PEMISAHAN CESIUM DALAM PEB U₃SI₂/AL PASCA IRADIASI DENGAN METODE KOLOM PENUKAR KATION MENGGUNAKAN RESIN DOWEX

Arif Nugroho, Dian Anggraini, Boybul, Sutri Indaryati, Iis Haryati, Rosika Kriswarini, Aslina Br.Ginting Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN Kawasan Puspiptek Serpong Gd.20 Tangerang Selatan, Banten 15314 e-mail: arif52@batan.go.id (Naskah diterima: 25–06–2018, Naskah direvisi: 01–06–2018, Naskah disetujui: 20–06–2018)

ABSTRAK

PEMISAHAN CESIUM DALAM PEB U3Si2/AI PASCA IRADIASI DENGAN METODE KOLOM PENUKAR KATION MENGGUNAKAN RESIN DOWEX. Perhitungan burn up bahan bakar nuklir secara merusak dapat ditentukan dari kandungan hasil fisi isotop ¹³⁷Cs. Oleh karena itu perlu dilakukan pemisahan isotop ¹³⁷Cs dengan uranium yang terdapat di dalam pelat elemen bakar (PEB) U₃Si₂/Al pasca iradiasi. Pemisahan ¹³⁷Cs dilakukan dengan metode kolom penukar kation menggunakan resin Dowex dengan variasi berat 1; 2; 3; 4; 5 dan 6 g. Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui kandungan isotop ¹³⁷Cs di dalam PEB U₃Si₂/Al pasca iradiasi dan dibandingkan dengan kandungan ¹³⁷Cs yang dipisahkan dengan metode penukar kation menggunakan zeolite Lampung dan metode pengendapan CsClO₄. PEB U₃Si₂/Al densitas 2,96 gU/cm³ bagian tengah kode RI-SIE2 pelat sisi 20 IDA 0045 dengan berat 0,1103 g dilarutkan dengan HCI 6N dan HNO₃ 6N sehingga diperoleh larutan uranil nitrat. Larutan U₃Si₂/Al pasca iradiasi dipipet sebanyak 150 µLdan ditambah 2 mL aquadest kemudian ditambahkan Cs carrier sebanyak 20 µL dan 1 mL HCl 12 M. Campuran larutan tersebut digunakan sebagai umpan dimasukkan ke dalam kolom penukar anion (kolom pertama) yang berisi resin R-CI variasi berat 1; 2; 3; 4; 5 dan 6 g. Efluen yang keluar dari kolom penukar anion dimasukkan ke dalam kolom penukar kation (kolom kedua) yang telah berisi resin R-NH4⁺ dengan variasi berat 1; 2; 3; 4; 5 dan 6 g. Isotop ¹³⁷Cs yang terikat dengan resin R-NH₄⁺di dalam kolom kemudian dielusi menggunakan HCI 1 M sebanyak 15 mL. Efluen kemudian dikisatkan sampai diperoleh volume ± 2 mL. Besarnya kandungan isotop ¹³⁷Cs dalam efluen diukur dengan menggunakan spektrometer gamma dengan waktu cacah 500 detik. Hasil pengukuran diperoleh kandungan isotop¹³⁷Cs di dalam sampel PEB U₃Si₂/AI densitas 2,96 gU/cm³ pasca iradiasi sebesar 0,000445 g/gPEB g dan parameter optimal pemisahan ¹³⁷Cs dengan metode kolom penukar kation menggunakan resin Dowex seberat 2 g dengan recovery sebesar 98,67%. Hasil pemisahan ¹³⁷Cs dengan metode kolom penukar kation tidak jauh berbeda dengan hasil pemisahan¹³⁷Cs dengan metode penukar kation maupun metode pengendapan CsClO₄. Kandungan ¹³⁷Cs yang diperoleh selanjutnya dapat digunakan untuk perhitungan burn up.

