

VALIDASI METODA PENGUKURAN ISOTOP ^{137}Cs MENGGUNAKAN SPEKTROMETER GAMMA

Rosika Kriswarini(*), Dian Anggraini(*), Noviarty(**)

(*) Fungsional Peneliti, Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBN), BATAN, Gedung 20, Kawasan PUSPIPTEK Serpong, Tangerang 15313, Banten

(**) Fungsional Pranata Nuklir, Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBN), BATAN, Gedung 20, Kawasan PUSPIPTEK Serpong, Tangerang 15313, Banten

ABSTRAK

Validasi metoda analisis ^{137}Cs menggunakan Spektrometer- γ telah dilakukan dengan cara mengukur standar ^{137}Cs dan standar ^{152}Eu . Kegiatan ini dilakukan untuk mengetahui unjuk kerja Spektrometer- γ yang baik dengan menggunakan metoda yang valid. Salah satu kegiatan analisis burn up adalah dengan melakukan analisis kandungan isotop ^{137}Cs dalam PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi. Prinsip kerja alat Spektrometer- γ berdasarkan identifikasi spektrum energi radiasi sinar gamma yang dipancarkan oleh bahan radioaktif yang dianalisis. Spektrum radiasi hasil pengukuran menunjukkan nilai intensitas pada setiap tingkat energi, sehingga puncak energi dari radiasi sinar gamma yang datang dapat ditentukan. Intensitas yang diperoleh dari pengukuran digunakan untuk menghitung nilai efisiensi detektor dan aktivitas ^{137}Cs sehingga didapatkan hasil pengujian yang akurat dan dapat dipercaya. Validasi metoda pengukuran ^{137}Cs menggunakan larutan standar ^{137}Cs yang mempunyai aktivitas 14031,98 Bq/g. Berdasarkan hasil analisis ^{137}Cs dapat dinyatakan bahwa metoda pengukuran menggunakan standar ^{137}Cs telah valid dengan presisi 0,53%, pengukuran akurasi 0,226% pada tingkat kepercayaan 95% dengan efisiensi detektor 0,00159 pada jarak 10,5 cm dan aktivitas ^{137}Cs sebesar 14144,35 Bq/g. Sedangkan metoda pengukuran menggunakan standar ^{152}Eu belum valid. Parameter validasi ini selanjutnya digunakan untuk mengukur isotop ^{137}Cs dalam PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi.

Kata Kunci : Spektrometer- γ , ^{137}Cs , ^{152}Eu , Validasi

ABSTRACT

Validation of ^{137}Cs analysis methods using - γ Spectrometer has been performed by measuring the standard of ^{137}Cs and ^{152}Eu standard. This activity was performed to determine the performance of the Spectrometer- γ using a valid method. One of burn-up analysis was to perform analysis of the isotope content of ^{137}Cs in the PEB-Al U_3Si_2 post-irradiation. The working principle of spectrometer instrument was based on the identification of γ -radiation energy spectrum of gamma rays emitted by radioactive material being analyzed. Radiation spectrum measurement results indicated the intensity values at each energy level, so that the peak energy of gamma ray radiation that came to be determined. Intensity was obtained from the measurements was used to calculate the value of the detector efficiency and the activity of ^{137}Cs to get the accurate and confidence results. Validation of measurement methods using ^{137}Cs standard solutions having 14031.98 Bq/g activity. Based on the results of the analysis of ^{137}Cs can be stated that the standard methods using ^{137}Cs measurements have been valid with a precision is 0.53%, the measurement accuracy is 0.226% at 95% confidence level with a detector efficiency is 0.00159 at a distance of 10.5 cm and the activity is ^{137}Cs Bq 14144.35/g. While the measurement method using a standard ^{152}Eu was not valid. Parameter validation in the will be used to measure the isotopes ^{137}Cs in PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ post-irradiation.

