

PENGEMBANGAN PROSES PRODUKSI MOLIBDENUM-99 HASIL FISI DENGAN MENGGUNAKAN TARGET FOIL LOGAM URANIUM PENGKAYAAN RENDAH

A. Mutalib, G.F. Vandegrift*, C. Conner*, A. H. Gunawan, H. Lubis, A. Sukmana, B. Purwadi, K. Wisnukaton, D. T. Jatmiko, Sriyono

ABSTRAK

PENGEMBANGAN PROSES PRODUKSI MOLIBDENUM-99 HASIL FISI DENGAN MENGGUNAKAN TARGET FOIL LOGAM URANIUM PENGKAYAAN RENDAH. Badan Tenaga Nuklir Nasional dan Argonne National Laboratory dewasa ini sedang melaksanakan kerja sama penelitian dan pengembangan produksi molibdenum-99 dengan menggunakan foil logam uranium pengkayaan rendah. Pembahasan dalam makalah ini lebih difokuskan terhadap hasil kerja sama pengembangan dan penelitian tersebut yang telah dilaksanakan di Pusat Pengembangan Radioisotop dan Radiofarmaka. Dalam makalah dijelaskan (1) keberhasilan pemisahan dan pemurnian ^{99}Mo dari target foil logam uranium pengkayaan rendah yang telah diiradiasi di reaktor RSG-GA Siwabesy, dan (2) keberhasilan memodifikasi proses Cintichem. Hasil pengembangan pendahuluan metoda kuantitatif elektrodeposisi cemaran uranium dan plutonium di dalam ^{99}Mo juga akan dijelaskan.

ABSTRACT

DEVELOPMENT OF PRODUCTION PROCESSES OF FISSION PRODUCT MOLYBDENUM-99 USING LEU METAL FOIL TARGETS. A collaboration is underway between Indonesian National Nuclear Energy Agency and Argonne National Laboratory to carry out R&D on the production of molybdenum-99 using LEU (Low Enriched Uranium)-metal foil targets. A review in this paper is focused mainly on the results of laboratory experiments conducted at the Center for Development of Radioisotopes and Radiopharmaceuticals, Serpong. It describes successes in (1) performing separation and purification of ^{99}Mo in the irradiated LEU-metal foil targets, and (2) modifying Cintichem procedure. A method for quantitatively electrodepositing uranium and plutonium contaminants in the ^{99}Mo is also described.

* Chemical Technology Division, Argonne National Laboratory, Illinois, USA

PENDAHULUAN

Sampai saat ini hampir semua pasokan (supply) molibdenum-99 seluruh dunia diperoleh dari hasil fisi uranium pengkayaan tinggi (High Enriched Uranium, HEU), $^{235}\text{U} \sim 93\%$. ^{99}Mo sebagai radionuklida induk merupakan sumber utama penghasil $^{99\text{m}}\text{Tc}$ dan $^{99\text{m}}\text{Tc}$ sendiri dewasa ini merupakan radionuklida medik yang paling banyak digunakan sebagai radiofarmaka di dalam bidang kedokteran nuklir. Proyeksi kebutuhan dunia mengenai ^{99}Mo diperkirakan akan meningkat sesuai dengan meningkatnya permintaan radiofarmaka teknesium untuk keperluan diagnosis berbagai penyakit [1,2].

Jenis target HEU yang digunakan untuk memproduksi ^{99}Mo dapat dikelompokkan atas (1) plat atau pin bahan bakar mini Al-clad yang mengandung aliansi HEU-Al atau dalam bentuk bahan bakar dispersi UAl_x [3,4]; dan (2) pelet UO_2 atau lapisan tipis UO_2 yang dilapiskan (coating) pada bagian dalam tabung baja tahan karat (stainless steel) [5,6]. Misalnya, Argentine Comision Nacional de Energia Atomica (CNEA), Atomic Energy Corporation of South Africa Limited (AEC), dan China Institute of Atomic Energy (CIAE) menggunakan target plat aliansi HEU-Al; Institut National des Radioelements (IRE), Belgia dan Mallinckrodt, Belanda menggunakan target plat dispersi HEU-Aluminida; MDS Nordion/Atomic Energy of Canada Limited (AECL) menggunakan target dalam bentuk batang aliansi HEU-Al; sedangkan BATAN, Indonesia dan Sandia National Laboratory (SNL), USA menggunakan HEU-Oksida dalam bentuk lapisan tipis pada permukaan bagian dalam tabung baja tahan karat; dan Australian Nuclear Science and Technology Organization (ANSTO) menggunakan pelet UO_2 . Pada prinsipnya setelah target HEU diiradiasi di dalam suatu reaktor nuklir, ^{99}Mo dipisahkan dari uranium dan hasil fisi lainnya.

Lolosnya amendemen *Atomic Energy Act of 1954* di Kongres Amerika Serikat pada tahun 1992 yang membatasi secara ketat export HEU untuk digunakan sebagai bahan bakar atau target di dalam reaktor penelitian atau reaktor uji, telah mendorong dilakukannya pengembangan uranium pengkayaan rendah (Low Enriched Uranium, LEU), $^{235}\text{U} < 20\%$, sebagai pengganti HEU, khususnya untuk kebutuhan produksi ^{99}Mo hasil fisi. Dorongan ini semakin kuat dengan semakin mahalnya harga HEU di pasaran dunia. Kerja sama penelitian antara Badan Tenaga Nuklir Nasional (BATAN) dengan Argonne National Laboratory (ANL) telah memfokuskan kegiatannya untuk mempelajari penggantian HEU dengan LEU baik sebagai bahan bakar maupun sebagai target untuk kegiatan produksi ^{99}Mo . Dalam kerja sama ini, pihak BATAN melibatkan: (1) Pusat Pengembangan Teknologi Bahan Bakar Nuklir dan Daur Ulang (P2TBDU) untuk mempelajari disain dan fabrikasi target;

(2) Pusat Pengembangan Teknologi Reaktor Riset (P2TRR) mempelajari aspek-aspek yang berkaitan dengan iradiasi target di Reaktor Serba Guna G.A.Siwabesny (RSG-GAS); dan (3) Pusat Pengembangan Radioisotop dan Radiofarmaka (P2RR) mempelajari pengembangan proses produksi ^{99}Mo dengan menggunakan target foil logam LEU melalui modifikasi proses Cintichem. Proses Cintichem adalah prosedur kimia yang digunakan untuk memisahkan dan memurnikan ^{99}Mo dari hasil fisi uranium. BATAN memiliki lisensi untuk menggunakan proses Cintichem, yang diperoleh melalui kontrak antara BATAN dengan General Atomic Inc., Amerika Serikat.

Tabel 1. Karakteristik target HEU- UO_2 dan foil logam-LEU

	HEU- UO_2	Foil logam-LEU
Komposisi kimia	UO_2	logam U
Uranium total	~ 16 g	~ 94 g
Pengkayaan ^{235}U	~ 93%	~ 19,8%
^{235}U	15 g	18,5 g
Yiel ^{99}Mo	532 Ci	545 Ci
^{239}Pu	30 μCi	720 μCi
$^{234}, ^{235}, ^{238}\text{U}$	1280 μCi	840 μCi
Total α	1310 μCi	1560 μCi

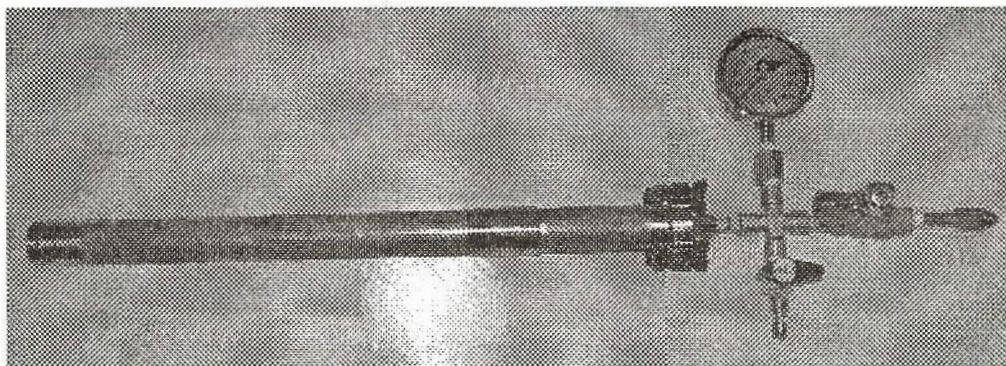
Penggantian target HEU dengan LEU memiliki beberapa tantangan baik dari sudut disain target maupun dari sudut proses pemisahan kimia dan pemurnian ^{99}Mo . Tiga tantangan utama yang telah diidentifikasi dalam upaya mengganti target HEU dengan target LEU, yaitu (1) memodifikasi target dan proses pemurnian sesedikit mungkin, (2) menjamin yiel dan kemurnian ^{99}Mo tetap tinggi, dan (3) membatasi biaya (cost) tambahan. Efek iradiasi terhadap target LEU diharapkan minimal dengan mempertahankan geometri target tetap sama seperti target HEU. Dengan dipertahankannya nilai yiel ^{99}Mo ekuivalen dengan yiel ^{99}Mo dari target HEU akan memberikan konsekuensi jumlah kandungan uranium dalam target LEU kira-kira harus lima kali lebih banyak dari pada target HEU (lihat Tabel 1).

Hal ini telah mendorong digunakannya uranium yang lebih mampat dalam bentuk foil logam LEU sebagai target dalam upaya mendekati geometri target sesuai yang diharapkan. Dengan merubah jumlah dan bentuk uranium di dalam target akan memerlukan modifikasi terhadap dua tahap proses, yaitu pelarutan target yang diiradiasi dan pemisahan awal ^{99}Mo . Bagian terbesar dari kegiatan pengembangan telah dilaksanakan untuk kedua tahap proses tersebut.

