

PENGUKURAN BAHAN NUKLIR

Erlina Noerpitasari, S.Si. M.Si



Tujuan Instruksional Umum

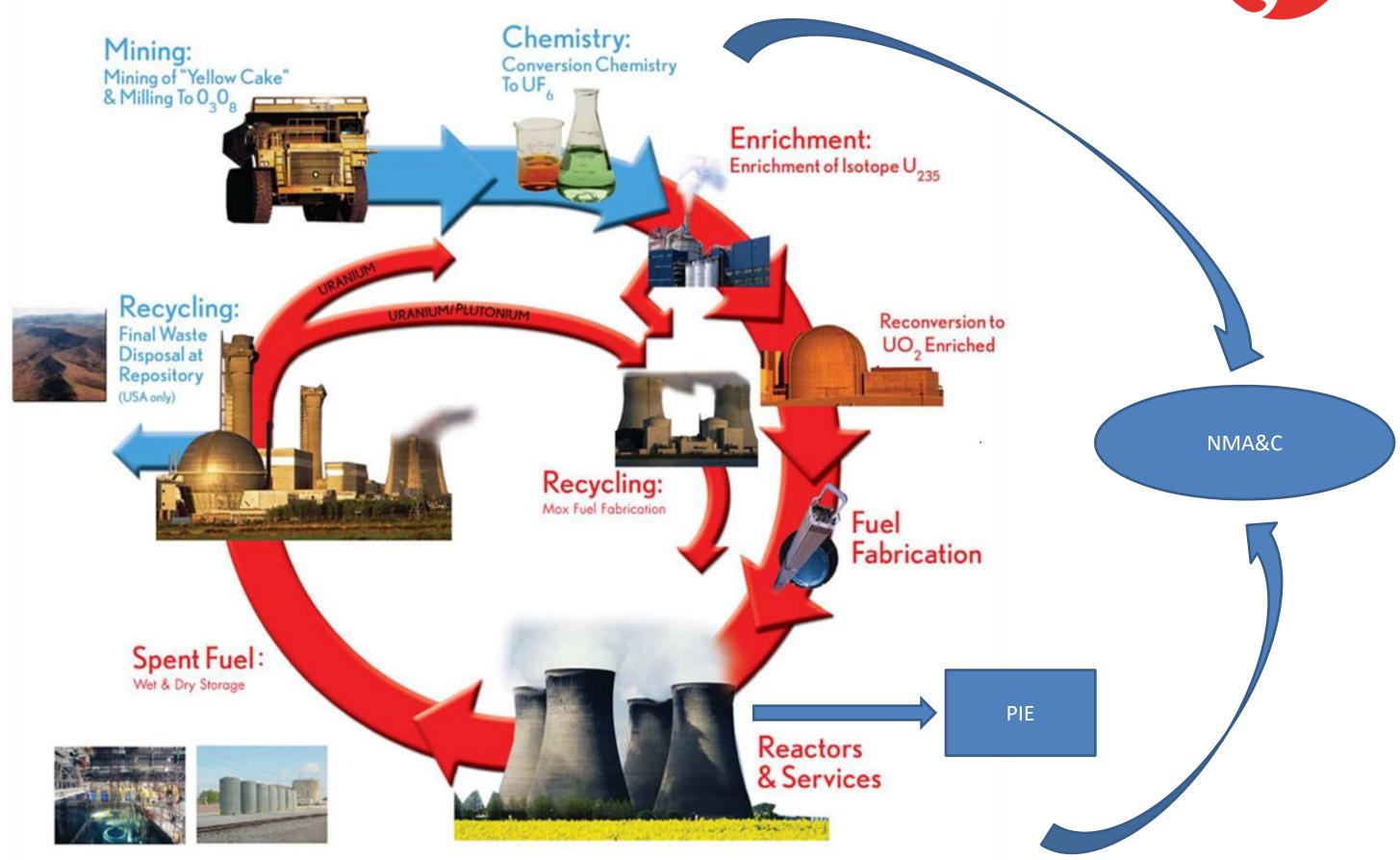
Peserta memahami dan mampu menjelaskan tentang metode merusak (*Destructive Assay*) dan metode tidak merusak (*Non Destructive Assay*) yang dapat digunakan untuk melakukan pengukuran bahan nuklir dan mampu melakukan pengukuran bahan nuklir di tempat kerjanya.

Tujuan Instruksional Khusus

- Peserta mampu menjelaskan tentang sifat bahan nuklir.
- Peserta mampu menjelaskan tentang pengukuran merusak dan pengukuran tidak merusak bahan nuklir.
- Peserta mampu menjelaskan tentang teknik pengukuran bahan nuklir.
- Peserta mampu melaksanakan pengukuran bahan nuklir di fasilitasnya.

PENDAHULUAN





Manfaat Pengukuran Bahan Nuklir



Fasilitas

- Kedapatulang BN dalam penggunaannya
- Proses kontrol kegiatan dan produk
- Jaminan kualitas kegiatan dan produk

Negara

- Pertimbangan lingkungan
- Seifgard BN (BAPETEN)

IAEA

• Seifgard Bahan Nuklir (IAEA)



Seifgard BN dikenakan terhadap:

- Bahan yang dapat mengalami pembelahan
- Bahan yang dapat belah: U, Th dan Pu
- Golongan aktinida yang mempunyai beberapa tingkat valensi:
 U⁺⁴ dan U⁺⁶; Th⁺² dan Th⁺⁴; Pu⁺³ dan Pu⁺⁴
- Dapat membentuk kompleks dengan asam anorganik maupun organik, seperti asam nitrat dan arsenazo
- Berdasarkan sifat tersebut dapat ditentukan dengan metode destructive assay (DA)

DESTRUCTIVE ASSAY(DA)

- Ketelitian tinggi
- Digunakan untuk pengembangan NDA
- Waktu analisis lebih lama dari NDA
- Sampel kecil
- Menghasilkan limbah



U, Pu, Th

- Inti berat
- Tidak stabil
- Bersifat radioaktif
- Memancarkan radiasi alpha
- Anak luruhnya memancarkan alpha dan beta
- Beberapa peluruhan juga memancarkan radiasi gamma
- Dengan netron dapat mengalami reaksi pembelahan

Berdasarkan sifat tsb, dapat dianalisis secara NDA

NON DESTRUCTIVE ASSAY (NDA)

- Ketelitian antara 1 s.d. 10%
- Waktu pengukuran 15 s.d. 60 menit
- Memungkinkan untuk mengukur jumlah besar bahan nuklir
- Perlu pembuktian kepresisian relatif pengukuran
- Kalibrasi dengan bahan standar bersertifikat

DESTRUCTIVE ASSAY



Tahapan Pengukuran BN

Pengukuran bagian besar

- Berat
- Volume
- Aliran

Sampling

- Random
- Sistem pengangkatan
- Pencuplik pusat

Penyiapan sampel

- Pelarutan
- Pemisahan

- Ekstraksi
- Penukarion

Pengukuran kandungan BN

- Penimbangan & gravimetri
- Titrasi potensiometri
- Spektrofotometri UV-Vis
- Luminisensi
- ICP-AES
- Spektrometri alpha
- Spektrometri massa

Pengukuran kandungan bahan nuklir dilakukan dgn cara mengukur besaran fisika yg sebanding dgn kandungan bahan nuklir yg ditentukan



Total U Mass (g) Bulk Mass (g) x uranium concentration (g/g)

► Bulk Volume (L) x uranium concentration (g/L)



PENIMBANGAN BN

Penimbangan dilakukan terhadap *bulk* BN
Timbangan dalam keadaan baik
Timbangan terkalibrasi

Sesuai dengan range kerja bahan yg ditimbang







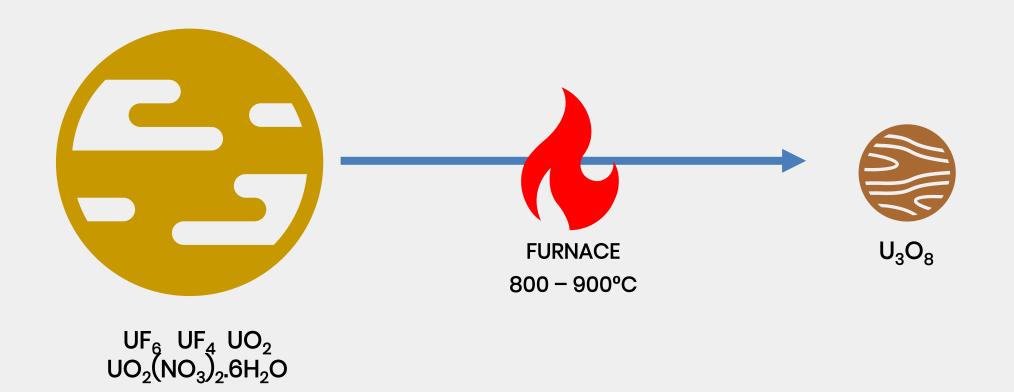
Jenis Timbangan	Strain gauge load cell	Timbangan Elektronik	Timbangan Analitik
Range Penimbangan	1 kg – >100 kg	Bobot ringan s.d 30 kg	s.d. 200 g (menimbang cuplikan)
Kesalahan random (%RSD)	0,1 - 0,01	0,02 - 0,001	0,02 - 0,001
Kesalahan sistematik (%RSD)	2 - 0,01	0,01 - 0,001	0,01 — 0,001



GRAVIMETRI

Metode penentuan uranium 5 - 10 g sampel suatu senyawa yang mengandung uranium dengan total pengotor lebih kecil dari 500 µg/g, koreksi pengotor ditentukan dengan ICP-AES/AAS







TITRASI POTENSIOMETRI

Metode penentuan kandungan bahan nuklir yg didasarkan pada reaksi redoks:

Metode Davies-Gray

- U(VI) direduksi menjadi U(IV) menggunakan Fe(II) dalam suasana asam fosfat
- Kelebihan ferro dioksidasi oleh asam nitrat dengan adanya katalisator molybdenum
- Kemudian U(IV) dititrasi menggunakan bikromat dengan adanya katalisator vanadium, titik akhir titrasi diamati secara potensiometri menggunakan elektroda platina.