Kata kunci :U₃Si₂/Al, isotop¹³⁷Cs, kolom penukar kation resin Dowex, *burn up*

ABSTRACT

THE SEPARATION OF CESIUM IN IRRADIATED FUEL ELEMENT PLATES of U₃Si₂ / AI WITH CATION EXCHANGE COLUMN METHOD USING DOWEX RESIN. The burn up calculations of nuclear fuel by destruction method can be determined from the analysis of ¹³⁷Cs isotope, as fission product. For this reason, the separation of ¹³⁷Cs isotopes from uranium in irradiated fuel element plates of U_3Si_2/AI (PEB) needs to be done. The separation of ¹³⁷Cs was done by using cation exchange column method with Dowex resin with weight variation of 1; 2; 3; 4; 5 and 6 g. This study aims to determine the content of 137 Cs in irradiated fuel element plates of U_3 Si₂/Al (PEB) using the cation exchange column method with Dowex resin to be compared with the result of 137 Cs separation by cation exchange column method using Lampung zeolite and CsClO₄ precipitation method. The irradiated fuel element plates of U₃Si₂/AI (PEB) PEB U₃Si₂/AI with a density of 2.96 gU/cm³ from the middle part of RI-SIE2 code and side plate 20 IDA 0045 was taken with weight 0.1103 g and dissolved with HCl 6N and HNO₃ 6N to obtain uranil nitrate solution. The U₃Si₂/Al post irradiated solution was 150 µL was added with 2 mL aquadest and added with Cs carrier 20 µL and 1 mL HCl 12 M. The solution mixture was used as feed into the anion exchange column (first column) containing the R-Cl resin –with the wight variation about 1; 2; 3; 4; 5 and 6 g. The effluent from the anion exchange column was introduced into the cation exchange column (second column) which contained $R-NH4^+$ resin with weight variation of 1; 2; 3; 4; 5 and 6 g. The bounded ¹³⁷Cs isotope in R-NH4⁺ resin in the column was being eluted using 1 M HCl of 15 mL and being vaporized until the volume reach \pm 2 mL. The quantity of the ¹³⁷Cs isotope in the effluent was measured by using a gamma spectrometer with a counting time of 500 s. The ¹³⁷Cs isotope content in irradiated fuel element plates of U_3Si_2/AI (PEB) with the density 2.96 gU/cm³ is 0.000445 g/gPEB g and the parameter of separation ¹³⁷Cs with cation exchange column method using Dowex resin weighing 2 g with recovery is 98.67%. The result of separation of ¹³⁷Cs by cation exchange column method is not much different from the result of separation ¹³⁷Cs by cation exchange method and CsClO₄ precipitation method. The ¹³⁷Cs obtained can then be used for burn up calculations.

Keywords: U_3Si_2 /Al, isotope¹³⁷Cs, Dowex resin cation exchange column, burn up.

PENDAHULUAN

Uji pasca iradiasi atau Post Irradiation Examination (PIE) meliputi pengujian tidak merusak dan merusak sangat penting dilakukan terhadap bahan bakar nuklir. Pengujian tidak merusak bertujuan untuk mengetahui perubahan fisik yang menyebabkan terjadinya cacat pada bahan bakar selama iradiasi di reaktor seperti retak, blister, korosi, swelling serta distribusi hasil fisi dalam bahan bakar pasca iradiasi, sedangkan pengujian merusak bertujuan untuk mengetahui densifikasi, makro dan mikrostruktur, kekerasan, mulur (creep), keuletan dan kelelahan, U/O dan penyiapan penentuan burn up.

Di dalam reaktor, bahan bakar U_3Si_2/AI yang mengandung ²³⁵U dengan pengkayaan 19,75% mengalami reaksi pembelahan dengan neutron dan menghasilkan beberapa isotop hasil fisi seperti 92Kr, 141Ba, 90Sr dan 137Cs dan sejumlah energi, sedangkan ²³⁸U akan mengalami pembiakan menghasilkan isotop ²³⁹Np. ²³⁹Pu dan ²⁴⁰Pu. Isotop ²⁴⁰Pu merupakan isotop yang mengalami reaksi pembelahan spontan menghasilkan isotop hasil fisi seperti ⁹⁰Sr dan ¹³⁷Cs. Upaya untuk mengetahui kandungan isotop hasil fisi yang dihasilkan dari reaksi pembelahan tersebut perlu dilakukan analisis fisikokimia untuk penentuan burn up. Burn up dapat dinyatakan sebagai ratio atau fraksi atom fisil ²³⁵U dengan ²³⁵U mula-mula (data fabrikasi) dan biasanya dinyatakan dalam satuan % atau dalam satuan energi megawatt day (MWD). Selain itu, penentuan burn up bahan bakar secara merusak merupakan kegiatan penting untuk mempelajari unjuk kerja bahan bakar selama diiradiasi di dalam reaktor. Oleh karena itu. analisis fisikokimia untuk perhitungan burn up didasarkan kepada jumlah kandungan hasil fisi, 235U sisa dan kandungan unsur-unsur bermassa berat seperti plutonium dan uranium (uranium

yang terbakar) di dalam bahan bakar nuklir [1,2,3].