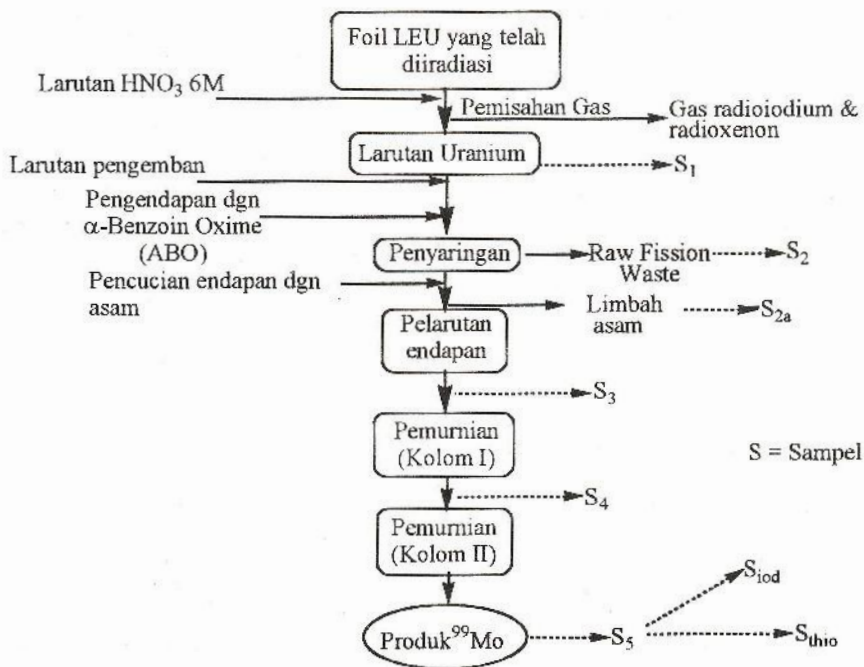
Dalam makalah ini dilaporkan rangkuman hasil pengembangan produksi ^{99}Mo dengan menggunakan target foil LEU sejak tahun 1995 sampai tahun 1999. Beberapa hasil kegiatan pengembangan telah disampaikan dalam beberapa pertemuan Reduced Enrichment for Research and Test Reactors (RERTR) [7-9] dan Workshop on the Utilization of Research Reactors (WURR) [10-12], serta telah dipublikasikan dalam bentuk prosiding. Publikasi telah diterbitkan pula dalam IAEA-TecDoc [13], dan beberapa jurnal [14-17]. Pembahasan dalam makalah ini lebih dititik-beratkan terhadap hasil kegiatan kerja sama pengembangan yang telah dilaksanakan di P2RR, terutama yang berkaitan dengan disain *dissolver*, proses pelarutan foil, proses pemisahan serta pemurnian ^{99}Mo dari produk fisi, dan beberapa modifikasi yang dilakukan terhadap proses Cintichem. Kegiatan disain serta fabrikasi foil LEU yang telah dilaksanakan di ANL akan dibahas secara singkat. Dalam bagian akhir makalah akan dikemukakan langkah-langkah yang perlu ditindak-lanjuti untuk memperbaiki hasil pengembangan dan beberapa kegiatan inovasi yang diharapkan akan mendukung program pengembangan.

BAHAN DAN TATA KERJA

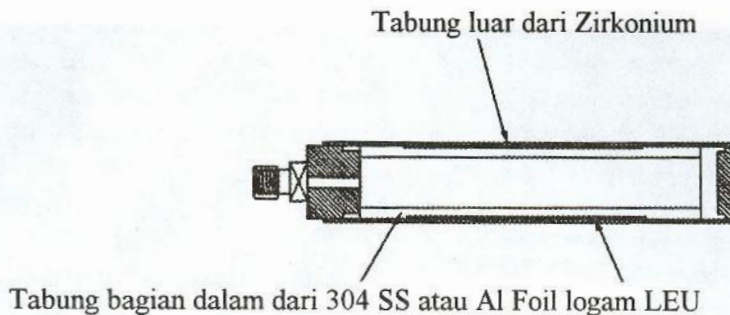
Bahan kimia, peralatan dan tata kerja untuk proses produksi ^{99}Mo dari target foil logam LEU semuanya hampir mirip seperti untuk proses ^{99}Mo dari HEU [18], kecuali *dissolver* dan tidak digunakannya asam sulfat dalam seluruh larutan proses. Dalam proses ^{99}Mo dari HEU, tabung target berfungsi pula sebagai *dissolver*. Sedangkan *dissolver* untuk proses ^{99}Mo dari target foil logam LEU didisain tersendiri (lihat Gambar 1). Meskipun demikian beberapa kriteria disain *dissolver* disesuaikan dengan beberapa peralatan pendukung yang digunakan untuk *dissolver* proses HEU. Uji kelayakan pakai *dissolver* telah dilaksanakan di P2RR dan ANL. Secara skematis tata kerja proses produksi ^{99}Mo dari target foil logam LEU ditunjukkan pada Gambar 2.



Gambar 1. Dissolver untuk foil logam LEU



Gambar 2. Skema proses Cintichem



Gambar 3. Skema target LEU

Penyiapan Target

Target foil LEU yang digunakan di dalam kegiatan pengembangan proses produksi ^{99}Mo didisain dan difabrikasi di ANL. Disain target ditunjukkan pada Gambar 3, dimana foil uranium ditempatkan diantara dua tabung silinder dan kedua ujung target ditutup penyumbat (plug) dengan cara pengelasan. Tabung silinder luar (outer tube) dibuat dari logam zirkonium sedangkan tabung silinder dalam (inner tube) dari baja 303 SS atau aluminium. Bagian dalam tabung setelah dihampakan kemudian diisi gas helium. Foil uranium yang digunakan mempunyai kandungan besi sekitar 450 ppm dan aluminium sekitar 1000 ppm sehingga setelah perlakuan panas diperoleh struktur butiran (grain) yang acak dan halus. Selanjutnya foil uranium difabrikasi dalam bentuk sandwich dimana kedua permukaan foil uranium dilapisi dengan logam lain yang berfungsi sebagai penyangga (barrier). Logam nikel, seng, dan aluminium telah dipilih sebagai penyangga yang dilapiskan dengan cara canai (rolling). Cara elektroplating dilakukan pula untuk melapiskan nikel dan seng [9,19]. Sebelum plating dilakukan, lemak pada permukaan foil logam LEU dibersihkan (degreasing) dengan mencuci foil dengan trikloroetilen di dalam *ultrasonic cleaner* selama tiga menit, kemudian foil dibilas berturut-turut dengan air dan alkohol untuk menghilangkan senyawa organik yang menempel. Foil selanjutnya dicelupkan ke dalam larutan HNO_3 8M untuk menghilangkan lapisan oksida, kemudian proses *etching* dilakukan dengan merendam foil di dalam larutan FeCl_3 5,33M pada temperatur 40°C . Setelah proses *etching* selesai, foil dibilas dengan air di dalam *ultrasonic cleaner* dan selanjutnya dicelupkan ke dalam larutan HNO_3 8M selama 15 detik untuk mengaktifkan permukaan foil sebelum plating dilakukan. Kedua jenis target, baik dari hasil proses canai maupun elektroplating, diiradisi selama 120 jam di reaktor RSG-GAS dengan daya sekitar 15 MW.

Setelah iradiasi, target dikirim ke Instalasi Radiometalurgi, P2TBDU, kemudian kedua ujung target dipotong dan foil uranium dikeluarkan. Sebagian foil dikirim ke P2RR untuk proses produksi ^{99}Mo , sedangkan sisanya dan beberapa target lain digunakan untuk pengujian metalografi lebih lanjut di Instalasi Radiometalurgi.

Pelarutan Target

Cuplikan foil logam LEU untuk proses produksi ^{99}Mo dimasukkan ke dalam *dissolver* (Gambar 1) yang ditempatkan di dalam hot-cell P2RR, kemudian *dissolver* divakumkan untuk menguji bila ada kebocoran. Ke dalam *dissolver* selanjutnya dimasukkan 40 mL asam nitrat melalui suatu septum. Konsentrasi asam nitrat yang digunakan ditentukan berdasarkan jumlah massa uranium dan logam penyangga, stokiometri reaksi pelarutan, dan persyaratan untuk memperoleh konsentrasi ion hidrogen $\sim 1,5$ M setelah pengenceran. *Dissolver* kemudian ditempatkan di rig yang berputar sambil dipanaskan. Pemanasan dilakukan selama < 10 menit untuk mendapatkan pelarutan yang sempurna sebagaimana ditunjukkan dengan terjadinya reaksi eksotermis melalui kenaikan tekanan di dalam *dissolver* kemudian diikuti dengan penurunan tekanan. Setelah pelarutan, gas NO dan gas-gas produk fisi yang berada di dalam *dissolver* dikeluarkan dengan cara menghubungkan *dissolver* dengan cold-finger tembaga yang sebelumnya telah divakumkan dan ditempatkan di dalam termos berisi nitrogen cair. Selanjutnya larutan yang berada di dalam *dissolver* dipindahkan dan disatukan dengan larutan hasil bilasan *dissolver*.

Pemisahan dan Pemurnian ^{99}Mo

Terhadap larutan uranium yang berasal dari *dissolver* ditambahkan 4.0 mg NaI sebagai pengemban dan 0.5 mL larutan perak nitrat 10%, kemudian endapan perak iodida yang terbentuk disaring dan dicuci dengan 11 mL larutan HNO_3 4M. Filtrat dan larutan hasil cucian ditampung, kemudian ditambahkan berturut-turut larutan KMnO_4 2.5%, larutan pengemban molibdenum, rhodium dan rutenium. Terhadap campuran larutan selanjutnya ditambahkan α -benzoin oksim untuk mengendapkan molibdenum sebagai kompleks Mo- α -benzoin oksim (Mo-ABO). Endapan disaring, dicuci, kemudian dilarutkan kembali dengan larutan NaOH 0,4M. Dua tahap pemurnian dilakukan dengan melewati larutan molibdat ke dalam kolom kombinasi karbon aktif yang dilapisi perak (AgC) dengan hydrous zirconium oxide (HZO), dan kemudian ke dalam kolom kombinasi HZO/AgC/karbon aktif (AC).