Tahap-tahap reaksi yang terjadi adalah :

$$UO_2^{2+} + 2 Fe^{2+} + 4 H^+ \rightarrow U^{4+} + 2 Fe^{3+} + 2 H_2O$$
 (1)
 $3Fe^{2+} + NO_3^{-} + 4 H^+ \rightarrow 3 Fe^{3+} + NO + 2 H_2O$ (2)

Selanjutnya,

$$Cr_2O_7^{-2} + 3U^{4+} + 2H^+ \rightarrow 2Cr^{3+} + 3UO_2^{2+} + H_2O$$
 (3)

$$Kadar\ U\ (mg) = \frac{Vt \times Nt \times BA\ U \times F}{2}$$

Vt = volume titran

Nt = normalitas titran

F = faktor koreksi



Penentuan Pu

Plutonium direduksi menjadi Pu(III) dalam elektrolit HCl-asam sulfamat. Pu(III) dioksidasi menjadi Pu(IV) dengan menggunakan NaH₂PO₄

Ketelitian penentuan dengan metode ini 0,05% bias antara 0,03 sampai dengan 0,05% RSD



SPEKTROFOTOMETRI & FLUORIMETRI

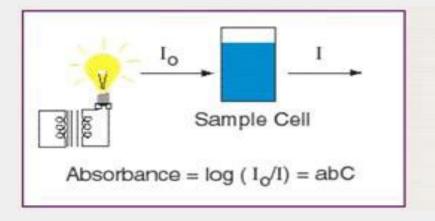
U/Th/Pu + Pengompleks Senyawa kompleks



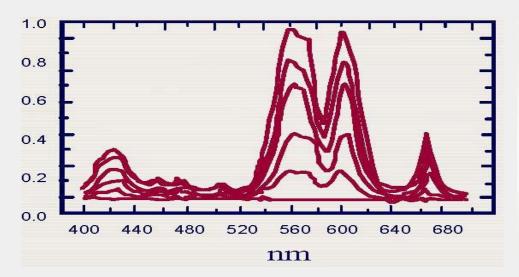
Senyawa organik yg umum digunakan:

Pereaksi	Indeks molar absorbansi	
Thiosianat dlm air	3770	
Thiosianat dlm aseton	3900	
Oxin	3000-6500	
Thoronol	16400	
Dibenzoilmethane	19000	
Arsenazo	22000	
1-(2Pyridilazo)-2-napthanol	23000	

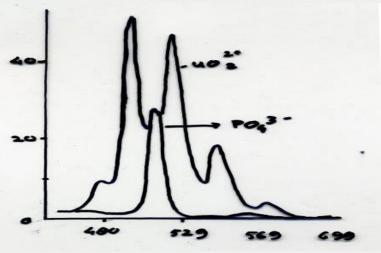
Senyawa anorganik yang umum digunakan: asam nitrat, asam sulfat, asam fosfat



a = absorptivity b = path length C = concentration



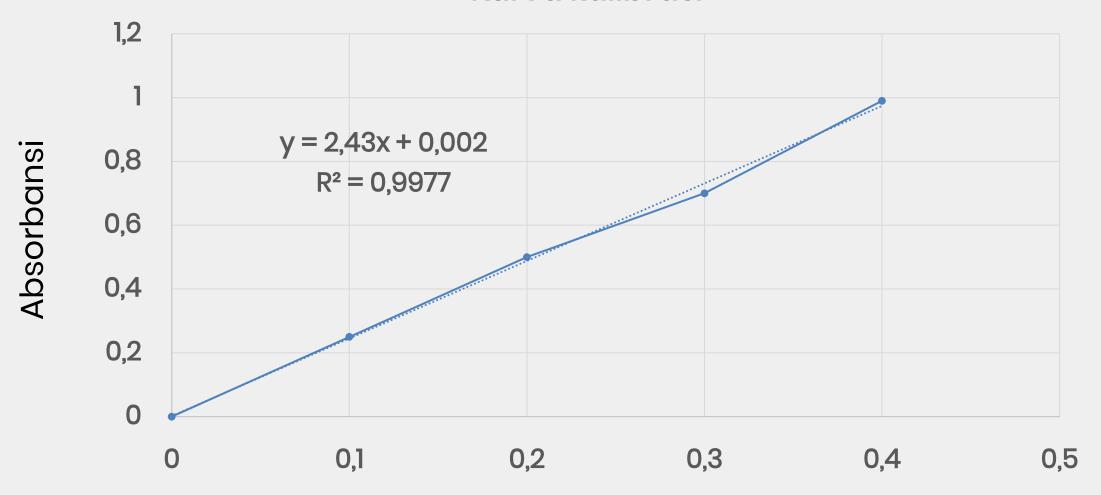




Spektrum fluoresen uranium fosfat



Kurva kalibrasi



Konsentrasi (ppm)

Konsentrasi/kadar (
$$\mu$$
g/g) = $\frac{\text{Kons}(\mu g/ml) \times \text{Vol(ml)} \times \text{fp}}{\text{Berat}(g)}$

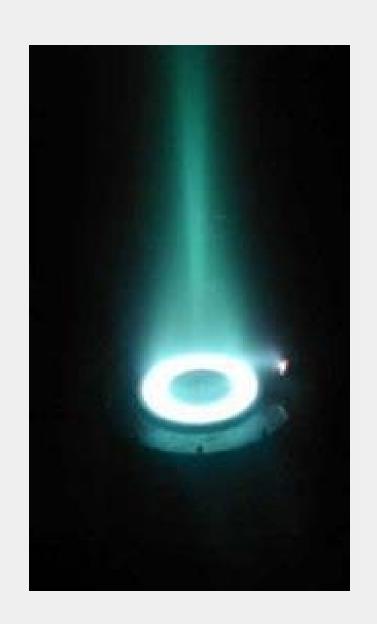


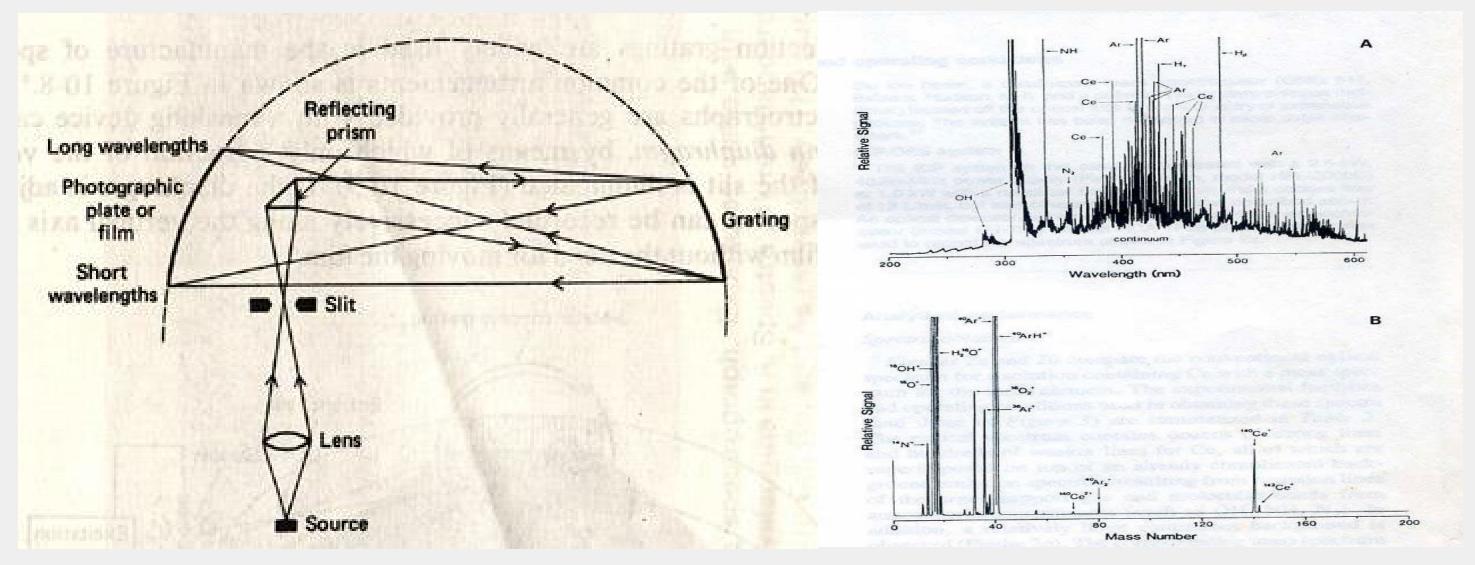
ICP - AES

Metode penentuan kandungan unsur yang didasarkan pada pengukuran intensitas radiasi yang dipancarkan oleh atom-atom yang mengalami deeksitasi. Proses :

Larutan → Pengkabutan → Atom energi dasar → Eksitasi → Deeksitasi

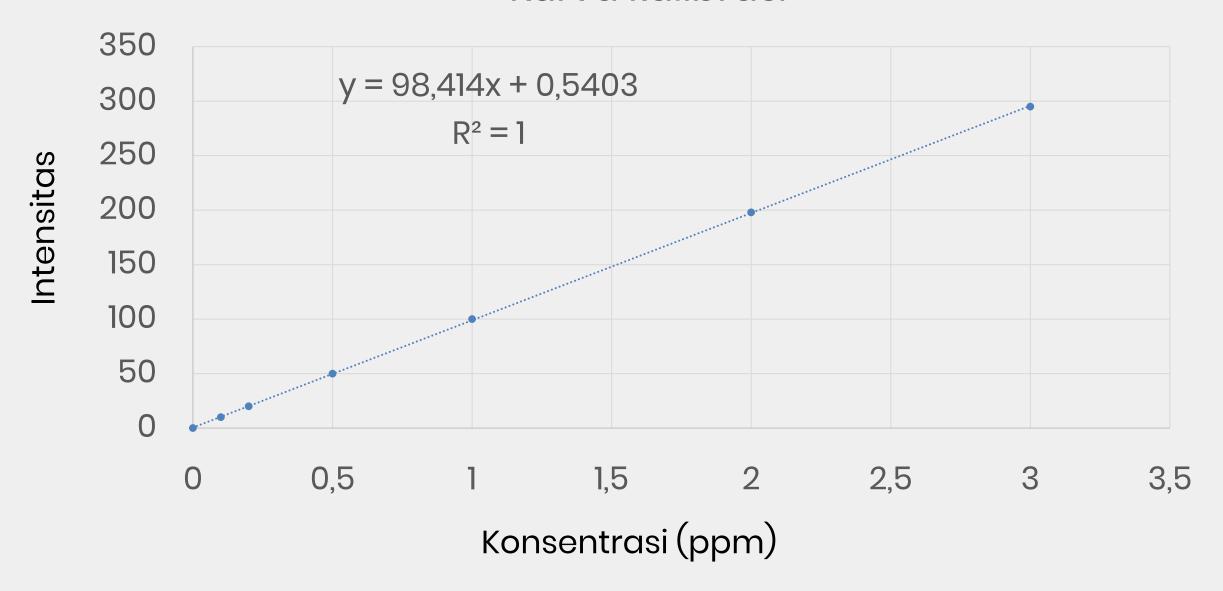








Kurva kalibrasi



Konsentrasi/kadar (
$$\mu$$
g/g) = $\frac{\text{Kons}(\mu g/ml) \times \text{Vol(ml)} \times \text{fp}}{\text{Berat (g)}}$



