μL kemudian ditambahkan serbuk $CsNO_3$ dengan variasi berat 500; 625; 700 ; dan 1000 mg serta 4 mL $HClO_4$ dalam pengangas es selama 1 jam. Hasil proses pengendapan diperoleh endapan $^{137}CsClO_4$ yang terpisah dengan supernatan sebagai fasa cair. Sementara itu, proses penukar kation dilakukan dengan menambahkan zeolit Lampung variasi berat 700; 900; 1000 ; dan 1200 mg dengan pengadukan selama 1 jam. Hasil proses penukar kation diperoleh padatan ^{137}Cs -zeolit dalam fasa padat dan isotop lainnya dalam fasa cair. Endapan $^{137}CsClO_4$ dan padatan ^{137}Cs -zeolit serta supernatan diukur kandungan ^{137}Cs menggunakan spektrometer- γ . Hasil analisis menunjukkan bahwa berat $CsNO_3$ yang paling banyak mengikat ^{137}Cs terjadi pada penambahan $CsNO_3$ seberat 700 mg yaitu sebesar 0,0472 μg , sedangkan penambahan zeolit Lampung yang optimal diperoleh pada berat 1000 mg hingga 1200 mg dengan kandungan isotop ^{137}Cs dalam padatan ^{137}Cs -zeolit diperoleh sebesar 0,0557 μg . Pemisahan isotop ^{137}Cs menggunakan metode penukar kation dengan penambahan zeolit Lampung 1000 mg hingga 1200 mg mempunyai hasil lebih baik bila dibandingkan dengan metode pengendapan. Selain itu, pengerjaan dengan metode penukar kation lebih mudah serta lebih aman bila dibandingkan dengan metode pengendapan yang pengerjaannya harus dalam pengangas es ($-4\text{ }^\circ C$), menggunakan bahan kimia $HClO_4$ dengan aceton dan etanol yang bersifat volatil dan eksotermik.

Kata kunci: isotop ^{137}Cs , zeolit, serbuk $CsNO_3$, metode penukar kation dan pengendapan

ABSTRACT

PRECIPITATION METHOD AND KATION EXCHANGE METHOD FOR CESIUM SEPARATION OF U_3Si_2 -Al FUEL ELEMENT. ^{137}Cs isotope was one of the fission products which could be used as a burn up monitor to study the performance of the fuel during irradiation in a reactor. For analyzed ^{137}Cs isotope in post-irradiation U_3Si_2 -Al fuel element plate (PEB), it was needed a valid method to obtain accurate data. Several methods could be used for ^{137}Cs separation from U_3Si_2 -Al PEB solution were precipitation method in $CsClO_4$ salt form according to ASTM E 320-79 and cation exchange method using Lampung zeolite. The precipitation process was done using $CsNO_3$ powder as a carrier substance and $HClO_4$ reagent, while the cation exchange process was done by the addition of Lampung zeolite. The objective research was getting a valid method for ^{137}Cs separation in post-irradiation U_3Si_2 -Al PEB, especially for the aspects of $CsNO_3$ powder weight influence and weight of zeolite Lampung was added. ^{137}Cs isotope precipitation process was done by pipetting 150 mL U_3Si_2 -Al PEB solution which was added to the 500; 625; 700; and 1000 mg weight variation $CsNO_3$ powder and 4 mL $HClO_4$ in ice media for 1 hour. The precipitation process results was obtained $CsClO_4$ precipitate separated from the supernatant as a liquid phase. Mean while, the cation exchange process was done by adding 700; 900; 1000 and 1200 mg weight variation Lampung zeolite by shaking for 1 hour. The cation exchange process results was obtained ^{137}Cs -zeolite in the solid phase and the other isotopes in the liquid phase. The ^{137}Cs content in $^{137}CsClO_4$ precipitate, ^{137}Cs -zeolite solid phase and supernatant was measured using spectrometre- γ . The analysis showed that the optimum weight of $CsNO_3$ addition when most binding of ^{137}Cs occurred was 700 mg equal to 0.0472 g ^{137}Cs isotope, while the optimum weight addition of Lampung zeolite was 1000 mg until 1200 mg equal to ^{137}Cs isotope content in ^{137}Cs -zeolite obtained was 0.0557 g. The ^{137}Cs isotope separation process using both methods could be concluded that the cation exchange method using zeolite by the addition of 1000 mg Lampung zeolite until 1200 mg had better result than the precipitation method. The other advantages of this method were easier and saver than precipitation methods that the process should be in ice batch ($-4^\circ C$), using chemicals $HClO_4$, acetone and ethanol which had volatile and exothermic character.

Keywords: ^{137}Cs isotope, zeolite, $CsNO_3$ powder, cation exchange and precipitation method.

PENDAHULUAN

PEB U_3Si_2-Al pasca iradiasi mengandung beberapa hasil fisi antara lain isotop ^{137}Cs , ^{144}Ba , dan ^{90}Sr dan beberapa unsur bermassa berat (*heavy element*, HE) seperti isotop U dan Pu. Isotop ^{144}Ba adalah isotop hasil fisi yang masih dapat meluruh dan menghasilkan isotop-isotop lain sebagai hasil fisi yang lebih stabil diantaranya isotop ^{90}Sr dan ^{137}Cs [1]. Isotop ^{137}Cs mempunyai waktu paroh ($t_{1/2}$: 30,17 tahun) dan *fission yield* (Fy :6,2%), sehingga isotop ^{137}Cs mempunyai keunggulan untuk dapat dijadikan salah satu isotop monitor *burn up*.