Penentuan burn up secara merusak dari bahan bakar pasca iradiasi menjadi sangat penting dilakukan untuk mengetahui kualitas bahan bakar dan integritas elemen bakar nuklirnya setelah iradiasi. Ada beberapa metode yang dapat digunakan untuk penentuan burn up secara fisikokimia diantaranya adalah melalui penentuan isotop spesifik sebagai monitor burnup seperti isotop 235U, 239Pu, dan 137Cs serta ¹⁴⁸Nd[4]. Pemilihan isotop ¹³⁷Cs sebagai isotop monitor burn up karena ¹³⁷Cs stabil, mempunyai waktu paruh panjang (30,17 tahun), pemancar radiasi gamma serta mempunyai fission yield sekitar 6,02%. Besarnya fission yield menunjukkan bahwa bahan bakar pasca iradiasi mengandung hasil fisi ¹³⁷Cs lebih besar dari isotop lainnya. Fenomena ini menunjukkan bahwa didalam bahan bakar pasca iradiasi kandungan isotop ¹³⁷Cs sebagai pemancar sinar-y lebih dominan dari pada isotop hasil fisi pemancar sinar-y lainnya. Selain isotop ²³⁵U dan ¹³⁷Cs untuk perhitungan *burn up*, berdasarkan pembahasan beberapa jurnal menjelaskan bahwa isotop ¹⁴⁸Nd paling banyak digunakan sebagai monitor burn up[4]. Namun analisis isotop Nd harus menggunakan peralatan spektrometer massa karena diperlukan pemisahan Nd dari Ce. Isotop ¹⁴²Ce mengganggu pengukuran ¹⁴²Nd, hal ini penting dilakukan untuk mengoreksi adanya kontaminasi Nd alam yang dapat mempengaruhi hasil perhitungan burnup. Hingga saat ini hot cell PTBBN belum memiliki alat spektrometer massa, sehingga perhitungan burn up tidak dapat dilakukan menggunakan isotop ¹⁴⁸Nd. Oleh karena itu, perhitungan burn up dilakukan melalui besar kandungan isotop 235U dan ¹³⁷Cs yang terdapat di dalam bahan bakar U_3Si_2/AI densitas 2,96 gU/cm³.

Upaya untuk mendukung kegiatan uji pasca iradiasi khususnya penentuan *burn up*, perlu dilakukan pemisahan ¹³⁷Cs dengan isotop lainnya sehingga dapat diketahui kandungan ¹³⁷Cs di dalam pelat elemen bakar (PEB) U₃Si₂/Al densitas 2,96 gU/cm³. Ada beberapa metode yang digunakan untuk pemisahan cesium dalam bahan bakar nuklir, diantaranya adalah dengan metode pertukaran kation menggunakan zeolite Lampung, pengendapan CsClO₄, pertukaran kation menggunakan metode resin Dowex dan pengendapan Cs₂PtCl₆[5,6]. Pemisahan cesium dengan metode penukar menggunakan kation zeolite Lampung diperoleh hasil bahwa cesium terikat dengan zeolit dalam fasa padat dan isotop lainnya berada dalam fasa cair seperti persamaan reaksi (1) dan (2)[5].

 $\text{Zeolit}(\text{M}^{n^+})+\text{NH}_4\text{CI} \rightarrow \text{NH}_4-\text{Zeolit}+\text{M}^{n^+}\text{CI}^-$ (1)

 NH_4 -Zeolit+¹³⁷Cs \rightarrow ¹³⁷Cs-Zeolit+ NH_4^+ (2)

Zeolit Lampung mempunyai kation (Mⁿ⁺) diaktivasi dengan NH₄Cl sehingga zeolit terikat dengan NH4⁺ dalam bentuk NH₄-Zeolit. Isotop ¹³⁷Cs dalam bahan bakar nuklir akan terikat dengan zeolit Lampung padatan ¹³⁷Cs-zeolit[5]. dalam bentuk Senvawa 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[7].

Sementara itu, pemisahan cesium dengan metode pengendapan dilakukan dengan penambahan senyawa pembawa untuk meningkatkan kandungan ion cesium. Persyaratan senyawa pembawa harus mempunyai sifat kimia yang sama dari ion cesium. Berdasarkan hal tersebut maka pada proses pengendapan¹³⁷Cs dari larutan bahan bakar nuklir dibutuhkan penambahan garam CsNO₃ dalam media HClO₄. Senyawa pembawa akan meningkatkan konsentrasi ion Cs⁺ dalam larutan bahan bakar, sehingga pada saat ion tersebut diendapkan sebagai garam CsClO₄, akan mengadsorpsi ¹³⁷Cs aktif secara maksimum dan menvebabkan pembentukan endapan ¹³⁷CsClO₄ juga terjadi secara maksimun sedangkan penggunaan media perchlorat ¹³⁷CsClO₄ disebabkan karena endapan memiliki kelarutan rendah pada temperatur itu 0°C [5,8]. Oleh karena proses ¹³⁷Cs isotop dengan pengendapan penambahan larutan HClO₄ harus dilakukan di dalam penangas es (ice bath) pada dibawah 0°C (-4°C) agar temperatur ¹³⁷CsClO₄ terbentuk endapan secara sempurna. Fenomena terjadinya reaksi pengendapan ¹³⁷CsClO₄ mengikuti reaksi (3) dan (4)[5,8]. Isotop ¹³⁷Cs berada pada fasa padat dalam bentuk endapan CsClO₄ dan isotop lainnya dalam fasa cair.