SPEKTROMETRI ALPHA





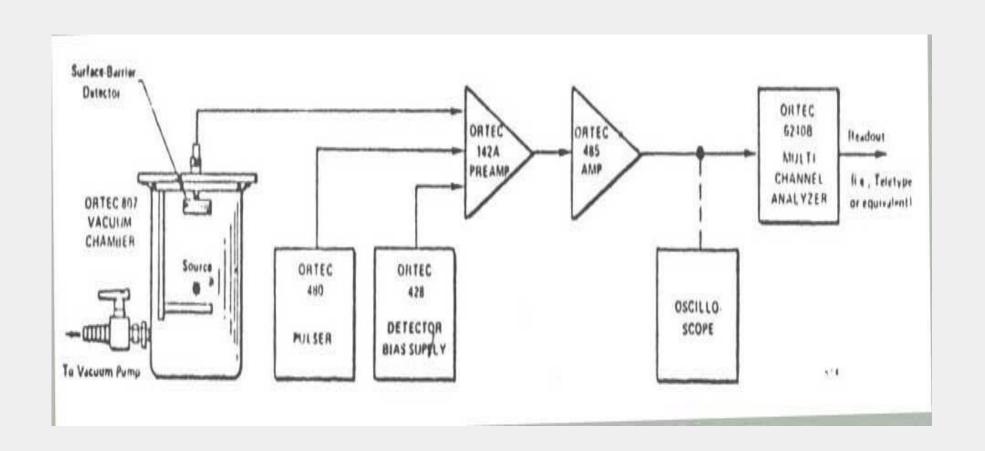
Tahapan pengukuran:

- Sampel harus murni: pemisahan
- cuplikan lapisan tipis: proses Elektrodeposisi
- Detektor *surface barrier*
- Suasana vakum
- Penganalisis salur ganda (MCA)



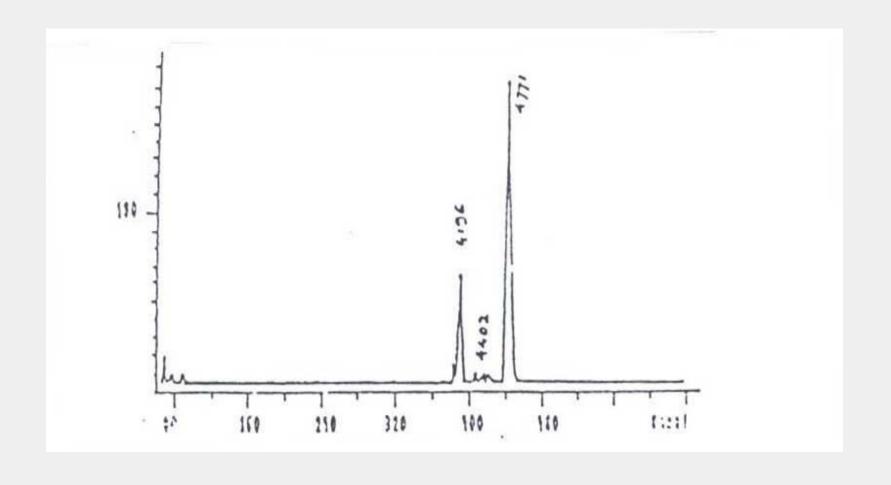


Nuklida	Energi maksimum (keV)	Aktivitas jenis (Bq/g)
233U 234U 235U 236U 238U ²³⁹ Pu ²³⁸ Pu	4824; 4783 4772; 4723 4402 4494; 4445 4205 5135 5499	3,57x108 2,31x108 8,00x104 2,39x106 1,24x104









Kalibrasi spektrometer:

- Kalibrasi energi untuk menentukan alamat nomor salur pada pita energi
- Kalibrasi efisiensi untuk menentukan kesesuaian antara luas puncak dengan tingkat radioaktivitas, menggunakan std
- Komposisi isotopik bahan nuklir ditentukan melalui perhitungan dengan mengubah satuan radioaktivitas ke satuan berat/satuan atom

$$Aktivitas = \frac{cps}{Eff \det x \ Yield} \qquad \qquad N = \frac{A}{\lambda}$$

$$W = \frac{N \times BA}{NA} g$$





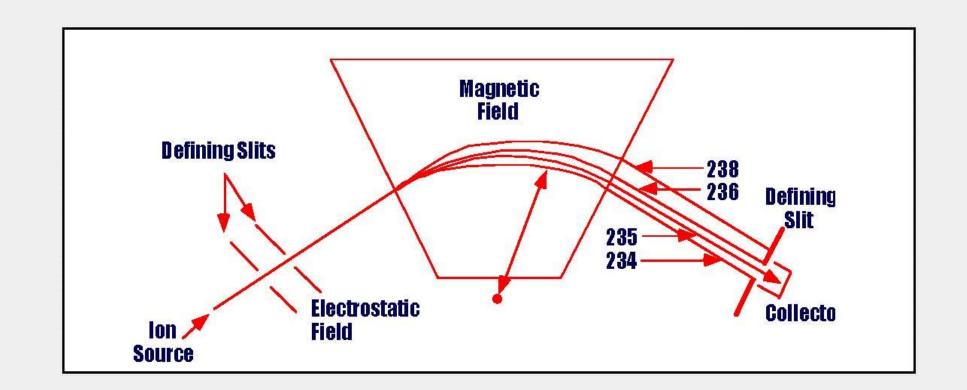


- Metode analisis yaitu dgn menentukan distribusi isotopik
- Penentuan berdasarkan tinggi puncak spektrum hasil analisis
- Dari perhitungan tinggi puncak didapatkan atom distribusi isotopik
- Distribusi berat isotopik dihitung yaitu dgn mengalikan faktor berat isotop pada puncak isotop yg bersangkutan



Prinsip analisis:

- Pengukuran ion dari isotop-isotop dalam sampel
- Ion-ion dibentuk dalam ruang pengion:
 - penumbukan ion
 - penumbukan elektron
 - ionisasi termal dan *inductively coupled plasma*
- Ion dipisahkan berdasarkan massanya oleh medan magnet penganalisis
- Ion-ion yang dideteksi oleh detektor *photomultiplier*





% atom 235
$$U = \frac{I_{235}}{I_{234} + I_{235} + I_{236} + I_{238}} \times 100\%$$

/: Intensitas puncak

- Di samping untuk menghitung distribusi isotopik, metode spektrometri massa juga digunakan untuk penentuan kuantitatif uranium, thorium maupun plutonium total dalam sampel, analisis dilakukan dengan pengenceran isotop (*Isotopic dilution*).
- Analisis ini dilakukan dengan menambahkan isotop dari unsur yang bersangkutan tetapi massa dari isotop tersebut tidak sama dengan massa isotop dalam sampel.
- Isotop yang biasa ditambahkan untuk menganalisis uranium adalah ²³³U dan untuk penentuan Pu menggunakan ²⁴⁴Pu.

NON DESTRUCTIVE ASSAY

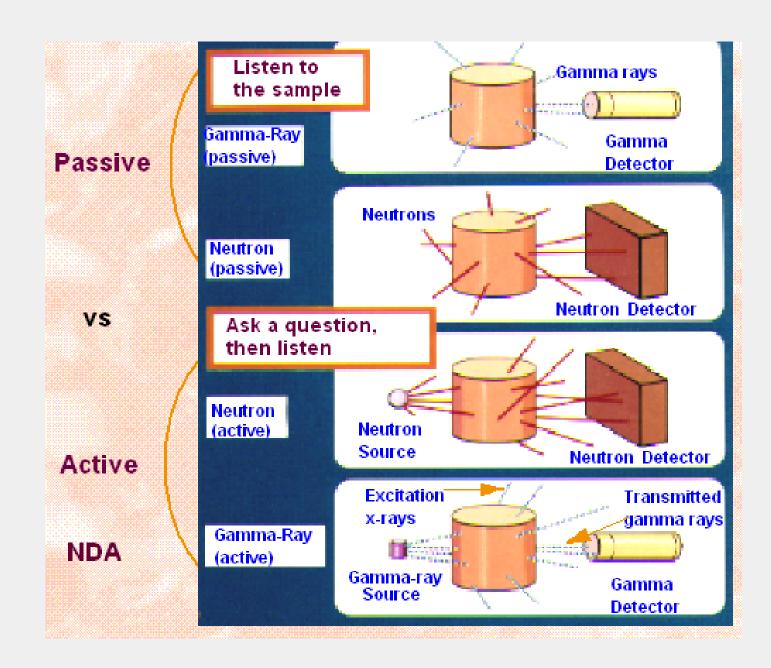
Isotop uranium, plutonium dan merupakan inti radioaktif

- Pemancar radiasi gamma
- pemancar radiasi alpha & beta
- Pemancar radiasi panas infra-red [dari pancaran α ke bahan matrik]
- Pemancar single neutron
 [dari (α,n) interaksi matrik, delayed neutrons]
- Pemancar coincidence neutron dapat belah
 [prompt dan delayed fission neutron dan gamma rays]

