

KARAKTERISASI LIMBAH DARI PRODUKSI RADIOISOTOP MOLIBDENUM-99

CHARACTERIZATION OF RADIOISOTOPE MOLIBDENUM-99 PRODUCTION WASTE

Aisyah, P. Ayu Artiani, Yuli Purwanto

Pusat Teknologi Limbah Radioaktif - BATAN

Gedung 50, Kawasan Puspiptek Serpong, Tangerang Selatan

Email : aisyah@batan.go.id

Diterima 2 Maret 2018, diterima dalam bentuk perbaikan 25 Mei 2018, disetujui 21 Agustus 2018

ABSTRAK

KARAKTERISASI LIMBAH DARI PRODUKSI RADIOISOTOP MOLIBDENUM-99. Radioisotop ^{99}Mo diproduksi terutama sebagai radioisotop induk untuk memperoleh radioisotop technisium-99m ($^{99\text{m}}\text{Tc}$). Radioisotop $^{99\text{m}}\text{Tc}$ dipakai dalam kedokteran nuklir antara lain untuk diagnosis pada kelainan tulang, otak, thyroid, paru-paru, hati dan ginjal. Di Indonesia ^{99}Mo diproduksi oleh PT. Industri Nuklir Indonesia (INUKI) dari target uranium yang dilekatkan ke dalam dinding kapsul baja tahan karat untuk kemudian diiradiasi di Reaktor GA Siwabessy. Pengambilan ^{99}Mo dalam target dilakukan dengan proses CINTICHEM. Pada proses CINTICHEM akan ditimbulkan beberapa jenis limbah yang salah satunya adalah Radioactive Fission Waste (RFW). Limbah ini memiliki paparan radiasi yang besar yang mengakibatkan karakterisasi limbah secara laboratorium sulit dilakukan. Pengelolaan limbah yang tepat memerlukan karakteristik limbah yang tepat pula. Oleh karena itu dalam penelitian ini dilakukan karakterisasi limbah RFW menggunakan program komputer ORIGEN 2.1. Parameter input adalah data dari salah satu batch produksi ^{99}Mo di PT INUKI yang berupa data target uranium diperkaya tinggi 92,7% yang dilekatkan pada kapsul baja tahan karat AISI 304L; iradiasi dilakukan pada posisi Centre Irradiation Position (CIP) dalam Reaktor Serbaguna GA Siwabessy dengan fluks neutron termal: $1,12 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2\text{detik}$ selama 96 jam. Seleksi radionuklida yang relevan terhadap metode pengelolaan limbah dilakukan berdasarkan pada waktu paro, tingkat kliren dan radiotoksitas. Hasil penelitian menunjukkan bahwa sampai dengan waktu peluruhan 50 tahun, total konsentrasi aktivitas limbah $3,01 \times 10^9 \text{ Bq/g}$ dengan kandungan radionuklida produk aktivasi, aktinida dan anak luruhnya serta produk fisi. Selain itu limbah ini juga mengandung ^{235}U yang masih cukup besar serta radionuklida umur paro panjang dengan tingkat toksitas yang sangat tinggi. Berdasarkan pada Peraturan Pemerintah No.61 Tahun 2013 limbah ini diklasifikasikan sebagai limbah radioaktif tingkat sedang (400 - 100 GBq/g) dan memerlukan pengelolaan dengan tingkat keselamatan yang tinggi.

Kata kunci: ^{99}Mo , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, Cintichem, ORIGEN 2.1, RFW

ABSTRACT

CHARACTERIZATION OF MOLIBDENUM-99 PRODUCTION WASTE. The ^{99}Mo is produced generally as parent radioisotope to obtain technisium-99m radioisotope ($^{99\text{m}}\text{Tc}$). In nuclear medicine, $^{99\text{m}}\text{Tc}$ is used among others, for the diagnosis of bone, brain, thyroid, lung, liver and kidney disorders. In Indonesia ^{99}Mo is produced by PT Indonesian Nuclear Industry (INUKI) by irradiating uranium target that electroplated on the inner surface of a stainless steel capsule. Extracting the ^{99}Mo from the target is carried out with CINTICHEM process. In the process, several types of wastes are generated, one of which is Radioactive Fission Waste (RFW). This kind of waste has a high radiation exposure that cause difficulties in laboratory in characterizing the waste. A proper RFW management requires a proper waste characteristerization; therefore, the characterization of RFW was carried out by using the ORIGEN 2.1 software which input parameter is data from one batches of PT INUKI's production of high enriched (92.7%) uranium target irradiated that was at the Center of Irradiation Position (CIP) of GA Siwabessy Reactor, whose thermal neutron flux is $1.12 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2\text{sec}$ for 96 hours. The selection of relevant radionuclide for the method of waste management is regarded on half-time, clearance level and radiotoxicity. The result shows that up to 50 years decay time, total concentration of waste activity is $3.01 \times 10^9 \text{ Bq/g}$, with content of activation products, actinide and its daughters and fission products radionuclides. In addition, this waste also contains a large quantity of ^{235}U and a long half-life radionuclide and a very high toxicity. According to the Government Regulation No.61 Year of 2013 this waste is classified as medium level radioactive waste and requires a high safety waste management.