Keywords : Spectrometer- γ , ^{137}Cs , ^{152}Eu , Validation

1. PENDAHULUAN

Dalam rangka mengetahui unjuk kerja bahan bakar nuklir selama di dalam reaktor maka dilakukan analisis PIE (*Post Irradiation Examination*), salah satunya adalah melalui analisis *burn up*. Analisis *burn up* merupakan analisis fisika kimia yang meliputi penentuan aspek-aspek analisis *burn up* hingga perhitungan *burn up*. Salah satu kegiatan analisis *burn up* adalah dengan melakukan analisis kandungan isotop ^{137}Cs dalam PEB $\text{U}_3\text{Si}_2\text{-Al}$ pasca iradiasi karena PEB pasca-iradiasi memancarkan berbagai jenis radioaktif sinar- α , β dan γ yang berasal dari berbagai jenis isotop sisa bahan bakar dan hasil fisinya. Isotop ^{137}Cs adalah pemancar sinar gamma yang mempunyai waktu paruh panjang (30,17 tahun) sehingga dapat digunakan sebagai isotop monitor dalam analisis *burn-up* bahan bakar nuklir. Data-data fisi berupa isotop ^{235}U atau fraksi bakar U secara mutlak dan jumlah isotop ^{137}Cs dalam bahan bakar sangat penting diketahui untuk menghitung *burn-up* dengan tujuan untuk verifikasi, evaluasi dan validasi unjuk kerja bahan bakar nuklir baik dari sisi pabrikasi maupun unjuk kerja di reaktor^[1].

Ada beberapa cara yang dilakukan untuk mengukur isotop pemancar sinar gamma, biasanya dilakukan menggunakan spektrometer massa, namun BATAN belum mempunyai alat tersebut sehingga pengukuran dilakukan dengan cara menentukan komposisi isotop radioaktif menggunakan Spektrometri- γ . Hasil analisis menggunakan Spektrometer- γ adalah berupa cacahan per detik (*cps*) yang selanjutnya dapat diestimasi menjadi besaran aktivitas (*Bq/g*) dengan menggunakan rumus efisiensi detektor sebagai berikut^[2]:

$$eff = \frac{\text{Area} / t}{Akt \times Yield} \quad (1)$$

dengan :

Area = area dari puncak energi yang dipilih (dari *net counts* isotop ($C - C_{background}$))

t = selang waktu pencacahan (detik)

Akt = aktivitas sumber radiasi (Bq)

Yield = probabilitas pancaran radiasi pada energi yang diukur

Aktivitas sumber radiasi yang tercantum dalam rumus (1) dihitung menggunakan rumus :

$$Akt. = A_0 \cdot e^{-\lambda t} \quad (2)$$

dengan :

Akt = aktivitas isotop ^{137}Cs pada saat pengukuran (dps atau Bq)

A_0 = aktivitas awal (tercantum pada sertifikat)

λ = konstanta peluruhan atau $(\ln 2) / T_{1/2} = 0,693 / T_{1/2}$

$T_{1/2}$ = waktu paruh dari isotop ^{137}Cs , tahun atau detik (1 tahun = 365 hari atau 31536000 detik)

t = waktu pengukuran - waktu yang tercantum dalam sertifikat (tahun atau detik)

Spektrometer- γ adalah salah satu peralatan pengujian yang ada di laboratorium Instalasi Radiometalurgi PTBN-BATAN yang dapat digunakan untuk menganalisis isotop pemancar sinar gamma khususnya isotop ^{137}Cs . Prinsip kerja alat Spektrometer- γ berdasarkan identifikasi spektrum energi dari radiasi sinar gamma yang dipancarkan oleh bahan radioaktif yang dianalisis. Spektrum radiasi tersebut dapat menunjukkan nilai intensitas pada setiap tingkat energi, sehingga puncak energi dari radiasi sinar gamma yang datang dapat ditentukan^[2]. Spektrometer- γ tersebut sudah berumur lebih dari 10 tahun dan selama ini pengoperasiannya dilakukan dengan menggunakan metode petunjuk operasi (*Manual Operation*) yang diberikan oleh fabrikan (ORTEC) dengan penyimpangan pengukuran yang masih dapat diterima sebesar 5%^[3].