Pasif NDA : Radiasi yang dipancarkan oleh bahan radioaktif yang diukur

Aktif NDA: Bahan yang diukur diaktifkan dulu oleh sumber pengaktif, sumber yg digunakan sumber neutron dan sumber gamma





NON DESTRUCTIVE ASSAY



Tahapan Pengukuran BN

Pengukuran bagian besar

- Berat
- Volume
- Aliran

Penyiapan sampel



Pengukuran kandungan BN



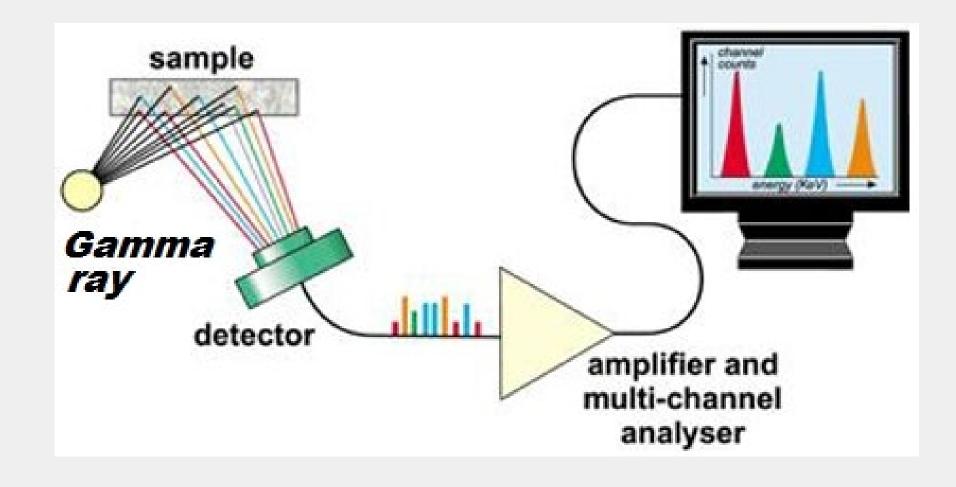
- Flouresensi Sinar-X
- Spektrometri Gamma
- Active Neutron Coincidence Counting
- Calorimetri

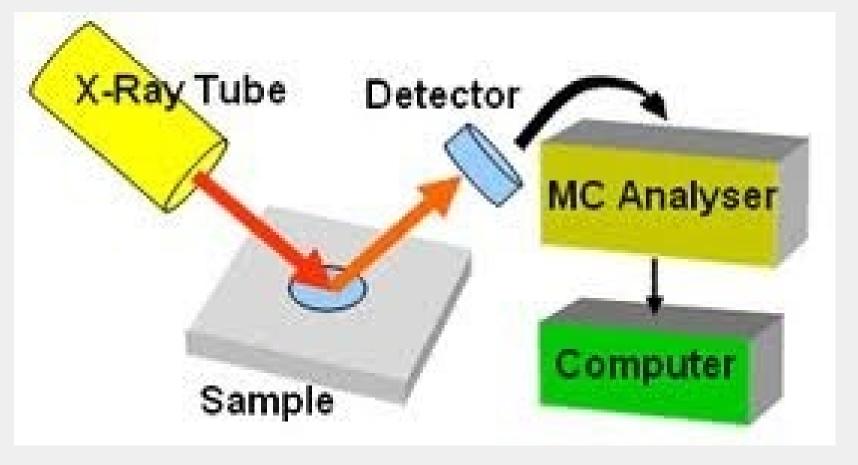
Floresensi sinar-x

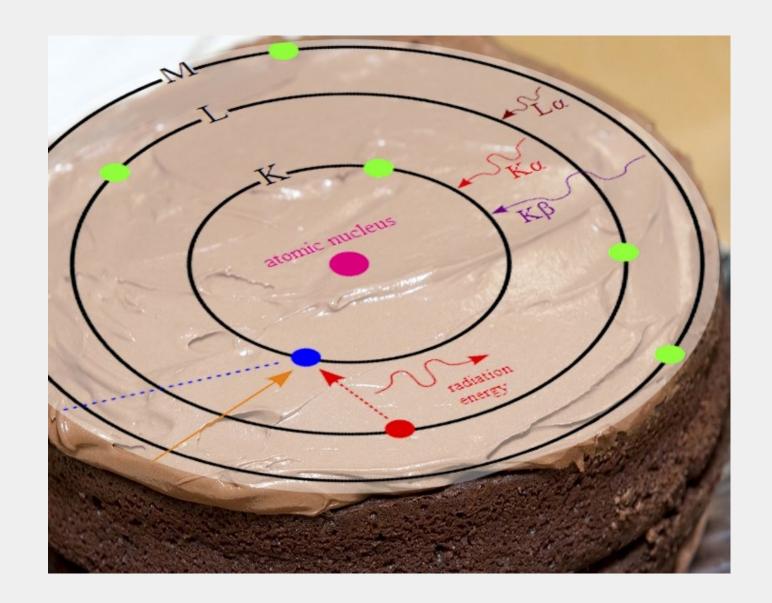
Teknik Analisis unsur dengan metode perpendaran sinar-x atau dengan istilah populernya analisis unsur dengan XRF saat ini dipergunakan di segala bidang analisis

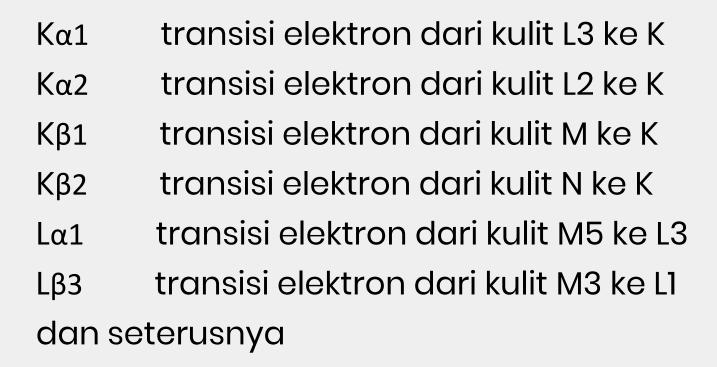
Energi sinar-X karakteristik terjadi akibat proses perpindahan elektron dari orbit yang lebih luar ke orbit elektron yang lebih dalam dikarenakan tereksitasi energi radiasi yang berupa gelombang elekromagnetik.



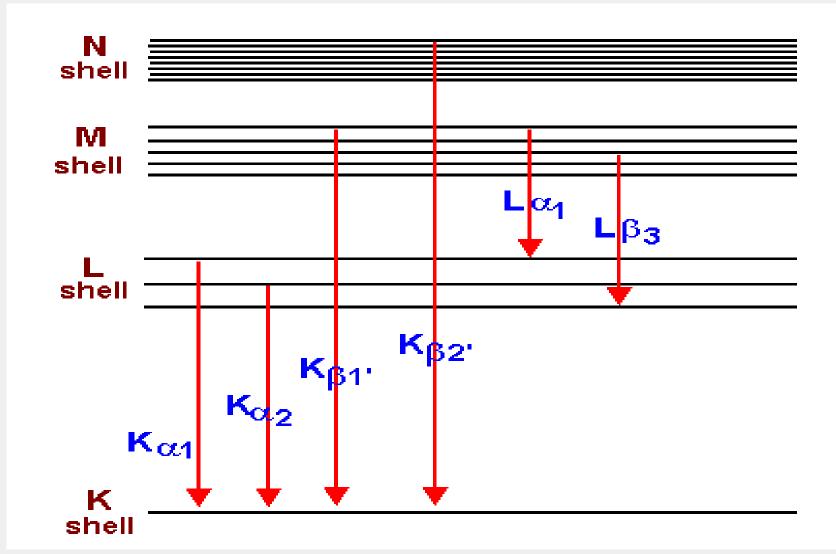






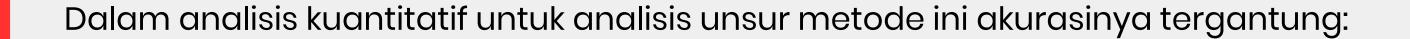






Besarnya energi sinar-X karakteristik yang dihasilkan tergantung dari selisih energi ikat elektron yang menggantikan:

 $K\alpha_1$ = Energi ikat Elektron(K) - Energi ikat elektron(L_{|||}) $K\beta_1$ = Energi ikat Elektron(K) - Energi ikat elektron(M_{|||})



