
PENENTUAN *RECOVERY* NEODYMIUM DAN CERIUM PADA PROSES PEMISAHAN ISOTOP DARI SIMULASI PEB U_3Si_2/Al PRA IRADIASI

Noviarty, Erlina Noerpitasari, Rosika Kriswarini, Agus Jamaludin, Sutri Indaryati,
Sayyidatun Nisa, Samsul Fatimah

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN

Kawasan Puspiptek Serpong Gd.20 Tangerang Selatan, Banten 15314

e-mail: artynov@yahoo.co.id

(Naskah diterima: 12-02-2020, Naskah direvisi: 25-02-2020, Naskah disetujui: 29-02-2020)

ABSTRAK

PENENTUAN *RECOVERY* NEODYMIUM DAN CERIUM PADA PROSES PEMISAHAN ISOTOP DARI SIMULASI PEB U_3Si_2/Al PRA IRADIASI. Neodymium (Nd) merupakan salah satu isotop hasil fisi yang digunakan sebagai indikator *burnup* bahan bakar nuklir karena isotop Nd merupakan hasil fisi yang stabil, mempunyai *yield* yang cukup besar, tidak mudah menguap dan mempunyaiampang lintang penangkap neutron yang rendah. Penentuan *burnup* menggunakan isotop Nd ini dapat mendukung dan memverifikasi hasil penentuan *burnup* yang telah dilakukan sebelumnya yaitu menggunakan isotop Cs, U dan Pu. Penentuan *burnup* menggunakan isotop Nd dilakukan secara merusak (*Destructive Test, DT*) berdasarkan kepada penentuan isotop spesifik yang dilakukan secara fisikokimia menggunakan peralatan spektrometer massa. Berdasarkan metode ASTM E 321-69 untuk melakukan analisis isotop Nd diperlukan pemisahan Nd dari Ce karena isotop ^{142}Ce mengganggu pengukuran ^{142}Nd yang disebabkan oleh sifat isobar kedua isotop tersebut. Fenomena ini akan mempengaruhi hasil perhitungan *burnup*. Selain hal tersebut, keberadaan isotop Nd dalam bahan bakar PEB U_3Si_2/Al masih bercampur dengan isotop hasil fisi lainnya seperti isotop ^{235}U , ^{239}Pu , ^{148}Nd , ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{143}Ce , ^{103}Ru , ^{95}Zr , dan ^{95}Nb . Oleh karena itu untuk memperoleh nilai yang akurat sebagai indikator *burnup* maka isotop-isotop tersebut harus dipisahkan. Sebelum dilakukan pemisahan isotop Nd dan Ce maka dilakukan beberapa tahap proses pemisahan isotop Cs (^{137}Cs , ^{134}Cs), isotop U (^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U), isotop Pu (^{239}Pu , ^{238}Pu) dan isotop-isotop lainnya (^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{103}Ru , ^{95}Zr , dan ^{95}Nb). Penentuan *recovery* ini bertujuan untuk mengetahui jumlah Nd dan Ce pada setiap tahapan proses pemisahan terhadap isotop-isotop lain, sebelum sampai pada tahap pemisahan Nd dan Ce. Penentuan *recovery* dilakukan secara simulasi terhadap larutan PEB U_3Si_2/Al pra iradiasi yang ditambah larutan standar Cs, U, Nd dan Ce. Hasil *recovery* Nd dan Ce yang diperoleh dari tahapan proses pemisahan Cs menggunakan zeolit masing-masing sebesar 69,91% dan 64,42%, sedangkan hasil *recovery* Nd dan Ce pada tahapan proses pemisahan Pu dan U diperoleh sangat baik yaitu mendekati nilai 100%. *Recovery* Nd dan Ce ini selanjutnya digunakan sebagai koreksi pada perhitungan pemisahan Nd dan Ce dari larutan PEB, yang akan menjadi acuan dalam penentuan *burnup* bahan bakar PEB U_3Si_2/Al menggunakan indikator Nd.

Kata kunci: Nd *recovery*, Ce *recovery*, indikator *burnup*, PEB U_3Si_2/Al

ABSTRACT

DETERMINATION OF NEODYMIUM AND CERIUM RECOVERY IN ISOTOPE SEPARATION PROCESS OF SIMULATED PRE-IRADIATED U_3Si_2/Al FUEL. Neodymium (Nd) is one of the fission product isotopes used as an indicator of nuclear fuel burn-up because Nd isotope is a stable fission product, has a sufficiently great yield, is not volatile and has low neutron-capture cross-section. Burn-up determination using Nd can support and verify the results of the burn-up determined by using Cs, U and Pu isotopes. Destructive burn-up determination (Destructive Test, DT) is based on the determination of specific isotopes that is performed physicochemically using mass spectrometer equipment. Based on ASTM E 321-69 method for Nd isotope analysis, Nd separation from Ce is required because ^{142}Ce isotope interferes with ^{142}Nd measurement due to their being isobars, and this phenomenon will affect the results of the burn-up calculations. In addition, Nd isotope in U_3Si_2/Al fuel is present along with other fission isotopes such as ^{235}U , ^{239}Pu , ^{148}Nd , ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{143}Ce , ^{103}Ru , ^{95}Zr , and ^{95}Nb . Therefore, to obtain an accurate value to be used as burn-up indicator, the isotopes must be separated. Before the Nd and Ce separation, several separation phases of Cs isotopes (^{137}Cs , ^{134}Cs), U isotopes (^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U), Pu isotopes (^{239}Pu , ^{238}Pu) and other isotopes (^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{103}Ru , ^{95}Zr and ^{95}Nb) were done. The determination of separation recovery aimed to determine the amount of Nd and Ce at each stage of the separation process of other isotopes prior to the separation stage of Nd and Ce. The determination of recovery was conducted by a simulation of fresh U_3Si_2/Al solution plus standard solutions of Cs, U, Nd and Ce. The recovery for Nd and Ce from Cs separation phase using zeolites were 69.91% and 64.42% respectively while the recovery of Nd and Ce at Pu and U separation phase were close to 100%. The recovery values of Nd and Ce were then used as a correction in the calculation of Nd and Ce separation from the fuel solution, and the corrected values can then be used as a reference in determining the burn-up of U_3Si_2/Al fuel using Nd as an indicator.

