
UJI PRODUKSI ^{99}Mo HASIL FISI DENGAN BAHAN SASARAN FOIL LEU BUATAN P2TBDO-BATAN

Hotman Lubis, A. Muthalib, A. H. Gunawan, Sriyono, Edi Sucipto dan Hambali
Pusat Pengembangan Radioisotop dan Radiofarmaka (P2RR) - BATAN

ABSTRAK

UJI PRODUKSI ^{99}Mo HASIL FISI DENGAN BAHAN SASARAN FOIL LEU BUATAN P2TBDO-BATAN. Selama ini telah dilaksanakan beberapa kali produksi ^{99}Mo dengan menggunakan bahan sasaran foil LEU buatan Argonne National Laboratory (ANL). Dalam produksi ^{99}Mo dengan proses Cintichem yang dimodifikasi bahan sasaran foil LEU sangat menentukan. Telah dilakukan uji produksi ^{99}Mo hasil fisi dengan bahan sasaran foil LEU (LEU, < 20% ^{235}U) buatan P2TBDO-BATAN dengan proses Cintichem yang dimodifikasi, meliputi pelarutan foil LEU menggunakan HNO_3 9,5N, penarikan gas iodium, proses pemisahan dengan pengendapan α -Benzoin Oxime dan pemurnian ^{99}Mo melalui kolom kromatografi. Foil LEU larut dengan sempurna selama 30 menit dan penarikan gas iodium dilakukan dengan pendinginan nitrogen cair. Setelah melalui tahap pemisahan (pengendapan) dan pemurnian kolom I dan kolom II radionuklida pengotor masih besar dan aktivitas pengotor pemancar α melebihi persyaratan standard internasional yang ditetapkan yaitu sebesar $7.716\text{E-}7 \mu\text{Ci/mCi } ^{99}\text{Mo}$.

Kata kunci: produksi Mo-99 HF, Sasaran Foil LEU P2TBDO

ABSTRACT

PRODUCTION TEST OF ^{99}Mo FISSION PRODUCT USING LEU TARGET FOIL MADE IN P2TBDO – BATAN. Production of ^{99}Mo fission product using LEU target foil of Argonne National Laboratory (ANL) has been performed several times recently in BATAN. In the production of ^{99}Mo using modified Cinthichem method, the LEU target foil was very critical. This paper reported production test on ^{99}Mo fission product using LEU target foil (LEU < 20% ^{235}U) made by P2TBDO – BATAN using modified Cintichem method. The process included dissolving of LEU foil with 9.5 N HNO_3 , suctioning of iodine gas, separation process using precipitation with α -benzoin oxime, and purification by column chromatography. The LEU foil was completely dissolved after 30 minutes and gas suction was performed by cooling with liquid nitrogen. After separation and two purification steps, the radionuclide impurities were remained high and activity of α impurities exceeded international standard requirements, i.e. $7.716\text{E-}7 \mu\text{Ci/mCi } ^{99}\text{Mo}$.

Key words: Production of ^{99}Mo FP, Target foil LEU P2TBDO

PENDAHULUAN

Sampai sekarang produksi ^{99}Mo yang dilaksanakan oleh PT. Batan Teknologi adalah dengan melalui proses pemisahan produk fisi dari hasil iradiasi target UO_2 pengkayaan tinggi (^{235}U sekitar 93% High Enriched Uranium-HEU) dengan neutron. Metode pemisahan kimia dan pemurnian ^{99}Mo tersebut merupakan lisensi dari Medy - Physics Inc. (Cintichem Inc.) untuk Batan [1,2].

Perkembangan dewasa ini menunjukkan bahwa pengadaan HEU semakin terbatas karena beberapa persyaratan yang cukup ketat diterapkan pemerintah Amerika Serikat untuk memasok HEU, sehingga telah mendorong dilakukannya pengembangan uranium pengkayaan rendah (*Low Enriched Uranium*, LEU). Kerjasama 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 kerjasama ini pihak BATAN melibatkan: (1) Pusat Pengembangan Teknologi Bahan Bakar Nuklir Dan Daur Ulang (P2TBDU) untuk mempelajari disain dan fabrikasi target; (2) Pusat Reaktor Serbaguna G.A. Swabessy (PRSG) mempelajari aspek-aspek yang berkaitan dengan iradiasi target di Reaktor Serbaguna G.A. Swabessy; (3) Pusat Pengembangan Radioisotop dan Radiofarmaka (P2RR) mempelajari pengembangan proses produksi ^{99}Mo dengan menggunakan target foil LEU melalui modifikasi proses Cintichem [2,6].