Untuk mengetahui kandungan isotop hasil fisi dan HE dalam pelat elemen bakar (PEB) U_3Si_2-Al pasca iradiasi diperlukan metode valid agar diperoleh data yang akurat. Umumnya isotop hasil fisi dan HE adalah isotop pemancar radiasi α , β , γ , dan untuk menentukan komposisi kimianya dapat dilakukan dengan menggunakan metode spektrometri[2,3]. Pengukuran dengan menggunakan metode spektrometri, harus dilakukan dengan proses pemisahan antara isotop pemancar gamma dengan isotop pemancar alpha terlebih dahulu. Untuk selanjutnya dapat dianalisis menggunakan spektrometer- α maupun spektrometer- γ . Pemisahan isotop hasil fisi dengan HE semestinya tidak perlu dilakukan, bila PTBBN mempunyai alat spektrometer massa, tetapi karena PTBBN belum mempunyai alat tersebut maka untuk melakukan analisis fisikokimia bahan bakar pasca iradiasi harus dilakukan pemisahan. Pemisahan hasil fisi khususnya ^{137}Cs bertujuan untuk mendapatkan komposisi kimia isotop secara kuantitatif. Pemisahan dapat dilakukan dengan menggunakan metode pengendapan maupun penukar kation. Beberapa hal yang menyebabkan hasil pengukuran kurang akurat dengan spektrometri antara lain adalah konsentrasi isotop U dalam bahan bakar lebih besar dari pada isotop Cs. Daya tembus isotop Cs lebih besar dibandingkan dengan isotop U

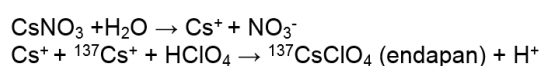
dan Pu, walaupun energi antara isotop Cs dengan isotop U dan Pu jauh berbeda. Sebagai akibatnya pada saat pengukuran dengan spektrometer- α , spektrum isotop U dan Pu akan tertutup oleh spektrum isotop Cs sebagai pemancar sinar- γ . Oleh karena itu, sebelum melakukan pengukuran dengan spektrometri perlu dilakukan pemisahan isotop hasil fisi ^{137}Cs dari isotop U sebagai HE.

Beberapa metode yang dapat digunakan untuk memisahkan isotop ^{137}Cs dengan isotop lainnya dalam PEB U_3Si_2-Al pasca iradiasi antara lain adalah metode ekstraksi, metode pengendapan langsung sebagai $CsClO_4$ dan metode penukar kation dengan penambahan zeolit Lampung. Pada penelitian sebelumnya telah dilakukan pemisahan standar ^{137}Cs dari SRM 4233E dengan ketiga metode diatas dan telah diperoleh besar *recovery* pemisahan masing-masing metode. Hasil analisis *recovery* pemisahan standar ^{137}Cs dengan metode ekstraksi belum menunjukkan hasil yang baik karena diperoleh besar *recovery* pemisahan ^{137}Cs sangat kecil yaitu sebesar $28,03\% \pm 5,33\%$ [4,5], sedangkan dengan metode pengendapan diperoleh *recovery* pemisahan isotop ^{137}Cs sebesar $98,01\% \pm 1,11\%$ [6] dan dengan metode penukar kation menggunakan zeolit diperoleh *recovery* pemisahan isotop ^{137}Cs sebesar $99,03\% \pm 0,1\%$ [6]. Berdasarkan hasil penelitian tersebut, maka pada penelitian ini digunakan metode pengendapan dan metode penukar kation menggunakan zeolit Lampung untuk memisahkan isotop ^{137}Cs dari isotop lainnya yang terkandung dalam PEB U_3Si_2-Al pasca iradiasi.

a. Metode pengendapan $CsClO_4$

Pemilihan metode pengendapan dari ASTM E 320-90[7] digunakan untuk memisahkan isotop ^{137}Cs berdasarkan kepada hasil penelitian sebelumnya. Telah diketahui bahwa $HClO_4$ selektif terhadap isotop ^{137}Cs bila dibandingkan dengan isotop ^{90}Sr maupun uranium[8,9]. Dalam