Keywords: Nd recovery, Ce recovery, Burn-up Indicator, U_3Si_2/Al

PENDAHULUAN

Analisis *Post Irradiation Examination* (PIE) merupakan uji pasca iradiasi bahan bakar nuklir. Salah satu tujuan dari analisis ini adalah untuk penentuan *burnup* bahan bakar. Penentuan *burnup* bahan bakar berperan penting dalam melihat unjuk kerja bahan bakar selama proses iradiasi di reaktor. Dalam teras reaktor selama proses iradiasi, bahan bakar nuklir U_3Si_2/Al akan mengalami reaksi pembelahan berantai dengan neutron yang akan menghasilkan energi. Besar energi yang dihasilkan dari reaksi pembelahan ini dapat diketahui dari laju pembelahan bahan bakar nuklir atau analisis penentuan derajat bakar (*burnup*). *Burnup* biasanya dinyatakan dalam satuan energi (MWD= *Megawatt Day*) yang dihasilkan dari proses reaksi fisi atom fisil ^{235}U . Nilai *burnup* bahan bakar dihitung berdasarkan kepada analisis jumlah hasil fisi, uranium sisa (uranium yang terbakar) dan isotop hasil biak atau unsur-unsur bermassa berat seperti plutonium dan uranium di dalam bahan bakar nuklir dengan menggunakan rumus[1,2,3]:

$$BU = \frac{U_o - U_i}{U_o} \times 100\%$$

dengan:

BU : *Burnup*

U_o : Jumlah atom ^{235}U awal

U_i : Jumlah atom ^{235}U yang tersisa atau

U_i : Jumlah atom ^{235}U awal–jumlah atom ^{235}U yang terbakar menjadi ^{137}Cs dan ^{239}Pu

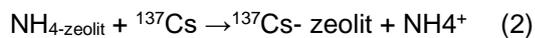
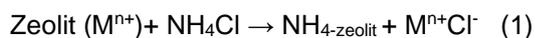
Secara teoritis melalui perhitungan program *Origen Code*, Badan Tenaga Nuklir Nasional (BATAN) telah menetapkan *burnup* untuk pengoperasian RSG-GA. Siwabessy di Serpong adalah sebesar 56%, sesuai dengan aturan Badan Pengawas Tenaga Nuklir Nasional (BAPETEN) dan *International Atomic Energi Agency*. Selanjutnya Aslina, dkk telah membuktikan besaran *burnup* melalui analisis merusak secara radiokimia dengan menggunakan monitor *burnup* isotop ^{235}U , ^{239}Pu , ^{137}Cs adalah sebesar 51,69%.

Hasil *burnup* yang diperoleh ini sedikit lebih rendah dibandingkan dengan hasil *burnup* berdasarkan perhitungan *Origen Code*[2].

Isotop hasil fisi (*fission product*) dari bahan bakar yang dapat digunakan sebagai monitor *burnup* secara radiokimia antara lain adalah ^{235}U , ^{239}Pu , ^{148}Nd , ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{143}Ce , ^{103}Ru , ^{95}Zr , dan ^{95}Nb [2,3,4]. Penentuan *burnup* diuji secara radiokimia berdasarkan keberadaan isotop hasil fisi. Chile adalah salah satu negara yang menggunakan isotop produk fisi ^{95}Zr untuk analisis *burnup*[5]. Indonesia sebagaimana halnya Amerika menggunakan produk fisi berupa isotop Cs, U dan Pu sebagai monitor *burnup*[2,8,9], sedangkan Korea dan India menggunakan isotop hasil fisi U, Pu, dan Nd untuk analisis *burnup*[6,7,8]. Selanjutnya, dalam rangka mendukung dan menverifikasi hasil analisis *burnup* PEB U_3Si_2/Al yang telah diperoleh dari penggunaan isotop Cs, U dan Pu, Indonesia akan melakukan analisis *burnup* dengan menggunakan isotop Nd sebagai indikator, mengacu pada hasil penelitian dari Belgia, Yugoslavia dan Korea[10,11,12,13].

Isotop Neodymium (Nd) merupakan salah satu isotop hasil fisi yang telah digunakan sebagai indikator *burnup* bahan bakar pasca iradiasi di Korea karena isotop Nd merupakan hasil fisi yang stabil, mempunyai *yield* yang cukup besar, tidak mudah menguap, dan mempunyai tampang lintang penangkap neutron yang rendah[10]. Penentuan *burn up* menggunakan isotop Nd dilakukan secara merusak (*Destructive Test*, DT). Teknik destruktif dilakukan berdasarkan pada penentuan isotop spesifik yang dilakukan secara fisikokimia menggunakan peralatan spektrometer massa. Berdasarkan metode ASTM E 321-69 untuk menganalisis isotop Nd diperlukan pemisahan Nd dari Ce karena Isotop ^{142}Ce mengganggu pengukuran ^{142}Nd yang disebabkan oleh sifat isobar kedua isotop tersebut sehingga dapat mempengaruhi hasil perhitungan *burnup* [10,11,12,13].

Dalam bahan bakar PEB U_3Si_2/Al , keberadaan isotop Nd masih bercampur dengan isotop hasil fisi lainnya seperti isotop ^{235}U , ^{239}Pu , ^{148}Nd , ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{143}Ce , ^{103}Ru , ^{95}Zr , dan ^{95}Nb . Oleh karena itu, untuk memperoleh nilai yang akurat sebagai indikator *burnup* maka isotop-isotop tersebut harus dipisahkan. Sebelum melakukan pemisahan isotop Nd dan Ce akan dilalui beberapa tahap proses pemisahan Cs (^{137}Cs , ^{134}Cs), pemisahan U (^{234}U , ^{235}U , ^{236}U , ^{238}U), pemisahan Pu (^{239}Pu , ^{238}Pu) dan pemisahan isotop lainnya, (^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{103}Ru , ^{95}Zr , dan ^{95}Nb). Pemisahan isotop Cs, U, Pu dan isotop lainnya dari dalam PEB U_3Si_2/Al mengacu pada metode yang telah digunakan pada penelitian penentuan *burn up* mutlak pelat elemen bakar U_3Si_2/Al tingkat muat uranium $2,96 \text{ gU/cm}^3$ pasca iradiasi oleh Aslina dkk[2]. Pada penelitian tersebut, sebelum melakukan pemisahan/pemungutan U dan Pu di dalam larutan PEB U_3Si_2/Al dengan metode kolom penukar anion menggunakan resin DOWEX 1x8, terlebih dahulu dilakukan pengambilan Cs dengan menggunakan penukar kation zeolit lampung. Pada kegiatan pengambilan isotop ^{137}Cs terjadi proses pertukaran kation sehingga isotop ^{137}Cs ini akan terikat dalam endapan zeolit dalam bentuk fasa padat dengan reaksi sebagai berikut[1,2] :



Keterangan :

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

n = elektron valensi logam.