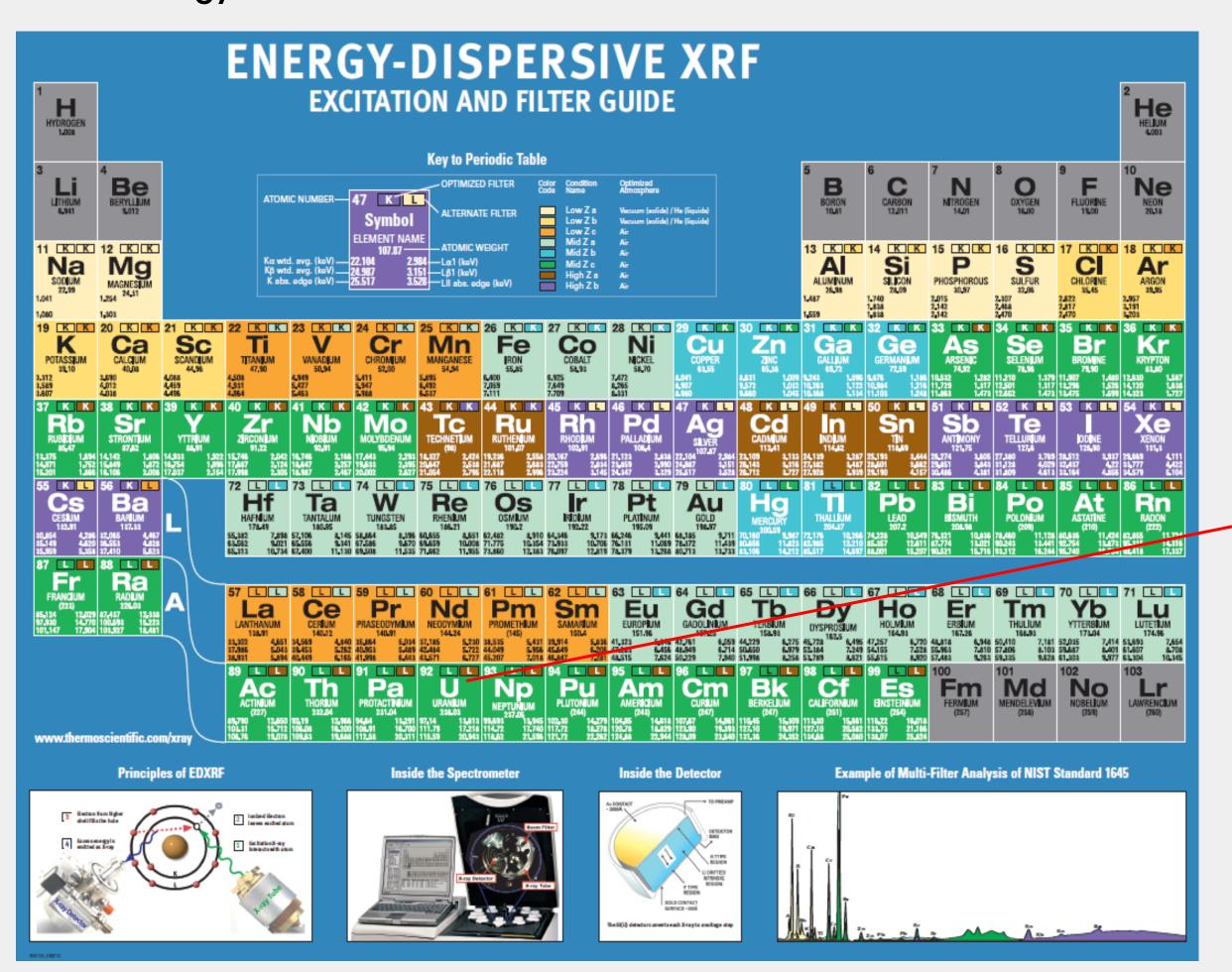
- Bentuk matrik standar dan sampel
- Bahan matrik standar dan sampel
- Jenis standar dan sampel
- Sumber pengeksitasi yang digunakan
- Perangkat lunak analisis (XRF Modern)

Sumber pengeksitasi yang dapat digunakan:

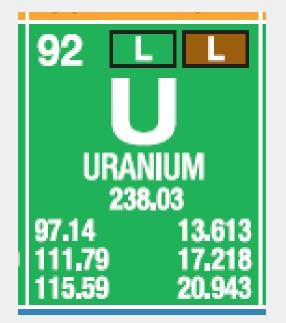
- Sumber gamma energi rendah
- Tabung pesawat sinar-x



Tabel energy





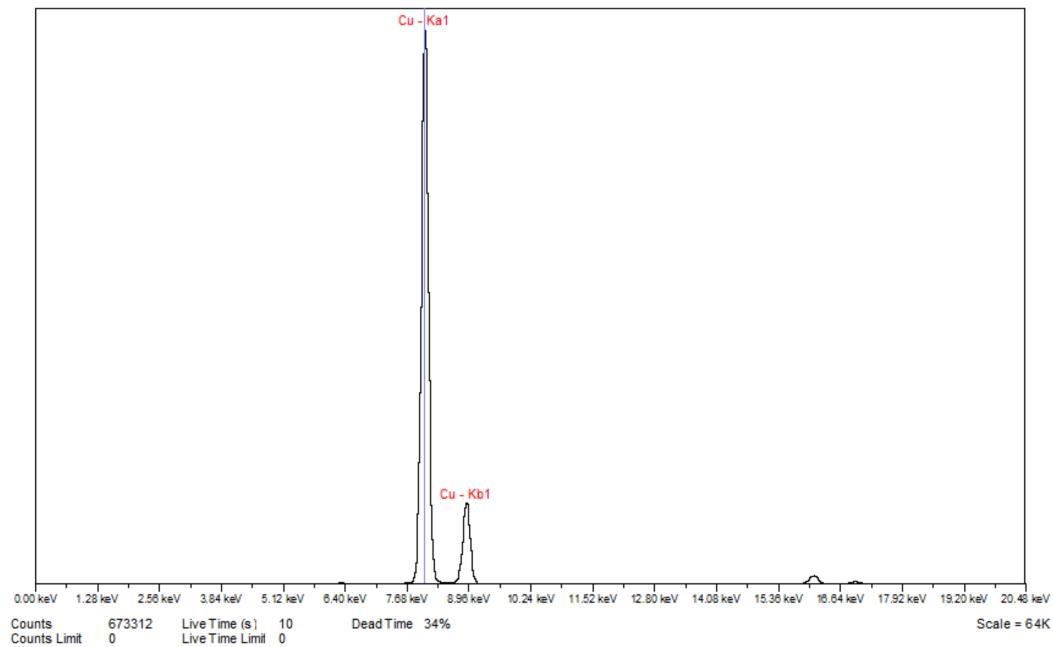


Kalibrasi energi Energi sinar-X unsur Cu: 8,041 keV(Kα); 8,907 keV (Kβ) Spectrum Acquired: 07/03/19 07:49:37

Sample: Energy Adjustment Sample

18 kV Cursor = 8.05 keV 0.22 mA (Auto) Counts = 63082

Filter: Pd Medium



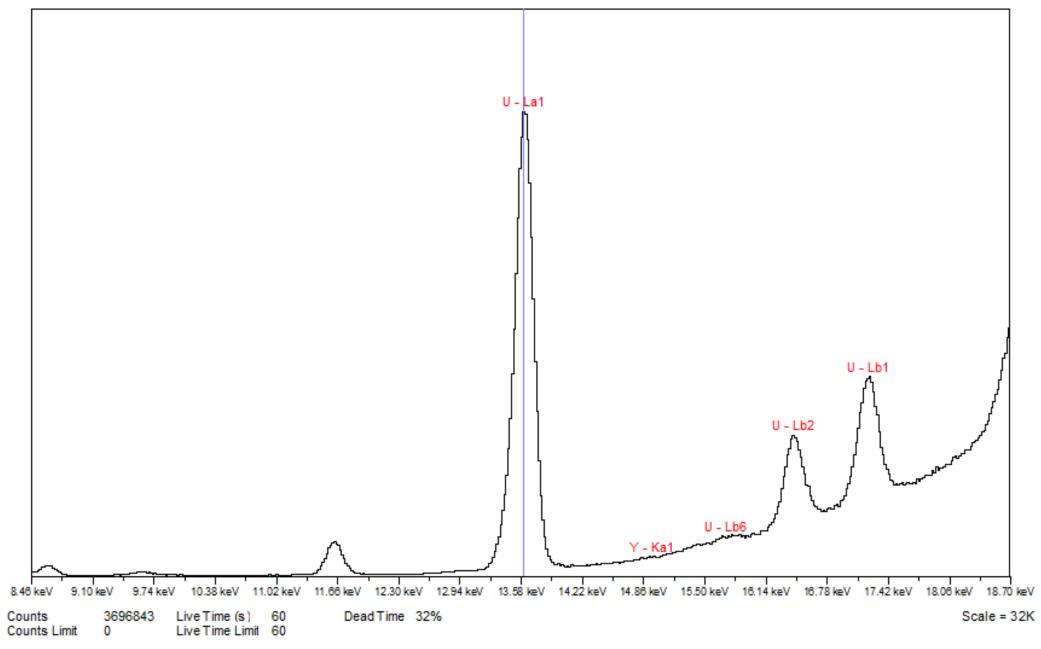
Spektrum uranium

Spectrum Acquired: Thursday, July 25, 2019 14:06:03

Sample: UO2 sampel 250719 (7)

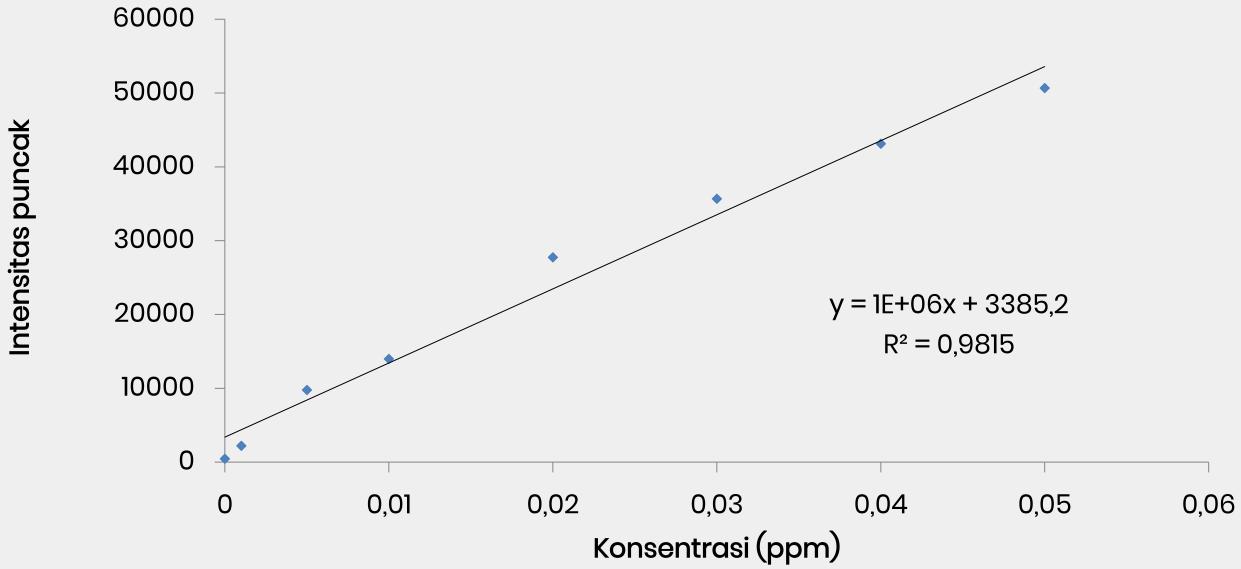
1.78 mA (Auto) Counts = 26875 Fiter: Pd Thick