Uji produksi ^{99}Mo adalah merupakan suatu rangkaian kajian terhadap target foil yang telah dibuat oleh P2TBDU-BATAN dengan proses Cintichem yang dimodifikasi. Tujuan uji produksi ^{99}Mo adalah untuk mempelajari kelarutan foil LEU dan untuk mengetahui besar ^{99}Mo yang dihasilkan.

Dalam makalah ini akan dilaporkan hasil uji produksi ^{99}Mo yang dilakukan pada bulan Maret 2006 yang merupakan kerjasama PRR, P2TBDU dan Argonne National Laboratory (ANL) dengan bantuan fasilitas PT. Batan Teknologi yang meliputi hasil pelarutan dan produk ^{99}Mo .

TATA KERJA

Bahan dan Peralatan

Semua pereaksi yang digunakan adalah pro analisis, diperoleh dari Merck dan Fluka. Peralatan penunjang sama dengan peralatan yang digunakan untuk proses HEU. Foil yang digunakan ada 2 yaitu:

1. Foil LEU no. 0107 dengan kandungan LEU FOIL = 7,5624 g, logam Ni yang digunakan sebagai fision barrier seberat 0,9554 g dan berat total 8,5178 g.

2. Foil LEU no. 0108 dengan kandungan LEU = 8.1121 g, logam Ni yang digunakan sebagai *fision barrier* seberat 0,9801 g dan berat total 9,0922 g diperoleh dari P2TBDU-BATAN.

Pada proses HEU tabung sasaran digunakan dissolver sedangkan untuk proses LEU dissolver terbuat dari baja tahan karat tipe 304 yang diperoleh dari Argonne National Laboratory (ANL) yang ditunjukkan pada Gambar 1. Pemeriksaan radionuklida menggunakan spektrometer gamma yang dilengkapi dengan Detektor HPGe (High Purity Germanium) Ortec Model CNVDS 30-15165, catu daya Ortec Model 495, Amplifier TENNELEC Model TC 244, catu bias Ortec Model 459.



Gambar 1. Tabung *dissolver* yang terbuat dari baja tahan karat tipe 304.

Proses Produksi ^{99}Mo melalui Proses Cintichem yang dimodifikasi

Pelarutan foil LEU dengan HNO_3

Target foil LEU no. 0107 dan 0108 yang telah diiradiasi dipotong di *hot cell* P2TBDU kemudian dibawa ke *hot cell* PT. Batan Teknologi. Foil tersebut dimasukkan kedalam tabung *dissolver* kemudian dilarutkan dengan 40 ml HNO_3 . Dalam percobaan ini target foil uranium diiradiasi di posisi CIP fasilitas iradiasi reaktor G.A. Swabessy selama 96 jam dengan daya 15 MW. Larutan HNO_3 yang digunakan adalah HNO_3 9,54N, proses pelarutan dilakukan pada temperatur \pm