Isotop hasil fisi lainnya yang terkandung dalam larutan PEB U_3Si_2/AL seperti misalnya ^{235}U , ^{239}Pu , ^{148}Nd , ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{143}Ce , ^{103}Ru , ^{95}Zr , dan ^{95}Nb akan berada dalam campuran supernatan dalam bentuk fasa cair. Selanjutnya tahap proses pemisahan isotop berikutnya adalah pemisahan isotop U dan Pu. Pemisahan U dan Pu yang terkandung dalam larutan fasa

cair (supernatan) akan dipisahkan dari isotop lainnya (^{148}Nd , ^{137}Cs , ^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{143}Ce , ^{103}Ru , ^{95}Zr , dan ^{95}Nb) dengan metode kolom penukar anion menggunakan resin Dowex 1x8 mengikuti prosedur ASTM C1411-01. [2,14] Pada tahap proses pemisahan U dan Pu ini, larutan supernatan (larutan fasa cair hasil pemisahan Cs) yang telah dikondisikan dengan HNO_3 akan terikat dalam padatan resin dalam bentuk $[\text{Pu}^{4+}(\text{NO}_3)_6]^{2-}$ sedangkan U beserta ^{148}Nd , ^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{143}Ce , ^{103}Ru , ^{95}Zr dan ^{95}Nb berada dalam larutan fasa cair (supernatan). Selanjutnya larutan supernatan (larutan fasa cair hasil pemisahan Pu) yang mengandung isotop U dan isotop hasil fisi ^{148}Nd , ^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{143}Ce , ^{103}Ru , ^{95}Zr dan ^{95}Nb yang keluar dari resin dikondisikan dengan HCl sehingga U berubah menjadi ion bervalensi IV. Larutan supernatan kemudian kembali dialirkan ke dalam kolom penukar anion berisi resin dowex 1x8 berikutnya. Pada proses ini U dalam larutan supernatan, yang telah diubah kedalam ion bervalensi IV akan terikat dalam padatan resin dowex 1x8 dalam bentuk UCl_6^{2-} , sedangkan ^{148}Nd , ^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{143}Ce , ^{103}Ru , ^{95}Zr dan ^{95}Nb yang berada dalam fasa cair, akan keluar dari resin sebagai larutan supernatan[2,14]. Selanjutnya adalah tahap proses pemisahan Nd, Ce dari isotop hasil fisi lainnya (^{152}Eu , ^{90}Sr , ^{103}Ru , ^{95}Zr , dan ^{95}Nb) yang terkandung dalam larutan supernatan (larutan fasa cair hasil pemisahan U) menggunakan resin penukar Anion dowex 1-X4. Pada proses pemisahan ini larutan supernatan hasil pemisahan U dikondisikan kembali dengan asam nitrat 0,8M dalam metanol 99,6%. Selanjutnya larutan supernatant yang telah dikondisikan tersebut, dialirkan kedalam kolom pemisah anion resin anion dowex 1X4. Pada proses ini Nd dan Ce akan terikat dalam resin dan terpisah dari hasil fisi lainnya. Selanjutnya dilakukan pemisahan Nd dan Ce yang terikat dalam resin dengan mengelusi menggunakan eluen HNO_3 0,04M: metanol 99,6% (1:9) hasil proses ini akan menghasilkan eluen Nd yang telah terpisah dari Ce[7,15,16]

Berdasarkan tahap proses pemisahan isotop Nd dan Ce yang dilalui begitu panjang dan dengan banyak pengkondisian sampel, maka penting dilakukan penentuan *recovery* Nd dan Ce pada setiap tahapan proses pemisahan. Penentuan *recovery* pemisahan Nd, Ce pada setiap tahap proses pemisahan ini bertujuan agar dapat diketahui jumlah Nd dan Ce yang hilang pada setiap tahapan proses pemisahan sebelum dilakukan pemisahan Nd dan Ce. Dengan diketahuinya Nd dan Ce yang hilang selama proses pemisahan Cs, U dan Pu, maka koreksi perhitungan *burnup* menggunakan monitor isotop Nd dapat dilakukan. Selain itu juga dapat ditentukan apakah metode ini cukup efektif untuk digunakan sebagai monitor *burnup* yang akan mendukung dan memverifikasi hasil penentuan *burnup* yang telah dilakukan sebelumnya menggunakan isotop Cs, U dan Pu[2]. Lingkup kegiatan pada penentuan *recovery* Nd dan Ce dibatasi pada tahapan proses pemisahan cesium, pemisahan plutonium dan pemisahan uranium.

Penentuan *Recovery* pemisahan Nd dan Ce dari bahan bakar PEB U_3Si_2/Al dilakukan secara simulasi menggunakan PEB U_3Si_2/Al TMU 2.96 gU/Cm³ prairadiasi dengan penambahan standar Cs, Nd dan Ce bersertifikat dari Spex. Walaupun penambahan Pu tidak dilakukan karena tidak tersedianya standar Pu, namun proses ini tetap dilakukan karena proses penelitian ini mengacu pada penentuan *burn up* mutlak pelat elemen bakar U_3Si_2/Al tingkat muat uranium 2,96 gU/cm³ pasca iradiasi oleh Aslina dkk[2] Nilai *recovery* yang diperoleh, menjadi acuan sebelum pelaksanaan kegiatan proses pemisahan Nd dan Ce dilakukan, serta sebagai faktor koreksi pada perhitungan hasil analisis Nd dalam bahan bakar PEB U_3Si_2/Al .