Cursor = 13.61 keV



Kurva Kalibrasi Uranium





Dari persamaan kalibrasi konsentrasi:

$$Y = Ax + B$$

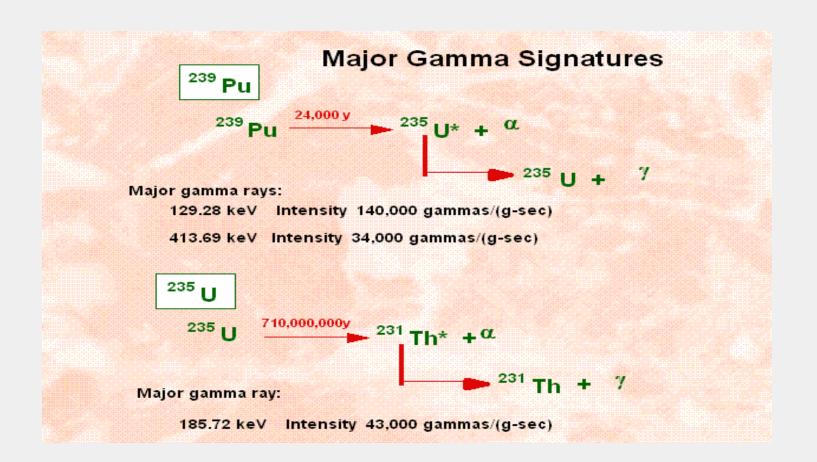
Y : adalah cacahan (area, untuk sampel yang konsentrasinya tidak diketahui)



Spektrometri gamma

Uranium, plutonium dan thorium termasuk dalam logam berat dan isotopnya merupakan inti radioaktif. Inti atom atom tersebut meluruh dengan memancarkan radiasi partikel alpha dan beberapa diantaranya peluruhan tersebut diikuti dengan pemancaran radiasi gamma

- Seluruh partikel alpha, sinar gamma dan elektron konversi internal yang dihasilkan dari peluruhan mempunyai energi diskrit dan karakteristik, oleh sebab itu pengukuran bahan nuklir tersebut dapat dilakukan dengan mengukur radiasi yang dipancarkan.
- Berdasarkan sifat peluruhan uranium, maka analisis bahan nuklir uranium dan plutonium dapat dilakukan dengan cara radiometri, yaitu dengan cara mengukur radioaktivitas isotop uranium atau melalui pengukuran radioaktivitas anak luruh atau hasil belah uranium-235.
- Pengukuran ini dilakukan dengan cara mengukur radiasi gamma dari isotop uranium atau mengukur radiasi gamma radionuklida yang bersangkutan dengan uranium.



Beberapa sinar gamma dari bahan nuklir dapat digunakan untuk menentukan massa isotop dari bahan nuklir yang menghasilkannya. Karena sifat dari sinar gamma (intensitasnya, kemampuan menembus, dan bebas pengaruh) maka sinar gamma sering digunakan dibandingkan dengan metode lainnya. Adapun tanda sinar gamma hasil peluruhan spontan bahan nuklir yang digunakan untuk NDA ditunjukkan dalam tabel:



Tanda sinar gamma dari U dan Pu yg digunakan dalam NDA

Isotop	Energy (keV)	
U-234	120,9	
U-235	143,8 185,7	
U-238	766,4c 1001,0c	
Pu-238	152,7 766,4	
Pu-239	129,3 413,7	



Dalam proses peluruhan inti, jumlah inti tidak stabil dinyatakan sebagai fungsi eksponent terhadap waktu :

$$N = No .e^{-\lambda t}$$

N : jumlah suatu inti tidak stabil pada waktu t

No : jumlah inti di atas apda waktu t = 0

λ : tetapan peluruhan, parameter karakteristik eksponensial

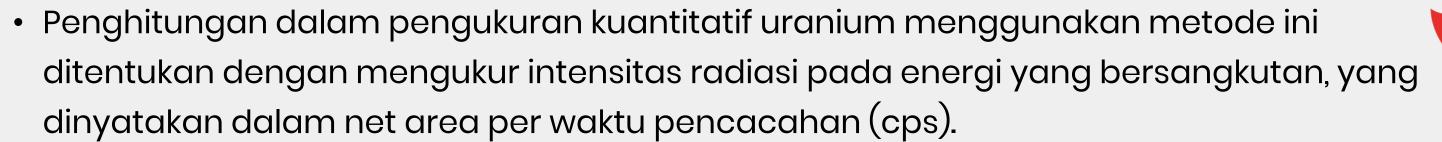
$$\lambda = \ln 2/T_{1/2}$$

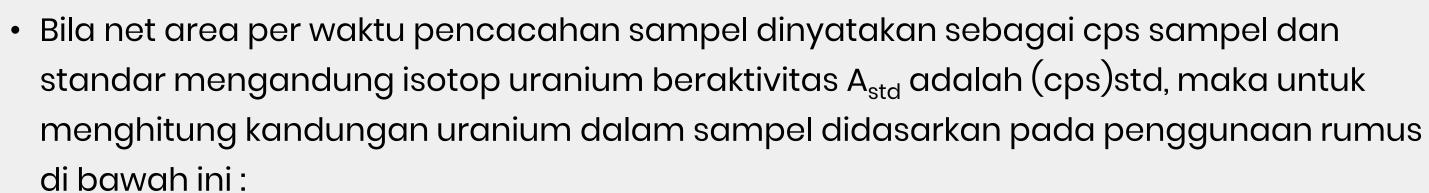
Sedang laju peluruhannya dinyatakan dalam persamaan:

$$R = (1,32 \times 10^{10})/(A \cdot T_{1/2})$$

R: laju peluruhan per detik per gram

T_{1/2}: waktu paruh dalam tahun





$$A_{sampel} = \frac{(Cps)sampel}{(Cps)std} \times A_{std}$$

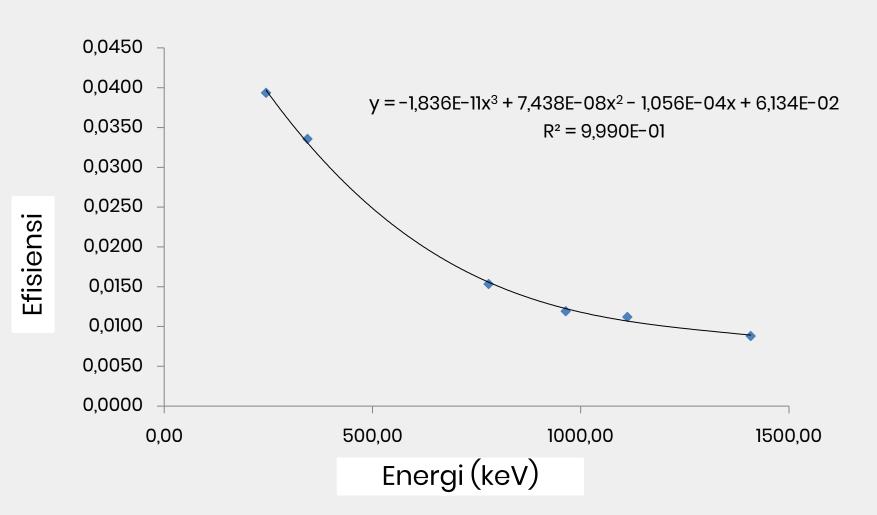
$$A_{sampel} = \frac{(Cps)sampel}{Eff \times Yi}$$

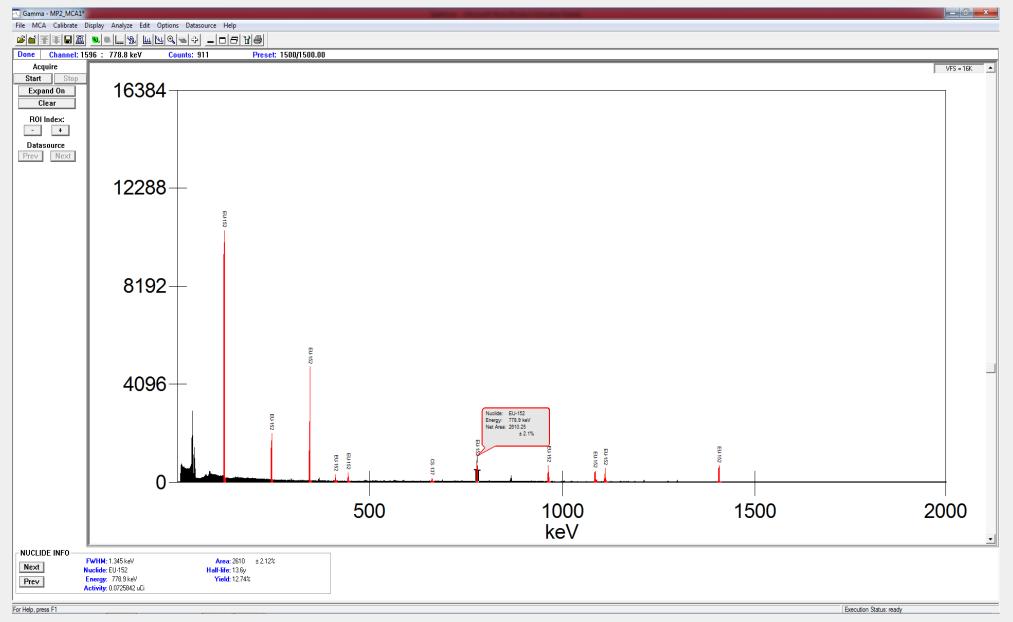
• Kandungan isotop U (g) adalah:

$$W = N \times BA/NA$$
 $N = A/\lambda$



Kurva efisiensi isotop Eu-152



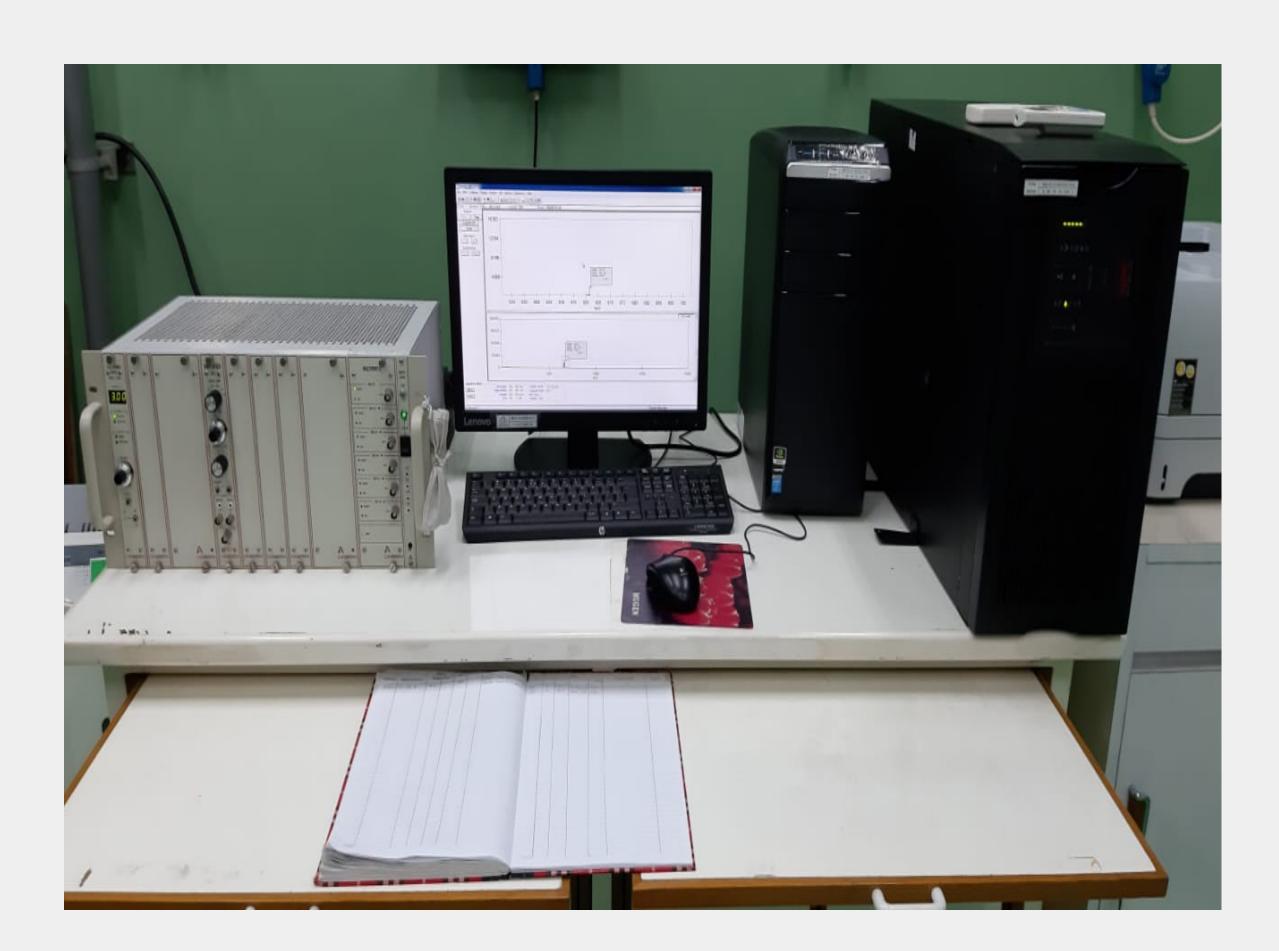


Berdasarkan persamaan di atas dapat diturunkan menjadi persamaan perbandingan isotop uranium-235 terhadap isotop uranium-238, sehingga persamaan tersebut menjadi:

$$A_{sampel} = \frac{(Cps)sampel}{Eff \ x \ Yi}$$

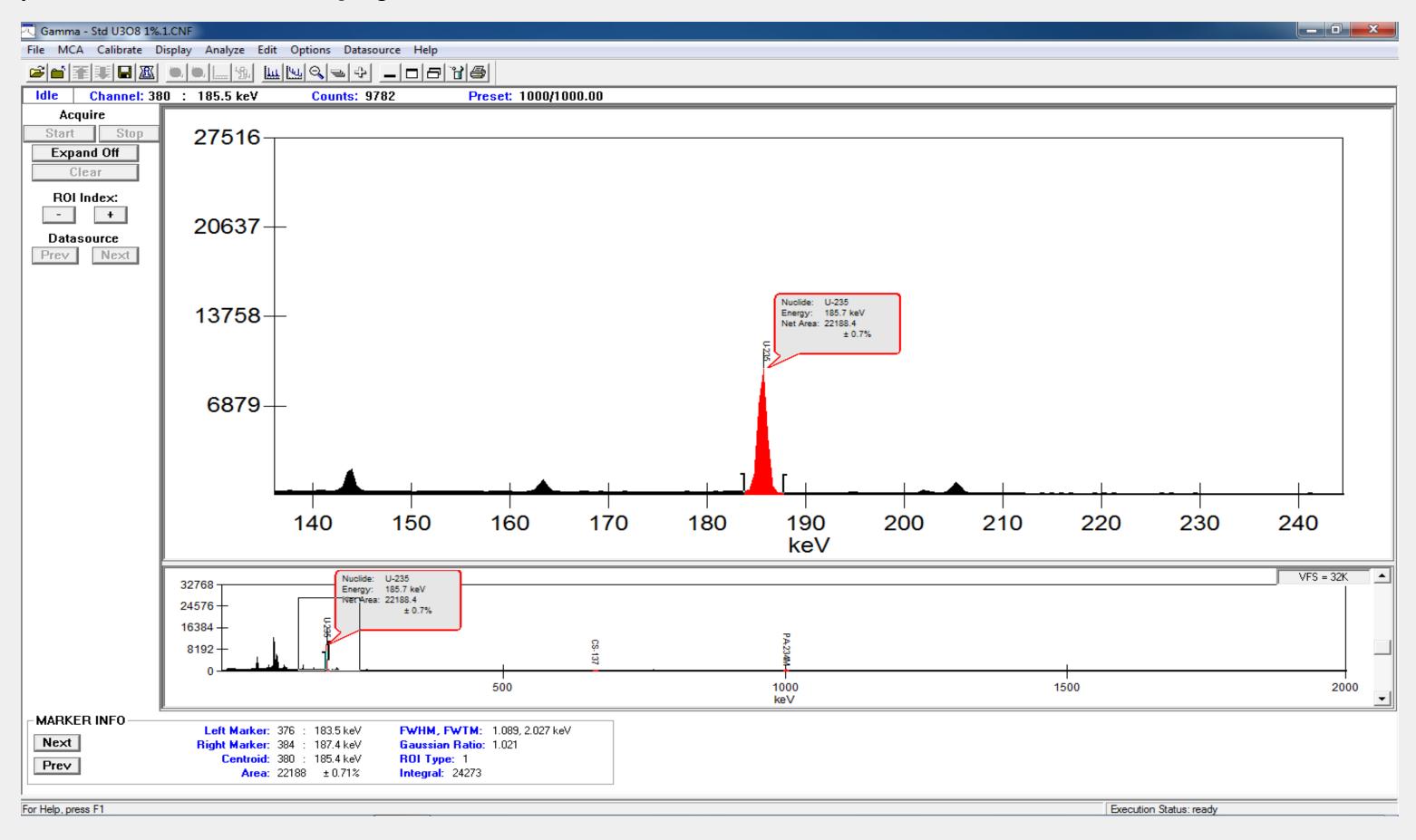
$$\{(N)_{U-235/U-238}\}_{sampel} = \frac{\{(Cps)_{U-235/U-238}\}_{std}}{\{(Cps)_{U-235/U-238}\}_{std}} \times \{(N)_{U-235/U-238}\}_{std}$$

Dimana, {(N)_{U-235/U-238}}_{std} Perbandingan atom U-235/U-238





Spektrum standar U₃O₈ (U-235 1%)



Pengukuran Neutron

Pengukuran neutron secara NDA berdasarkan pada:

• Neutron dari pembelahan spontan digunakan untuk penentuan plutonium total dan deret isotop plutonium

$$^{240}P_{Ueff} = 2,52(^{238}Pu) + ^{240}Pu + 1,68(^{242}Pu)$$

Neutron yang dipancarkan adalah multiplet antara 0 sampai dengan 8

- Pembelahan tumbukan neutron sebagai tanda untuk bahan dapat belah plutonium dan uranium. Pancaran neutron yang terjadi antara 0 sampai dengan 8 Burst. Neutron emisi yang dipancarkan tergantung pada geometri dan densitas sampel.
- Daya tembus neutron yang besar digunakan pada essay dalam jumlah besar secara cepat pada sampel padat
- Data neutron dapat diperoleh secara cepat guna menginformasikan tentang isotop sampel

Adapun sumber neutron yang digunakan dalam NDA berasal dari :

- Pembelahan spontan dari isotop plutonium
- Tumbukan pembelahan yang berasal dari reaksi pembelahan uranium-235 atau plutonium-239.
- Reaksi (α,n) dalam neutron yang dihasilkan dari reaksi ini mempunyai energi random tergantung pada komposisi sampel

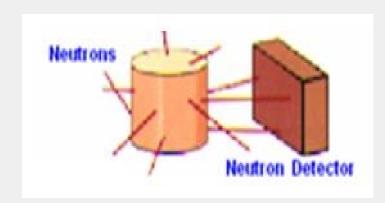
Teknik Pengukuran Neutron

- Metode *passive neutron assay* (tidak menggunakan sumber)
- Metode *active neutron assay* (menggunakan sumber)



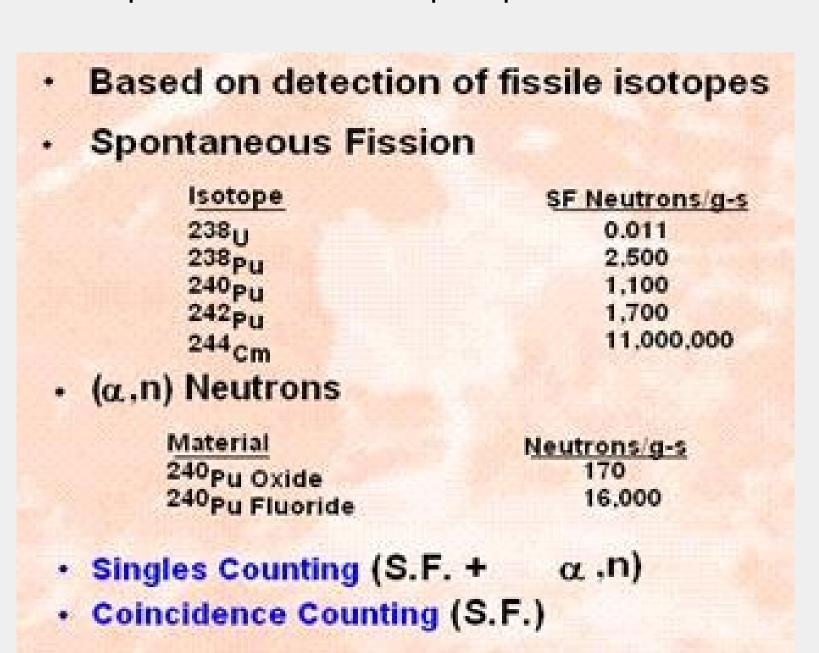
Metode passive neutron assay

Neutron yang dipancarkan secara spontan oleh sampel langsung dideteksi oleh detektor