Analisis sistem spektroskopi ini didasarkan pada beberapa parameter, yaitu resolusi, efisiensi, dan *peak to Compton ratio*. Resolusi didasarkan pada perbandingan antara FWHM (*Full Width at Half Maximum*) dan FWTM (*Full Width at Tenth Maximum*) yang biasa disebut dengan nilai *Gauss ratio*, yang mempunyai nilai ideal 1,83. Sistem spektroskopi dapat dikatakan baik jika memiliki nilai *Gauss ratio* kurang dari 2. Spektrum radiasi gamma merupakan puncak energi hasil efek fotolistrik yang disebut dengan *photo-peak* dan suatu daerah landai pada energi yang lebih rendah yang disebut dengan daerah Compton. Spektrum yang diinginkan mempunyai *photo-peak* setinggi-tingginya dan daerah Compton yang serendah-rendahnya. *Peak to Compton ratio* adalah parameter yang menunjukkan nilai perbandingan cacahan puncak energi *photo-peak* dan cacahan rata-rata di daerah Compton. Sistem spektroskopi gamma dikatakan baik bila mempunyai nilai *peak to Compton ratio* lebih besar dari 40^[2].

Menurut sistem mutu SNI-17025, suatu laboratorium pengujian dalam mengoperasikan suatu peralatan harus menggunakan metode pengukuran yang valid berdasarkan parameter-parameter unjuk kerja yang memenuhi spesifikasi, operator yang kompeten dan alat yang terkalibrasi agar diperoleh hasil pengujian isotop ^{137}Cs yang benar, presisi dan akurasi yang tinggi^[4,5]. Dalam melakukan validasi suatu metode pengujian maka prosedur yang digunakan harus dapat tertelusur dengan cara menggunakan CRM (*Certificate Reference Material*) atau ke isotop ^{137}Cs yang bersertifikat. Untuk mengetahui bahwa metode uji yang diberikan oleh fabrikan ORTEC telah valid maka dilakukan langkah validasi metode dengan mengacu kepada

bahan standar isotop ^{137}Cs yang bersertifikat. Validasi metode pengukuran isotop ^{137}Cs tersebut terdiri dari beberapa parameter yaitu efisiensi detektor, aktivitas (Bq/g), presisi dan akurasi. Efisiensi detektor ditentukan dengan persamaan (1), aktivitas ditentukan ditentukan dengan persamaan (2). Nilai akurasi diperoleh menggunakan rumus :

$$\text{Akurasi (\%)} = \frac{|\text{nilai pengukuran} - \text{nilai sertifikat}|}{\text{nilai sertifikat}} \times 100\% \quad (3)$$

sedangkan nilai presisi diperoleh dari nilai standar deviasi hasil pengulangan pengukuran menggunakan rumus^[6] :

$$SD^2 = \frac{\sum (x - \bar{x})^2}{n-1} \quad (4)$$

$$RSD = \frac{SD}{\bar{x} \text{ rerata}} \quad (5)$$

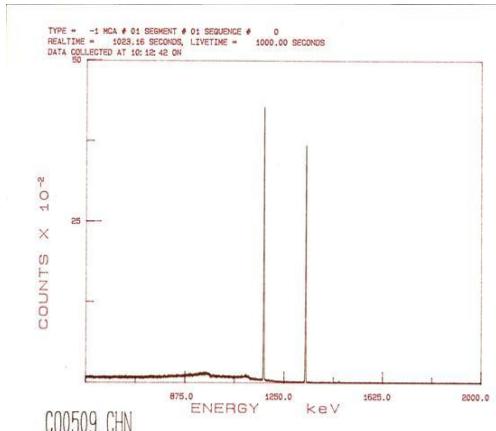
2. METODOLOGI

Sampel yang digunakan untuk melakukan kalibrasi energi alat spektrometer- γ adalah standar ^{60}Co dan kalibrasi efisiensi menggunakan ^{137}Cs dengan aktivitas 14031,98 Bq/g dan ^{152}Eu dengan aktivitas 93259,4 Bq/g, sedangkan sebagai pengujian digunakan larutan standar ^{137}Cs sebanyak 2 ml yang mempunyai aktivitas. Alat yang digunakan untuk analisis adalah Spektrometer- γ yang dilengkapi dengan *Multi Channel Analyzer* (MCA) dan *printer* sebagai sistem pengolahan data serta sistem pendingin detektor menggunakan nitrogen cair. Sebelum melakukan pengujian terlebih dahulu dilakukan kalibrasi alat menggunakan standar *point* isotop ^{60}Co pada tegangan kerja 3kV dengan waktu cacah selama 1000 detik, sedangkan kalibrasi efisiensi dilakukan dengan menggunakan standar ^{137}Cs dan standar ^{152}Eu dengan waktu cacah masing-masing selama 1500 detik. Hasil kalibrasi energi dan efisiensi akan digunakan sebagai acuan energi berdasarkan alamat *channelnya*. Setelah diperoleh data kalibrasi energi dan efisiensi kemudian dilakukan pengukuran terhadap larutan standar ^{137}Cs dengan aktivitas 14031,98 Bq/g pada jarak pengukuran sampel 10,5 cm dan waktu pengukuran (*Live Time / LT*) selama 1500 detik. Hasil pengukuran kemudian dievaluasi untuk mengetahui presisi dan akurasi pengukuran. Presisi metoda diperoleh dari pengukuran sebanyak 3 (tiga) kali pengulangan dan akurasi metoda diperoleh dengan cara membandingkan aktivitas (Bq/g) hasil pengukuran terhadap aktivitas (Bq/g) yang tercantum dalam sertifikat.