Keywords: ^{99}Mo , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, Cintichem, ORIGEN 2.1., RFW

PENDAHULUAN

Masalah yang dihadapi oleh negara berkembang termasuk Indonesia dalam penanganan limbah radioaktif adalah adanya peningkatan pemanfaatan ilmu pengetahuan dan teknologi (iptek) nuklir dalam bidang industri, kesehatan, serta litbang iptek nuklir itu sendiri. Hal ini akan meningkatkan jenis maupun jumlah limbah radioaktif. Salah satunya adalah limbah yang berasal dari aplikasi kedokteran nuklir yang menggunakan radioisotop. Penggunaan radioisotop dalam diagnosis beberapa jenis penyakit sudah lama diterapkan di rumah sakit. Salah satu radioisotop yang populer di masyarakat adalah Molibdenum-99 (^{99}Mo) yang memiliki waktu paro 66 jam dengan anak luruhnya Teknisium-99m ($^{99\text{m}}\text{Tc}$) yang memiliki waktu paro 6,2 jam. Radioisotop $^{99\text{m}}\text{Tc}$ dipakai hampir 80% dari seluruh diagnostik (melalui pencitraan) dalam kedokteran nuklir, seperti untuk mendapatkan gambaran tulang, otak, *thyroid*, paru-paru, hati dan ginjal. Radioisotop ^{99}Mo diproduksi terutama sebagai radioisotop induk untuk memperoleh radioisotop $^{99\text{m}}\text{Tc}$ [1,2].

Di Indonesia radioisotop ^{99}Mo diproduksi oleh PT. Industri Nuklir Indonesia (INUKI) yang berlokasi di Kawasan Nuklir Serpong. PT. INUKI telah memproduksi radioisotop ^{99}Mo dari target uranium diperkaya tinggi (HEU: *High Enrich Uranium*) 92,7% yang diiradiasi di Reaktor GA Siwabessy sejak tahun 1983. Produksi ^{99}Mo dilakukan dengan cara melekatkan uranium diperkaya tinggi ke dalam dinding kapsul baja tahan karat. Kapsul yang telah berisi target uranium diiradiasi dalam reaktor GA Siwabessy. Dilakukan pendinginan target sebelum dilakukan pengambilan ^{99}Mo . Pengambilan ^{99}Mo dari target dilakukan dengan proses CINTICHEM yaitu pelarutan target setelah pendinginan dan proses ekstraksi untuk pengambilan ^{99}Mo [3,4]. Pada proses pengambilan ^{99}Mo akan ditimbulkan beberapa jenis limbah yang salah satunya adalah *Radioactive Fission Waste* (RFW) yang sampai dengan saat ini pengelolaan RFW yang dilakukan belum optimal. Limbah ini merupakan limbah yang harus mendapat perhatian serius karena mengandung ^{235}U sisa, hasil aktivasi, aktinida dan hasil fisi dengan paparan radiasi yang tinggi yang mengakibatkan karakterisasi limbah secara laboratorium sulit dilakukan. Padahal pengelolaan limbah yang tepat memerlukan informasi karakteristik limbah yang tepat pula. Oleh karena itu dalam penelitian ini dilakukan karakterisasi limbah RFW menggunakan program komputer ORIGEN 2.1 [1,3–7].

Adanya pembatasan dari *International Atomic Energy Agency* (IAEA) tentang penggunaan uranium diperkaya tinggi dalam segala bidang, maka pada tahun 2010 PT. INUKI melakukan konversi dari target uranium pengayaan tinggi menjadi uranium pengayaan rendah (LEU: *Low Enrich Uranium*) pada produksi ^{99}Mo [8]. Adanya konversi target uranium tentu saja akan menimbulkan permasalahan limbah yang berbeda dengan sebelumnya yaitu penggunaan target uranium diperkaya tinggi. Salah satu dampaknya adalah timbulnya aktinida seperti plutonium dalam limbah dengan jumlah yang lebih besar, disamping juga uranium dalam jumlah yang lebih besar (untuk memperoleh produk ^{99}Mo yang setara) [1]. Oleh karena itu diperlukan juga penelitian yang mempelajari konsekuensi dari permasalahan limbah akibat adanya konversi penggunaan target uranium pengayaan rendah dari target uranium pengayaan tinggi dalam produksi radioisotop ^{99}Mo .