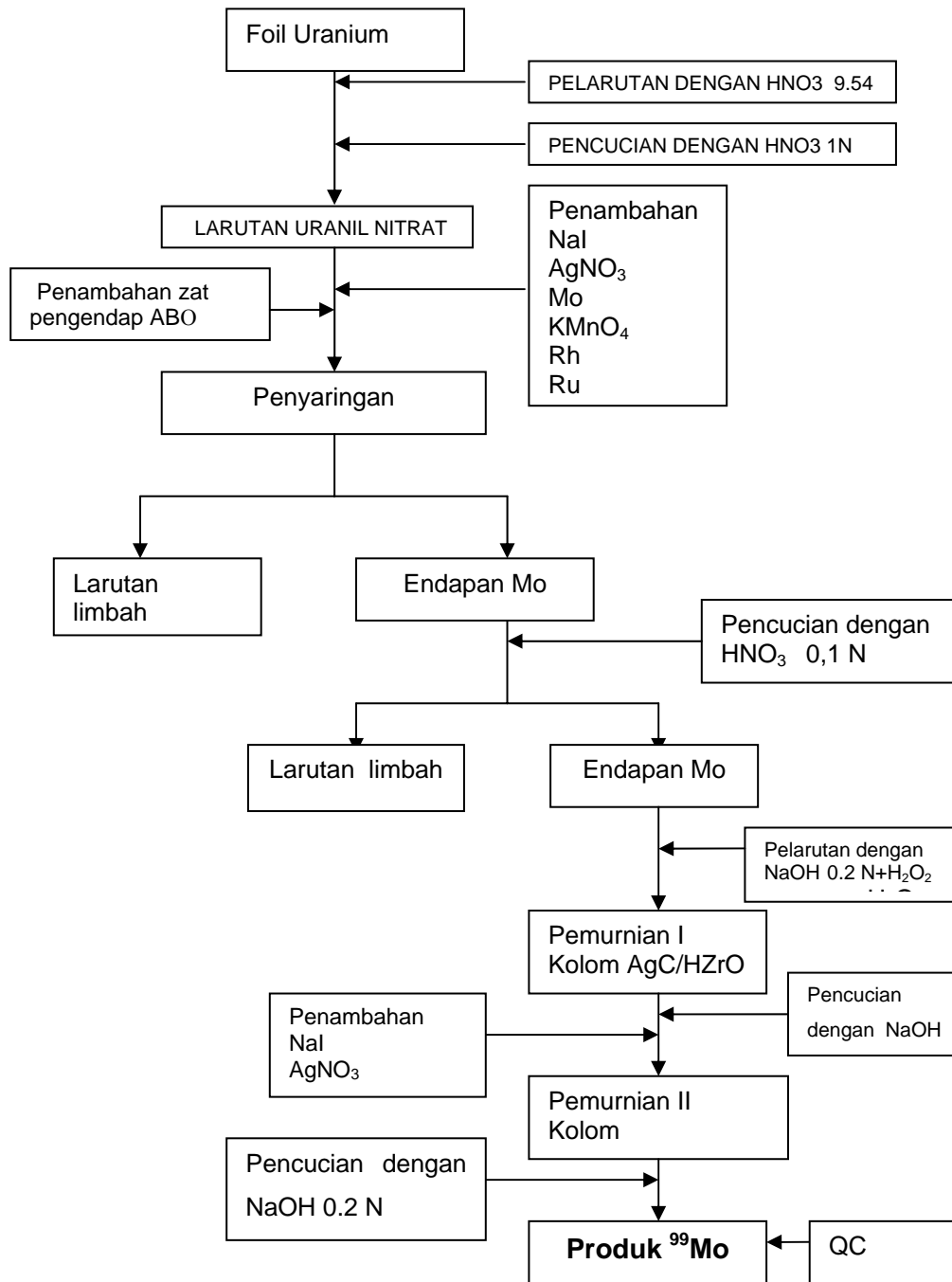
92⁰C selama 30 menit sehingga tidak terjadi kenaikan tekanan pada *gauge* yang terdapat pada tabung *dissolver*.

Proses pemisahan dan pemurnian ⁹⁹Mo.

Tujuan dari proses ini dilakukan untuk mendapatkan produk Mo-99 yang murni dan memenuhi persyaratan. Adapun proses pemisahan dan pemurnian dilakukan di dalam *hot cell* berdasarkan proses modifikasi Cintichem yang digambarkan dengan diagram pada Gambar 2.

Pengukuran radionuklida pengotor produk ⁹⁹Mo.

Larutan ⁹⁹Mo yang diperoleh dari proses pemurnian yang merupakan produk akhir dilakukan *dispensing* di dalam *hot cell* kemudian dibawa keluar untuk pemeriksaan kualitas yaitu pengukuran besar radioaktivitas ⁹⁹Mo dan pengotor radionuklida dengan menggunakan spektrometer gamma yang dilengkapi dengan Detektor HPGe (High Purity Germanium) Ortec Model CNVDS 30-15165, catu daya Ortec Model 495, Amplifier TENNELEC Model TC 244, catu bias Ortec Model 459.



Gambar 2. Bagan alir pemisahan ^{99}Mo dengan proses Cintichem yang dimodifikasi

HASIL DAN PEMBAHASAN

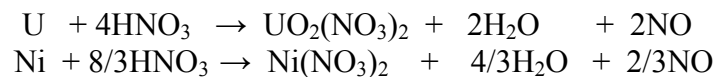
Pelarutan foil uranium

Foil uranium yang telah diiradiasi dikeluarkan dari tabung sasaran kemudian diperiksa dan hasilnya dalam keadaan baik (tidak pecah). Foil uranium tersebut dimasukkan ke dalam *dissolver* untuk dilarutkan dengan 40 ml HNO₃ 9,54 N selama 30 menit pada temperatur ± 92 °C. Foil uranium tersebut larut dengan sempurna dengan tekanan maksimum 150 psig [1,2,6]. Sebagai perbandingan pelarutan target foil uranium dari Argonne National Laboratory (ANL) dengan target foil uranium P2TBDU-Batan dapat dilihat pada Tabel 1.