3. HASIL DAN PEMBAHASAN

Kalibrasi Energi

Kalibrasi energi dilakukan dengan menggunakan standar ^{60}Co dengan waktu cacah (*Life Time / LT*) selama 1000 detik. Pemilihan waktu 1000 detik dilakukan dengan pertimbangan agar nilai cacah (*count*) yang dihasilkan dari pengukuran lebih dari 10000. Spektrum kalibrasi energi ditunjukkan pada Gambar 1



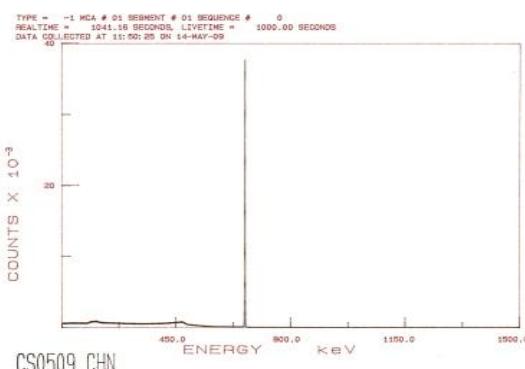
Gambar 1. Spektrum Standar ^{60}Co

Dari Gambar 1 diketahui bahwa hasil pengukuran standar ^{60}Co menghasilkan dua spektrum yaitu pada energi 1173,24 keV dengan *channel* 4700 dan pada energi 1332,5 keV dengan *channel* 5300. Hasil kalibrasi ini selanjutnya digunakan untuk mengidentifikasi isotop pada sampel radioaktif yang akan diukur. Kalibrasi energi harus dilakukan secara periodik agar pengukuran ^{60}Co berada dalam batas yang diterima yaitu pada daerah 2σ . Hal ini diperlukan untuk pembuatan *Control Chart (QC)* resolusi dan efisiensi detektor. QC merupakan salah satu indikator untuk menentukan bahwa validasi metoda menggunakan bahan standar yang tertelusur masih berlaku atau perlu dilakukan validasi kembali.

Kalibrasi Efisiensi

Kalibrasi efisiensi detektor dilakukan menggunakan 2 (dua) cara yaitu dengan pengukuran standar isotop ^{137}Cs dan pengukuran standar isotop ^{152}Eu . Kalibrasi efisiensi dilakukan pada *LT* 1500 detik dan jarak pengukuran antara detektor dengan sampel standar pada 10,5 cm. Spektrum standar isotop ^{137}Cs hasil pengukuran seperti pada Gambar 2 dan hasil analisis standar isotop ^{137}Cs menggunakan persamaan (1), (2) dan (3) seperti ditunjukkan pada

Tabel 1 kemudian dievaluasi.



Gambar 2. Spektrum Energi Standar ^{137}Cs

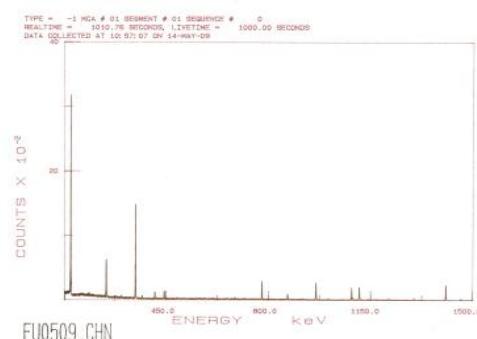
Tabel 1. Efisiensi Detektor Spektrometer- γ Menggunakan Standar ^{137}Cs
Dengan Waktu Cacah 1500 Detik dan Jarak 10,5 cm