Karakteristik limbah baik dari target uranium pengayaan tinggi maupun limbah dari hasil konversi penggunaan target uranium pengayaan rendah berguna dalam pengelolaan limbahnya seperti pewadahan limbah, peluruhan limbah, penyimpanan sementara limbah, metode pengolahan serta disposal limbah. Pengelolaan limbah yang tepat akan melindungi masyarakat dan lingkungan dari dampak radiologi limbah. Terkait dengan hal tersebut dilakukan 3 seri penelitian dengan topik:

1. Karakterisasi limbah yang ditimbulkan dari produksi radioisotop ^{99}Mo . Pada penelitian ini dilakukan karakterisasi limbah terhadap target uranium pengayaan tinggi dalam produksi ^{99}Mo . Karakterisasi limbah dilakukan menggunakan program komputer ORIGEN 2.1
2. Konversi penggunaan target uranium pengayaan tinggi menjadi pengayaan rendah pada produksi ^{99}Mo . Penelitian ini membahas masalah konsekuensi yang muncul dari konversi tersebut terhadap permasalahan limbahnya.
3. Metode pengelolaan limbah dari produksi ^{99}Mo merupakan tahap terakhir dari penyelesaian masalah limbah dari produksi ^{99}Mo , dengan salah satu metodenya adalah *downblending* untuk menurunkan kadar uranium dalam limbah.

Pada makalah ini dilakukan karakterisasi limbah produksi ^{99}Mo menggunakan program komputer ORIGEN 2.1 dengan tujuan untuk memperoleh karakteristik limbah RFW guna mendapatkan teknologi pengolahan limbah yang tepat. Perhitungan ORIGEN 2.1 dilakukan berdasarkan data riil dari salah satu *batch* produksi ^{99}Mo yang dilakukan oleh PT INUKI sebagai parameter data input antara lain penggunaan target uranium diperkaya tinggi

92,7% yang diiradiasi dalam reaktor GA. Siwabessy selama 96 jam. Pengambilan ^{99}Mo dilakukan dengan proses CINTICHEM setelah pendinginan selama 6 jam. Karakteristik limbah dihitung untuk waktu peluruhan sampai dengan 50 tahun. Hasil perhitungan ORIGIN 2.1 berupa karakteristik limbah RFW yang berupa kandungan radionuklida, konsentrasi aktivitas serta kategori limbah [1,3,4,6,7,9].

Dasar Teori

ORIGIN 2.1 atau *Oak Ridge Isotope Generation and depletion code version 2.1* adalah program komputer dengan basis 1 kelompok deplesi dan peluruhan radioaktif yang dikembangkan oleh divisi Teknologi Kimia di *Oak Ridge National Laboratory* (ORNL). Sebagai dasar perhitungan inventori radionuklida dalam program ORIGIN 2.1 maka digunakan persamaan [10–14]:

$$\frac{dX_i}{dt} = \sum_{j=1}^N l_{ij} \lambda_j X_j - \phi \sum_{k=1}^N f_{ik} \sigma_k X_k - (\lambda_i + \phi \sigma_i + r_i) X_i + F_i, i = 1 \dots, N \quad (1)$$

dimana

X_i = kerapatan atom nuklida i (atom/cm³)

N = jumlah nuklida (atom)

l_{ij} = fraksi peluruhan radioaktif, pembentukan nuklida j menjadi nuklida i (fraksional)

λ_i = konstanta peluruhan radioaktif nuklida i (detik⁻¹)

ϕ = fluks neutron rata-rata (n/cm².detik)

f_{ik} = fraksi serapan neutron nuklida k menjadi nuklida i (fraksional)

σ_k =ampang lintang serapan neutron rerata nuklida k (barn)

r_i = laju perpindahan nuklida i dari system (atom/detik)

F_i = laju umpan nuklida i (atom/detik)

Program ORIGIN 2.1 dapat digunakan untuk menghitung inventori radionuklida yang timbul pada target uranium yang diiradiasi dalam reaktor untuk produksi ^{99}Mo . Inventori radionuklida tersebut meliputi hasil aktivasi, aktinida beserta anak luruhnya dan hasil fisi [11]. Melalui program ORIGIN 2.1 karakteristik limbah seperti jenis kandungan radionuklida beserta jumlahnya secara teoritis dapat diperoleh. Kandungan radionuklida dalam limbah meliputi radionuklida hasil aktivasi, aktinida dan anak luruhnya serta produk fisi lengkap dengan konsentrasi aktivitasnya. Masukan (*input*) yang diperlukan untuk menjalankan program ORIGIN 2.1 ini antara lain dimensi target uranium, material kapsul target, komposisi target yang meliputi jumlah uranium, pengayaan uranium dan impuritisnya. Selain itu diperlukan juga data fluks neutron pada posisi iradiasi target, lamanya waktu iradiasi dan lamanya waktu pendinginan target sebelum proses pengambilan radioisotop ^{99}Mo . Terdapat beberapa bentuk keluaran (*output*) dari program ORIGIN 2.1 antara lain inventori dari isotop dan unsur (hasil aktivasi, aktinida dan anak luruhnya serta produk fisi) dalam satuan gram, maupun dalam satuan *curie* dan daya thermal dalam satuan watt [11]. Selain itu juga terdapat keluaran dalam bentuk neutron fisi spontan, dan kecepatan pelepasan foton dan lainnya. Data keluaran dapat diatur sesuai dengan yang dibutuhkan dalam penelitian.