METODOLOGI

Penentuan *recovery* Nd dan Ce pada proses pemisahan isotop dari bahan bakar PEB U_3Si_2/Al , dilakukan secara simulasi

dengan menggunakan PEB U_3Si_2/Al prairadiasi dengan tambahan larutan standar Cs, Nd dan Ce. Prosedur pemisahan mengacu pada Standar Operasional Prosedur metode baku penentuan *burnup* U_3Si_2/Al TMU 2,96 gU/Cm³ PTBBN-BATAN. Hasil pemisahan dianalisis menggunakan alat spektrometer *X-Ray Fluoresence* (XRF) dan *recovery* Nd dan Ce dihitung menggunakan persamaan 1.

$$\text{Recovery} = \frac{\text{Kons. hasil proses}}{\text{Kons. hasil awal}} \times 100\% \quad (1)$$

Penentuan akurasi pengukuran Nd dan Ce menggunakan Spektrometer XRF

Sebelum dilakukan penentuan *recovery* pemisahan Nd dan Ce pada proses pemisahan Cs menggunakan penukar kation Zeolit, dilakukan penentuan akurasi pengukuran kandungan Nd dan Ce pada umpam menggunakan spektrometer XRF. Akurasi pengukuran dilakukan dengan membandingkan hasil pengukuran larutan bahan bakar PEB U_3Si_2/Al yang ditambah Cs, Nd dan Ce dengan larutan bahan bakar PEB U_3Si_2/Al yang hanya ditambah Nd dan Ce tanpa ada penambahan Cs. Akurasi dihitung menggunakan persamaan 2.

$$\%error = \frac{C_{teoritis} - C_{terukur}}{C_{teoritis}} \times 100\% \quad (2)$$

C = Konsentrasi

$C_{teoritis}$ = Konsentrasi dihitung berdasarkan sertifikat

Penentuan *recovery* Nd dan Ce pada proses pemisahan Cs dari PEB U_3Si_2/Al

Penentuan *recovery* pada proses pemisahan diawali dengan memipet larutan PEB U_3Si_2/Al prairadiasi sejumlah 750 μ L; ditambah dengan 1 mL larutan standar Cesium; 1 mL larutan standar Nd dan 1 mL larutan standar Ce dari Spex. Larutan kemudian ditambah dengan 400 mg zeolit Lampung. Proses penukar kation dilakukan dengan pengocokan selama 1 jam. Untuk

menyempurnakan pemisahan Cs-zeolit sebagai fasa padat dengan supernatan sebagai fasa cair endapan Cs-zeolite diinapkan selama 24 jam[10,17]. Selanjutnya larutan supernatan (mengandung U,Pu, Nd,Ce) dipisahkan dari endapan Cs-Zeolit. Larutan supernatan ditepatkan hingga volume 5 mL menggunakan labu takar. Larutan supernatan sebanyak 4 mL dijadikan umpan pada proses pemisahan isotop Pu dan 0,5 mL lainnya digunakan untuk pengukuran menggunakan XRF untuk menentukan persen *recovery* Nd dan Ce.

Penentuan *recovery* Nd dan Ce pada proses pemisahan isotop Pu dari PEB U_3Si_2/Al

Larutan supernatan di pipet sebanyak 4 mL dan dimasukkan ke dalam kolom resin Dowex 1x8 setelah dikondisikan dengan HNO_3 . Pada proses ini, ion Pu akan terikat dalam resin dowex 1x8 dalam bentuk senyawa $[Pu^{4+} (NO_3)_6]^{2-}$. Efluen yang telah terpisah dari Pu ditampung menggunakan labu takar hingga tepat 5 ml. Selanjutnya 4 mL larutan efluen dijadikan umpan pada proses pemisahan isotop U. Kemudian larutan efluen sebanyak 0,5 mL digunakan

pada penentuan *recovery* Nd dan Ce setelah diukur menggunakan spektrometer XRF.

Penentuan *recovery* Nd dan Ce pada proses pemisahan isotop U dari PEB U_3Si_2/Al

Larutan efluen setelah pemisahan Pu di pipet sebanyak 4 mL, dimasukkan kedalam kolom resin Dowex 1x8 setelah dikondisikan dengan HCl. Selanjutnya larutan efluen dialirkan dan ditampung untuk pemisahan Nd dan Ce. Pada proses ini resin dowex 1x8 akan mengikat U dalam bentuk senyawa UCl_6^{2-} . Efluen yang telah terpisah dari U ditepatkan hingga volume 5 ml. Untuk menentukan *recovery* Nd dan Ce larutan efluen dipipet sebanyak 0,5 mL dan diukur dengan spektrometer XRF.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Sebelum dilakukan penentuan *recovery* pemisahan Nd dan Ce pada proses pemisahan Cs menggunakan penukar kation Zeolit dilakukan penentuan akurasi pengukuran kandungan Nd dan Ce pada umpan menggunakan spektrometer XRF. Hasil analisis ditunjukkan dalam Tabel 1.

Tabel 1. Data Hasil Pengaruh Cs terhadap Akurasi Pengukuran Nd menggunakan Spek.XRF

Sampel	Rasio Intensitas rerata	Konsentrasi Teoritis (ppm)	Konsentrasi Nd Terukur (ppm)	Akurasi (%)
Pengukuran Nd		Nd/La		
Umpan Awal 1	1,1659	2000	589,475	70,92
Umpan Awal 2	1,1406		573,568	
Umpan Awal 1 tanpa Cs	3,6952	2000	2180,036	8,76
Umpan Awal 2 tanpa Cs	3,6796		2170,279	
Pengukuran Ce		Ce/La		
Umpan Awal 1	1,4869	2000	729,565	63,57
Umpan Awal 2	1,4829		727,476	
Umpan Awal 1 tanpa Cs	4,3279	2000	2194,622	10,42
Umpan Awal 2 tanpa Cs	4,3810		2222,016	

Pada tabel 1 terlihat akurasi yang cukup besar, yaitu sebesar 70,92% untuk Nd dan 63,57% untuk Ce pada umpan yang

mengandung Cs. Akurasi yang cukup besar ini disebabkan oleh pengaruh keberadaan isotop Cs pada umpan. Hal ini dibuktikan