No.	Net Area	Cps	Yield	Aktivitas Standar ^{137}Cs (Bq/g)	Aktivitas Pengukuran ^{137}Cs (Bq/g)	Efisiensi Detektor	Akurasi (%)	Presisi (%)
1.	67757	45,1713	0,851	14031,98	14144,35	0,00159	2,226	0,53
2.	68458	45,6386	0,851			0,00159		
3.	67963	45,3860	0,851			0,00159		

Cara kedua yang dilakukan untuk membuat kalibrasi efisiensi dengan pengukuran standar isotop ^{152}Eu . Pengukuran isotop ^{152}Eu menggunakan Spektrometer- γ menghasilkan spektrum pada beberapa energi seperti yang tercantum pada Gambar 3. Cara ini biasanya digunakan bila tidak ada standar isotop sampel yang dianalisis dengan syarat bentuk geometri harus sama dengan sampel yang dianalisis.

Hasil pengukuran dari standar ^{152}Eu pada masing-masing energi dituangkan pada Tabel 2.

Dari Tabel 1 diperoleh aktivitas isotop ^{137}Cs pengukuran sebesar 14144,35 Bq/g, efisiensi detektor sebesar 0,00159, akurasi pengukuran sebesar 2,2262% dan presisi pengukuran 0,53%. Nilai akurasi dan presisi yang diperoleh telah memenuhi kriteria keberterimaan kaidah statistik karena pada tingkat kepercayaan 95% mempunyai nilai penyimpangan <5% yaitu 0,53%.



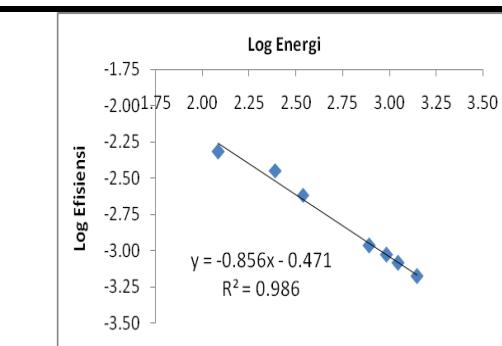
Gambar 3. Spektrum Standar ^{152}Eu

Tabel 2. Energi ^{152}Eu dan Perhitungan Efisiensi Dengan Waktu Cacah 1500 Detik dan Jarak 10,5 cm

Energi (KeV)	Count per Second (cps) Rata-Rata	Yield	Efisiensi	Log Energi	Log Efisiensi
121,78	128,517	0,285	0,00484	2,0856	-2,3156
244,70	25,236	0,076	0,00356	2,3886	-2,4485
344,28	59,883	0,265	0,00242	2,5369	-2,6156
778,91	12,979	0,129	0,00108	2,8915	-2,9670
964,13	12,776	0,146	0,00094	2,9841	-3,0277
1112,12	10,459	0,136	0,00082	3,0462	-3,0838
1408,01	13,232	0,210	0,00067	3,1486	-3,1769

Bila menggunakan standar ^{152}Eu , perhitungan efisiensi tetap menggunakan persamaan 1, selain itu juga dibuat perhitungan log efisiensi dan log energi seperti ditunjukkan pada Tabel 2. Grafik

hubungan antara log energi dan log efisiensi dapat dilihat pada Gambar 2.



Gambar 2. Grafik Efisiensi Standar ^{152}Eu

Persamaan garis pada Gambar 2 adalah $y = -0,856x - 0,471$ dengan $R^2 = 0,986$, hal ini sesuai dengan persyaratan pengujian spektrometri maka

dari nilai $R^2 (>0,95)$ dapat dinyatakan bahwa energi dan efisiensi mempunyai hubungan yang linear.

Setelah diperoleh persamaan pengukuran isotop ^{152}Eu kemudian dihitung besaran efisiensi detektor untuk pengukuran isotop ^{137}Cs dengan cara mensubstitusi energi isotop ^{137}Cs sebesar 661,8 keV. Pengukuran standar ^{137}Cs dilakukan pada LT dan jarak yang sama dengan kalibrasi efisiensi yaitu LT 1500 detik dan jarak 10,5 cm. Perhitungannya sebagai berikut :

$$y = -0,856x - 0,471$$

$$\begin{aligned} \log \text{efisiensi} &= (-0,856 \times \log \text{energi}) - 0,471 \\ &= (-0,855 \times \log 661,8) - 0,471 \\ &= -2,8855 \end{aligned}$$

$$\text{Efisiensi} = 0,001302$$

Hasil analisis dengan menggunakan nilai efisiensi yang diperoleh di atas disajikan pada Tabel 3.