Seleksi Radionuklida yang Relevan

Penggunaan program komputer ORIGIN 2.1 dalam menghitung inventori radionuklida yang muncul dalam iradiasi target uranium untuk produksi radioisotop ^{99}Mo , akan diperoleh keluaran hasil inventori dengan jumlah ratusan radionuklida. Terkait dengan keperluan pengelolaan limbah radioaktif, maka diperlukan seleksi radionuklida yang relevan yang memiliki kontribusi besar dalam penentuan metode pengolahan limbah radioaktif. Sebagai parameter penentuan radionuklida yang relevan maka dipilih waktu paro, tingkat kliren dan tingkat radiotoksistas untuk setiap radionuklida, sehingga inventori radionuklida dapat direduksi menjadi lebih sederhana, dan lebih mudah pengelolaannya. Inventori radionuklida hanya terdiri dari radionuklida yang memiliki umur paro panjang, radiotoksistas yang tinggi dan konsentrasi yang besar [15].

Dalam pengelolaan limbah radioaktif, untuk limbah dengan konsentrasi aktivitas yang besar, paparan radiasi yang besar maka dibutuhkan perisai baik untuk pengangkutan, proses maupun penyimpanan, dalam rangka melindungi manusia dari paparan radiasi. Panas peluruhan yang tinggi pada limbah juga memerlukan pendinginan pada penyimpanan guna meminimalkan laju evaporasi dan menghindari limbah mendidih. Selain itu perlu dipertimbangkan adanya radionuklida yang memiliki radiotoksistas yang tinggi dalam limbah radioaktif. Hal

ini terkait dengan resiko migrasi radionuklida dari fasilitas disposal ke lingkungan dan ini menjadi dasar dalam kajian keselamatan [15].

Salah satu hal penting dalam pengelolaan limbah radioaktif adalah *delay and decay*, yaitu limbah radioaktif disimpan terlebih dahulu sebelum diproses. Hal ini dimaksudkan untuk peluruhan radionuklida umur paro pendek yang terkandung dalam limbah ataupun untuk pendinginan limbah dengan paparan radiasi yang besar [15]. Hal ini dapat mereduksi biaya pengelolaan limbah selanjutnya [16].

Dalam makalah ini dikaji kurun waktu peluruhan sampai dengan 50 tahun, sehingga hanya terdapat radionuklida yang memiliki umur paro panjang yang relevan untuk pengelolaan limbah radioaktif.

Dasar Penentuan Kategori Limbah

Sebagai dasar untuk penentuan kategori limbah radioaktif yang ditimbulkan dari produksi radioisotop ^{99}Mo , maka digunakan Peraturan Pemerintah No.61 Tahun 2013 tentang Pengelolaan Limbah Radioaktif [17]. Untuk limbah radioaktif yang berupa sumber terbuka seperti limbah radioaktif yang ditimbulkan dari produksi radioisotop ^{99}Mo , maka berikut ini adalah kategorinya:

1. Limbah Radioaktif waktu paruh sangat pendek merupakan Limbah Radioaktif yang sebagian besar nuklidanya mempunyai waktu paruh kurang dari 150 hari.
2. Limbah Radioaktif tingkat sangat rendah dapat berupa limbah radioaktif selain zat radioaktif terbungkus yang tidak digunakan memiliki konsentrasi aktivitas di antara Tingkat Pengecualian hingga 100 kali Tingkat Pengecualian.
3. Limbah Radioaktif tingkat relatif rendah dapat berupa limbah radioaktif selain zat radioaktif terbungkus yang tidak digunakan yang memiliki konsentrasi aktivitas diantara 100 Bq/g hingga 1000 kali Tingkat Pengecualian untuk pemancar beta atau konsentrasi aktivitas diantara 100 Bq/g hingga 400 Bq/g untuk pemancar alfa.
4. Limbah Radioaktif tingkat sedang dapat berupa limbah radioaktif selain zat radioaktif terbungkus yang tidak digunakan yang memiliki konsentrasi aktivitas diantara 1000 kali Tingkat Klierens hingga 100 GBq/g untuk pemancar beta dan gamma atau konsentrasi aktivitas diantara 400 Bq/g hingga 100 GBq/g untuk pemancar alfa.

METODOLOGI

Parameter Input

Dalam penelitian ini data parameter *input* yang digunakan untuk perhitungan menggunakan ORIGIN 2 adalah data salah satu *batch* produksi ^{99}Mo di PT INUKI yang berupa data target uranium diperkaya tinggi, kapsul baja tahan karat tempat dimana target uranium dilekatkan didalamnya, fluks neutron pada posisi iradiasi, lama iradiasi dan lama pendinginan sebelum proses pengambilan ^{99}Mo dari target uranium.

1. Dalam *batch* ini digunakan uranium diperkaya tinggi 92,7 % dengan berat 3,362 gram (^{235}U : 3,103 g dan U-238 : 0,259 g) dengan komposisi pengotor seperti ditunjukkan pada Tabel 1.