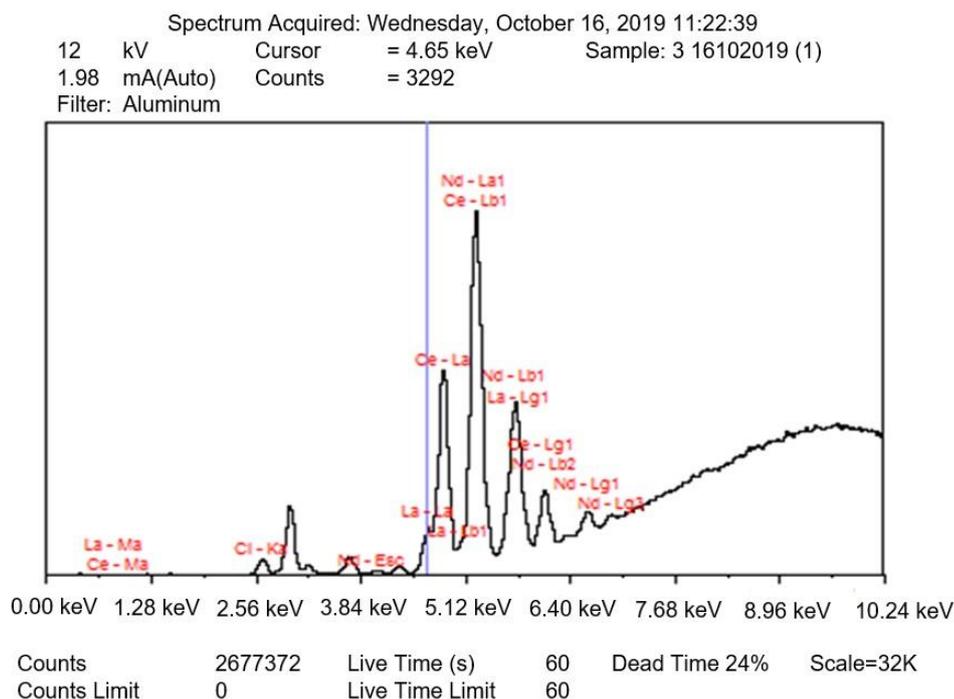
dengan besar akurasi yang cukup kecil yaitu 8,76% untuk Nd dan 10,42% untuk Ce pada umpan yang tidak mengandung Cs. Nilai akurasi yang digambarkan dengan nilai *%error* menunjukkan bahwa semakin kecil nilai akurasi maka semakin akurat hasil yang diberikan, karena nilai akurasi merupakan kedekatan nilai ukur dengan nilai sebenarnya[18].

Pengaruh cesium terhadap pengukuran Nd dan Ce dengan spektrometri XRF ini disebabkan karena energi spektrum La yang digunakan untuk koreksi intensitas sinar Nd dan Ce, berimpit dengan energi spektrum Cs. Energi spektrum Cs sebesar 4,62 keV dan energi spektrum La yaitu 4,65 keV. Energi spektrum tidak akan saling mempengaruhi bila energi spektrum satu dengan yang lainnya berbeda lebih dari 1,60 keV. Energi spektrum Cs yang berdekatan akan menaikkan intensitas koreksi dari La, yang menyebabkan turunnya rasio intensitas dari Nd/La dan Ce/La. Fenomena ini dibuktikan dari gambar spektrum hasil pengukuran umpan yang mengandung Cs dan umpan yang tidak

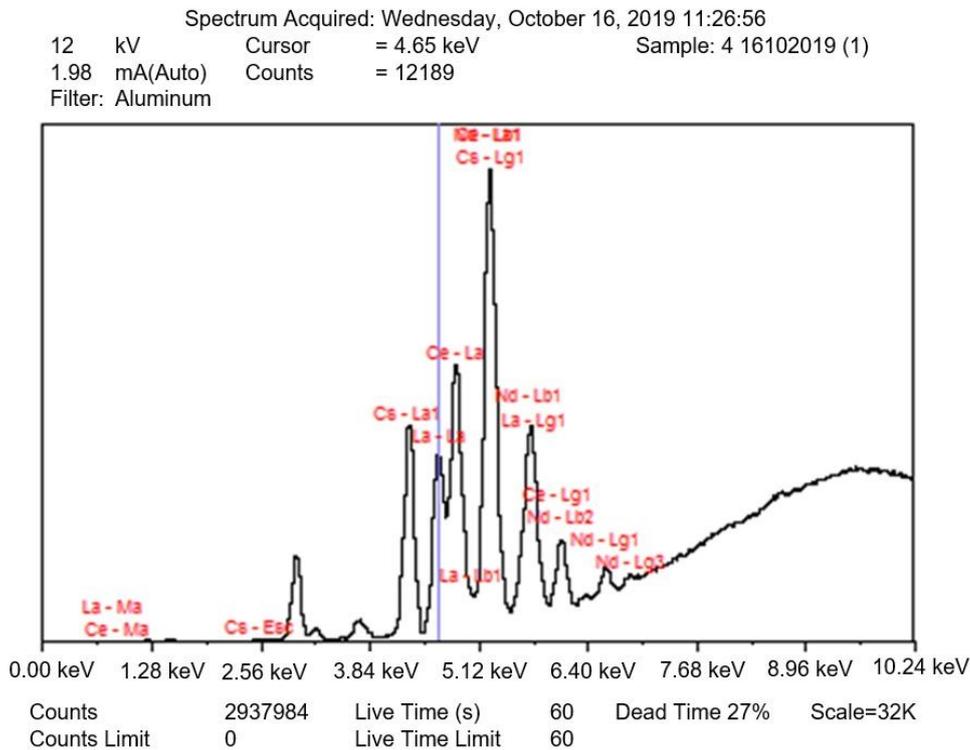
mengandung Cs, seperti pada Gambar 1 dan Gambar 2.

Pada Spektum gambar 1 hasil pengukuran umpan yang tidak mengandung Cs terlihat energi spektrum La sebesar 4.65 keV dengan intensitas energi yang rendah, sedangkan pada gambar 2 pada umpan yang sudah ditambahi dengan Cs terlihat intensitas yang diberikan pada energi 4,65 keV cukup besar sehingga menyebabkan kesalahan pada koreksi intensitas dari Nd dan Ce.