$$CsNO_3 + H_2O \rightarrow Cs^+ + NO_3^-$$

$$Cs^+ + {}^{137}Cs + HCIO_4 \rightarrow {}^{137}CsCIO_4(endapan) + H^+$$
(4)

Pada penelitian ini dilakukan pemisahan cesium dengan uranium yang terdapat dalam bahan bakar nuklir PEB U_3Si_2/AI dengan metode penukar kation menggunakan resin Dowex. Metode ini mempunyai keunggulan dari ke dua metode diatas karena mempunyai selektivitas dan efisiensi penyerapan yang tinggi serta dapat digunakan untuk larutan pasca iradiasi dengan konsentrasi rendah pada paparan radiasi \leq 150 µSv/jam (persyaratan bekerja dengan radiasi) [9]. Selain itu, pemisahan ¹³⁷Cs menggunakan resin kation diperoleh hasil isotop ¹³⁷Cs berada dalam fasa cair sebagai efluen, sedangkan dengan metote penukar kation menggunakan zeolite maupun Lampung dengan metode pengendapan CsClO₄ isotop ¹³⁷Cs diperoleh dalam fasa padat. Hal ini memungkinkan bahwa isotop ¹³⁷Cs diperoleh lebih murni dan bebas pengotor.

¹³⁷Cs Pemisahan dalam PEB U₃Si₂/Al pasca iradiasi dengan metode kolom penukar kation dilakukan dengan dua tahap. Tahap pertama dilakukan pemisahan unsur bermassa berat terutama uranium dengan cesium menggunakan metode kolom penukar anion atau kolom anionexcange [10]. Pada tahap kedua dilakukan pemisahan cesium dalam kolom penukar kation atau kolom cation-exchange. Larutan uranil nitrat UO₂(NO₃)₂ yang merupakan hasil pelarutan dari PEB U₃Si₂/Al pascai radiasi mengandung isotop hasil fisi dan

> Res-N⁺-(CH₃)₃Cl⁻ + UO₂(NO₃)₂.Cs \rightarrow Res-N⁺-(CH₃)₃UO₂Cl₃⁻ + CsNO₃ + HNO₃ (5)

Pada kolom pertama resin anion Res-N⁺-(CH₃)₃Cl⁻ mengikat uranium dalam bentuk senyawa kompleks $UO_2(NO_3)_2$ senyawa menjadi kompleks Res-N⁺-(CH₃)₃UO₂Cl₃, sedangkan CsNO₃ dan HNO₃ keluar dari kolom pertama (merupakan umpan pada kolom kedua). Isotop ¹³⁷Cs

Resin kation mengikat isotop ¹³⁷Cs dalam senyawa Res-N⁺-(CH₃)₃Cs kemudian dielusi dengan menggunakan larutan HCI 1 M sebanyak 15mL. Proses elusi tahap pertama digunakan bahan eluen yang berfungsi untuk memisahkan isotop ¹³⁷Cs dengan

unsur lain yang masih terikat bersama resin

R

Larutan CsCl yang keluar dari kolom kedua atau efluen banyak mengandung isotop ¹³⁷Cs. Efluen ¹³⁷Cs kemudian dipanaskan pada temperatur °C dengan tujuan untuk mengurangi kandungan air. Besarnya kandungan isotop ¹³⁷Cs dalam efluen diukur dengan menggunakan spektrometer-y. Hasil pengukuran diperoleh berupa cacahan per detik (cps) dan selanjutnya dapat diestimasi menjadi kandungan ¹³⁷Cs (µg/gPEB) dengan menggunakan rumus efisiensi detektor (Eff) menggunakan persamaan (8) dan (9).

$$Eff = \frac{Ci}{Akt * Yield}$$
(8)

unsur unsur bermassa berat dilewatkan ke dalam kolom pertama yang telah berisi resin penukar anion Dowex (R-CI). Pada kolom pertama akan terpisahkan unsur unsur bermassa berat dengan hasil fisi cesium. Unsur bermassa berat seperti uranium dan plutonium akan terikat dengan resin anion sedangkan isotop cesium lepas dan keluar dari kolom. Reaksi pertukaran anion yang terjadi antara isotop uranium dengan resin Dowex1x8-CI mengikuti persamaan reaksi (5)[11,12].

yang terikat dalam bentuk CsNO₃ dimasukkan ke dalam kolom kedua yang telah berisi resin penukar kation Dowex 50Wx8. Senyawa CsNO3 diikat oleh resin kation Res-N⁺-(CH₃)₃NH₄⁺dengan mengikuti

$$CsNO_3 + Res N^+ - (CH_3)_3 NH_4^+ \rightarrow Res N^+ - (CH_3)_3 Cs + NH_4 NO_3$$
(6)

persamaan reaksi (6).