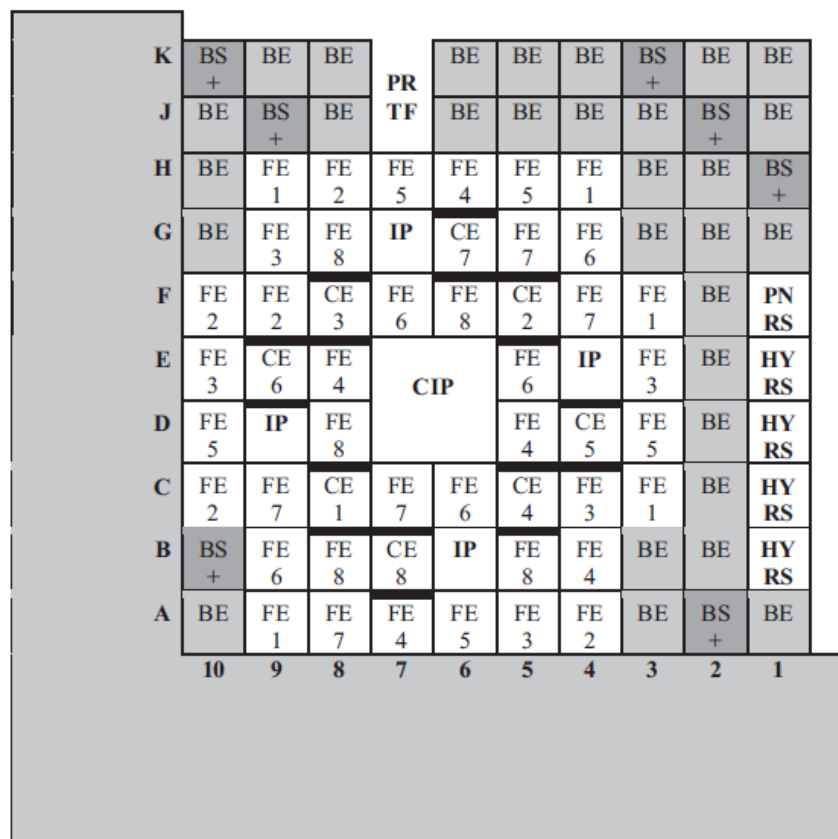
Tabel 1. Pengotor dalam uranium diperkaya tinggi

Unsur	Jumlah ($\mu\text{g/gU}$)	Unsur	Jumlah ($\mu\text{g/gU}$)	Unsur	Jumlah ($\mu\text{g/gU}$)	Unsur	Jumlah ($\mu\text{g/gU}$)
Al	10,00	Cu	14,000	Mo	26,033	Na	5,000
As	1,000	Dy	0,300	Ni	23,333	Sn	1,000
Be	0,200	Eu	0,300	Nb	1,000	W	11,733
B	0,500	Gd	0,300	N	2,000	V	1,000
Cd	0,300	Fe	38,667	P	22,667	Zn	2,000
Ca	5,000	Pb	1,000	K	15,000	Zr	3,567
C	235,448	Li	1,000	Sm	0,300		
Cr	5,500	Mg	1,000	Si	45,687		
Co	1,000	Mn	7,567	Ag	1,000		

1. Kapsul baja tahan karat tempat target uranium dilekatkan didalamnya adalah baja tahan karat AISI 304L *nuclear grade* mempunyai komposisi seperti yang ditunjukkan pada Tabel 2.
Kapsul baja tahan karat AISI 304 L memiliki panjang 457,2 mm; diameter luar 28 mm; diameter dalam 27 mm, tebal 1 mm lengkap dengan tutup dan alas dengan berat total sebesar 237 gram.
2. Posisi Iradiasi
Target uranium diiradiasi pada posisi *Centre Irradiation Position* (CIP) dalam Reaktor Serbaguna GA Siwabessy seperti yang ditunjukan pada Gambar 1, fluks netron termal: $1,12 \times 10^{14}$ n/cm²detik dan iradiasi target dilakukan selama 96 jam

Tabel 2. Komposisi kapsul baja tahan karat AISI 304L

Unsur	Kandungan Unsur (% berat)
C	0,02
Mn	1,610
Si	0,500
P	0,023
S	0,004
Cr	18,3
Ni	10,22
Fe	balance



Gambar 1. Posisi CIP pada teras reaktor [18]

Metode

Karakterisasi limbah yang ditimbulkan dari produksi radioisotop ^{99}Mo menggunakan program komputer ORIGIN 2.1 dilakukan dengan langkah-langkah sebagai berikut:

1. ORIGIN 2.1 dijalankan dengan memasukkan data parameter *input* seperti pengayaan target uranium, komposisi target uranium, berat target uranium, komposisi, dimensi dan berat kapsul baja tahan karat, fluks neutron, lama iradiasi target, dan lama pendinginan sebelum proses pengambilan ^{99}Mo .
2. Hasil keluaran (*output*) dari ORIGIN 2.1 berupa kandungan radionuklida dalam target uranium setelah iradiasi seperti hasil aktivasi, aktinida beserta anak luruhnya, dan produk fisi. Dalam *output* ORIGIN 2.1 aktivitas radionuklida tersebut ditampilkan dalam satuan *curie* yang kemudian dikonversi menjadi satuan konsentrasi aktivitas jenis radionuklida dalam satuan Bq/g
3. Perhitungan konsentrasi aktivitas radionuklida dimulai setelah pendinginan 6 jam serta 1, 2,5, 10,20,30,40 dan 50 tahun setelah proses pengambilan isotop ^{99}Mo .
4. Dilakukan evaluasi komposisi radionuklida dalam limbah dengan memperhatikan waktu paro radionuklida, dan tingkat kliren [19–21]. Radionuklida dengan waktu paro sangat pendek akan meluruh sebelum dan selama proses pengambilan ^{99}Mo . Untuk radionuklida dengan konsentrasi dibawah klirens tidak diperhitungkan sebagai limbah radioaktif yang memerlukan pengelolaan. Oleh karena itu hanya radionuklida yang berumur paro panjang yang diperhitungkan dalam pengelolaan limbah, karena radionuklida dengan umur paro pendek akan segera meluruh mencapai tingkat dibawah kliren dalam waktu singkat.
5. Sebagai dasar pada perhitungan kandungan radionuklida dalam limbah menggunakan ORIGIN 2.1 ini adalah menggunakan persamaan 1.
6. Dari perhitungan menggunakan ORIGIN 2.1 dapat diketahui karakteristik limbah dari produksi ^{99}Mo yang meliputi seluruh kandungan radionuklida beserta konsentrasi aktivitasnya. Berdasarkan Peraturan Pemerintah No.61 Tahun 2013 maka kategori limbah dapat ditentukan.
7. Dalam pembuatan grafik kandungan radionuklida dalam limbah digunakan satuan log Bq/g. Hal ini dimaksudkan hanya untuk penyederhanaan pembuatan dan penampilan grafik saja.

HASIL DAN PEMBAHASAN

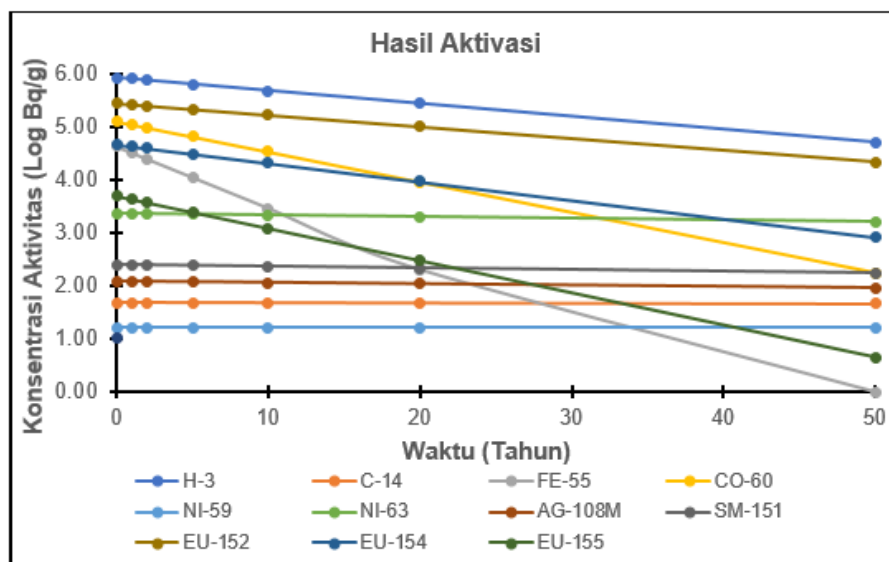
Berdasarkan perhitungan ORIGIN 2.1 terhadap target uranium pengayaan tinggi yang telah diiradiasi selama 96 jam pada produksi radioisotop ^{99}Mo didapat inventori radionuklida berjumlah 231 jenis radionuklida dengan total konsentrasi aktivitas $1,52 \times 10^{15} \text{ Bq/g}$ yang terdiri dari 38 jenis radionuklida hasil aktivasi dengan konsentrasi aktivitas $1,18 \times 10^9 \text{ Bq/g}$, 14 jenis aktinida dan anak luruhnya dengan konsentrasi aktivitas $2,11 \times 10^{11} \text{ Bq/g}$ serta 179 jenis hasil fisi dengan konsentrasi aktivitas $1,52 \times 10^{15} \text{ Bq/g}$. Nampak bahwa hasil fisi memiliki kontribusi besar dalam total konsentrasi aktivitas dari radionuklida yang muncul pada iradiasi target uranium untuk produksi ^{99}Mo . Segera setelah iradiasi target, diperoleh radioisotop ^{99}Mo dengan konsentrasi aktivitas $1,19 \times 10^{13} \text{ Bq/g}$.