Berdasarkan pada hasil pengukuran Nd dan Ce yang dipengaruhi oleh keberadaan unsur Cesium, maka perhitungan persen *recovery* pada penentuan *recovery* Nd dan Ce setelah proses pemisahan cesium dihitung dengan membandingkan konsentrasi Nd dan Ce hasil pengukuran setelah pemisahan Cs dengan konsentrasi Nd dan Ce teoritis. Penentuan *recovery* Nd dan Ce pada pemisahan Cs sangat penting dilakukan agar koreksi perhitungan analisis Nd dan Ce dapat dihitung dengan tepat mendekati harga benarnya. Hasil persen *recovery* yang diperoleh seperti ditunjukkan dalam Tabel 2.



Gambar 1. Spektrum XRF standar campuran Nd,Ce tanpa Cesium



Gambar 2. Spektrum XRF standar campuran Nd, Ce dengan Cesium

Tabel 2. Data Hasil Penentuan *recovery* Nd dan Ce pada pemisahan Cesium dengan Zeolit

Sampel	Konsentrasi Sebelum proses Pemisahan Cs (ppm)	Konsentrasi Setelah proses Pemisahan Cs (ppm)	<i>Recovery</i> (%)
Umpan Nd	860	601.16	69.91
Umpan Ce		554.05	60.96

Data Tabel 2 menunjukkan bahwa persen *recovery* rerata Nd dan Ce hasil proses pemisahan Cs yang diperoleh hanya 69,91 %, sedangkan untuk Ce 64,42%. Hasil yang diperoleh masih cukup kecil karena Nd ikut terikat atau terserap oleh zeolit pada saat pemisahan Cs. Pada proses pemisahan cesium dengan zeolit terikatnya Nd dan Ce sangat dimungkinkan karena kelebihan penggunaan zeolit akan terisi oleh unsur lain seperti Nd dan Ce. Fenomena ini dimungkinkan karena zeolit merupakan kristal aluminosilikat terhidrasi yang mengandung kation alkali atau alkali tanah dalam kerangka tiga dimensi. Kerangka dasar struktur zeolit terdiri dari unit tetrahedral AlO_2 dan SiO_2 yang saling

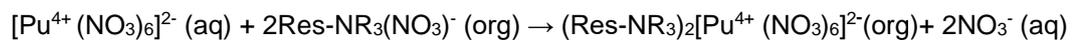
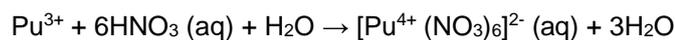
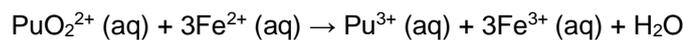
berhubungan melalui atom O, sehingga zeolit mempunyai rumus empiris sebagai berikut $x/n Mn^+ [(AlO_2)_x (SiO_2)_y] \cdot zH_2O$. Komponen pertama Mn^+ adalah sumber kation yang dapat bergerak bebas dan dapat dipertukarkan secara sebagian atau secara sempurna oleh kation lain seperti kation kation lain yang terkandung dalam larutan PEB pasca iradiasi[17,19]. Hal ini juga sesuai dengan hasil penelitian sebelumnya terkait data selektivitas zeolit terhadap campuran ion Cs,Sr,Ba dan Ce yang tertuang dalam daftar di Tabel 3. Hasil penelitian tersebut menunjukkan bahwa nilai selektivitas zeolit dalam pertukaran kation dalam campuran matrik hasil fisi adalah $Cs>Ba>Sr>Ce$ [20].

Tabel 3. Nilai Koefisien Keselektifan ($K_{0,5}$) Zeolit Lampung[18]

Sistem Pertukaran dengan kation M	Cs	Sr	Ba	Ce
Na/M	1,44	1,22	1,22	1,10
K/M	1,20	1,04	1,10	1,00
Na/M-campur: Cs+Sr+Ba+Ce	1,40	1,04	1,12	1,00
(K+Na)/M-campur	1,22	1,08	1,00	1,00

Selanjutnya dilakukan penentuan *recovery* Nd dan Ce pada tahapan proses pemisahan isotop Pu dari PEB U₃Si₂/Al. Tahapan proses pemisahan Pu dilakukan dengan mengalirkan larutan umpan hasil pemisahan Cs yang telah dikondisikan dalam bentuk $[Pu^{4+} (NO_3)_6]^{2-}$ (aq) kedalam kolom penukar kation yang telah berisi resin

Dowex 1x8-NO₃. Pada tahapan proses ini Pu akan terikat oleh resin dalam bentuk senyawa $(Res-NR_3)_2[Pu^{4+}(NO_3)_6]^{2-}(org)$, sedangkan Nd, Ce dan isotop lainnya akan berada dalam fasa cair (supernatan). Berikut adalah reaksi kimia yang terjadi pada pemisahan Pu dengan resin dowex 1x8-NO₃ menurut Aslina dkk[2]:



Recovery ditentukan berdasarkan hasil analisis Nd dan Ce dengan spektrometer XRF. Dari hasil analisis dihitung persen *recovery* Nd dan Ce dengan membandingkan konsentrasi Nd dan Ce sebelum proses pemisahan Pu dan setelah pemisahan Pu. Hasil perhitungan *recovery* Nd dan Ce rerata yang diperoleh yaitu sebesar 97.49%. Pada pemisahan ini hasil perhitungan *recovery* analisis Nd yang diperoleh cukup baik Nd yg hilang kecil dari 5%. Demikian juga dengan hasil pengukuran Ce, *recovery* Ce yang diperoleh rerata 96.61%. Hasil pemisahan di analisis

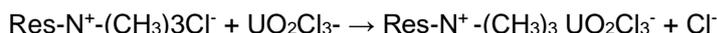
menggunakan alat spektrometer Xray Fluoresen.dalam Jurnal Teknologi Proses Dan Inovasi Industri keberterimaan *recovery* untuk analit 0,1% atau 1000 ppm adalah 95-105%[21]. Hal ini menunjukkan bahwa Nd dan Ce masih ikut keluar bersama efluen atau tidak ikut terikat dalam resin Dowex 1x8 setelah umpan dialirkan meskipun *recovery* Ce sedikit lebih kecil dibandingkan dengan *recovery* Nd. Proses ini menunjukkan bahwa pemisahan Nd dan Ce tetap diperlukan untuk penentuan *Burnup* menggunakan indikator Nd. Hasil perhitungan *recovery* Nd dan Ce ditunjukkan dalam Tabel 4 berikut.