[12,13]. Proses elusi pada tahap kedua digunakan asam lemah HCI 1M yang berfungsi untuk melepaskan isotop ¹³⁷Cs vang terikat dalam resin dengan mengikuti persamaan reaksi (7).

$$es-N^{+}-(CH_{3})_{3}^{+}Cs + HCI \rightarrow Res-N^{+}-(CH_{3})_{3}H^{+} + CsCl$$
(7)

$$N = \frac{Akt}{Eff * I rel *\lambda}$$
(9)

dengan

λ

- = Jumlah cacahan, dihitung dari net Ci *counts* isotop $(C - C_{bq})$
- Yield = Faktor intensitas dari isotop ¹³⁷Cs (tabel)
- = kandungan isotop¹³⁷Cs dalam berat Ν tertentu sampel bahan bakar nuklir

- = Efisiensi detektor Eff
- = Intensitas relatif puncak isotop¹³⁷Cs I_{rel} pada energi yang diukur

= Konstanta peluruhan

METODOLOGI

a. Aktivasi resin Dowex50Wx8H⁺ menjadi Dowex 50Wx8 NH₄⁺

Resin Dowex50Wx8H⁺ atau R-H⁺ dimasukkan ke dalam beaker gelas kemudian ditambah larutan NH4OH 6 M sebanyak 500 mL sambil diaduk merata secara perlahan-lahan. Pisahkan larutan dengan resin kemudian diukur kadar pH larutan. Resin Dowex yang tersisa dalam beaker gelas ditambahkan aquadest dan diaduk kembali secara perlahan lahan, kemudian dipisahkan dan diukur kadar pH dalam larutan[13]. Proses ini dilakukan terus menerus sampai mendapatkan pH larutan netral (pH=7). Resin Dowex R-NH₄⁺ yang diperoleh dikeringkan dalam oven pada temperatur 35°C selama 2 hari sehingga resin diperoleh Dowex 50Wx8 NH₄⁺ atau R-NH4⁺ siap digunakan sebagai resin penukar kation.

b. Pemisahan uranium dengan cesium dalam PEB U₃Si₂/Al pasca iradiasi

PEB U₃Si₂/AI densitas 2,96 gU/cm³ potongan bagian tengah (middle) kode RI-SIE2 pelat sisi ke 20 IDA0045 dengan berat 0,1103 g dilarutkan dengan HCI 6N dan HNO₃ 6N sehingga diperoleh larutan uranil nitrat[14]. Larutan U₃Si₂/Al pasca iradiasi dipipet sebanyak 150 µL ditambah 2 mL aquadest dan dimasukkan ke dalam botol gelas 10 mL kemudian ditambahkan Cs carrier sebanyak 20 µL dan 1 mL HCI 12M. Campuran larutan tersebut dikocok secara perlahan-lahan sampai homogen, kemudian dimasukkan ke dalam kolom penukar anion (kolom pertama) yang berisi resin R-Cl dengan variasi berat 1; 2; 3; 4; 5 dan 6 g menggunakan pipet kapiler. Bilas pipet kapiler dengan 2 mL larutan HCI 6 M dan air bilasan dimasukkan kembali ke dalam kolom penukar anion. Proses pembilasan dilakukan 3 kali menggunakan 10 mL HCI 6 M. Larutan yang keluar dari kolom penukar atau efluen anion dikumpulkan dalam beaker gelas. Efluen

dikisatkan hingga mendekati kering dibawah lampu inframerah kemudian residu dibasahi dengan 50 µL HCI 6 M hingga terbentuk pasta. Untuk melarutkan pasta digunakan air sebanyak 3 mL sambil diaduk merata sehingga diperoleh larutan efluen yang siap dipisahkan kandungan cesiumnya dengan metode kolom penukar kation.

Efluen dari kolom pertama dimasukkan ke dalam kolom penukar kation (kolom kedua) yang telah berisi resin R-NH4⁺ dengan variasi berat 1; 2; 3; 4; 5 dan 6 g menggunakan pipet kapiler. Bilas pipet kapiler menggunakan 3 mL air dan air bilasan dimasukkan kembali ke dalam kolom penukar kation. Cesium yang terikat dengan resin R-NH4⁺ di dalam kolom kemudian dielusi secara bertahap. Elusi kolom kation tahap pertama digunakan HCI 1 M sebanyak 15 mL, elusi kedua digunakan asam oksalat 0,5 M sebanyak 25 mL dan tahap ketiga digunakanair 5 mL. Larutan bilasan ditampung dan dicek isotop ¹³⁷Cs yang lolos. Tahap akhir, isotop ¹³⁷Cs yang terikat dengan resin R-NH4⁺ dielusi dengan larutan HCI 1 M sebanyak 25 mL. Upaya untuk mengurangi volume, efluen Cs dipanaskan diatas hotplate. Larutan ditambah dengan HCI 6 M sebanyak 1 mL dan diulangi hingga 3 kali, kemudian dikisatkan sampai diperoleh volume ± 2 mL. Besarnya kandungan isotop ¹³⁷Cs dalam efluen diukur dengan menggunakan spektrometer gamma dengan waktu cacah 500 detik. Hasil cacahan kemudian dievaluasi sehingga diperoleh pemisahan recovery dengan membandingkan hasil pengukuran sebelum dan sesudah pemisahan serta kandungan ¹³⁷Cs di dalam sampel PEB U₃Si₂/Al densitas 2,96 gU/cm³.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil proses aktivasi resin kation Dowex 50Wx8 H⁺ atau R-H⁺ dengan NH₄OH diperoleh resin Dowex 50Wx8 NH₄⁺ atau R-NH₄⁺ seperti yang ditunjukkan pada Gambar 1.