Tabel 3. Efisiensi Detektor Spektrometer- γ Menggunakan Standar ^{152}Eu Dengan Waktu Cacah 1500 Detik dan Jarak 10,5 cm

No.	Net Area	Cps	Yield	Aktivitas Standar ^{137}Cs (Bq/g)	Aktivitas Pengukuran ^{137}Cs (Bq/g)	Efisiensi Detektor	Akurasi (%)	Presisi (%)
1.	67757	45,1713	0,851	14031,98	17517,30	0,001302	25	0,53
2.	68458	45,6386	0,851			0,001302		
3.	67963	45,3860	0,851			0,001302		

Nilai akurasi sebesar 25% terdapat pada Tabel 3. Nilai ini menunjukkan bahwa akurasi tersebut tidak sesuai dengan persyaratan yang diberikan oleh pabrikan bahwa penyimpangan yang diperbolehkan maksimum 5%. Dengan demikian dapat dinyatakan bahwa perhitungan aktivitas ^{137}Cs melalui pengukuran efisiensi menggunakan standar ^{152}Eu jauh lebih rendah dibanding nilai akurasi yang diperoleh melalui pengukuran efisiensi menggunakan standar ^{137}Cs . Hal ini disebabkan adanya perbedaan geometri antara standar ^{152}Eu (standar cair 1 mL) dengan standar ^{137}Cs (standar cair 2 mL). Dari hasil analisis menunjukkan bahwa faktor geometri sangat mempengaruhi nilai akurasi hasil pengukuran isotop ^{137}Cs sehingga menyebabkan nilai aktivitas ^{137}Cs yang diperoleh tidak sesuai dengan nilai aktivitas yang sebenarnya. Untuk mengatasi hal tersebut maka untuk analisis ^{137}Cs perlu menggunakan standar ^{152}Eu dengan volume yang sama dengan volume larutan ^{137}Cs yang diukur yaitu sebesar 2 mL.

4. KESIMPULAN

Berdasarkan hasil analisis ^{137}Cs dapat dinyatakan bahwa metoda pengukuran menggunakan standar ^{137}Cs telah valid dengan

presisi 0,53%, pengukuran akurasi 0,226% pada tingkat kepercayaan 95% dengan efisiensi detektor 0,00159 pada jarak 10,5 cm dan aktivitas ^{137}Cs sebesar 14144,35 Bq/g. Sedangkan metoda pengukuran menggunakan standar ^{152}Eu belum valid.

5. UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terima kasih kami sampaikan kepada Ir. Aslina Br. Ginting yang ikut membantu dalam penyusunan tulisan ini.

6. DAFTAR PUSTAKA

1. NUGROHO, ARIF, dkk., [2010], "Analisis Radionuklida ^{137}Cs Dalam Pelat Elemen Bakar (PEB) U3Si2-Al Densitas 2,96 g/cm³ Pasca Iradiasi", Prosiding Seminar Nasional VI, SDM Teknologi Nuklir, Yogyakarta.
2. WIBOWO, NARKO, [2006], "Analisis Performa Spektrometer Gamma EG&G ORTEC", Majalah Ilmiah Urania Vol. 12 No. 1.
3. ANONIM, ACETM Multicannel Analyzer Operator Manual A63-B2 / A63-B4, EG&G ORTEC, Tennese, USA.
4. AMERICAN STANDARD TEST METHODE, ASTM E320-79, [2000], "Standard Test

- Methode for Cesium -137 in Nuclear Fuel Solutions by Radiochemical Analysis*", USA,
Volume 12.
5. KANTASUBRATA, JULIA, Dr., [2009],
Pelatihan “Tips and Triks Validasi Metoda” ,
RCChem Learning Centre.
 6. ANDERSON, ROBERT L., [1987], “*Practical Statistics of Analytical Chemist*”, Van Nostrand Reinhold Company, New York.