Pengukuran Tingkat Dekontaminasi ^{99}Mo

Kandungan ^{99}Mo serta tingkat dekontaminasinya terhadap radionuklida lain dalam setiap tahap proses dipelajari dengan melakukan pencuplikan pada setiap tahap tertentu dari seluruh rangkaian kegiatan proses (lihat Gambar 2). Semua cuplikan, kecuali cuplikan S_{thio} dan S_{iod} , diukur langsung dengan spektrometer gamma yang dilengkapi detektor HPGe (High Purity Germanium) Ortec Model CNVDS30-15165, catu daya ORTEC Model 495, amplifier TENNELEC Model TC 244, catu bias ORTEC Model 459, dan Genie card serta software Genie-2000 dari CANBERRA. Cuplikan S_{thio} dan S_{iod} sebelum diukur dengan spektrometer gamma, masing-masing merupakan cuplikan S_5 yang telah mengalami ekstraksi dengan pelarut etil asetat untuk mendapatkan fasa air yang mengandung radionuklida-radionuklida pengotor yang bebas dari ^{99}Mo dan ekstraksi dengan pelarut kloroform untuk mendapatkan fasa organik yang mengandung hanya radionuklida iodium.

Pengukuran cemaran aktivitas α

Pengukuran tingkat radioaktivitas α yang sangat rendah sebagai pengotor produk ^{99}Mo melalui teknik elektrodeposisi sedang dikembangkan dengan menggunakan analisis tinggi pulsa α yang dilengkapi dengan detektor silikon yang diimplantasi ion (ion implanted silicon). Pada prinsipnya teknik elektrodeposisi dilaksanakan dengan menambahkan larutan produk ^{99}Mo ke dalam sel elektrodeposisi yang telah berisi larutan elektrolit amonium bioksalat dan amonium klorida. Penelitian pendahuluan dilakukan dengan mempelajari yiel deposisi standar uranium dan plutonium yang didepositkan pada permukaan plasket baja tahan karat (diameter 2.5 cm) dengan rapat arus $\sim 0.15 \text{ A/cm}^2$. Setelah elektrodeposisi, plasket dicuci dan dikeringkan kemudian dicacah dengan spektrometer α . Berbagai kondisi kerja optimum ditentukan, seperti fungsi yiel uranium dan plutonium terhadap waktu elektrodeposisi, dan jarak antara kedua elektroda. Disamping itu dipelajari pula pengaruh massa molibdenum dan aktivitas β baik terhadap yiel maupun spektra plutonium dan uranium.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Disain dan Fabrikasi Target

Selama pengembangan disain target foil logam LEU, ada tiga fenomena yang muncul dan penting untuk dijadikan landasan dalam fabrikasi target. Pertama, dari eksperimen sebelumnya dengan menggunakan foil logam LEU tanpa logam penyangga diketahui bahwa fragment fisi selama iradiasi mengalami recoil (pelanting) sehingga foil uranium terikat, baik pada dinding tabung silinder luar maupun pada dinding tabung silinder dalam. Keadaan ini menyulitkan untuk mendorong tabung silinder yang satu terhadap yang lainnya, sehingga tidak memungkinkan untuk mengeluarkan foil logam LEU yang telah diiradiasi untuk keperluan proses lebih lanjut. Karena itu permukaan foil logam LEU perlu dilapisi penyangga fragmen fisi untuk mencegah terbentuknya ikatan uranium dengan dinding tabung. Dengan memperhitungkan besarnya *stopping power* logam dan ketebalan logam penyangga dua kali jarak recoil, maka bila seng digunakan sebagai penyangga fragmen fisi, ketebalannya harus $>7 \mu\text{m}$, sedangkan untuk nikel dan aluminium harus $>14 \mu\text{m}$. Nikel dan seng dapat dilarutkan dengan asam nitrat; seng dan aluminium mudah larut dengan natrium hidroksida.

Kedua, pertumbuhan butiran yang anisotropik di dalam foil uranium selama iradiasi dapat menimbulkan pengelupasan penyangga fragmen fisi dan selanjutnya akan mengakibatkan uranium terikat pada dinding tabung sehingga menyulitkan untuk mengeluarkan foil uranium. Pengelupasan dapat dicegah dengan membuat material foil uranium yang mempunyai struktur butiran yang acak dan halus dengan cara β -*quenching*, yaitu dengan memanaskan material uranium yang mengandung 450 ppm besi dan 1000 ppm aluminium pada daerah β ($T > 668 \text{ }^\circ\text{C}$) kemudian dengan cepat didinginkan.

Ketiga, kemungkinan terjadinya reaksi foil uranium dengan penyangga fragmen fisi akibat panas yang timbul dari peluruhan target yang telah diiradiasi saat membawa target dari reaktor ke Instalasi Radiometalurgi. Perhitungan kasar yang didasarkan terhadap panas yang lepas akibat peluruhan produk fisi menunjukkan bahwa temperatur target yang telah diiradiasi selama pemindahan tersebut dapat mencapai $375 \text{ }^\circ\text{C}$. Dalam penelitian terpisah telah dibuktikan bahwa nikel dan aluminium tidak bereaksi dengan uranium pada temperatur sampai $450 \text{ }^\circ\text{C}$, sedangkan reaksi seng dengan uranium dibawah temperatur $375 \text{ }^\circ\text{C}$ terjadi sangat kecil sekali. Meskipun demikian pada temperatur $400 \text{ }^\circ\text{C}$ selama 18 jam, gejala reaksi yang jelas antara seng dengan uranium mulai tampak.

Karakteristik target foil logam LEU dengan berbagai jenis logam penyangga setelah diiradiasi di reaktor RSG-GAS ditunjukkan di Tabel 2. Semua tabung silinder dalam dapat dikeluarkan, kecuali tabung silinder dalam yang dibuat dari aluminium.

Hal yang terakhir ini diyakini sebagai akibat kombinasi antara temperatur tinggi dari panas peluruhan dengan koefisien ekspansi panas yang besar dari aluminium yang menyebabkan terjadinya himpitan mekanik yang ketat.

Dari tujuh target yang diiradiasi hanya lima target yang dapat mengeluarkan foil logam LEU dengan mudah dan dua foil lainnya tetap menempel pada dinding tabung silinder luar. Pengamatan sebelumnya menunjukkan bahwa logam penyangga fragmen fisi tidak akan terikat pada tabung zirkonium, karena itu menempelnya foil tersebut merupakan lengket mekanik. Hal ini masih dalam penelitian lebih lanjut di Instalasi Radiometalurgi. Dari hasil iradiasi, foil uranium dengan penyangga nikel mudah ditangani, sedangkan foil uranium dengan penyangga fisi seng memperlihatkan wujud yang rapuh, terutama penyangga seng hasil elektroplating.

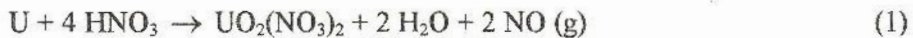
Tabel 2. Karakteristik target foil logam LEU yang diiradiasi di reaktor RSG-GAS pada bulan Agustus 1998

No. Target	Tabung bagian dalam	Penyangga Bahan	Ketebalan, μm	Tabung bagian dalam dapat dipisahkan	Foil dapat diambil
1	304 SS	Foil Zn	15	Ya	Ya
2	304 SS	Foil Ni	15	Ya	Ya
3	304 SS	Plating Zn	17	Ya	Ya
4	304 SS	Plating Ni	11	Ya	Ya
5	304 SS	Foil Al	23	Ya	Tidak
6	Al	Foil Al	23	Tidak	-
7	Zr	Foil Ni	15	Ya	Ya
8	Zr	Foil Zn	15	Ya	Tidak

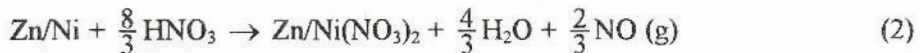
Pelarutan Foil Logam LEU

Pelarutan foil logam LEU yang telah diiradiasi dilaksanakan di dalam *dissolver* yang disainnya telah mengalami perbaikan secara bertahap. Tiga batasan yang dikembangkan sebagai kriteria disain, yaitu (1) pelarutan foil logam LEU harus cepat dengan pertimbangan pendeknya waktu paruh ^{99}Mo ($t_{1/2} = 66$ jam), karena itu pelarutan yang sempurna harus tercapai kurang dari 1 jam; (2) pelarutan dilakukan di dalam *dissolver* tertutup yang mampu menahan tekanan yang dihasilkan oleh gas hasil reaksi pelarutan; (3) *dissolver* harus mirip dengan *dissolver* untuk HEU agar semua peralatan pendukung yang digunakan untuk *dissolver* HEU masih bisa dimanfaatkan.

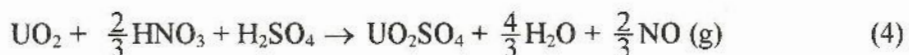
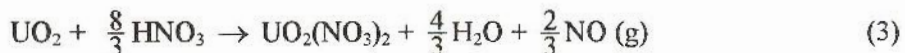
Pertimbangan utama dipilihnya asam nitrat saja sebagai pelarut, bukan campuran asam nitrat dan asam sulfat sebagaimana digunakan untuk target HEU, adalah untuk memudahkan perlakuan dan pembuangan (disposal) limbah. Keberadaan sulfat di dalam larutan limbah asam dari proses ^{99}Mo cukup menyulitkan pelaksanaan proses pemungutan ulang (recovery) uranium, pengkisan volum limbah, dan pembuangan limbah. Karena itu peniadaan asam sulfat sebagai larutan *dissolver* diharapkan akan menekan biaya total proses (total processing cost). Pelarutan foil logam LEU dengan asam nitrat berlangsung berdasarkan reaksi berikut:



Reaksi ini sangat mirip dengan reaksi antara uranium dengan campuran asam nitrat dan asam sulfat, kecuali ion uranil hanya membentuk garam nitrat, bukan garam sulfat. Karena logam penyangga terikat pada permukaan foil, maka pada saat pelarutan akan terjadi pula reaksi berikut:



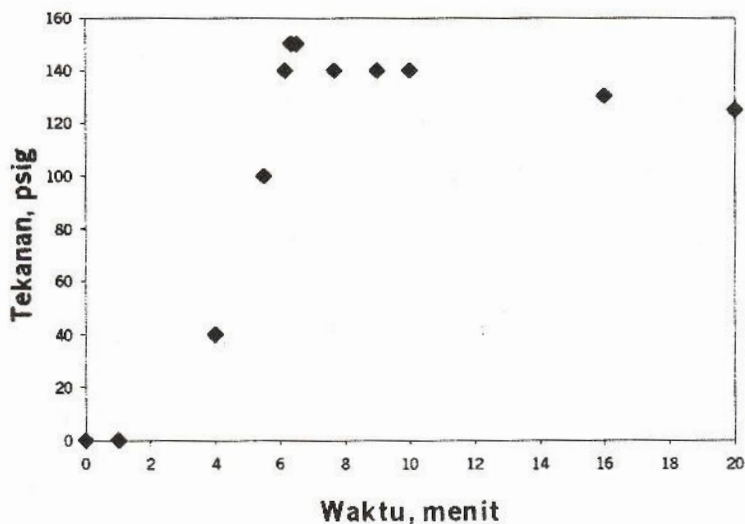
Besarnya tekanan di dalam *dissolver* sangat ditentukan oleh jumlah mol gas NO yang terbentuk selama pelarutan. Dari persamaan reaksi (1) diketahui bahwa tekanan gas NO dalam *dissolver* LEU akan tiga kali lebih besar dari pada tekanan di dalam *dissolver* HEU sesuai dengan persamaan reaksi (3) atau (4).