(Arif Nugroho, Dian Anggraini, Boybul, Sutri Indaryati, lis Haryati, Rosika Kriswarini, Aslina Br. Ginting)



Gambar 1. Proses aktivasi resin $R-H^+$ menjadi $R-NH_4^+$.

Proses aktivasi bertujuan untuk mendapatkan semua kation yang berada dalam resin R-H⁺ setelah mengalami proses aktifasi dapat digantikan dengan kation amonium secara homogen atau NH₄⁺ R-NH₄⁺. Kation monokationik mempunyai jari-jari ion 331 pm dan Cs⁺ mempunyai jari-jari ion sebesar 329 pm, sehingga kation Cs⁺ mudah bertukar dengan kation NH_4^+ [5,7].

Hasil pemisahan 137 Cs menggunakan metode kolom penukar anion (R-CI) diperoleh kandungan isotop 137 Cs yang terikat dalam resin sangat sedikit, sedangkan kandungan 137 Cs yang lolos dari kolom cukup besar seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2. Hal ini disebabkan karena resin anion R-CI tidak dapat mengikat atau bertukar dengan kation cesium. Resin R-CI dalam bentuk anion hanya dapat mengikat anion uranium UO₂(NO₃)₂ menjadi senyawa kompleks Res-N⁺-(CH₃)₃UO₂CI₃, sedangkan isotop 137 Cs lolos keluar dari kolom.



Gambar 2. Spektrum ¹³⁷Cs dalam efluen setelah melalui kolom penukar anion (kolom pertama).

Penggunaan berat resin anion R-Cl dengan variasi berat pada 1; 2; 3; 4; 5 dan 6 g tidak menunjukkan penyerapan isotop ¹³⁷Cs yang signifikan seperti yang terlihat pada Gambar 3.



dengan kandungan¹³⁷Cs.

Pada Gambar 3 terlihat bahwa isotop ¹³⁷Cs yang terikat dalam resin anion hingga 5 g sangat sedikit. Fenomena ini menunjukkan bahwa isotop ¹³⁷Cs sudah keluar dari kolom dan telah terelusi secara sempurna oleh larutan HCI 6 M. Selain itu, pemilihan dan penggunaan larutan HCI 6 M sebagai bahan eluen sangat sesuai untuk mengelusi isotop ¹³⁷Cs dalam resin anion, sehingga ¹³⁷Cs dapat terpisah dari uranium.

Sementara itu, hasil pemisahan ¹³⁷Cs menggunakan metode kolom penukar kation (R-NH₄⁺) pada kolom kedua (sebelum dielusi) diperoleh efluen-1 yang mengandung ¹³⁷Cs dalam jumlah sangat kecil seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.



efluen-1 setelah melalui kolom penukar kation.

Hal ini menunjukkan isotop 137 Cs telah terikat dengan sempurna bersama resin R-NH₄⁺ membentuk Res-N⁺-(CH₃)₃¹³⁷Cs di dalam kolom. Besarnya kandungan 137 Cs setelah melalui kolom penukar kation dengan variasi berat resin 1; 2; 3; 4; 5 dan 6 g ditunjukkan pada Tabel 1.

Tabel 1. Kandungan¹³⁷Cs dalam efluen-1 setelah pemisahan menggunakan kolom penukar kation

| Berat | <i>Net Area</i> ¹³⁷ Cs (cps) | | |
|--------|---|-------------|--|
| resin | Sebelum | Sesudah | |
| kation | masuk kolom | masuk kolom | |
| (g) | 2 | 2 | |
| 1 | 184,92 | 0,1265 | |
| 2 | 183,07 | 0,1289 | |
| 3 | 182,54 | 0,1277 | |
| 4 | 177,02 | 0,1242 | |
| 5 | 183,41 | 0,1263 | |
| 6 | 183,72 | 0,1263 | |

Tabel 1 menunjukkan bahwa jumlah cacahan isotop ¹³⁷Cs sebelum melewati kolom penukar kation (umpan) rata rata diperoleh sebesar 177,02 cps hingga 184,92 cps, Namun setelah melewati kolom penukar kation cacahan isotop ¹³⁷Cs dalam efluen-1 hanya sekitar 0,1263 cps hingga 0,1289 cps. Hal ini menunjukkan bahwa isotop ¹³⁷Cs telah terikat bersama resin

R-NH₄⁺ di dalam kolom dan hanya sedikit yang lolos keluar kolom.