Pada produksi ^{99}Mo setelah target uranium diiradiasi, dilakukan pendinginan target sebelum proses *Cintichem*. Pendinginan dilakukan sekitar 6 jam dengan maksud untuk mereduksi paparan radiasi dengan cara peluruhan. Pada saat pendinginan maka radionuklida yang berumur paro pendek akan meluruh sehingga total konsentrasi aktivitas radionuklida turun menjadi $2,33 \times 10^{14} \text{ Bq/g}$ dari 137 jenis radionuklida yang terdiri dari 31 jenis radionuklida hasil aktivasi dengan konsentrasi aktivitas $4,15 \times 10^8 \text{ Bq/g}$, 13 jenis radionuklida aktinida dan anak luruhnya dengan konsentrasi aktivitas $8,24 \times 10^{10} \text{ Bq/g}$, serta 93 jenis radionuklida hasil fisi dengan konsentrasi aktivitas $2,33 \times 10^{14} \text{ Bq/g}$ termasuk radioisotop ^{99}Mo dengan konsentrasi aktivitas sebesar $1,12 \times 10^{13} \text{ Bq/g}$. Terjadi penurunan jumlah radionuklida maupun konsentrasi aktivitas baik untuk radionuklida hasil aktivasi, aktinida serta hasil fisi. Hal ini terjadi karena adanya peluruhan radionuklida yang berumur paro pendek sehingga dapat mereduksi jumlah maupun konsentrasi aktivitasnya. Untuk radioisotop ^{99}Mo juga terjadi penurunan konsentrasinya hal ini juga terkait dengan radioisotop ^{99}Mo yang memiliki waktu paro pendek yaitu 66 jam.

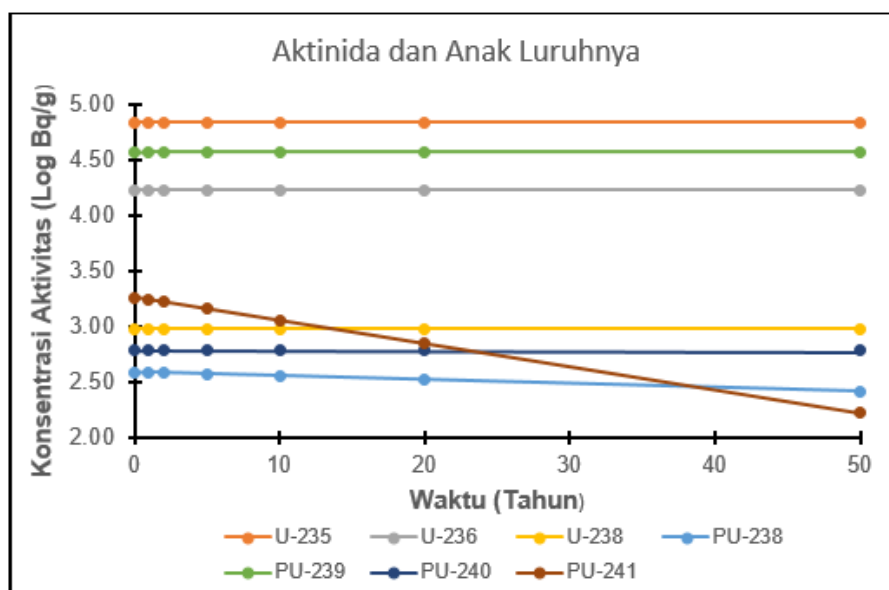
Setelah target mengalami pendinginan 6 jam, maka dilakukan proses *Cintichem*. Setelah proses *Cintichem*, maka timbul limbah dengan karakteristik mengandung nuklida hasil aktivasi, aktinida serta hasil fisi. Selanjutnya dilakukan seleksi nuklida yang relevan dalam pengelolaan limbah radioaktif dengan menggunakan batasan umur paro dan tingkat kliren. Dengan demikian akan terjadi reduksi radionuklida yang cukup signifikan baik dari jenis maupun konsentrasi aktivitasnya. Pada kondisi tersebut diperoleh karakteristik limbah yang mengandung 27 jenis nuklida dengan total konsentrasi aktivitas $4,55 \times 10^{10} \text{ Bq/g}$ dengan rincian hasil aktivasi

berjumlah 11 jenis nuklida dengan konsentrasi aktivitas $1,33 \times 10^6$ Bq/g, aktinida dan anak luruhnya berjumlah 7 jenis radionuklida dengan konsentrasi aktivitas $1,27 \times 10^5$ Bq/g, serta hasil fisi yang berjumlah 9 jenis radionuklida dengan konsentrasi aktivitas $4,552 \times 10^{10}$ Bq/g. Karakterisasi limbah ditentukan sampai dengan waktu peluruhan 50 tahun dari waktu setelah pengambilan ^{99}Mo seperti yang ditunjukkan pada Gambar 2 - Gambar 7.

Pada Gambar 2, tampak limbah dengan karakteristik kandungan radionuklida hasil aktivasi berjumlah 11 radionuklida yaitu ^3H ($T_{1/2}$: 12,35 tahun), ^{14}C ($T_{1/2}$: 5730 tahun), ^{55}Fe ($T_{1/2}$: 2,737 tahun), ^{59}Ni ($T_{1/2}$: $7,5 \times 10^4$ tahun), ^{60}Co ($T_{1/2}$: 5,27 tahun), ^{63}Ni ($T_{1/2}$: 96 tahun), $^{108\text{M}}\text{Ag}$ ($T_{1/2}$: 418 tahun), ^{151}Sm ($T_{1/2}$: 88,8 tahun), ^{152}Eu ($T_{1/2}$: 13,537 tahun), ^{154}Eu ($T_{1/2}$: 8,593 tahun), dan ^{155}Eu ($T_{1/2}$: 4,761 tahun). Radionuklida hasil aktivasi muncul dari pengotor-pengotor yang ada dalam target uranium yang teraktivasi oleh neutron. Oleh karena itu karakteristik limbah ini dipengaruhi oleh kemurnian target uranium [22]. Limbah ini mengandung radionuklida dengan umur paro yang panjang dan yang terpanjang memiliki umur paro 75 ribu tahun yaitu ^{59}Ni . Sampai dengan waktu peluruhan 50 tahun hanya hasil aktivasi ^{55}Fe yang telah mencapai titik nol dan total konsentrasi aktivitas sebesar $7,52 \times 10^4$ Bq/g.