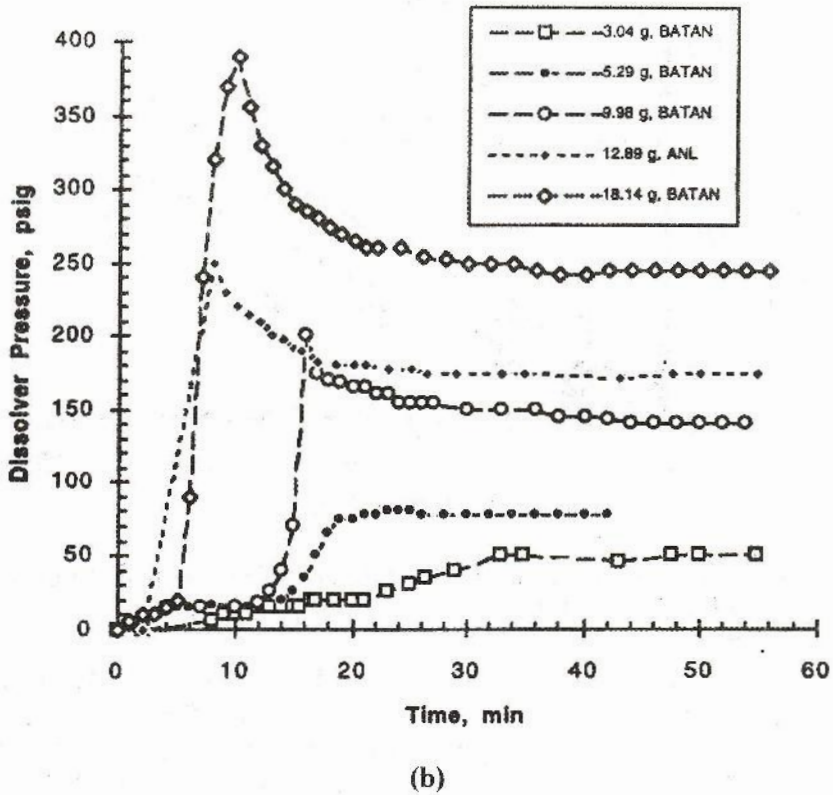
Kontribusi tekanan yang berasal dari pelarutan logam penyangga (persamaan (2)) dapat dihitung dengan menggunakan kaidah gas ideal. Untuk 18 g foil logam LEU yang memiliki dimensi logam penyangga 76 x 102 x 0,010 mm di kedua sisi permukaannya diperoleh kenaikan tekanan sekitar 25 psig, kira-kira 10% dari tekanan total *dissolver*.

Kenaikan ini masih dalam batasan disain *dissolver* yang terbuat dari baja tahan karat, sehingga logam penyangga, Ni atau Zn, dapat digunakan tanpa akan mempengaruhi kinerja *dissolver* untuk pelarutan foil LEU.

Profil besarnya tekanan selama pelarutan foil logam LEU di dalam *dissolver* ditunjukkan pada Gambar 4. Antara 10 sampai 15 menit pertama pelarutan, tekanan *dissolver* naik cukup tajam, selanjutnya turun dan hampir tidak berubah sampai 60 menit kemudian. Kenaikan yang tajam menunjukkan bahwa laju reaksi pelarutan cukup tinggi, terutama bila foil logam LEU diatas 3 gram dan konsentrasi asam nitrat ~ 8M. Sedangkan tekanan *dissolver* yang tinggi diatas rata-rata menunjukkan adanya *self-heating* akibat reaksi pelarutan yang bersifat eksotermis. Dari data pelarutan foil LEU yang dilakukan di ANL dan BATAN, maka suatu model tekanan *dissolver* (lihat Gambar 5) untuk memperkirakan besarnya tekanan disusun berdasarkan asumsi-asumsi berikut [20]: (a) pada kondisi awal, *dissolver* mengandung udara dengan tekanan 14.7 psia (760 mm Hg), (b) *dissolver* mempunyai tekanan air/uap yang sesuai dengan temperatur *dissolver*, (c) *dissolver* mengandung 50 ml larutan, dan (d) *dissolver* mengandung sejumlah gas NO yang dilepaskan dari persamaan reaksi (1). Model memperlihatkan kesesuaian bila pelarutan foil logam LEU dilakukan pada temperatur 103 °C, tetapi pada temperatur kamar, tekanan *dissolver* berdasarkan model berada diatas tekanan hasil pengamatan. Penyimpangan ini dapat dijelaskan dari kelarutan gas NO di dalam larutan *dissolver* yang akan bertambah bila temperatur turun.



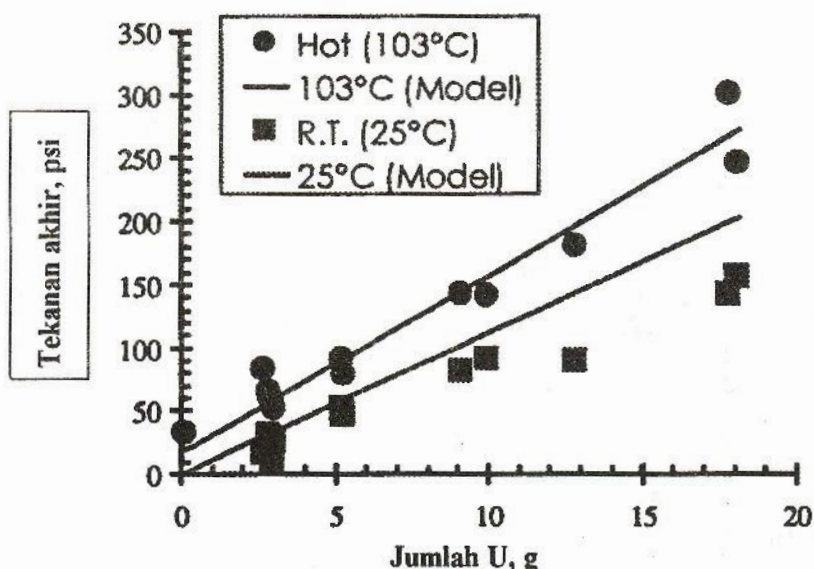
(a)



Gambar 4. Besarnya tekanan dissolver selama pelarutan.
 (a) untuk foil logam LEU dengan logam penyangga nikel;
 (b) dengan variasi massa foil logam LEU

Pemisahan dan Pemurnian ⁹⁹Mo

Sebagai salah satu pengotor (impurity) produk ⁹⁹Mo, radionuklida iod yang terbentuk selama proses fisi uranium umumnya berada dalam bentuk iodium, I₂, iodida, I⁻, iodat, IO₃⁻, dan periodat, IO₄⁻. Laju pertukaran isotop (isotopic exchange) antara I⁻ dengan I₂ cukup cepat, sedangkan antara I⁻ dengan iodat, periodat dan spesi iodium lainnya adalah lambat [21]. Karena itu begitu iod berada dalam bentuk iodat atau periodat, sedikit sekali pengaruh penambahan pengemban iodida atau iodium bisa merubah tingkat oksidasi iodat maupun periodat.



Gambar 5. Efek massa uranium terhadap tekanan *dissolver* pada temperatur kamar (R.T.) dan 103 °C

Molekul I_2 di dalam larutan *dissolver* akan terkumpul pada perangkap kawat tembaga (copper trap) ketika gas NO dan gas-gas produk fisi lainnya dipindahkan dari *dissolver* ke dalam *cold finger* yang didinginkan dengan nitrogen cair. Gas I_2 yang lolos dari perangkap kawat tembaga akan masuk bersama-sama dengan gas NO dan gas produk fisi lainnya ke dalam *cold finger*. Molekul I_2 yang masih tertinggal di dalam larutan produk ^{99}Mo selanjutnya dihilangkan melalui penyerapan pada kolom karbon aktif (AC). Ion I dapat dipisahkan dengan cara pengendapan sebagai AgI dan serapan pada karbon yang dilapisi perak (AgC). Iodat dan periodat tidak dapat diserap baik oleh AC, maupun AgC. Karakteristik serapan I_2 , I, IO_3^- , dan IO_4^- pada AC dan AgC telah dipelajari dengan menggunakan perunut ^{125}I dan dapat dilihat pada Tabel 3 [22].

Salah satu modifikasi terhadap prosedur Cintichem adalah dilakukannya pengendapan pengotor iodida sebagai AgI dengan penambahan perak nitrat, $AgNO_3$, sebelum tahap pengendapan Mo-ABO dilaksanakan. Pengendapan AgI dianggap kuantitatif karena hasil kali kelarutan AgI cukup kecil, 8.3×10^{-17} , sedangkan perak iodat, $AgIO_3$, mempunyai hasil kali kelarutan yang lebih besar dari AgI, $\sim 3.1 \times 10^{-8}$, dan diperkirakan perak periodat, $AgIO_4$ mempunyai hasil kali kelarutan yang lebih besar dari $AgIO_3$. Dari penelitian terpisah telah dibuktikan bahwa mekanisme pemisahan iodat dan periodat terjadi melalui proses kopresipitasi pada waktu pengendapan AgI.