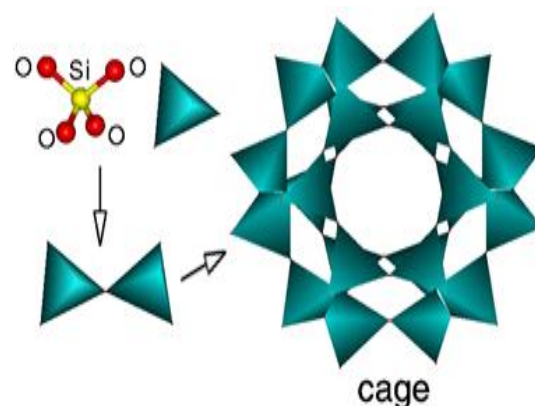
melakukan pemisahan isotop ^{137}Cs dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi harus ditambahkan serbuk CsNO_3 sebagai *carrier* atau senyawa pembawa di dalam media HClO_4 . Penambahan serbuk CsNO_3 untuk memudahkan proses pengendapan, karena kandungan isotop ^{137}Cs dalam larutan sampel bahan bakar nuklir pasca iradiasi yang dianalisis sangat kecil (1 tetes) dan mengalami pengenceran hingga 10 mL membuat proses pengendapannya cukup sulit dihasilkan. Jumlah sampel larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ yang dianalisis hanya 150 μL dari 10 mL dan hal ini dilakukan untuk menghindari paparan radiasi terhadap pekerja radiasi di laboratorium. Oleh karena itu, dalam proses pengendapan isotop ^{137}Cs dibutuhkan suatu senyawa pembawa untuk meningkatkan kandungan ion cesium. Persyaratan senyawa pembawa yang ditambahkan harus mempunyai sifat kimia yang sama dari ion yang akan diendapkan dan merupakan garam dari isotop ion logam yang akan dipisahkan. Berdasarkan hal tersebut maka pada proses pengendapan ^{137}Cs dari larutan bahan bakar nuklir dibutuhkan penambahan garam Cs dari CsNO_3 dalam media HClO_4 . Senyawa pembawa akan meningkatkan konsentrasi ion Cs^+ dalam larutan, sehingga pada saat ion tersebut diendapkan sebagai garam CsClO_4 , akan mengadsorpsi ^{137}Cs aktif secara maksimum dan menyebabkan pembentukan endapan $^{137}\text{CsClO}_4$ juga secara maksimum, sedangkan penggunaan media perchlorat disebabkan karena endapan $^{137}\text{CsClO}_4$ memiliki kelarutan rendah pada temperatur 0°C ^[10]. Oleh karena itu proses pengendapan isotop ^{137}Cs dengan penambahan larutan HClO_4 harus dilakukan di dalam pengangas es (*ice bath*) pada temperatur di bawah 0°C (-4°C) agar terbentuk endapan $^{137}\text{CsClO}_4$ secara sempurna. Fenomena terjadinya reaksi pengendapan $^{137}\text{CsClO}_4$ mengikuti reaksi berikut^[9]:



Dari reaksi diatas, isotop ^{137}Cs akan terikat di dalam endapan $^{137}\text{CsClO}_4$ sebagai fasa padat dan isotop uranium berada di dalam supernatan sebagai fasa cair. Isotop ^{137}Cs yang telah terikat dalam bentuk endapan $^{137}\text{CsClO}_4$, kemudian dicuci menggunakan etanol dan acetone. Pencucian dilakukan untuk menghilangkan ion-ion yang terlarut dalam endapan seperti Cl^- dan NO_3^- dan selanjutnya dikeringkan dalam oven untuk menghilangkan kandungan airnya. Pemilihan acetone sebagai larutan pencuci disebabkan karena endapan $^{137}\text{CsClO}_4$ bersifat polar dan mudah larut di dalam air dan untuk meminimalkan kelarutan endapan $^{137}\text{CsClO}_4$ dalam proses pencucian tersebut digunakan pelarut non polar (acetone). Endapan $^{137}\text{CsClO}_4$ yang telah kering kemudian ditimbang dan diukur besar kandungan isotop ^{137}Cs dan keradio-aktifannya menggunakan spektrometer- γ ^[11].

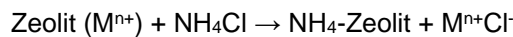
b. Metode penukar kation menggunakan Zeolit Lampung

Zeolit digunakan sebagai bahan penukar kation karena merupakan kristal aluminosilikat terhidrasi yang mengandung kation alkali atau alkali tanah dalam kerangka tiga dimensi dan banyak diperoleh di Indonesia. Kerangka dasar struktur zeolit terdiri dari unit tetrahedral AlO_2 dan SiO_2 yang saling berhubungan melalui atom O. Atom Si^{4+} akan digantikan oleh Al^{3+} , sehingga terjadi defisiensi muatan positif seperti yang ditunjukkan pada Gambar 1.



Gambar 1. Kerangka struktur zeolit ^[9]

Defisiensi muatan ini menyebabkan zeolit bermuatan negatif dan selanjutnya akan dinetralkan oleh kation alkali atau alkali tanah, seperti Na⁺, K⁺, Mg²⁺ dan Ca²⁺ di dalam rongganya sehingga mencapai senyawa yang stabil. Selain itu, agar proses tukar kation dapat berjalan baik, sebelum zeolit Lampung digunakan sebagai bahan penukar kation untuk isotop cesium terlebih dahulu zeolit diaktifasi dengan NH₄Cl agar terbentuk monokationik zeolit (NH₄Z). Diharapkan semua kation yang berada dalam zeolit Lampung setelah mengalami proses aktivasi dengan NH₄Cl dapat digantikan dengan kation amonium secara homogen atau monokationik. NH₄-zeolite (NH₄-Z) yang terbentuk kemudian digunakan untuk bahan penukar kation isotop cesium. Proses aktivasi yang terjadi antara zeolit Lampung dengan NH₄Cl jenuh mengikuti persamaan reaksi kimia sbb[12]:

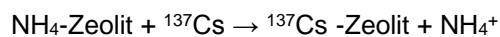


dengan :

M = logam alkali dan alkali tanah
(kation dari zeolit alam)

n = elektron valensi logam

Selanjutnya isotop ¹³⁷Cs dalam bahan bakar nuklir akan terikat dengan zeolit dalam bentuk padatan ¹³⁷Cs-zeolit dengan reaksi kimia seperti berikut:



Senyawa NH₄-zeolit mempunyai jari-jari ion sebesar 331 pm, sedangkan Cs⁺ mempunyai jari-jari ion sebesar 329 pm. Hal ini menyebabkan Cs⁺ lebih mudah bertukar dengan NH₄⁺ dalam kerangka zeolit dibandingkan dengan dengan isotop U⁶⁺ maupun Pu⁶⁺ yang mempunyai jari-jari ion masing-masing sebesar 97 pm dan 81 pm. Proses pemisahan dengan metode penukar kation isotop ¹³⁷Cs terikat di dalam zeolit sebagai fasa padat, sedangkan isotop lainnya tidak terikat di dalam zeolit, tetapi lolos sebagai supernatan di dalam fasa cair. Fenomena inilah yang terjadi di dalam proses penukar kation untuk memungut

isotop ¹³⁷Cs dari U dan Pu dalam bahan bakar pasca iradiasi.

Kandungan isotop ¹³⁷Cs dalam endapan ¹³⁷CsClO₄ dan padatan ¹³⁷Cs-zeolit selanjutnya diukur dengan menggunakan spektrometer-γ. Hasil pengukuran isotop ¹³⁷Cs dengan spektrometer-γ diperoleh berupa cacahan per detik (cps), kemudian di evaluasi dengan menggunakan rumus persamaan (1) dan (2) sehingga diperoleh komposisi isotop ¹³⁷Cs secara kuantitatif dengan berat tertentu di dalam sampel bahan bakar nuklir. Kandungan isotop tersebut dapat dihitung dengan rumus sebagai berikut^[11]:

$$Eff = \frac{C_i}{Akt \cdot I_i} \quad (1)$$

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

Dimana:

- C_i : jumlah cacahan, cacah/detik
I_i : faktor *yield* intensitas dari isotop-i (lihat daftar tabel isotop).
N : jumlah isotop dalam berat tertentu sampel bahan bakar nuklir
Akt : keaktifan isotop, Bq
Eff : efisiensi detektor
I_{rel} : Intensitas relatif puncak isotop tertentu pada energi yang diukur
λ : konstanta peluruhan atau (ln 2)/T_{1/2}
T_{1/2} : waktu paruh dari isotop ¹³⁷Cs = 30,17 tahun

METODOLOGI

Pengukuran aktivitas isotop ¹³⁷Cs dilakukan terhadap 2 buah (duplo) larutan standar ¹³⁷Cs SRM 4233E sebanyak 50 μL dalam 2 ml HCl 0,1 N, yang digunakan untuk mengetahui validasi metode dengan cara menentukan efisiensi detektor, SD, akurasi, presisi pengukuran dan *recovery* pemisahan. Setelah diketahui validasi metode, selanjutnya dilakukan pemisahan

^{137}Cs dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi menggunakan metode pengendapan maupun metode penukar kation. Larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi potongan bagian tengah dengan kode TMU-M1 dipipet 1 tetes, kemudian diencerkan menjadi 10 mL untuk mengurangi paparan radiasi bagi pekerja di laboratorium. Analisis kandungan ^{137}Cs menggunakan larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ sebanyak 150 μL dari 10 mL dan masing-masing di masukkan ke dalam 3 (tiga) buah vial (triplo). Ke dalam masing-masing vial ditambahkan serbuk CsNO_3 dengan variasi berat 500; 625; 700 ; dan 1000 mg. Penggunaan variasi berat CsNO_3 pada penelitian ini mengacu kepada hasil penelitian sebelumnya dengan penambahan berat serbuk CsNO_3 225 mg^[11]. Pada penelitian lanjutan ini digunakan serbuk CsNO_3 lebih besar dari 225 mg yaitu 500; 625; 700 ; dan 1000 mg. Proses pengendapan dilakukan sama dengan perlakuan terhadap sampel standar dengan penambahan HClO_4 sebanyak 4 mL di dalam pengangas es pada temperatur -4°C dan didiamkan selama 1 jam. Proses pengendapan menghasilkan pemisahan antara endapan $^{137}\text{CsClO}_4$ sebagai fasa padat dengan isotop lainnya dalam fasa cair atau supernatan. Endapan CsClO_4 yang terbentuk kemudian dibilas dengan etanol yang diikuti oleh aceton. Endapan CsClO_4 yang sudah kering, kemudian diukur dengan menggunakan spektrometer- γ . Pengukuran dilakukan dengan waktu cacah 300 detik dan jarak detektor dengan sampel 16 cm dan dilakukan pengukuran dengan 3 (tiga) kali pengulangan. Hasil pemisahan isotop ^{137}Cs dengan metode pengendapan akan dibandingkan dengan metode penukar kation sehingga diketahui besar pemisahan