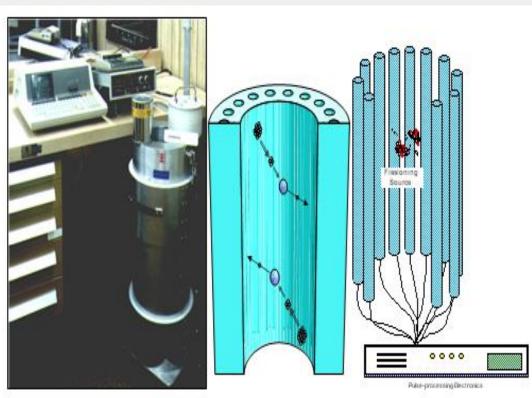
- Jumlah neutron yang terdeteksi oleh detektor dari sampel dibandingkan dengan jumlah neutron hasil pendeteksian bahan standar yang telah diketahui kandungannya.
- Metode ini umumnya digunakan untuk pengukuran plutonium total atau isotop plutonium.

Dasar pendeteksian isotop dapat belah:



Pencacah passive neutron coincidence.

- Digunakan untuk bahan nuklir dengan metode *passive neutron assay*.
- Pengukuran ini menggunakan detektor neutron ³He yang mengelilingi sampel yang akan ditentukan kandungan bahan dapat belah
- Pancaran *prompt* neutron dari pembelahan dideteksi sebagai *coincidence neutrons*.
- Metode ini didesain untuk penentuan plutonium, dapat merespon massa isotop (contoh: ^{238, 240, 242} Pu).
- Akurasi:
 0.3% 4% untuk Pu oksida dan Pu metal
 2%-4% untuk Pu scrap dan limbah



Metode active neutron assay

Pengukuran dgn metode ini membutuhkan sumber neutron, sumber yg biasa digunakan:

Uses source to induce fissions in sample Isotopic neutron sources:

Source	< <u>E(n)></u>	n/s	Туре
²⁴¹ Am-Li (α,n)	0.5 MeV	>100,000	random
²⁵² Cf (sf)	2 MeV	>1,000,000,000	coincidence (sf)
¹²⁴ Sb-Be (γ,n)	23 keV	>100,000,000	random

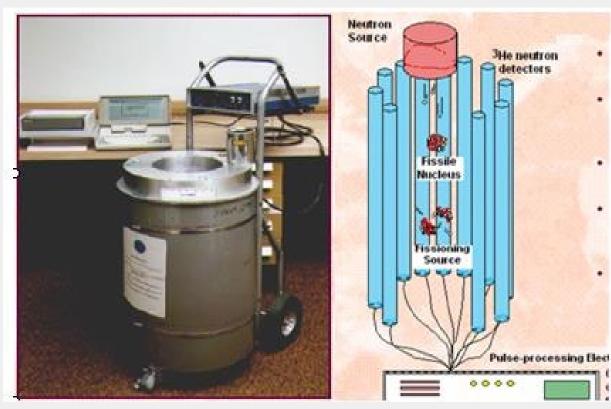
(sf) = spontaneous fission

Methods for discriminating against source neutrons:

- Coincidence
- Time-delayed
- Energy
- Shielding



- Active Neutron Coincidence Counters merupakan salah satu alat yang digunakan untuk pengukuran dengan metode aktif NDA.
- Sebagai sumber neutron untuk *induce* pembelahan menggunakan AmLi. Pengukuran didasarkan pada pencacahan neutron *coincidence* dari *induced* pembelahan.
- Pertama dibutuhkan untuk menentukan uranium dan dalam pengembangannya untuk isotop dapat belah (contoh ²³⁵U dan ²³⁹Pu).
- Cacah latar yang tinggi dalam penentuan dengan metode ini akan menyebabkan sensitifitasnya berkurang, untuk memperbaiki hasil pengukurannya, pengukuran dilakukan dengan membandingkannya melalui pencacahan pasif pada sumber yang digunakan.
- Akurasi 1%-5%, 1000 detik pada pengukuran kuantitas (kg) untuk HEU pelet.
- HEU scrap dan limbah, dengan akurasi 5%-25%.
- Akurasi 5%-10% untuk pengukuran LEU oksida
- Akurasi 10%–50% untuk LEU scrap dan limbah, dengan waktu pengukuran 1000 detik.

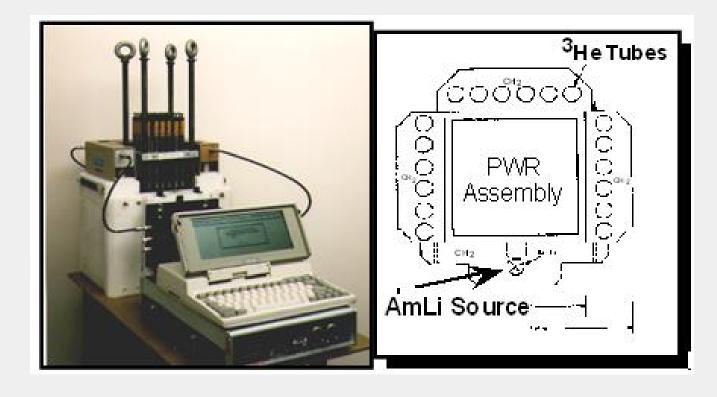


Alat Active neutron coincidence counter



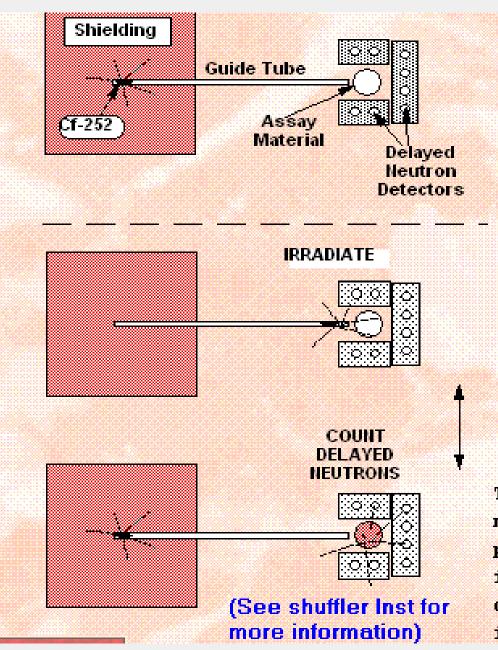
- Merupakan alat pengukuran bahan nuklir dengan menggunakan metode aktif neutron dengan sumber AmLi
- Alat ini efektif digunakan untuk penentuan massa bahan dapat belah per unit panjang
- Akurasi pengukuran 2% s.d. 4%, dengan waktu cacah 1000 detik





The Shuffler Assay

- Alat ini menggunakan sumber Cf-252, pengukuran berlangsung bila neutron dari sumber dipaparkan ke arah sampel.
- Sumber neutron (Cf-252) digerakkan secara cepat (shuffled) antara shielding, daerah penyimpanan dan suatu massa dapat belah, neutron dari sumber bereaksi dengan bahan dapat belah
- Menyebabkan pembelahan pada massa dapat belah dan melepaskan delayed neutron.
- Delayed neutron dipancarkan dari hasil pembelahan diukur selama sumber Cf-252 di antara shielding



- a) The interrogating source is stored in heavy shielding
- b) The interrogating source quickly moved to a position near the SNM to be assayed. The source remains near the sample for a few seconds, inducing fissions.
- (c) The interrogating source is quickly moved back to its shielded position; the neutron detectors then register neutron counts from the delayed neutrons following the induced fissions.

The irradiation-count cycle is repeated many times to acquire adequate statistical precision. The periodic motion of the interrogating source, shuffling in and out of its shielded storage, gives the "Shufflits name.

Kalorimetri

- Pengukuran dengan metode ini didasarkan dari pengukuran panas yang dihasilkan dari interaksi radiasi alpha dengan materi
- Pengukuran ini merupakan gabungan antara data pengukuran panas dengan data penentuan isotop menggunakan gamma spektrometer atau mass spektrometer.

$$G = \frac{P}{Peff}$$
 Peff = $\Sigma Ri \times Pi$

Dimana: G = Massa sampel (gram)

P = Power(watt)

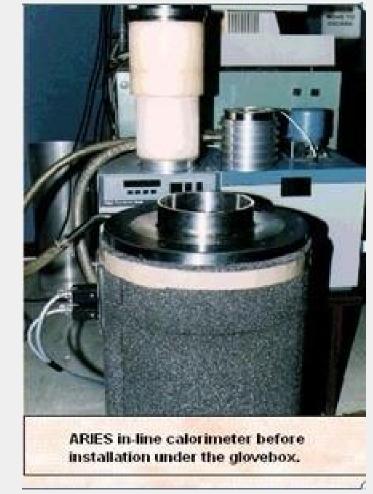
Peff = Power efektif (watt/gram)

Ri = Rasio massa isotop i

Pi = Spesifik power isotop i (watt/gram)

- Metode ini mampu untuk penentuan Pu oksida dan logam uranium di atas 10 kg sampel HEU (high enriched uranium)
- Presisi 0,5% s.d. 0,1%, ketelitian ini sangat tergantung dari matrik yang diukur.
- Perlu diketahui isotopiknya untuk pengubahan tenaga ke massa bahan

Isotop ditentukan dengan gamma NDA atau dengan kimia DA



Terima Kasih