Penurunan konsentrasi iodat dan periodat dari larutan hanya mencapai faktor sekitar 20. Karena itu alasan pengendapan iodida dilakukan sebelum tahap pengendapan Mo-ABO adalah untuk menghindari terjadinya iodat dan periodat lebih banyak lagi pada saat proses oksidasi Mo menjadi molibdat dengan penambahan larutan KMnO_4 .

Tabel 3. Koefisien distribusi untuk serapan perunut ^{125}I , sebagai iodida, iodium, iodat dan periodat dalam larutan NaOH 0,2M, pada karbon aktif (AC) dan karbon aktif yang dilapisi perak (AgC) [22].

Spesi	Koefisien distribusi*, mL/g	
	AC	AgC
I^-	4	1400
I_2	5	3700
IO_3^-	<1	<1
IO_4^-	<1	<1

* Semua pengukuran dilakukan pada temperatur kamar dengan 2 mL larutan yang mengandung 0,2 g padatan.

Produk ^{99}Mo dipisahkan dari larutan uranium dan radionuklida pengotor dengan cara pengendapan α -benzoin oksim. Pengendapan molibdenum dengan α -benzoin oksim di dalam suasana asam sulfat 1M merupakan metoda standard yang sangat selektif dan kuantitatif [23,24]. Meskipun demikian, pengendapan Mo-ABO dalam suasana asam nitrat yang dilakukan di dalam proses pemisahan ^{99}Mo masih memperlihatkan pengendapan yang kuantitatif. Uji tersendiri pengaruh berbagai konsentrasi nitrat terhadap efisiensi perolehan kembali (recovery) molibdenum dalam proses pengendapan Mo-ABO menunjukkan efisiensi yang tinggi (lihat Tabel 4). Pencucian dan pelarutan endapan yang lebih cepat dari pada prosedur Cintichem dalam upaya menghindari pecahnya Mo-ABO akibat efek radiolisis memperlihatkan yiel dan dekontaminasi yang masih cukup tinggi. Hal ini kemungkinan disebabkan volum umpan (feed) yang lebih rendah, berarti pula konsentrasi molibdenum lebih tinggi akibat penggunaan volum larutan *dissolver* yang lebih rendah, sehingga memudahkan proses pemisahan.

Meskipun diperkirakan bahwa semua radionuklida pengotor telah terpisahkan pada saat penyaringan dan pencucian endapan Mo-ABO, larutan molibdat dari hasil pelarutan endapan masih harus melalui dua tahap pemurnian lagi dengan melewatkannya ke dalam kolom kombinasi AgC/HZO dan kolom kombinasi HZO/AgC/AC.

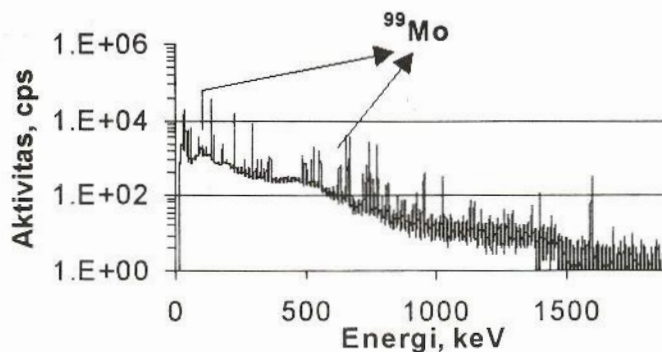
Sebagaimana disinggung diatas, I dan I₂ masing-masing akan terserap pada AgC dan AC. Karbon aktif, AC, berperan pula menyerap zat warna pink kecoklatan yang berasal dari senyawa organik benzoin oksim yang pecah akibat pelarutan kompleks Mo-ABO dengan larutan NaOH untuk menjadi larutan molibdat. ¹⁰³Ru terserap cukup baik pada AgC [26], sedangkan radionuklida lainnya akan terserap pada HZO [27].

Tabel 4. Efisiensi rekoveri molibdenum sebagai fungsi keasaman larutan [25]

[HNO ₃], M	% Rekoveri Mo	[H ₂ SO ₄], M	% Rekoveri Mo
0,1	90	0,1	100
0,5	100	0,5	100
1,0	100	1,0	98
2,0	100	2,0	95
4,0	100	4,0	93
6,0	88	6,0	98
8,0	-	8,0	8,7

Pengukuran Tingkat Dekontaminasi ⁹⁹Mo

Hasil pengukuran spektrometer- γ terhadap cuplikan larutan *dissolver* (S₁) ditunjukkan pada Gambar 6, dan besarnya aktivitas tiap radionuklidanya ditunjukkan pada Tabel 5.



Gambar 6. Spektrum γ cuplikan S₁

Tabel 5. Aktivitas ^{99}Mo dan radionuklida pengotor pemancar γ dalam sampel S_1 dari target foil logam LEU

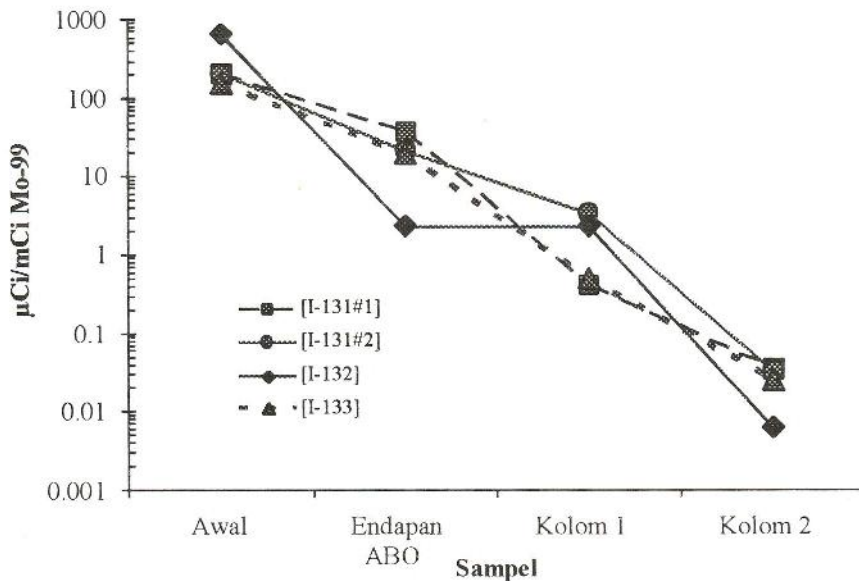
Nuklida	Waktu paruh (j)	Energi (keV)	Konsentrasi keradio-Aktifan ($\mu\text{Ci/ml}$)	Tingkat Pengotor ($\mu\text{Ci/mCi } ^{99}\text{Mo}$)
Nd-147	263.5	91.1	2.20E+05 \pm 1.28E+05	1.93E+02 \pm 1.96E+02
Ce-141	780.0	145.4	2.54E+05 \pm 1.13E+05	2.23E+02 \pm 1.96E+02
Mo-99	65.9	181.1	1.14E+06 \pm 5.64E+05	-
Te-132	78.2	227.9	9.82E+05 \pm 4.70E+05	8.61E+02 \pm 7.85E+02
Np-239	56.5	277.6	1.34E+06 \pm 6.42E+05	1.18E+03 \pm 1.07E+03
Ce-143	33.1	293.3	1.11E+06 \pm 5.24E+05	9.75E+02 \pm 8.82E+02
Rh-105	35.4	318.9	8.34E+04 \pm 4.14E+04	7.31E+01 \pm 6.80E+01
Pm-151	28.4	340.1	1.23E+04 \pm 6.32E+03	1.08E+01 \pm 1.02E+01
Zr-97	16.8	355.4	5.39E+05 \pm 2.77E+05	4.73E+02 \pm 4.48E+02
I-131	193.0	364.5	1.71E+05 \pm 7.95E+04	1.50E+02 \pm 1.35E+02
Ru-103	942.5	497.1	8.68E+04 \pm 3.88E+04	7.61E+01 \pm 6.70E+01
I-132	78.2	522.7	6.92E+05 \pm 3.18E+05	6.07E+02 \pm 5.42E+02
I-133	20.8	529.9	5.26E+05 \pm 2.36E+05	4.61E+02 \pm 4.06E+02
Ba-140	306.0	537.3	6.77E+05 \pm 3.03E+05	5.94E+02 \pm 5.23E+02
Sr-91	9.5	555.6	4.37E+05 \pm 2.10E+05	3.83E+02 \pm 3.50E+02
I-131	193.0	637.0	1.71E+05 \pm 7.95E+04	1.50E+02 \pm 1.35E+02
Nb-97	1.2	657.9	5.39E+05 \pm 2.31E+05	4.73E+02 \pm 4.07E+02
Sb-127	92.2	685.7	1.89E+04 \pm 1.01E+04	1.66E+01 \pm 1.61E+01
Mo-99	65.9	739.5	7.29E+05 \pm 3.50E+05	6.40E+02 \pm 5.84E+02
Zr-95	1536.5	756.7	8.53E+04 \pm 3.80E+04	7.49E+01 \pm 6.57E+01
Nb-95	839.3	765.8	#N/A	#N/A
I-135	6.6	1260.4	<1.38E+05	<1.21E+02
Sr-92	2.7	1383.9	<7.25E+05	<6.36E+02
La-140	40.3	1596.2	#N/A	#N/A

Meskipun detektor HPGe mempunyai resolusi energi cukup tinggi, daya pisahnya masih tidak mampu mengatasi gangguan puncak energi radionuklida yang satu terhadap yang lainnya. Hal ini akan menyebabkan penentuan aktivitas radionuklida pengotor menjadi tidak akurat. Tabel 6 memperlihatkan gangguan yang potensial dari ^{99}Mo dan ^{99m}Tc terhadap penentuan aktivitas radionuklida pengotor. Spektrum γ dari ^{99}Mo dan ^{99m}Tc masing-masing mengandung 42 dan 5 puncak energi, serta 4 *summation peak* [28].

