

KARAKTERISTIK GENERATOR $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ BERBASIS
POLY ZIRCONIUM COMPOUND

Adang H.G, Abdul Mutalib, Yono S., Sulaeman
Pusat Radioisotop dan Radiofarmaka – BATAN
Kawasan Puspiptek Gedung 10-11, Serpong Tangerang

ABSTRAK

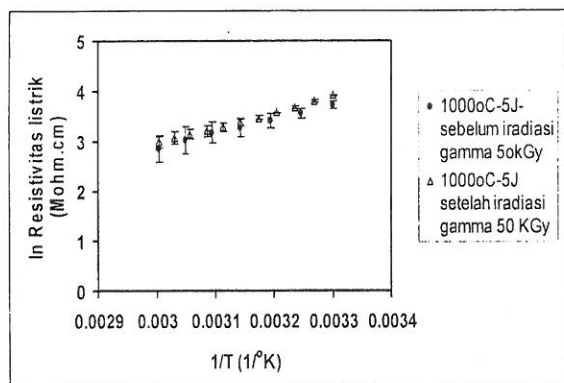
KARAKTERISTIK GENERATOR $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ BERBASIS POLY ZIRCONIUM COMPOUND. Penggunaan senyawa *poly zirconium compound* (PZC) sebagai pengganti alumina pada sistem generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ telah berhasil dilakukan di Indonesia sebagai hasil kerjasama penelitian antara PRR-BATAN dengan JAERI dan Kaken Co. dari Jepang. Senyawa PZC yang mempunyai daya serap tinggi terhadap molibdenum (200-250 mg Mo/g PZC), telah berhasil dikembangkan dalam bentuk generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ di PRR-BATAN. Kesamaan sifat kimia molibdenum dengan wolfram mendorong dilakukannya pengembangan pembuatan generator $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ dengan menggunakan PZC sebagai penyerap wolfram. Penentuan kapasitas serap senyawa PZC terhadap wolfram diperoleh dengan melihat besarnya aktivitas ^{188}W setelah campuran PZC dan wolfram dipanaskan selama 3 jam. Dari pengamatan ini diketahui bahwa setiap gram PZC mampu menyerap lebih dari 400 mg wolfram. Persentase *yield* yang dihasilkan dari sistem generator $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ dengan 3 perlakuan berbeda (A= tanpa NaOCl, C= dengan NaOCl, tanpa alumina dan D = dengan NaOCl dan alumina) menunjukkan bahwa *yield* generator A pada elusi ke 2 dan seterusnya lebih rendah bila dibandingkan generator C dan D. Profil elusi generator renium tidak menunjukkan perbedaan antara generator dengan kolom tambahan alumina dan tanpa kolom alumina. Kedua jenis generator memberikan *yield* > 90 % dengan volume 6 ml. Besarnya wolfram *breakthrough* generator renium tanpa pencucian dengan larutan NaOCl 0,5 % diperoleh > 0,1 $\mu\text{Ci } ^{188}\text{W}/\text{mCi } ^{188}\text{Re}$ sedangkan yang dicuci dengan larutan NaOCl 0,5 % diperoleh < 0,1 $\mu\text{Ci } ^{188}\text{W}/\text{mCi } ^{188}\text{Re}$. Penggunaan alumina sebagai kolom kedua dapat meminimalkan lolosan wolfram pada eluat generator.