Tabel 1. Perbandingan Pelarutan target foil LEU ANL dengan target foil P2TBDU

	Target foil uranium buatan Argonne National Laboratory	Target foil uranium buatan P2TBDU-Batan
Bentuk foil setelah iradiasi	Tidak pecah	Tidak pecah
Pelarutan dengan HNO ₃	Larut sempurna	Larut sempurna
Lama Pelarutan	30 menit	30 menit
Tekanan Maksimum	± 92 ⁰ C	± 92 ⁰ C
Tekanan Maksimum	150 psig	150 psig

Adapun reaksi yang terjadi dalam pelarutan foil uranium dengan HNO₃ 9.54N adalah sebagai berikut :



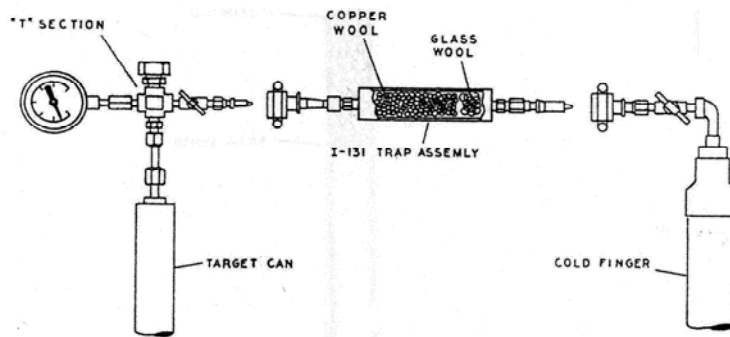
Pemisahan dan pemurnian ⁹⁹Mo

Salah satu pengotor (*impurity*) produk ⁹⁹Mo yang paling dominan adalah radionuklida iodium dimana pembentukannya terjadi selama proses fisi uranium. Radionuklida iodium umumnya berbentuk I₂, I⁻, IO₃⁻ dan IO₄⁻ [2].

Molekul I₂ yang terbentuk didalam larutan akan tertarik dan terkumpul pada perangkap kawat serat tembaga (*Iodine trap*) pada saat terjadi penarikan gas NO dan gas produk fisi dari tabung *dissolver* yang ke dalam *cold finger* yang direndam di dalam nitrogen cair, langkah ini disebut fase gas yang ditunjukkan pada gambar 2 [2,3].

Ion I^- , IO_3^- , dan IO_4^- dipisahkan dari larutan dengan cara pengendapan sebagai AgI , $AgIO_3$ dan $AgIO_4$. dengan penambahan perak nitrat sebelum tahap pengendapan Mo-ABO dilakukan.

Produk ^{99}Mo dipisahkan dari larutan uranium dengan cara pengendapan ABO didalam suasana asam nitrat. Pencucian endapan dengan menggunakan HNO_3 0,1 N dilakukan dengan cepat untuk menghindari pecahnya Mo-ABO akibat efek radiasi sehingga menurunkan perolehan *yield*. Meskipun setelah proses pengendapan dan pencucian endapan Mo-ABO diperkirakan semua radionuklida pengotor telah terpisahkan, larutan molibdat hasil pelarutan endapan tersebut masih harus dimurnikan dengan melewatkannya ke dalam kolom yaitu kolom kombinasi AgC/HZO . Kolom AgC/HZO berfungsi menyerap I^- dan warna pink kecoklatan yang terjadi dari kalium permanganat dan ABO sedangkan ^{109}Ru akan terserap pada AgC dan radionuklida lainnya akan terserap pada HZO [2]. Larutan molibdat hasil pemurnian dari kolom AgC/HZO masih harus dimurnikan kembali yaitu melalui kolom kombinasi $AgC/HZO/AC$, namun sebelum dilewatkan kolom terlebih dahulu radionuklida iodium yang merupakan pengotor (*impurity*) yang paling utama ditambahkan $AgNO_3$ sebagai pengendap I^- , IO_3^- , dan IO_4^- kemudian larutan tersebut dilewatkan ke kolom dan eluatnya merupakan produk $Na^{99}MoO_4$. Hasil pengukuran radionuklida pengotor dari produk masih besar yang ditunjukkan pada Tabel 1.