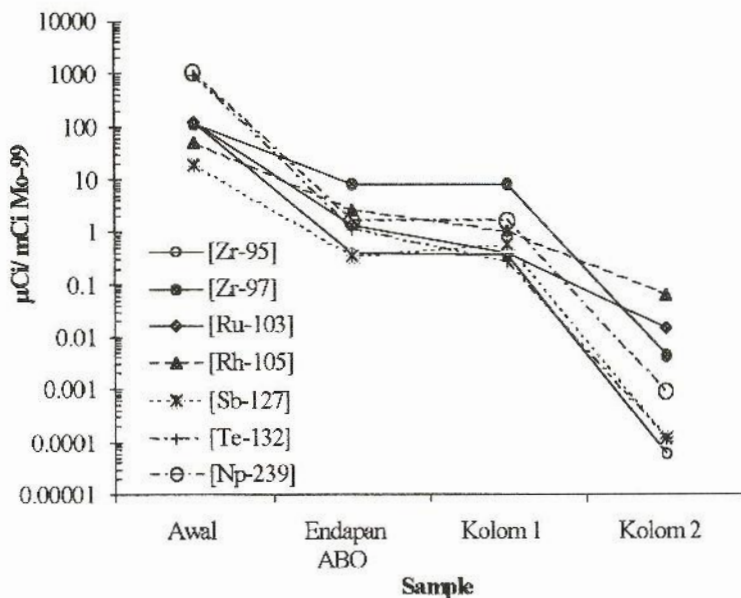
Tabel 6. Tingkat gangguan puncak ^{99}Mo dan ^{99m}Tc terhadap radionuklida pengotor yang diukur dengan pencacah gamma

Nuklida	^{99}Mo				^{99m}Tc							
	Energi Puncak, keV	Intensitas, %	Energi Puncak, keV	Intensitas, %	□ Energy, keV	Angka-Banding Intensitas	Potensi Gangguan	Energi Puncak, keV	Intensitas, %	□ Energy, keV	Angka-Banding Intensitas	Potensi Gangguan
Nd-147	91.1	2.79E+01	-	-	-	-	tidak	89.6	2.60E-03	1.5	1.1E-04	ya
Ce-141	145.4	4.84E+01	140.51	4.60E+00	4.9	1.1E+01	ya	140.51	8.91E+01	4.9	5.4E-01	tinggi
	145.4	4.84E+01	-	-	-	-	tidak	142.63	1.90E-02	2.8	2.5E+03	ya
Te-132	227.9	8.82E+01	-	-	-	-	tidak	232.8	8.80E-06	4.9	1.0E+07	tidak
Rh-105	318.9	1.92E+01	319.8	6.30E-03	0.9	3.0E+03	ekstrem	322.4	9.90E-05	3.5	1.9E+05	tidak
	318.9	1.92E+01	321	6.80E-03	2.1	2.8E+03	tinggi	-	-	-	-	tidak
Zr-97	355.4	2.38E+00	352.9	2.50E-03	2.5	9.5E+02	tinggi	-	-	-	-	tidak
I-131	364.5	8.12E+01	366.5	1.16E+00	2.0	7.0E+01	ekstrem	-	-	-	-	tidak
I-133	529.9	8.63E+01	528.79	5.42E-02	1.1	1.6E+03	ya	-	-	-	-	tidak
Ba-140	537.3	2.44E-01	537.79	4.40E-02	0.5	5.5E+00	ekstrem	-	-	-	-	tidak
Zr-95	756.7	5.49E+01	761.77	1.10E-03	5.1	5.0E+04	sangat rendah	-	-	-	-	tidak
Nb-95	765.8	1.00E+02	761.77	1.10E-03	4.0	9.1E+04	rendah	-	-	-	-	tidak

Apabila tingkat aktivitas ^{99}Mo dan/atau $^{99\text{m}}\text{Tc}$ sangat tinggi, maka *summation peak* pada 281 keV dapat mengganggu puncak energi 277,6 keV dari ^{239}Np . Selanjutnya *summation peak* ^{99}Mo pada 321,6 keV dapat mengganggu puncak energi 318,9 keV dari ^{105}Rh . Bahkan cuplikan S_{thio} yang 99% molibdenumnya telah terekstraksi ke fasa organik masih belum memberikan hasil pengukuran yang cukup akurat untuk menentukan ^{140}Ba dan ^{105}Rh yang berada di fasa air. Kadang-kadang cuplikan S_{iod} yang diharapkan hanya mengandung radioiod masih sedikit terkontaminasi aktivitas ^{99}Mo dan/atau $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Meskipun demikian, hasil pengukuran masih sangat bermanfaat untuk memantau tingkat dekontaminasi radionuklida pengotor terhadap produk ^{99}Mo pada setiap tahap proses. Gambar 7 memperlihatkan tingkat dekontaminasi radionuklida iod terhadap produk ^{99}Mo , sedangkan Gambar 8 menunjukkan tingkat dekontaminasi yang berasal dari radionuklida lain. Baik aktivitas pengotor radionuklida ^{131}I maupun radionuklida lain pada tahap akhir proses masing-masing memenuhi batasan spesifikasi yang ditetapkan, yaitu $<0,5 \mu\text{Ci/mCi } ^{99}\text{Mo}$ untuk ^{131}I dan $<0,1 \mu\text{Ci/mCi } ^{99}\text{Mo}$ untuk radionuklida lain.



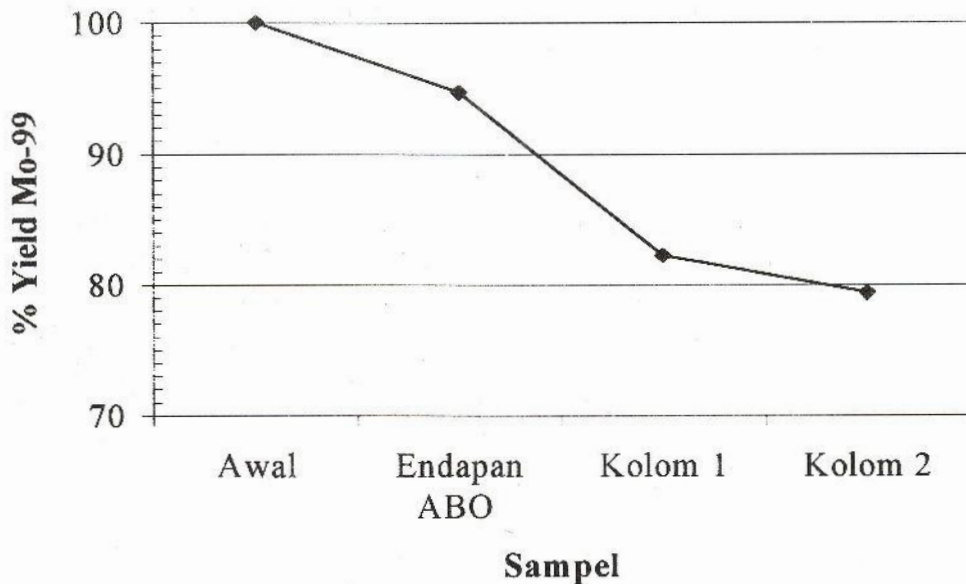
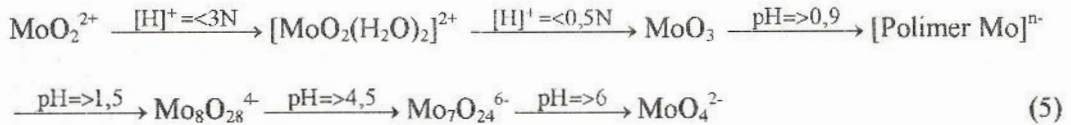
Gambar 7. Tingkat dekontaminasi iod di dalam produk ^{99}Mo



Gambar 8. Tingkat dekontaminasi radionuklida lain terhadap ⁹⁹Mo

Spesifikasi radionuklida pengotor dalam produk ⁹⁹Mo sangat ditentukan oleh hasil pengukuran yang akurat terhadap cuplikan S₅. Prosedur Cintichem menggunakan cara ekstraksi (S_{thio} dan S_{iod}) untuk menghilangkan gangguan ⁹⁹Mo dalam pengukuran radionuklida pengotor tersebut. Meskipun demikian, hasil ekstraksi masih menunjukkan adanya ⁹⁹Mo, terutama apabila aktivitas ⁹⁹Mo di dalam S₅ cukup tinggi dan pengocokan selama ekstraksi terlalu kuat. Mutalib dkk. [29] secara terpisah sedang mengembangkan metoda elektroforesis kertas untuk mengatasi kesulitan akibat gangguan ⁹⁹Mo. Prinsip metoda ini adalah migrasi elektroforetik kation dan anion masing-masing ke arah anoda dan katoda dibawah pengaruh medan listrik. Efek serapan dari media kertas terhadap migrasi elektroforetik diatasi dengan meimpregnasi media dengan larutan garam. Setelah proses elektroforesis, media kertas dipotong sesuai dengan lokasi radionuklida yang diamati, kemudian masing-masing diukur dengan spektrometri-γ.

Berdasarkan perilaku molibdat dalam berbagai pH (lihat persamaan reaksi 5), maka penelitian pendahuluan menunjukkan molibdenum dalam pH rendah terpisah dengan baik dari radionuklida iodium. Metoda elektroforesis diharapkan selain mampu mengatasi gangguan ⁹⁹Mo terhadap pengukuran akurat radionuklida pengotor, juga metoda ini lebih sederhana dan lebih mudah pelaksanaannya (terutama untuk kegiatan rutin pengawasan kualitas (Q.C.) produk), lebih ekonomis karena tidak memerlukan banyak bahan kimia, serta dapat meminimalkan paparan radiasi yang diterima pelaksana bila dibandingkan dengan metoda ekstraksi.



Gambar 9. Yiel ⁹⁹Mo pada tiap tahap proses

Karena ⁹⁹Mo berada dalam aktivitas cukup tinggi, pengukurannya baik dengan Capintec maupun spektrometri-γ memberikan hasil cukup akurat.