Kata kunci : PZC, generator, alumina, wolfram, renium

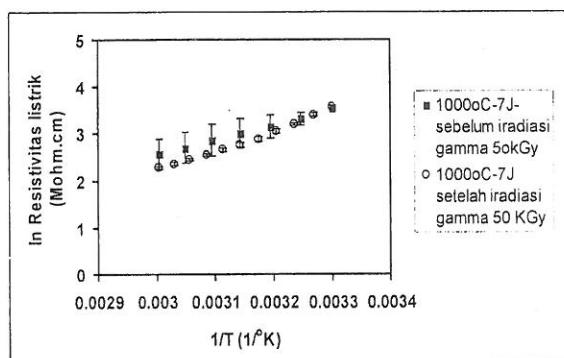
ABSTRACT

CHARACTERISTIC OF $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ GENERATOR BASED ON POLY ZIRCONIUM COMPOUND MATERIAL. The use of poly zirconium compound (PZC) for replacing alumina on $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ generator column has been performed in Indonesia as the result of joint research between Center for Radioisotopes and Radiopharmaceuticals (CRR) BATAN with JAERI and Kaken Co. Japan. The PZC as a molybdenum adsorbent with high adsorption capacity (> 200 mg Mo/g PZC) has been successfully developed on $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ generator at CRR-BATAN. Based on similarity of chemical properties of molybdenum and wolfram, lead to make $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ generator which using PZC as wolfram adsorbent. Adsorption capacity of PZC to wolfram was done by measuring ^{188}W activity in the filtrate after 3 hours heating time of wolfram and PZC, the result indicated more than 400 mg wolfram adsorbed to 1 gram PZC material. Yield percentage of the $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ generator by using 3 different variable (A = without NaOCl, C = with NaOCl, without alumina and D = with NaOCl and alumina) indicated that elution yield from generator C and D were better than generator A. There was no significant differences on elution profile of the two $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ generators (C and D), more than 90 % yield obtained in 6 ml total volume of eluate. Wolfram breakthrough from $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ generator without NaOCl 0.5 % solution was more than 0.1 $\mu\text{Ci } ^{188}\text{W}/\text{mCi } ^{188}\text{Re}$, although on $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ generator with NaOCl 0.5 % solution was less than 0.1 $\mu\text{Ci } ^{188}\text{W}/\text{mCi } ^{188}\text{Re}$. Alumina column on $^{188}\text{W}/^{188}\text{Re}$ generator was used to minimize wolfram breakthrough in the eluate.

Key words : PZC, generator, alumina, wolfram, rhenium.



Gambar 15. Hubungan antara $\ln \rho$ (resistivitas) dan $(1/T)$ pelet termistor oksida ferit mangan (spinel kubik) disinter pada suhu sinter 1000°C selama 5 jam sebelum dan sesudah diirradiasi-gamma dengan dosis 50 kGy.



Gambar 16. Hubungan antara $\ln \rho$ (resistivitas) dan $(1/T)$ pelet termistor oksida ferit mangan (MnFe_2O_4) disinter pada suhu sinter 1000°C selama 7 jam sebelum dan sesudah diirradiasi-y dengan dosis 50 kGy.