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

Pemisahan ^{137}Cs dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi dengan metode penukar kation dengan penambahan zeolit Lampung dengan variasi berat 700; 900 ; 1000 dan 1200 mg. Larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi dipipet sebanyak 150 μL dan masing-masing di masukkan ke dalam 3 (tiga) buah vial dan ditambahkan zeolit Lampung dengan variasi berat diatas, selanjutnya dilakukan proses penukar kation dengan pengadukan selama 1 jam menggunakan *shaker* dengan kecepatan 1000 rpm, setelah selesai didiamkan selama 24 jam, sehingga menghasilkan pemisahan antara padatan ^{137}Cs -zeolit sebagai fasa padat dengan isotop U, Pu dalam fasa cair. Padatan ^{137}Cs -zeolit hasil proses penukar kation dipisahkan dari larutan supernatan dengan cara memipet secara berlahan-lahan. Paduan ^{137}Cs -zeolit dikeringkan dan ditimbang, selanjutnya untuk mengetahui kandungan isotop ^{137}Cs di dalam padatan ^{137}Cs -zeolit dilakukan pengukuran menggunakan spektrometer- γ pada energi 661 keV dengan waktu cacah 300 detik pada jarak 16 cm dari detektor.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil pengukuran aktivitas ^{137}Cs terhadap 2 sampel larutan standar isotop ^{137}Cs SRM 4233E diperoleh berupa cacahan per detik (cps). Cacahan tersebut dievaluasi dengan menggunakan persamaan (1) dan (2) dan diperoleh besaran efisiensi detektor seperti yang tercantum pada Tabel 1 dan cacahan tersebut digunakan juga untuk menghitung besar SD, presisi dan akurasi seperti yang dicantumkan pada Tabel 2.

Tabel 1. Data perhitungan efisiensi detektor spektrometer- γ

Aktivitas standar 50 μ L ¹³⁷ Cs, Bq	Net Area (cacah)	Cacah per detik (Cps)	I _{γ} (tabel) (%)	Efisiensi Detektor (%)
Tahun 2015				
9582,96	23585	15,6747	85,1	0,1914
	23355			
	23596			
	23512			

Tabel 1 menunjukkan bahwa efisiensi detektor pada jarak 16 cm diperoleh sebesar 0,1914% dengan SD, akurasi dan presisi pengukuran diperoleh masing-

masing sebesar 617,10 ; 0,376% dan 1,875% seperti yang ditunjukkan pada Tabel 2.

Tabel 2. Akurasi dan Presisi Pengukuran Standar ¹³⁷Cs

No	Net Area (cacah)	Cacah/detik (cps)	Aktivitas Pengukuran (Bq)	Aktivitas Sertifikat (Bq)
1.	21853	14,361	31841,12	32802,578
2.	22308	14,872	32934,39	
3.	22714	15,142	33573,52	
4.	22310	14,870	32976,37	
5.	21910	14,606	32385,13	
6.	22500	15,066	33405,02	
7.	22550	15,033	33331,12	
Rerata			32926,78	
SD			617,10	
Akurasi(%)			0.376	
Presisi (%)			1,875	

Tabel 2 menunjukkan bahwa perbedaan besar aktivitas isotop ¹³⁷Cs hasil pengukuran dan aktivitas yang tercantum dalam sertifikat atau akurasi diperoleh sebesar 0,376%. Untuk mengetahui keberterimaan nilai perbedaan tersebut, dilakukan uji t dengan mengambil derajat kepercayaan 95%. Hasil perhitungan menunjukkan nilai uji t sebesar 0,0095 lebih kecil dari pada nilai t_{tabel} (Critical values of student's t distribution, t_{0.05} = 4,3)^[13]. Hal ini menunjukkan bahwa tidak ada perbedaan yang signifikan antara aktivitas hasil pengukuran dengan sertifikat. Sementara itu, diperoleh besaran presisi pengukuran sebesar 1,875 % lebih kecil dari 5% sehingga masih

memenuhi kriteria keberterimaan kaidah statistik pada derajat kepercayaan 95%. Berdasarkan data perhitungan diatas menunjukkan bahwa unjuk kerja peralatan spektrometer- γ yang digunakan untuk pengukuran isotop ¹³⁷Cs telah memenuhi keberterimaan secara statistik.

Dalam melakukan validasi metode selain efisiensi detektor, SD, akurasi dan presisi ada hal penting yang harus diketahui yaitu *recovery* pemisahan isotop ¹³⁷Cs menggunakan metode pengendapan dan metode penukar kation. Penentuan *recovery* dari hasil cacahan padatan ¹³⁷Cs-zeolit dan endapan ¹³⁷CsClO₄ dari standar isotop ¹³⁷Cs SRM 4233E ditunjukkan pada Tabel 3.

Tabel 3. Hasil analisis penentuan *recovery* analisis standar SRM isotop ^{137}Cs ^[5,14]

Sampel	Kandungan ^{137}Cs sertifikat (μg)	Kandungan ^{137}Cs pengukuran (μg)	<i>Recovery</i> , %
Larutan ^{137}Cs SRM-NIST	0,0037847	0,00376	99,23
Padatan ^{137}Cs -zeolit	0,0037847	0,00375	99,03
Endapan $^{137}\text{CsClO}_4$	0,0037847	0,00373	98,01

Tabel 3 menunjukkan bahwa hasil penentuan *recovery* sampel larutan 50 μL SRM 4233E dalam 2 mL HCl 0,1M diperoleh sebesar 99,23 %. Hasil ini dibandingkan dengan *recovery* padatan ^{137}Cs -zeolit yang diperoleh sebesar 99,03 % dan *recovery* endapan $^{137}\text{CsClO}_4$ yang diperoleh sebesar 98,01 %. Hal ini menunjukkan bahwa metode penukar kation dan metode pengendapan mampu menyerap isotop ^{137}Cs dalam 50 μL SRM 4233E hingga 98 %. Besaran *recovery* ini digunakan sebagai faktor koreksi untuk penentuan kandungan isotop ^{137}Cs dalam larutan PEB

$\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi dengan metode dan parameter pengukuran yang sama.