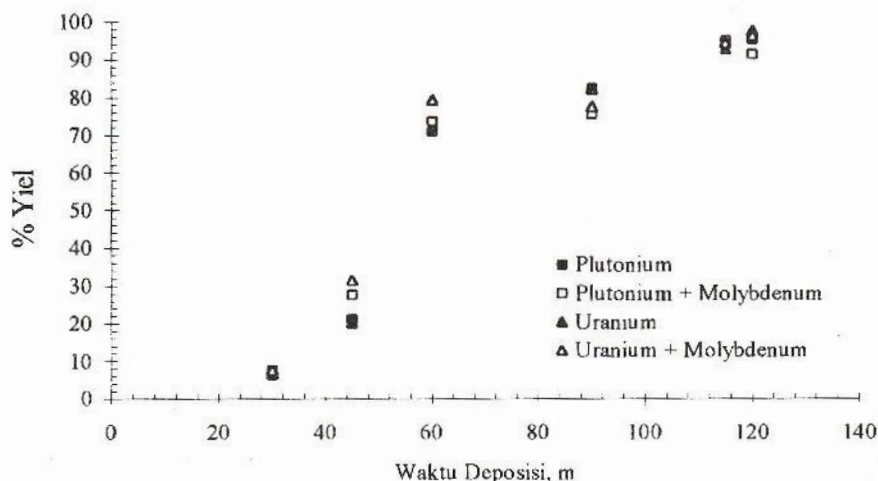
Gambar 9 memperlihatkan besarnya ^{99}Mo yang hilang selama proses berlangsung dan ^{99}Mo total yang hilang adalah sekitar 21%. Angka ini masih dalam kesalahan yang nyata (significant) yang disebabkan oleh adanya kesalahan dalam perhitungan yiel tiap tahap proses. Kesalahan terjadi akibat perkiraan volum yang dibuat atas dasar pengetahuan proses dan volum total yang ditambahkan pada setiap tahap proses. Kesalahan yang berasal dari volum larutan proses diperkirakan $\pm 5\%$. Sehingga dapat dikatakan bahwa yiel ^{99}Mo keseluruhan dari proses foil logam LEU adalah $\sim 79\%$. Yiel ini lebih tinggi dari yiel ^{99}Mo proses HEU, $\sim 65\%$. Perbedaan yiel disebabkan terutama oleh perbedaan pada tahap awal pengendapan Mo-ABO, yaitu volum larutan *dissolver* foil LEU yang minimum serta konsentrasi molibdenum cukup tinggi akan mempercepat proses pengendapan dan penyaringan Mo-ABO, sehingga efek radiolisis terhadap endapan menjadi minimal. Disamping itu proses LEU memiliki pengawasan yang lebih baik terhadap konsentrasi asam setelah pelarutan. Konsentrasi asam nitrat yang dimasukkan ke dalam *dissolver* dibuat berdasarkan perhitungan yang cermat dengan memperhatikan bahwa konsentrasi asam nitrat setelah pelarutan harus 1,5 M. Konsentrasi ini merupakan kondisi yang kuantitatif untuk mengendapkan Mo-ABO.

Pengukuran cemaran aktivitas α

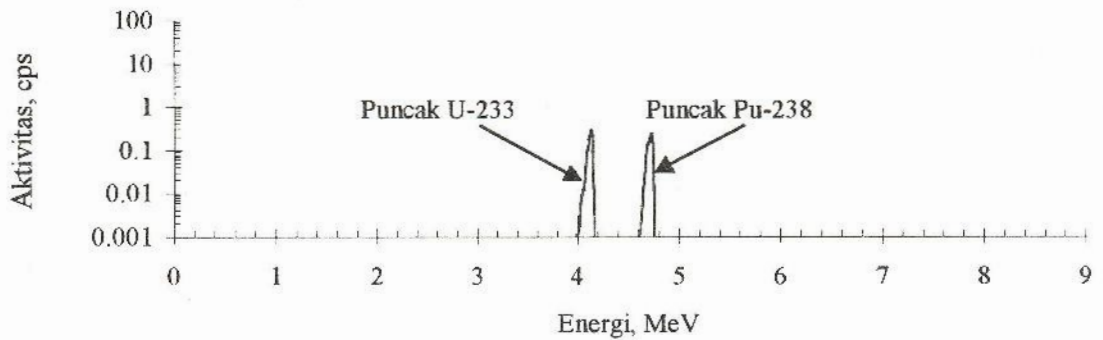
Kontribusi utama cemaran aktivitas α di dalam produk ^{99}Mo dari target LEU berasal dari ^{239}Pu . Karena target LEU mengandung lebih banyak ^{238}U , maka diperkirakan akan menghasilkan 30 kali lebih banyak ^{239}Pu dari pada target HEU untuk jumlah ^{99}Mo yang ekuivalen. Meskipun demikian, target HEU mengandung lebih banyak ^{234}U dari pada LEU, dan hal ini juga akan memberikan potensi peningkatan aktivitas α yang nyata di dalam produk ^{99}Mo . Karena itu aktivitas α total target LEU yang telah diiradiasi hanya $\sim 20\%$ lebih tinggi dari target HEU yang ekuivalen (lihat Tabel 1).

Besarnya cemaran aktivitas α yang terkandung di dalam produk ^{99}Mo hasil fisi merupakan persyaratan standard dan telah ditetapkan harus lebih kecil dari $10^{-7} \mu\text{Ci/mCi}$ ^{99}Mo secara internasional atau $10^{-8} \mu\text{Ci/mCi}$ ^{99}Mo menurut Nordion Inc. Disamping itu, meskipun aktivitas α total target LEU yang telah diiradiasi tidak berbeda nyata dengan aktivitas α total target HEU, kepedulian yang besar terhadap kandungan plutonium telah mendorong dikembangkannya teknik electrodeposisi yang memungkinkan pengukuran tingkat aktivitas α yang sangat rendah (very low level counting) terhadap larutan produk ^{99}Mo dengan menggunakan analisis tinggi pulsa α .

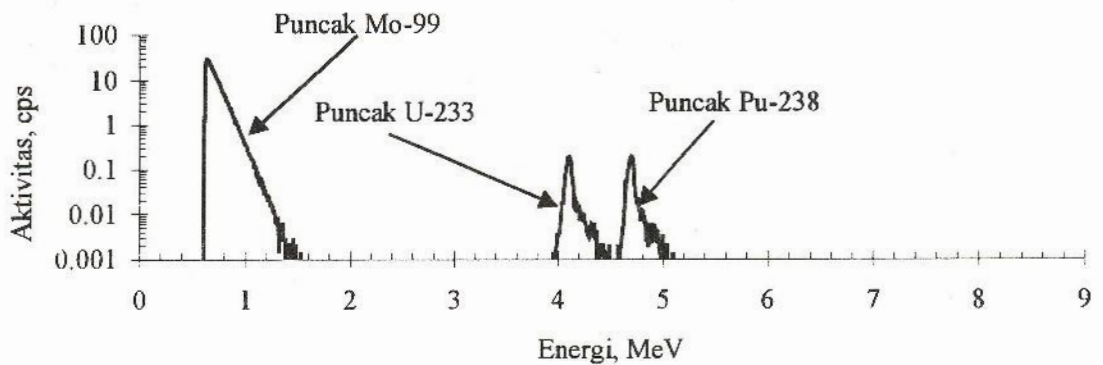
Gambar 10 memperlihatkan hasil penelitian pendahuluan yiel uranium dan plutonium sebagai fungsi waktu elektrodeposisi dengan menggunakan larutan elektrolit yang mengandung amonium bioksalat 0,08M dan amonium klorida 1M. Yiel uranium dan plutonium mencapai nilai lebih besar dari 80% untuk waktu elektrodeposisi lebih lama dari 90 menit. Penambahan molibdat stabil (dalam jumlah yang sama dengan jumlah molibdat pengemban yang ditambahkan dalam proses ^{99}Mo hasil fisi) serta ^{99}Mo tidak berpengaruh terhadap yiel plutonium maupun uranium. Gambar 11 memperlihatkan spektrum α cuplikan campuran plutonium dan uranium yang mengandung ^{99}Mo dan cuplikan yang tidak mengandung ^{99}Mo . Bentuk puncak α uranium dan plutonium dalam Gambar 11a berbeda dengan puncak α dalam Gambar 11b. Hal ini disebabkan adanya *coincidence summing* partikel α dan β di dalam detektor. Meskipun *coincidence summing* ini tidak akan mempengaruhi aktivitas α yang diukur, tetapi akan menyimpangkan bentuk puncak dan cenderung memperlebar puncak. Selanjutnya *coincidence summing* sejumlah partikel β dari ^{99}Mo yang berada didaerah energi rendah bisa menyebabkan kenaikan aktivitas latar belakang instrument di daerah sensitif α . Hal ini akan menyebabkan berkurangnya kepekaan analisis. Karena itu dalam penelitian lebih lanjut perlu dipelajari cara mengatasi *coincidence summing* yang berasal dari sejumlah partikel β ini. Secara umum dapat dikatakan bahwa metoda pengukuran tingkat aktivitas α yang sangat rendah ini akan memberikan prospek yang baik untuk menentukan cemaran α di dalam produk ^{99}Mo .



Gambar 10. % Yiel elektrodeposisi terhadap waktu deposisi



(a)



(b)

Gambar 11. Spektrum α ^{238}Pu dan ^{233}U (a) tanpa ^{99}Mo dan (b) mengandung ^{99}Mo

KESIMPULAN DAN SARAN

Hasil pengembangan proses produksi ^{99}Mo dengan menggunakan target foil logam LEU sebagai pengganti target HEU telah memberikan prospek yang baik untuk kegiatan produksi ^{99}Mo yang bersifat komersial dan rutin. Beberapa keunggulan proses produksi hasil pengembangan diantaranya adalah:

1. Dapat memberikan produk ^{99}Mo dengan tingkat radionuklida pengotor pemancar γ sesuai dengan batas persyaratan yang ditetapkan.
2. Dapat memberikan yiel ^{99}Mo lebih tinggi akibat berkurangnya waktu proses antara 1,5 sampai 2 jam serta efisiensi proses yang lebih tinggi.
3. Dapat menekan biaya pengolahan dan pembuangan limbah (waste-treatment) yang disebabkan volum cairan limbah yang sedikit dan peniadaan penggunaan asam sulfat.