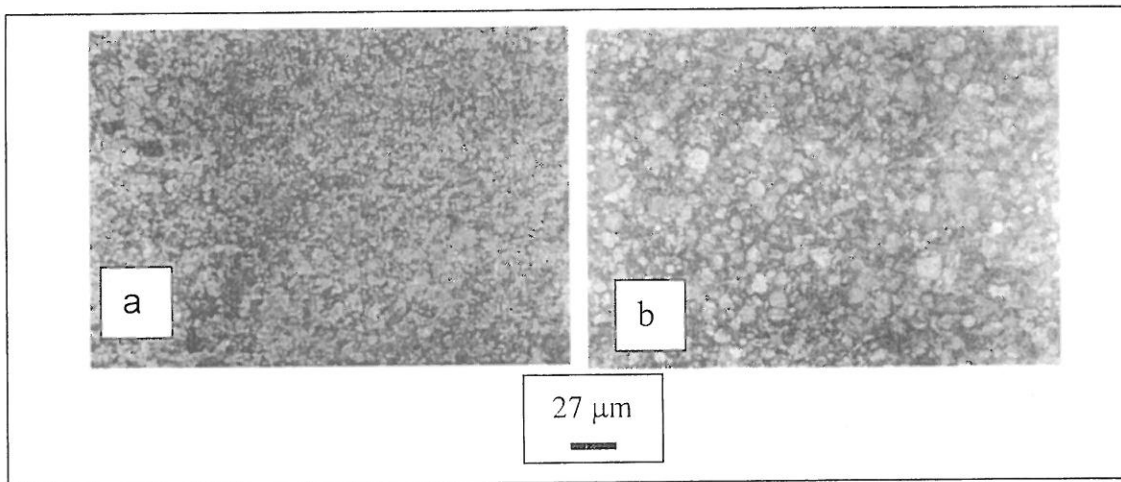
KESIMPULAN

Hasil analisis XRD memperlihatkan bahwa serbuk hasil larut-endap dari mineral manganit (Dari P.D. KertaPertambangan) didominasi oleh oksida Fe (Fe_2O_3) dan Mn (Mn_2O_3) dan keramik yang terbentuk (hasil sinter) cenderung berkrystal spinel kubik dan berbentuk larutan padat $\text{Mn}_x\text{Fe}_{2-x}\text{O}_4$.

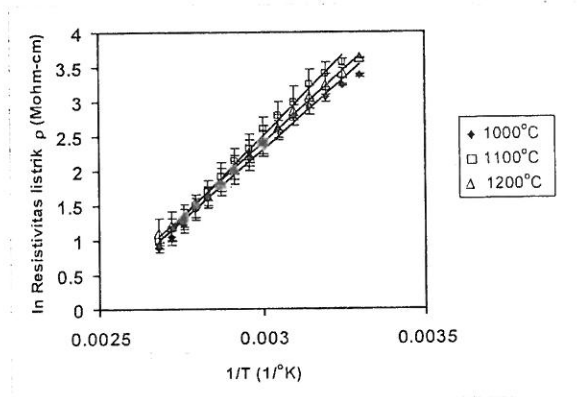
Karakteristik listrik memperlihatkan bahwa keramik ini mempunyai sifat termistor NTC yaitu termistor yang resistivitas listriknya menurun dengan pertambahan suhu dengan resistivitas listrik berorde megaohm dan konstanta termistor (B) relatif besar ($> 2000^{\circ}\text{K}$). Pengaruh iradiasi gamma hingga 50kGy terhadap karakteristik listrik keramik yang terbentuk tidak terlihat.

DAFTAR PUSTAKA

- BetaTHERM Sensors [on line]. Available: <http://www.betatherm.com>.
- Viviani M, Buscaglia M T, Buscaglia V, Mitoseriu L, Testino A, Nanni P, Vladikova D. Analysis of conductivity and PTCR effect in Er-doped BaTiO_3 ceramics. J Euro Ceram Soc 2004. 24:1221.
- Zhang Daoli, Zhou Dongxiang, Jiang Shenglin, Wang Xiaohong, Gong Shuping. Effects of porosity on the electrical characteristics of current-limiting BaTiO_3 -based positive-temperature-coefficient (PTC) ceramic thermistors coated with electroless nickel-phosphorous electrode. Sens Actua A 2004; 112:94.
- Huo Weirong, Qu Yuanfang. Effects of $\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}\text{TiO}_3$ on the Curie temperature and the PTC effects of BaTiO_3 -based positive temperature coefficient ceramics. Sens Actua A 2006; 128:65.
- Na ES, Paik UG, Choi SC. The effect of a sintered microstructure on the electrical properties of a Mn-Co-Ni-O thermistor. J Ceramic Proc Res 2001; 2(1):31-34.



Gambar 11. Struktur mikro pelet keramik dari oksida mangan hasil larut endap mineral manganit dan penggerusan mekanik 60 menit disinter pada suhu, (a). 1100°C dan (b). 1200°C selama 1 Jam.



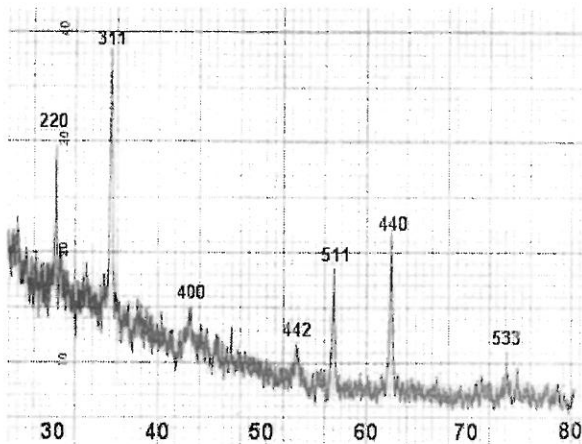
Gambar 12. Hubungan antara $\ln(\rho_{SR})$ dan $1/T$ keramik oksida Mangan dari serbuk hasil larut endap mineral Manganit (tanpa gerus) yang disinter pada berbagai suhu.