Parameter berat CsNO_3 pada metode pengendapan yang digunakan untuk pemisahan isotop ^{137}Cs dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi mengacu kepada hasil penelitian sebelumnya^[10,12]. Hasil pengukuran isotop ^{137}Cs dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi menggunakan metode pengendapan dengan penambahan CsNO_3 seberat 225 mg diperoleh cacah isotop ^{137}Cs dalam supernatan masih cukup besar seperti yang ditunjukkan pada Tabel 4.

Tabel 4. Kandungan isotop ^{137}Cs dalam endapan CsClO_4 dan supernatan^[10,12]

Sampel	<i>Net Area</i> (Cacah)	Cacah per detik (cps)	I_γ tabel (%)	Kand. ^{137}Cs dalam endapan (μg)	Kand. ^{137}Cs dalam supernatan (μg)
Endapan CsClO_4	79647 79460 79679	53,0627	85,1	0,01235	-
Supernatan	12913 12920 12810	2,7436	85,1	-	0,00067

Tabel 4 menunjukkan bahwa pemungutan isotop ^{137}Cs di dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi dengan penambahan CsNO_3 seberat 225 mg, belum menunjukkan hasil yang baik, karena masih diperoleh jumlah cacah isotop ^{137}Cs dalam supernatan cukup besar yaitu rerata sebesar 12881 cacah atau sekitar 0,00067 μg . Hal ini menunjukkan bahwa CsNO_3 dengan berat 225 mg belum mampu mengendapkan secara sempurna kandungan isotop ^{137}Cs di dalam 150 μL larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi. Dari percobaan ini belum diperoleh hasil pemungutan isotop ^{137}Cs dengan baik

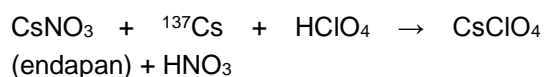
karena masih diperoleh kandungan isotop ^{137}Cs yang cukup besar di dalam supernatan, sehingga perlu dilakukan percobaan pemungutan isotop ^{137}Cs dalam larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi dengan penambahan serbuk CsNO_3 lebih besar dari 225 mg yaitu mulai dari berat 500 ; 625 ;700 dan 1000 mg.

Hasil pengukuran diperoleh cacah besarnya isotop ^{137}Cs di dalam endapan CsClO_4 maupun di dalam supernatan pada masing-masing variasi penambahan berat CsNO_3 dengan waktu cacah 300 detik ditunjukkan pada Tabel 5.

Tabel 5. Kandungan isotop ¹³⁷Cs dalam endapan CsClO₄ dan supernatan

Berat CsNO ₃ (mg)	Net Area endapan CsClO ₄ (cacah)	Kand. ¹³⁷ Cs dalam endapan CsClO ₄ (µg)	Net Area supernatan (cacah)	Kand. ¹³⁷ Cs dalam supernatan (µg)
225	79594	0,0124	12881	0,00063 ^[10,12]
500	82572	0,0128	6538	0,00032
625	84392	0,0458	1247	0,00006
700	89788	0,0472	357	0,00002
1000	87744	0,0472	352	0,00002

Tabel 5 menunjukkan bahwa kandungan isotop ¹³⁷Cs dalam supernatan yang paling kecil terdapat pada penambahan serbuk CsNO₃ sebanyak 700 mg yaitu sebesar 0,00002 µg dan stabil hingga penambahan CsNO₃ seberat 1000 mg. Hasil ini sesuai dengan yang diharapkan bahwa isotop ¹³⁷Cs di dalam sampel secara menyeluruh terikat oleh CsNO₃ membentuk endapan CsClO₄ dengan reaksi



Dari reaksi diatas, isotop ¹³⁷Cs terikat di dalam endapan CsClO₄ sebagai fasa padat dan tidak diharapkan berada dalam supernatan (fasa cair). Namun pada hasil analisis diatas, masih ada kandungan isotop ¹³⁷Cs di dalam supernatan walaupun dengan jumlah relatif kecil dan stabil. Hal ini terjadi karena pada saat pemipetan masih

ada partikel endapan ¹³⁷CsClO₄ yang terikat bersama supernatan. Parameter optimal yang diperoleh dalam metode pengendapan ini akan digunakan sebagai acuan untuk pemungutan isotop ¹³⁷Cs dalam bahan bakar PEB U₃Si₂-Al pasca iradiasi.

Kandungan isotop ¹³⁷Cs dalam PEB U₃Si₂-Al pasca iradiasi yang diperoleh dari pemisahan dengan menggunakan metode pengendapan dibandingkan dengan kandungan isotop ¹³⁷Cs yang diperoleh dari pengukuran langsung (tanpa pemisahan). Hal ini dilakukan untuk mengetahui besar persentase pemungutan (*recovery*) isotop ¹³⁷Cs menggunakan metode pengendapan. Kandungan isotop ¹³⁷Cs yang diperoleh dari pengukuran langsung (tanpa pemisahan) menggunakan spektrometer- γ ditunjukkan pada Tabel 6.