Penyempurnaan pengembangan proses yang berkaitan dengan peningkatan yiel dan kualitas produk ^{99}Mo serta penyempurnaan pengukuran cemaran α akan ditindak lanjuti sebagai lanjutan dari kegiatan program pengembangan di masa mendatang. Pengembangan metoda kombinasi elektroforesis dan spektrometri- γ sebagai pengganti metoda ekstraksi untuk menentukan cemaran radionuklida pengotor pemancar γ yang dilakukan secara terpisah oleh peneliti P2RR direncanakan selesai di tahun mendatang dan diharapkan akan mendukung penyempurnaan program pengembangan proses produksi ^{99}Mo . Berkaitan dengan pengembangan metoda elektroforesis, peneliti P2RR secara terpisah sedang mengembangkan pula penggunaan kolom elektrokromatografi untuk proses pemisahan dan pemurnian ^{99}Mo sebagai metoda alternatif proses Cintichem dan diharapkan metoda tersebut lebih sederhana dan ekonomis dari pada metoda Cintichem [30].

Karena teknologi disain dan fabrikasi foil logam LEU dan teknologi proses produksi ^{99}Mo merupakan teknologi hulu dan hilir yang saling berkaitan, maka penguasaan kedua teknologi tersebut mutlak diperlukan oleh BATAN apabila BATAN merencanakan proses produksi ^{99}Mo dengan menggunakan foil logam LEU. Dapat dikatakan bahwa P2RR telah menguasai teknologi proses produksi ^{99}Mo dengan menggunakan foil logam LEU.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis menyampaikan penghargaan dan ucapan terima kasih setinggi-tingginya kepada seluruh sejawat dari kelompok Instalasi Radiometalurgi, P2TDBU dan kelompok Operasi Reaktor P2TRR atas kerja samanya yang baik dalam Tim Kerma BATAN-ANL.

DAFTAR PUSTAKA

1. Frost & Sullivan Inc., An Assesment of Nuclear Medicine Diagnostics and Therapeutics Markets in the United States in the Years 2001-2020, A Report for Battelle Pacific Northwest Laboratory, 1999
2. J. Green, Ph.D thesis, Wollongong University, Australia, 1994
3. A.A. Sameh, A.J. Ache, Production Techniques of Fission Molybdenum-99, *Radiochimica Acta* 41 (1987) 65-72
4. K.A. Burril, R.J. Harrison, Development of the ^{99}Mo Process at CRNL, Fission Molybdenum for Medical Use, roc. Of Technical Committee Mtg. Organized by the IAEA, Karlsruhe, October 13-16, 1987, IAEA-TECDOC-515 (1989) 35-46
5. H. Arino, H.H. Kramer, J.J. McGovern, A.K. Thornton, Production of High Purity Fission Product Molybdenum-99, U.S. Patent 3,799,883 (1974)
6. H.Arino, , F.J. Cosolito, K.D. George, A.K. Thornton, Preparation of a Primary Target for the Production of Fission Product in a Nuclear Reactor, U.S. Patent 3,940,318 (1976)
7. Z. Aliludin, A. Mutalib, A. Sukmana, K. Wisnukaton, A.H. Gunawan, G.F. Vandegrift, B. Srinivasan, J.L. Snelgrove, D. Wu, Processing of LEU Targets for ^{99}Mo Production-Demonstration of a Modified Cintichem Process, Proc. of the XVIIIth International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Paris, France, September 17-21, 1995, Paper No.3-4 (1996)
8. A. Mutalib, B. Purwadi, A.H. Gunawan, H. Lubis, Moeridun, Kadarisman, A. Sukmana, Sriyono, A. Suropto, H. Nasution, D.L. Amin, A. Basiran, A. Gogo, D. Sunaryadi, T. Taryo, G.F. Vandegrift, G. Hofman, C. Conner, J. Sedlet, D. Walker, R.A. Leonard, T.C. Wiencek, E.L. Wood, and J.L. Snelgrove, Full-Scale Demonstration of the Cintichem Process for the Production of Mo-99 Using a Low-Enriched Target, Proceedings of the XXIth International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Sao Paulo, Brazil, October 18-23, 1998
9. C. Conner, M.W. Liberatore, A. Mutalib, J. Sedlet, D. Walker, and G.F. Vandegrift, Progress in Developing Processes for Converting ^{99}Mo Production from High- to Low-Enriched Uranium—1998, Proceedings of the XXIth International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Sao Paulo, Brazil, October 18-23, 1998.

10. G.F. Vandegrift, C. Conner, G.L. Hofman, J.L. Snelgrove, A. Mutalib, B. Purwadi, A.H. Gunawan, H. Lubis, Kadarisman, A. Sukmana, D.T. Jatmiko, Sriyono, A. Suropto, D.L. Amin, A. Basiran, A. Gogo, Sarwani, and T. Taryo, Demonstration of ⁹⁹Mo Production Using LEU Metal-Foil Targets in the Cintichem Process, Proceedings of the XXIIth International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Budapest, Hungary, October 18-23, 1999.
11. Z. Aliludin, A. Mutalib, A.H. Gunawan, Muridun, H. Lubis, A.A. Rauf, M. Sayad, K. Wisnukaton, M. Ramli, A. Sukmana, M. Pancoko, Production of ⁹⁹Mo Using LEU: An Assesment of Modified Cintichem Process, Proceedings of the 1997 Workshop on the Utilization of Research Reactors, Jakarta, Indonesia, November 29 - December 2, 1995.
12. A.H. Gunawan, A. Mutalib, M. Ramli, B. Purwadi, Z. Aliludin, K. Wisnukaton, A. Sukmana, Sriyono, Development of Production of ⁹⁹Mo from LEU Targets, Proceedings of the 1997 Workshop on the Utilization of Research Reactors, Bandung, Indonesia, November 10-13, 1997.
13. A. Mutalib, A. H. Gunawan, H. Lubis, S.R. Tamat, G.F. Vandegrift, C. Conner, Progress in the Development of ⁹⁹Mo Production Using LEU-Metal Foil Target in the Cintichem Process, Proceedings of the 1999 Workshop on the Utilization of Research Reactors, Mito, Japan, November 29-December 3, 1999
14. G.F. Vandegrift, J.L. Snelgrove, S. Aase, M.M. Bretscher, B.A. Buchholz, D.J. Chaiko, D.B. Chamberlain, L. Chen, C. Conner, D. Dong, G.L. Hofman, J.C. Hutter, G.C. Knighton, J.D. Kwok, R.A. Leonard, J.E. Matos, J. Sedlet, B. Srinivasan, D.E. Walker, T.C. Wiencek, E.L. Wood, D.G. Wygmans, A. Travelli, S. Landsberger, D. Wu, A. Suropto, A. Mutalib, H. Nasution, A.H. Gunawan, H. Lubis, S. Amini, D. Sunaryadi, M. Ramli, A. Gogo, B. Purwadi, D.L. Amin, Z. Aliludin, A. Sukmana, Kadarisman, Sriyono, D. Hafid, and M. Sayad, Converting Targets and Processes for Fission-Product ⁹⁹Mo from High- to Low-Enriched Uranium, International Atomic Energy Agency, TECDOC-1065, 25, 1999
15. G.F. Vandegrift, C. Conner, G. Hofman, R.A. Leonard, A. Mutalib, J. Sedlet, D. Walker, T.C. Wiencek, and J.L. Snelgrove, Modification of Targets and Processes for Conversion of ⁹⁹Mo Production from High- to Low-Enriched Uranium, Ind. Eng. Chem. Res., 2000, in press
16. H. Lubis, A. Mutalib, A.H. Gunawan, A. Sukmana, M. Pancoko, Pengembangan Pelarutan Taarget LEU dengan Asam Nitrat, Hasil Penelitian Pusat Produksi Radioisotop, No.2 (1995), 99.

17. Z. Aliludin, A. Mutalib, A.H. Gunawan, Muridun, H. Lubis, A.A. Rauf, M. Sayad, K. Wisnukaton, M. Ramli, A. Sukmana, M. Pancoko, Produksi ^{99}Mo dari LEU yang Diiradiasi Neutron: Kajian Penggunaan Proses Cintichem yang Dimodifikasi, Hasil Penelitian Pusat Produksi Radioisotop, No.1 (1995), 15.
18. Manufacturing Manual of Fission Product ^{99}Mo , Medy-Physics Inc., Tuxedo, New York, USA.
19. J.A. Smaga, J. Sedlet, C. Conner, M.W. Liberatore, D.E. Walker, D.G. Wygmans, and G.F. Vandegrift, Electroplating Fission-Recoil Barriers onto LEU-Metal Foil for ^{99}Mo -Production Targets, 1997 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Jackson Hole, Wyoming, October 5-10, 1997
20. R.A. Leonard, L. Chen, C.J. Mertz, and G.F. Vandegrift, Progress in Dissolving Modified LEU Cintichem Targets, 1996 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Seoul, Korea, October 7-10, 1996
21. M. Kahn, and J. Kleinberg, The Radiochemistry of Iodine, National Academy of Sciences, National Research Council, NTIS, Springfield, VA, 1977
22. G.F. Vandegrift, C. Conner, J. Sedlet, D.G. Wygmans, D. Wu, F. Iskander, and S. Landsberger, Progress in Chemical Processing of LEU Targets for ^{99}Mo Production—1997, 1997 International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Jackson Hole, Wyoming, October 5-10, 1997
23. W.T. Elwel, Analytical Chemistry of Molybdenum and Tugsten, Pergamon Press, Oxford, New York, 1997, pp. 40-41
24. G.A. Parker, Analytical Chemistry of Molybdenum, Springer-Verlag, Berlin, New York, 1983, pp. 146-147
25. D. Wu, S. Landsberger, B.A. Buchholz, G.F. Vandergrift, Processing of LEU Targets for ^{99}Mo Production- Testing and Modification of the Cintichem Process, Proc. of the XVIIth International Meeting on Reduced Enrichment for Research and Test Reactors, Paris, France, September 17-21, 1995, Paper No.3-6 (1996)
26. H. Arino, and H.H. Kramer, Separation and Purification of Radiomolybdenum from a Fission Product Mixture Using Silver-coated Carbon Granule, Int. J. App. Rad. Isot., 1978, Vol. 29, pp. 97-102
27. G.F. Vandegrift, ANL Progress in Developing the Modified Cintichem Process, Report for Visit to P2RR April 26 – May 4, 1996
28. R.B. Firestone, V.S. Shirley, C.M. Baglin, S.Y.F. Chu, and J. Zipkin, Table Isotopes, 8th Edition, John Wiley & Son, New York, 1996
29. A. Mutalib, Herlina, A.H. Gunawan, D. Kurniasih, to be published
30. A. Mutalib, to be published