Karakteristik Listrik Pelet dari Serbuk Hasil Larut-Endap dengan Penggerusan

Seperti terlihat pada Tabel 3, harga-harga karakteristik listrik keramik oksida mangan (Spinel) dari serbuk hasil larut-endap mineral manganit dengan penggerusan selama 60 menit untuk berbagai suhu sinter hampir

sama. Kecenderungan ini mirip dengan karakteristik untuk keramik dari serbuk hasil larut-endap mineral manganit tanpa penggerusan (Tabel 2). Di sini tampak pula pengaruh suhu sinter tidak terlihat dengan jelas. Namun harga-harga karakteristik listrik keramik ini juga memenuhi harga kebutuhan pasar yaitu $\geq 2000^{\circ}K$ untuk konstanta termistor (B) dan 10 ohm.cm⁻¹ Mohm.cm untuk resistivitas listrik suhu ruang (ρ_{SR}).

Dibandingkan dengan keramik oksida mangan (*Spinel*) dari serbuk hasil larut endap mineral manganit tanpa gerus, harga B keramik hasil gerus sedikit lebih kecil, namun harga untuk resistivitas listrik suhu ruang (ρ_{SR}) perbedaannya cukup besar, dan ini berarti lebih aplikabel. Hal ini disebabkan oleh mengecilnya ukuran partikel serbuk setelah digerus. Makin kecil ukuran serbuk, makin besar reaktivitasnya.



Gambar 9 . Pola difraksi pelet yang disinter pada suhu 1200°C selama 1 Jam dari serbuk hasil larut endap dari mineral manganit yang digerus selama 60 menit dengan penggerus listrik

Pelet dari Serbuk Hasil Larut-Endap dan Kalsinasi dengan Penggerusan

Pelet keramik yang dibuat dari serbuk yang diperoleh dengan pelarutan-pengendapan serbuk mineral manganit dan kalsinasi pada suhu 700°C selama 2 jam dengan penggerusan yang disinter pada suhu 1000 °C-1200°C juga memiliki struktur kristal spinel kubik seperti diperlihatkan pada Gambar 8 dan 9.

Struktur Mikro

Struktur mikro keramik yang disinter pada suhu 1000°C dan 1200°C selama 1 jam dari serbuk hasil larut-endap diperlihatkan pada Gambar 10a dan 10b. Untuk pelet yang disinter pada suhu 1000°C selama 7 jam diperlihatkan pada Gambar 10c. Sementara struktur mikro keramik yang disinter pada suhu 1100°C dan 1200°C dari serbuk hasil larut-endap yang digerus selama 60 menit diperlihatkan pada

Gambar 11.

Pengaruh penambahan suhu sinter terhadap ukuran butir pelet hasil sinter lebih terlihat dari pada pengaruh penambahan waktu sinter seperti terlihat pada Gambar 10. Namun pengaruh peningkatan suhu sinter tidak signifikan. Pelet sinter yang dibuat relatif mempunyai butir (grain) yang kecil. Ukuran butir akan mempengaruhi sifat listrik keramik. Seperti terlihat pada Gambar 11, penggerusan selama 60 menit berpengaruh terhadap struktur mikro pelet sinter. Serbuk hasil gerus mempunyai ukuran partikel yang lebih kecil. Serbuk yang ukuran partikelnya kecil mempunyai luas permukaan besar. Pelet dari serbuk ukuran kecil mempunyai butir yang lebih besar karena serbuk ini lebih reaktif sehingga selama penyinteran tumbuh lebih cepat.