Isotop ¹³⁷Cs yang terikat di dalam resin kation seperti yang terjadi pada persamaan reaksi (7) dielusi menggunakan larutan HCl encer sehingga isotop ¹³⁷Cs terbawa larutan elusi (eluen) keluar dari kolom sebagai efluen-2. Hasil pengukuran kandungan ¹³⁷Cs di dalam efluen-2 dengan spektrometer gamma diperoleh spektrum ¹³⁷Cs pada energi 661,45 keV seperti yang ditunjukkan pada Gambar 5.



Gambar 5. Spektrum isotop ¹³⁷Cs dalam efluen-2 setelah melalui kolom penukar kation.

Luas cacahan dari spektrum isotop ¹³⁷Cs untuk efluen-2, dievaluasi sehingga diperoleh kandungan ¹³⁷Cs di dalam potongan PEB U₃Si₂/Al bagian tengah seperti yang ditunjukkan pada Tabel 2.

Tabel 2. Kandungan ¹³⁷Cs sebelum dan sesudah masuk kolom penukar kation

| | Ka | _ | | |
|-------------|---------------|---------------|---------------|----------|
| Berat resin | sebelum masuk | sesudah masuk | sesudah masuk | Recovery |
| (g) | kolom 2 | kolom 2 | kolom 2 | (%) |
| | (umpan) | (efluen-1) | (efluen-2) | |
| 1 | 0,000455 | 0,000141 | 0,000285 | 62,63 |
| 2 | 0,000451 | 0,00000 | 0,000445 | 98,67 |
| 3 | 0,000449 | 0,00000 | 0,000176 | 39,19 |
| 4 | 0,000436 | 0,000000 | 0,000001 | 0,23 |
| 5 | 0,000451 | 0,00000 | 0,000001 | 0.23 |
| 6 | 0,000452 | 0,00000 | 0,000001 | 0,23 |

Tabel 2 menunjukkan bahwa *recovery* yang terbesar diperoleh pada penggunaan resin $R-NH_4^+$ dengan berat 2 g yaitu sebesar 98,67% dengan kandungan istop ¹³⁷Cs

sebesar 0,000445g/gPEB. Semakin besar nilai *recovery* mengindikasikan bahwa metode proses pemisahan semakin baik karena unsur maupun isotop

(Arif Nugroho, Dian Anggraini, Boybul, Sutri Indaryati, lis Haryati, Rosika Kriswarini, Aslina Br. Ginting)

pengganggunya semakin kecil[10]. Dari kandungan ¹³⁷Cs yang terbesar pada *recovery* pemisahan 98,67% diperoleh kondisi optimum penggunaan resin kation R-NH₄⁺ dengan berat 2 g, sedangkan penggunaan resin dengan berat 3 g sampai dengan 6 g tidak mengalami perubahan seperti yang terlihat pada Gambar 6. Hal ini menunjukkan bahwa bertambahnya berat resin tidak memberikan pengaruh kepada penyerapan isotop ¹³⁷Cs karena telah tercapai batas kapasitas tukar kation (KTK) dari resin tersebut.



Gambar 1. Hubungan berat resin kation $R-NH_4^+$ dengan kandungan ¹³⁷Cs.

Hal ini menunjukkan bahwa bertambahnya berat resin tidak memberikan pengaruh kepada penyerapan isotop ¹³⁷Cs karena telah tercapai batas kapasitas tukar kation (KTK) dari resin tersebut.

Hasil pemisahan isotop 137Cs di dalam PEB U₃Si₂/AI densitas 2,96 gU/cm³ kode RI-SIE2 pelat sisi ke 20 IDA0045 dengan metode kolom penukar kation resin Dowex diperoleh menggunakan kandungan ¹³⁷Cs sebesar 0,000445 g/gPEB. Hasil ini hampir sama dengan pemisahan ¹³⁷Cs dengan metode penukar kation menggunakan zeolit Lampung maupun menggunakan metode pengendapan CsCO₄. Kandungan ¹³⁷Cs menggunakan metode penukar kation diperoleh sebesar 0,000465 g/gPEB dengan recovery 99,08%, sedangkan dengan metode pengendapan diperoleh 0,000464 g/gPEB dengan recovery 98,35%[15].

SIMPULAN

isotop¹³⁷Cs Pemisahan dalam larutan PEB U₃Si₂/Al pasca iradiasi dengan metode kolom penukar kation menggunakan resin Dowex dengan berat 2 g diperoleh hasil cukup baik dengan recovery sebesar 98,67%. Kandungan isotop¹³⁷Cs di dalam sampel PEB U₃Si₂/Al densitas 2,96 gU/cm³ diperoleh pasca iradiasi sebesar 0,000445 µg/gPEB dan tidak jauh berbeda dengan kandungan ¹³⁷Cs yang dipisahkan dengan metode penukar kation maupun metode pengendapan CsClO₄. Kandungan ¹³⁷Cs yang diperoleh selanjutnya dapat digunakan untuk perhitungan burn up.

UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terima kasih penulis sampaikan pada Kepala Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir yang telah memfasilitasi penelitian ini dengan anggaran DIPA 2016. Penulis juga mengucapkan terima kasih pada Drs. Yusuf Nampira yang telah memberi banyak masukan sehingga penelitian ini bisa dilaksanakan dengan baik.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] K. Joe, Y.S. Jeon, J.S. Kim, S.H. Han, J.G. Kim and W.H. Kim, "Separation of burnup monitors in spent nuclear fuel samples by liquid chromatography," *Bulletin of the Korean Chemical Society*, vol 26 no.4, pp. 569-574, 2005.
- [2] J.S. Kim, Y.S. Jeon, S.D. Park, Y.K. Ha and K. Song, "Analysis of high burnup pressurized water reactor fuel using uranium, plutonium, neodymium and cesium isotope correlations with burnup," *Journal Nuclear Engineering Technology*, vol. 47, pp. 924-933 2015.
- [3] A. Nugroho, Yanlinastuti, S. Indaryati, I. Haryati, "Pemisahan dan analisis isotop cesium dan uranium di dalam PEB U₃Si₂-Al pasca iradiasi," *Prosiding Seminar Nasional Teknologi Energi Nuklir 2016*, 4-5 Agustus 2016, Batam.
- [4] R.I. Dobrin, T. Craciunescu and M. Pavelescu, "CANDU and TRIGA fuel

burn-up determination using axial and tomographic gamma scanning," *Institute for Nuclear Research Pitesti*, Campului Str 1, 4 November 2010, Mioveni, Rumania.

- [5] A.B. Ginting dan D. Anggraini, "Metode pengendapan dan penukar kation untuk pemisahan cesium dalam bahan bakar U₃Si₂-Al". *Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, vol. 22, no.2, hal 99-110, 2016.
- [6] F.H. El-Sweify, A. Karmeldin, D. Abd El Monem, N. Adel and W.S. Hegazy, "Isolation and recovery of Cesium-137 from reactor actual liquid waste sampels for purpose using ion exchangers of different kinds," *Journal* of Nuclear Science and Applications, vol.46, no.4, pp. 62-78, 2013.
- [7] S. Amini, D. Anggraini, Y. Nampira, R. Kriswarini, Noviarty, A. Nugroho, "Keselektifan zeolit Lampung terhadap kation-kation matrik hasil fisi uranium," *Jurnal Zeolit Indonesia*, vol. 2, no. 1, hal. 9-14, 2003.
- [8] D. Anggraini dan R. Kriswarini, "Penentuan isotop Cs dari unsur Cs dalam larutan aktif CsNO₃", *Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, vol.15, no.1, hal. 26-35, 2009.
- [9] Laporan Analisis Keselamatan Instalasi Radiometalurgi, Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir, Badan Tenaga Nuklir Nasional, No. Dok. KK32 J09 001, 2012.
- [10] S.A. Abo-Farha, N.A. Badawy, A.A. Emam and N.M. Moursy, "Anion exchange behavior of some elements in acetic acid-hydrochloric acid media,"

Journal of American Science, vol.6, no.10, 2010.

- [11] J. Real, F. Persin, C. Camarasa Cauret, "Mechanisms of desorption cesium and stronsium aerosols deposited on urban surfaces," *Journal of Environmental Radioactivity*, vol.62, no.1, 2012.
- [12] Boybul, Yanlinastuti, D. Anggraini, A.B. Ginting, A. Nugroho dan R Kriswarini, "Pengaruh penambahan ion sulfat terhadap rekoveri pemisahan uranium menggunakan metode kolom penukar anion", *Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, vol.23, no.3, hal 195-204, 2017.
- [13] A. Lesniewicz. L Polowczyk, K. Checmanowski, T. Szkozlecki, P. Jermakowicz-Bartkowiak, D. Pohl. "Surface activated anion exchange resins for synthesis and immobilization of gold and palladium nano and microstructures," Reactive and Functional Polymers Journal, vol.124, pp.90-103, 2018.
- [14] S. Indaryati dan Yanlinastuti,
 "Pemungutan uranium dari gagalan pelat elemen bakar U₃Si₂-Al dengan cara pelarutan," *Prosiding Seminar Pengelolaan Perangkat Nuklir PTBN-BATAN*, 11 September 2007, Tangerang.
- [15] Boybul, Yanlinastuti, D. Anggraini, A. Nugroho, R. Kriswarini, A.B. Ginting, "Analisis kandungan cesium dan uranium dalam bahan bakar U₃Si₂/Al pasca iradiasi," *Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, vol.23, no.3, hal 107-116, 2017.