Tabel 4. Data Hasil Penentuan *recovery* Nd dan Ce pada pemisahan Pu

Penentuan <i>Recovery</i> Nd			
Sampel	Konsentrasi Sebelum pemisahan Pu (ppm)	Konsentrasi Setelah pemisahan Pu (ppm)	<i>Recovery</i> (%)
Umpan- 1	418,85	416,77	99,51
Umpan 2	432,64	413,08	95,48
Rerata	425,75	414,93	97,49
Penentuan <i>Recovery</i> Ce			
Umpan- 1	437,58	421,56	96,34

Umpan 2	429,62	416,21	96,88
Rerata	433,31	418,89	96,61

Penentuan *recovery* Nd dan Ce pada proses pemisahan isotop U dari, dilakukan dengan cara mengalirkan umpan atau efluen hasil pemisahan Pu kedalam resin dowex 1x8 yang telah dikondisikan dengan HCl. Pada pengkondisian ini umpan di bentuk



Selanjutnya dilakukan analisis Nd dan Ce terhadap larutan efluen hasil pemisahan U menggunakan spektrometer XRF. Dari hasil analisis yang diberikan dihitung persen *recovery* Nd dan Ce dengan cara membandingkan konsentrasi Nd dan Ce sebelum proses pemisahan U dengan konsentrasi Nd dan Ce setelah pemisahan U. Pada proses tahapan ini diperoleh hasil seperti ditunjukkan dalam Tabel 5. Data dalam Tabel 5 menunjukkan bahwa *recovery*

menjadi senyawa UO_2Cl_3^- dan akan dipertukarkan dengan resin yang telah dikondisikan menjadi resin aktif dalam bentuk $\text{Res-N}^+-(\text{CH}_3)_3\text{Cl}^-$. Fenomena reaksi pemisahan U dengan resin dowex 1x8 adalah sebagai berikut :

Nd dan Ce yang diperoleh mendekati 100% yaitu 104,94% untuk Nd dan 99,33% untuk Ce. Hasil penentuan *recovery* ini dapat diterima karena keberterimaan *recovery* 90-107 % untuk sampel analit 100 ppm[21]. Fenomena ini menggambarkan bahwa proses pemisahan U yang dilakukan dengan resin dowex 1x8-Cl⁻ cukup baik dan berhasil, karena Nd terlepas sempurna bersama larutan efluen.

Tabel 5. Data Hasil Penentuan *recovery* Nd dan Ce pada pemisahan U

Penentuan <i>Recovery</i> Nd			
Sampel	Konsentrasi Sebelum pemisahan U (ppm)	Konsentrasi Setelah pemisahan U (ppm)	<i>Recovery</i> (%)
Umpan- 1	332,80	344,12	103,41
Umpan 2	330,46	351,88	106,49
Rerata	331,63	348,00	104,94
Penentuan <i>Recovery</i> Ce			
Umpan- 1	337,25	336,38	99,75
Umpan 2	332,97	329,34	98,91
Rerata	335,11	332,86	99,33

Penentuan *recovery* Nd dan Ce selama proses pemisahan Cs, Pu dan U, menunjukkan bahwa Nd dan Ce sampai akhir proses selalu keluar bersama efluen lain yang tidak terikat dalam resin. Hal ini memberikan gambaran bahwa pemisahan Nd dan Ce perlu dilakukan karena sifat isobar dari Nd dan Ce yang akan berpengaruh pada penentuan *burnup* dengan indikator Nd. Selain itu pada proses pemisahan Cs, Pu dan U, Nd dan Ce yang hilang secara signifikan hanya terjadi pada pemisahan Cs hal ini dibuktikan dengan persen *recovery* Nd dan

Ce yang kecil yaitu <70%. Sedangkan pada pemisahan Pu dan U, Nd dan Ce nyaris terelusi secara sempurna seperti ditunjukkan dalam persen *recovery* yang hampir mendekati 100%. Hasil *recovery* selanjutnya digunakan sebagai koreksi pada perhitungan pemisahan Nd dan Ce dari larutan PEB $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{Al}$.

SIMPULAN

Telah diperoleh *recovery* Nd dan Ce pada setiap tahap proses pemisahan Cs, Pu dan U dari PEB $\text{U}_3\text{Si}_2/\text{AL}$ pra Iradiasi. Hasil

recovery Nd dan Ce pada tahap proses pemisahan Cs yaitu 69,91% dan 64,42%. Hasil *recovery* Nd dan Ce pada pemisahan Cs kurang begitu baik, karena Nd dan Ce ikut terikat dalam zeolit. Sedangkan hasil perolehan *recovery* Nd dan Ce pada tahap proses pemisahan Pu dan U memberi hasil yang cukup baik, hal ini dibuktikan dengan persen *recovery* yang mendekati 100%. Hasil *recovery* Nd dan Ce ini selanjutnya dapat digunakan sebagai koreksi pada perhitungan pemisahan Nd dan Ce dari larutan PEB, yang akan menjadi acuan dalam penentuan *burnup* bahan bakar PEB U_3Si_2/Al menggunakan indikator Nd.