Karakteristik Listrik

Menurut pustaka (5,9,10,13-15), resistivitas listrik termistor jenis NTC mengikuti persamaan (1), sehingga karakteristik listrik keramik termistor yang dibuat dievaluasi menggunakan persamaan (1). Untuk mendapatkan konstanta termistor (B) dan resistivitas suhu ruang (ρ_{SR}), data yang diperoleh diplot ke dalam kurva \ln versus $(1/T)$. Gradien kurva adalah konstanta termistor. Kurva yang diperoleh merupakan garis fitting untuk melihat apakah keramik yang dibuat mempunyai sifat NTC atau tidak. Dari kurva tersebut harga resistivitas suhu ruang dapat ditentukan.

$$\rho = \rho_0 \text{Exp.}(B/T) \dots\dots\dots (1)$$

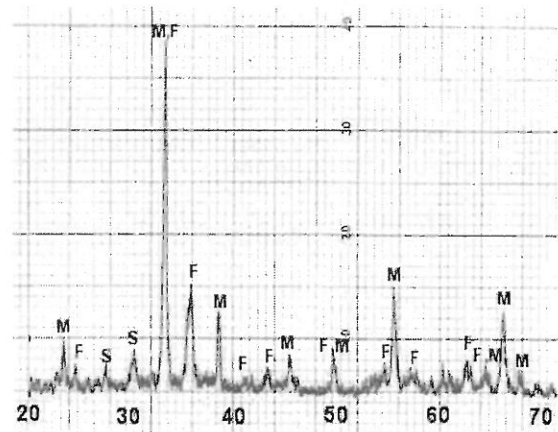
endap (olahan) terutama mengandung oksida mangan (Mn_2O_3) dan oksida Fe (Fe_2O_3). Dari pola difraksi ini kehadiran oksida lainnya tidak teridentifikasi.

Serbuk hasil larut endap dan kalsinasi sebagian digerus dengan alat gerus listrik selama 60 menit untuk memperkecil ukuran butir serbuk. Dengan harapan serbuk hasil gerus akan memiliki luas permukaan yang lebih besar, yang konsekuensinya memiliki reaktivitas yang lebih baik. Pola difraksi serbuk hasil gerus diperlihatkan pada Gambar 4. Dari Gambar 4, pengaruh penggerusan tidak terlihat dengan jelas. Pola difraksi serbuk sebelum dan sesudah penggerusan sangat identik. Pengambilan data XRD dengan metode *step counting* mungkin dapat membedakan ukuran serbuk dari serbuk sebelum dan sesudah penggerusan. Selain itu data karakteristik listrik juga dapat digunakan untuk melihat perbedaan akibat penggerusan.

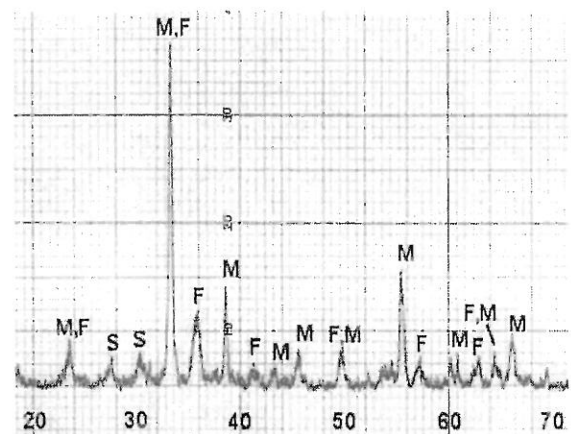
Analisis Difraksi Sinar-x Pelet Keramik Sinter

Analisis difraksi sinar-x (XRD) juga dilakukan pada pelet yang dibuat dari serbuk hasil larut-endap tanpa gerus dan dengan penggerusan yang disinter pada suhu 1000-1200°C. Hasil analisisnya dapat dilihat pada Gambar 5, 6 dan 7.