Tabel 6. Kandungan isotop ¹³⁷Cs di dalam 150 µL PEB U₃Si₂-Al pasca iradiasi (tanpa pemisahan)^[14]

Jenis Isotop	Net Area (cacah)	Cacah per detik (cps)	I _γ tabel (%)	Eff. Detektor (%)	Aktivitas jenis (Bq/150 µL)	Kand. ¹³⁷ Cs dalam larutan PEB (µg)
¹³⁷ Cs	77669	51,773	85,1	0,1914	31710,257	0,0106
	78001					
	77309					
	77660					

Tabel 6 menunjukkan bahwa kandungan isotop ¹³⁷Cs yang terdapat di dalam 150 µL PEB U₃Si₂-Al pasca iradiasi dengan pengukuran langsung diperoleh kandungan isotop ¹³⁷Cs sebesar 0,0106 µg, sedangkan dengan metode pengendapan diperoleh

sebesar 0,0472 µg. Hal ini menunjukkan bahwa dengan pengukuran langsung menggunakan spektrometer- γ , kandungan isotop ¹³⁷Cs dalam 150 µL PEB U₃Si₂-Al pasca iradiasi hanya terukur sebesar 78,67%, sedangkan dengan metode

pengendapan diperoleh *recovery* sebesar 98,01%. Hal ini disebabkan karena pada sampel larutan PEB U_3Si_2-Al pasca iradiasi yang diukur secara langsung masih ada hasil fisi selain cesium maupun *heavy element* (uranium dan plutonium) serta impuritas lainnya yang ikut berkompetisi dalam pengukuran^[15], sehingga yang terukur dengan spektrometer- γ hanya 78,67%.

Pemisahan isotop ^{137}Cs dalam larutan PEB U_3Si_2-Al pasca iradiasi menggunakan metode penukar kation dengan penambahan zeolit Lampung variasi berat 700; 900; 1000 dan 1200 mg ditunjukkan pada Tabel 7. Hasil pemisahan diperoleh

padatan ^{137}Cs -zeolit sebagai fasa padat dan isotop lainnya dalam supernatan. Tabel 7 menunjukkan bahwa penambahan zeolit dengan variasi berat 700; 900; 1000 hingga 1200 mg tidak memberikan perbedaan yang berarti terhadap besar penyerapan kandungan isotop ^{137}Cs dalam padatan ^{137}Cs -zeolit. Hal ini disebabkan karena kapasitas tukar kation (KTK) zeolit Lampung sebesar 0,0049 meq/g (nilai KTK zeolit Lampung telah ditentukan pada penelitian sebelumnya) yang artinya secara perhitungan, setiap 1 gram zeolit Lampung dapat mengikat kation ^{137}Cs sebesar 0,0049 meq atau sebesar 670 μg ^[16].

Tabel 7. Kandungan isotop ^{137}Cs dalam padatan ^{137}Cs -zeolit dan supernatan

Berat zeolit (mg)	Net Area Padatan ^{137}Cs -zeolit (cacah)	Kand. ^{137}Cs dalam padatan zeolit (μg)	Net Area supernatan (cacah)	Kand. ^{137}Cs dalam supernatan (μg)
700	79303	0,0533	8381	0,00043
900	82554	0,0555	4538	0,00016
1000	82791	0,0557	312	0,00015
1200	82792	0,0557	312	0,00015

Tabel 7 menunjukkan bahwa kandungan isotop ^{137}Cs dalam padatan ^{137}Cs -zeolit diperoleh paling besar pada penambahan zeolit Lampung 1000 mg yaitu sebesar 0,0557 μg , demikian halnya dengan kandungan ^{137}Cs dalam supernatan yang paling kecil terdapat pada penambahan zeolit Lampung sebanyak 1000 mg yaitu sebesar 0,00015 μg dan stabil hingga penambahan zeolit lampung seberat 1200 mg. Hal ini menunjukkan bahwa KTK zeolit Lampung sebesar 0,0049 meq/g dengan berat zeolit 1000 mg hingga 1200 mg mampu mengikat isotop ^{137}Cs yang terdapat di dalam 150 μL larutan pasca iradiasi secara sempurna.

SIMPULAN

Recovery pemisahan ^{137}Cs menggunakan standar larutan 50 μL SRM 4233E dengan metode pengendapan dan metode penukar kation diperoleh masing-masing

sebesar 98,01 % dan 99,03 %. Berat optimal serbuk $CsNO_3$ yang digunakan sebagai *carrier* dalam metode pengendapan sebesar 700 mg, sedangkan berat optimal zeolit Lampung yang digunakan sebagai bahan penukar kation sebesar 1000 mg hingga 1200 mg. Pemisahan isotop ^{137}Cs dalam PEB U_3Si_2-Al pasca iradiasi menggunakan metode pengendapan diperoleh kandungan isotop ^{137}Cs dalam endapan $^{137}CsClO_4$ sebesar 0,0472 μg dengan kandungan isotop ^{137}Cs sebesar 0,00002 μg dalam supernatan. Pemisahan isotop ^{137}Cs dengan menggunakan metode penukar kation diperoleh kandungan isotop ^{137}Cs dalam padatan ^{137}Cs -zeolit sebesar 0,0557 μg dan 0,00015 μg dalam supernatan. Pemisahan isotop ^{137}Cs menggunakan metode penukar kation dengan penambahan zeolit Lampung mempunyai keunggulan lebih baik karena hasil isotop ^{137}Cs yang diperoleh lebih besar dan pengerjaannya lebih mudah serta lebih aman bila dibandingkan dengan metode

pengendapan yang pengerjaannya harus dalam pendinginan ($-4^{\circ}C$), penggunaan bahan kimia $HClO_4$ dengan acetone dan etanol yang bersifat volatil dan eksotermik.

UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terima kasih disampaikan kepada Ka.PTBBN dan Ka.Bid BUR yang telah memberikan dana DIPA tahun 2015 untuk membiayai penelitian ini, kepada Ibu Iis Haryati, Sutri Indaryati dan S.Nissa, dan rekan-rekan Kelompok Fisika Kimia -Bidang Uji Radiometalurgi yang telah membantu pelaksanaan penelitian ini sehingga dapat ditulis dalam makalah.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] S. Amini, (1994), Sistem penukaran kation Cs dan Sr ke dalam zeolite untuk pengolahan limbah cair radioaktif, Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah PPNY-BATAN, Yogyakarta, Buku-II, ISSN 0216-3128.
- [2] Leenaers, E. Koonen, Y. Parthoens, P. Lemoine, S. Van den Berghe, (2008), Post-Irradiation Examination of AlFeNi clad U₃Si₂ Fuel Plates Irradiated under Severe Conditions, Journal of Nuclear Material, Vol 375, Issue 2, page 243-253.
- [3] A. Br. Ginting, D. Anggraini, Boybul, A. Nugroho, R. Kriswarini, (2014), Bunga Rampai, Prosiding Hasil Penelitian Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir, Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-BATAN, ISBN: 978-602-71975-0-3.
- [4] 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, October 2013, page 1-10.
- [5] A. Br. Ginting, Boybul, A. Nugroho, D. Anggraini, R. Kriswarini, (2015), Pemisahan dan Analisis ¹³⁷Cs Dan ²³⁵U Dalam Pelat Elemen Bakar U₃Si₂-Al Pasca Iradiasi, Jurnal Teknologi Bahan Bakar Nuklir, Vol.11, Juni, No.2, PTBBN-BATAN, ISSN 1907-2635.
- [6] Boybul, Yanlinastuti, S. Indaryati, A. Nugroho (2015), Penentuan Kandungan Isotop ²³⁵U Dalam PEB U₃Si₂-Al TMU 2,96 gU/cm³ Untuk Perhitungan *Burn Up*, URANIA, Jurnal Daur Bahan Bakar Nuklir, Vol.21, No.3, PTBBN-BATAN, ISSN 1907-2635.
- [7] American Standard Test Methods ASTM-E 320-90, (1990), *Standard Test Methods for Cesium-137 in Nuclear Fuel Solutions by Radiochemical Analysis*, Standard Test Method For Nuclear Material, USA, Vol. 12.1.
- [8] S. Amini, (2001), Studi Zeolit Untuk penukaran ion Cs, Sr dan U, Prosiding Hasil-Hasil Penelitian Elemen Bakar Nuklir P2TBDU-BATAN 1998/1999, ISSN 0854-5561, Serpong.
- [9] H.T. Chae, H. Kim, C.S. Lee, B.J. Jun, J.M. Park, C.K. Kim, D.S. Sohn, (2008), Irradiation Tests for U₃Si-Al Dispersion Fuels with Aluminum Cladding, Journal of Nuclear Material, Vol 373, page 9-15, Korea Atomic Energy Research Institute P.O. Box 105, Yuseong, Daejeon 305-600, Republic of Korea.
- [10] D. Anggraini, R. Kriswarini, (2009), "Penentuan Isotop Cs dari Unsur Cs Dalam Larutan Aktif CsNO₃", URANIA, Jurnal Daur Bahan Bakar Nuklir, Vol.15, No.1, PTBBN-BATAN, ISSN 1907-2635.
- [11] L. P. Hong, S. Amini, A. G. Hutagaol, T.M. Sembiring, (2013), *Nondestructive Burnup Verification By Gamma-Ray Spectroscopy Of LEU Silicide Fuel Plates Irradiated In The RSG GAS Multipurpose Reactor*, Journal Annals of Nuclear Energy, Vol 56, June 2013, page 57- 65
- [12] A. Br. Ginting, Boybul, A. Nugroho, D. Anggraini, R. Kriswarini, (2015), Analisis ¹³⁷Cs Dan ²³⁵U Dalam Pelat Elemen Bakar U₃Si₂-Al Pasca Iradiasi

-
- Untuk Penentuan *Burn Up*, Jurnal Teknologi Bahan Bakar Nuklir, Vol.11, Juni ,No.2,PTBBN-BATAN, ISSN 1907-2635.
- [13] A. Br. Ginting, (2012), Pemisahan dan Analisis Radionuklida ^{137}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-PTBN-BATAN, Vol.8 No.1, Januari.
- [14] R. L, Anderson, (1987), Practical Statistics for Analytical Chemists” Van Nostrand Reinhold Company New York.
- [15] A. Br. Ginting, Boybul, Yanlinastuti, A.Nugroho, D.Anggraini, R.Kriswarini, (2015), Pengembangan Metode Baku Uji Fisikokimia PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ TMU $4,8 \text{ gU/cm}^3$ Pasca Iradiasi, Proseding Hasil Penelitian Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir-BATAN, ISBN: 978-602-71975-0-3
- [16] A. Nugroho, Boybul, A. Br. Ginting, (2014), Pemungutan Isotop Hasil Fisi ^{137}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, Juni 2014, Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir - BATAN.