UCAPAN TERIMA KASIH

Terima kasih banyak kami sampaikan kepada Ir. Sungkono M.T, selaku kepala BUR yang telah mendanai kegiatan ini melalui kegiatan DIPA dan kepada Ir. Aslina Br. Ginting selaku penanggung jawab sub-output kegiatan Uji Bahan Bakar Nuklir Pra dan Pasca Iradiasi yang telah membimbing hingga terlaksananya kegiatan penelitian dan penulisan makalah ini.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] A. B.Ginting, Y. Nampira, A. Nugroho, D. Anggraini, R. Kriswarini, Boybul, "Pemisahan dan analisis radionuklida ^{137}Cs di dalam PEB U_3Si_2/Al Tingkat Muat Uranium $2,96 \text{ gU/cm}^3$ pasca iradiasi," *Jurnal Teknologi Bahan Nuklir*, vol. 8, no. 1, hal. 1 – 66, 2012.
- [2] A. B.Ginting, Yanlinastuti, Noviarty, Boybul, A. Nugroho, D. Anggraini, R. Kriswarini, "Penentuan *burnup* mutlak pelat elemen bakar U_3Si_2/Al tingkat muat uranium $2,96 \text{ gU/cm}^3$ pasca iradiasi", *Jurnal Teknologi Bahan Nuklir*, vol.11, no.2, hal. 83-98, 2015.
- [3] A. Nugroho, Boybul, S. Indaryati, I. Haryati, R. Kriswarini, A. B. Ginting, "Pemisahan cesium dalam PEB U_3Si_2/Al densitas $2,96 \text{ gU/cm}^3$ Pascairadiasi dengan metode pengendapan Chloroplatinate" *Jurnal Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, vol. 25, no. 2, hal. 71-140, 2019.
- [4] Yanlinastuti, Noviarty, I. Haryati, S. Fatimah, Boybul, A. B.Ginting, "Optimasi parameter pemisahan Zr dalam PEB U_3Si_2/Al pra iradiasi menggunakan metode kromatografi penukar anion," *Jurnal Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, vol. 25, no. 2, hal. 71-140, 2019.
- [5] C.Pereda, C.Henriquez, J.Klein and J.Medel, "Burnup measurement of LEU fuel for short cooling time", XV Chilean Physics Symposium, Santiago, Chile, 2006, IOP Publishing.
- [6] 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", *Nuclear Engineering Technology*, vol.47, no.7, pp. 924-933, 2015.
- [7] J.S. Kim, S.H. Han, M. Y. Suh, K. S. Joe and T. Y. Eom, " Burnup measurement of irradiated uranium dioxide fuel by chemical methods", *Journal Of Korean Nuclear Society*, vol. 2, no. 4, pp.277-286, 1989.
- [8] S. Bera, R. Balasubramanian, Arpita Datta, R. Sajimol, S. Nalini, T. S. Lakshmi Narasimhan, M. P. Antony, N. Sivaraman, K. Nagarajan, P. R. Vasudeva Rao, "Burnup measurements on dissolver solution of mixed oxide fuel using HPLC-mass spectrometric method," *International Journal of Analytical Mass Spectrometry and Chromatography*, vol. 1, no. 1, pp. 55-60, 2013.
- [9] S. Amini, Yusuf N, N. Hasbullah, A. Hamzah, J.S. Pane, H. Hastowo, "Penentuan fraksi bakar elemen bakar uranium oksida (RIE01) secara pengukuran angka banding $^{134}Cs/^{137}Cs$, Prosiding Pertemuan dan Persentasi

- Ilmiah, PPTY-BATAN 23-25 April 1996, Yogyakarta.
- [10] A. B. Ginting, Boybul, Yanlinastuti, A. Nugroho, D. Anggraini, R. Kriswarini, Noviarty, S. Indaryati, I. Haryati, "Pengembangan metode baku uji fisikokimia PEB U_3Si_2/Al pascairadiasi" Prosiding Hasil-Hasil Penelitian EBN Tahun 2015, Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir, BATAN ISSN 0854-5561.
- [11] J. S. Kim, Y. S. Jeon, S. D. Park, S. H. Han, J. G. Kim, "Burnup determination of high burnup and dry processed fuels based on isotope dilution mass spectrometric measurements", *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol. 44, no. 7, pp. 1015-1023, 2007
- [12] J. Krtil, F. Sus, V. Bulovic, E. Klosafa, Z. Maksimovic, "Experience with the neodymium method for determination of nuclear fuel burnup", *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, vol. 83, no. 1, pp. 61-66, 1984.
- [13] A. Nugroho, D. Anggraini, Boybul, S. Indaryati, I. Haryati, R. Kriswarini, A. B. Ginting, "Pemisahan cesium dalam PEB U_3Si_2/Al pascairadiasi dengan metode kolom penukar kation menggunakan resin Dowex", *Jurnal Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, vol. 24, no. 2, hal. 73-134, 2018.
- [14] Boybul, Yanlinastuti, S. Indaryati, I. Haryati, A. Nugroho, "Penentuan kandungan isotop ^{235}U dalam PEB U_3Si_2/Al TMU 2,96 gU/cm³ untuk perhitungan burnup", *Jurnal Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, vol. 21, no. 3, hal. 95-159, 2015.
- [15] P. De Regge, R. Boden, "Determination of neodymium isotopes as burnup indicator of highly irradiated (U,Pu)O₂ LMFBR fuel", *Journal Of Radioanalytical Chemistry*, vol.35, pp. 173-184, 1977.
- [16] J. S. Kim, Y. S. Jeon, S. D. Park, Y. K. Ha, K. Song, "Analysis of high burnup pressurized water reactor fuel using uranium, plutonium, neodymium, and cesium isotope correlations with burnup" *Nuclear Engineering Technology*, vol.47, no.7, pp. 924-933, 2015.
- [17] A. B. Ginting, D. Anggraini, "Metode pengendapan dan penukar kation untuk pemisahan cesium dalam bahan bakar U_3Si_2/Al ", *Jurnal Daur Bahan Bakar Nuklir Urania*, vol. 22, no. 2, hal.65-132, 2016.
- [18] <https://www.nde-ed.org/GeneralResources/ErrorAnalysis/UncertaintyTerms.htm>
- [19] A. Nugroho, D. Anggraini, Noviarty, "Analisis isotop Cs dalam proses pemisahan Cs dengan zeolit menggunakan Spektrometri- γ ", *Jurnal Zeolit Indonesia*, vol. 9, no. 2, 2010.
- [20] 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, 2003.
- [21] A. R. Utami, "Verifikasi metode pengujian sulfat dalam air dan air limbah sesuai SNI 6989.20:2009", *Jurnal Teknologi Proses Dan Inovasi Industri*, vol. 2, no. 1, 2017.