Tampak bahwa semua pelet mempunyai struktur kristal yang sama yaitu spinel kubik. Dari Gambar 5 sampai dengan 7, dapat disimpulkan bahwa oksida utama dari serbuk hasil larut endap yaitu Mn_2O_3 dan Fe_2O_3 telah membentuk keramik larutan padat berstruktur kristal spinel kubik.



Gambar 3. Pola difraksi serbuk hasil larut endap dan kalsinasi. Memperlihatkan Fe_2O_3 (F) dan Mn_2O_3 (M) sebagai kandungan utama.



Gambar 4. Pola difraksi serbuk hasil larut endap dan kalsinasi yang digerus selama 60 menit. Memperlihatkan Fe_2O_3 (F) dan Mn_2O_3 (M) sebagai kandungan utama.

mendapatkan bahan dasar yang lebih baik, maka sebagai kelanjutan, pada penelitian ini dilakukan pembuatan termistor dari bahan dasar mineral manganit. Mineral ini mempunyai potensi menjadi termistor NTC yang baik, terutama jika dalam bentuk kristal spinel. Dalam penelitian ini akan dipelajari pengaruh komposisi kimia dan parameter pembuatan seperti suhu dan waktu sinter terhadap karakteristik keramik termistor yang diperoleh. Evaluasi dilakukan setelah memperoleh data struktur, struktur mikro, karakteristik listrik dari termistor sebelum dan sesudah iradiasi sinar gamma.

TATA KERJA

Langkah pertama yang dilakukan adalah analisis komposisi kimia mineral manganit yang dilanjutkan dengan proses pelarutan dan pengendapan yang dilakukan untuk memperoleh manganit yang lebih bersih dengan ukuran butir yang lebih kecil. Bentuk visual serbuk mineral manganit diperlihatkan pada Gambar 1. Pelarutan dilakukan dengan menggunakan larutan HCl dan pengendapan menggunakan NH_4OH . Serbuk manganit hasil pengolahan yang siap untuk dibuat pelet termistor diperoleh dengan mengkalsinasi serbuk hasil pengendapan yang telah dikeringkan pada suhu antara 700°C selama 2 Jam. Serbuk manganit asli (mineral) dan hasil pengolahan dipres untuk memperoleh pelet mentah dengan tekanan sekitar 4 ton/cm^2 . Pelet mentah yang diperoleh disinter pada suhu 1000°C - 1200°C selama waktu 1 jam di dalam atmosfer udara.

Pelet hasil sinter dianalisis menggunakan XRD untuk melihat jenis kristal dari keramik yang diperoleh, sekaligus untuk melihat fase-fase yang terjadi. Struktur mikro yang diperoleh melalui proses metalografi juga dievaluasi untuk melihat kaitannya dengan sifat listrik termistor. Metalografi dilakukan dengan pengampelasan secara berjenjang menggunakan kertas ampelas bernomor kecil (kasar) hingga besar (halus) yang dilanjutkan dengan pemolesan dengan bantuan serbuk alumina halus (submikron) atau pasta intan.

Karakteristik listrik keramik ditentukan dengan mengukur tahanan listrik (yang kemudian dikonversi ke resistivitas listrik) pada berbagai suhu dari 30°C hingga 100°C . Data resistivitas listrik dan suhu diplot menjadi kurva resistivitas listrik fungsi suhu (resistivitas listrik-suhu). Dari kurva resistivitas listrik-suhu ini, kemudian konstanta termistor (B), sensitivitas (α) dan resistivitas listrik suhu ruang (ρ_{SR}) ditentukan. Karakteristik listrik pelet hasil sinter (1000°C) diukur kembali setelah iradiasi gamma sebesar 50 kGy (dilakukan di PATIR-BATAN, Jakarta).

Pembuatan pelet dari serbuk yang diberi perlakuan juga dilakukan. Perlakuan yang dimaksud adalah penggerusan yang gunanya untuk memperkecil ukuran serbuk. Serbuk hasil larut-endap digerus dengan alat penggerus listrik selama 60 menit. Serbuk hasil gerus dipres dengan tekanan 4 ton/cm^2 . Pelet mentah disinter pada suhu 1100°C dan 1200°C selama 1 jam.