Gambar 2. Fase gas proses produksi ^{99}Mo

Tabel 1. Analisis radionuklida hasil demonstrasi proses produksi ^{99}Mo hasil fisi dengan bahan sasaran foil LEU setelah peluruhan 10 hari

Nuklida	Waktu paruh (jam)	Energi	Net Area
Ce-141	780,0	140,25	7224
Np-239	56,5	283,86	117
I-131	193,0	363,70	1208
I-131	193,0	634,77	62
Nb-97	1,2	660,45	107
Mo-99	66	737,65	232
Nb-95	839,3	763,96	144

Pengukuran Pengotor Aktivitas α

Pengotor aktivitas α pada produk ^{99}Mo dari target LEU harus diperhatikan dengan benar karena pengotor α yang berasal dari ^{239}Pu pada LEU mengandung lebih banyak ^{238}U . Besarnya pengotor aktivitas α yang terkandung didalam produk ^{99}Mo hasil fisi merupakan persyaratan standard yang ditetapkan. Adapun persyaratan standard internasional adalah $E-07 \mu\text{Ci/mCi } ^{99}\text{Mo}$ dan persyaratan standard Nordion adalah $E-08 \mu\text{Ci/mCi } ^{99}\text{Mo}$ [2,7]. Dari hasil pengukuran produk diperoleh pengotor aktivitas α masih melebihi persyaratan standard internasional yang ditetapkan yaitu sebesar $7.716E-7 \mu\text{Ci/mCi } ^{99}\text{Mo}$ dan radionuklida pengotor juga masih besar yang ditunjukkan pada Tabel 1.

KESIMPULAN

Dari Demontrasi produksi ^{99}Mo yang menggunakan target foil LEU buatan P2TBDO-BATAN disimpulkan bahwa:

1. Foil LEU tidak rusak (pecah) setelah diiradiasi dan larut sempurna dengan HNO_3 9,54 N pada temperatur $\pm 92^\circ\text{C}$ selama 30 menit .
2. Proses pemisahan dan pemurnian ^{99}Mo berlangsung dengan baik namun radionuklida pengotor dan pengotor aktivitas α masih diatas harga yang ditetapkan (persyaratan Medy Physic).

UCAPAN TERIMAKASIH

Terima kasih yang sebesar-besarnya disampaikan kepada Direktur Produksi dan Staf PT. BATAN Teknologi yang telah mengijinkan penggunaan sarana dan fasilitas dan Kelompok Instalasi Radiometalurgi P2TBDO atas penyediaan target

foil LEU serta George F. Vandegift, Ph.D dan Dr. Allan dari Argonne National Laboratory (ANL) atas bantuan dan kerjasamanya.

DAFTAR PUSTAKA

1. HOTMAN LUBIS, *et. al*, "Produksi ^{99}Mo Hasil Fisi Dengan Bahan Sasaran Foil LEU Melalui Proses Cintichem yang Dimodifikasi", Prosiding Seminar Penelitian Dan Pengelolaan Perangkat Nuklir, Pusat Penelitian Dan Pengembangan Teknologi Maju, Yogyakarta 23-11-2005, 243 – 246.
2. A. MUTALIB *et. al*, "Pengembangan Proses Produksi Molibdenum-99 Hasil Fisi Dengan Menggunakan Target Foil Logam Uranium Pengkayaan Rendah", *Jurnal Radioisotop dan Radiofarmaka* Vol.3, No. 1, (2000) 1-28.
3. MEDI PHYSIC, "Fision Product ^{99}Mo , Manufacturing" (1985).
4. ZAHIRUDDIN, *et. al*, "Produksi ^{99}Mo dari LEU yang diiradiasi netron : Kajian Penggunaan Proses Cintichem yang dimodifikasi", Hasil Penelitian Pusat Produksi Radioisotop No. 1, (1995) 15-28.
5. HOTMAN LUBIS, A. MUTALIB, ZAHIRUDDIN, M. PANCOKO, "Pengembangan Pelarutan Target LEU dengan Asam Nitrat", Hasil Penelitian Pusat Produksi Radioisotop No. 2, (1995) 99-106.
6. ARGONNE NATIONAL LABORATORY (ANL), "Procedure for Processing LEU Foils Demonstration Using Revised Cintichem Procedure", 2005.
7. H.I. KOMALA, A. H. GUNAWAN, I. SUPARMAN, Pengujian Kualitas pada Produk ^{99}Mo Hasil Belah ^{235}U , Hasil Penelitian Pusat Produksi Radioisotop No. 1, (1994) 61-73.