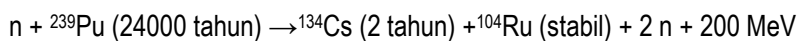
Gambar 2. Radionuklida hasil aktivasi yang terkandung dalam limbah dari produksi ^{99}Mo



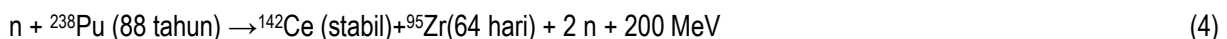
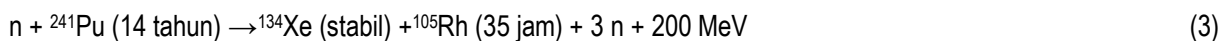
Gambar 3. Aktinida yang terkandung dalam limbah dari produksi ^{99}Mo

Pada Gambar 3 tampak limbah dengan karakteristik kandungan radionuklida aktinida berjumlah 7 radionuklida yaitu ^{235}U ($T_{1/2}$: $7,04 \times 10^8$ tahun), ^{236}U ($T_{1/2}$: $2,39 \times 10^7$ tahun), ^{238}U ($T_{1/2}$: $4,47 \times 10^9$ tahun), ^{238}Pu ($T_{1/2}$: 88 tahun), ^{239}Pu ($T_{1/2}$: $2,41 \times 10^4$ tahun), ^{240}Pu ($T_{1/2}$: $6,5 \times 10^3$ tahun), dan ^{241}Pu ($T_{1/2}$: 14,4 tahun). Radionuklida golongan aktinida tersebut terjadi karena reaksi transmudasi inti uranium (^{238}U) [15] pada target uranium di dalam reaktor nuklir dengan siklus transmudasi seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.

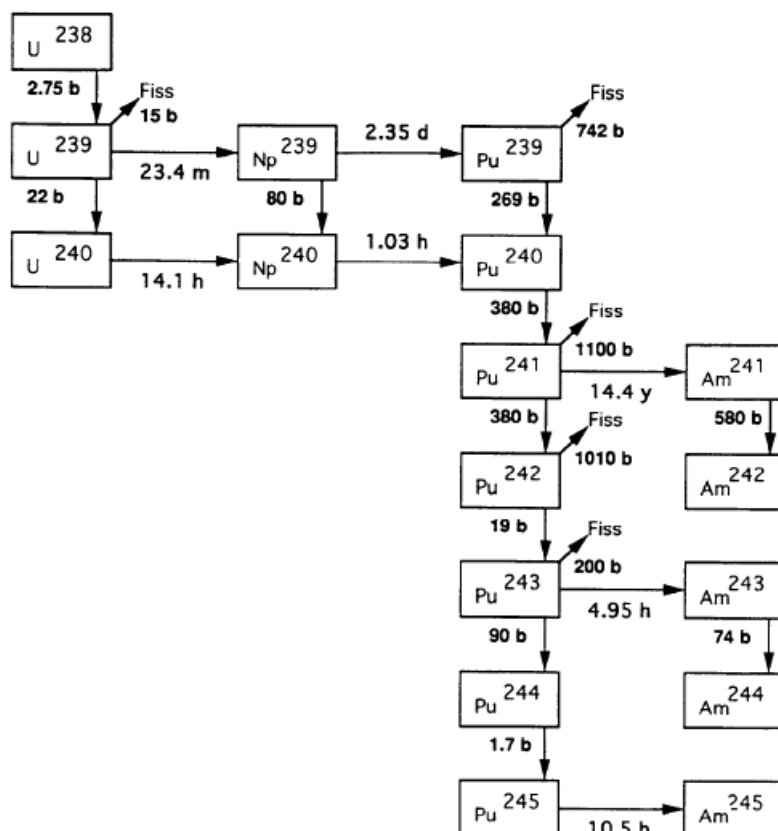
Radioionuklida hasil transmudasi ^{238}U berupa aktinida seperti Np, Am, dan Cm terjadi oleh karena reaksi transmudasi inti uranium di dalam reaktor nuklir dan bersifat radioaktif dengan umur paro panjang [24][25]. Radioionuklida tersebut dikategorikan sebagai limbah nuklir berbahaya karena dapat mengalami transmudasi inti menjadi radioisotop fisis plutonium yang dapat bereaksi fisi jika terdapat neutron. Sebagai contoh untuk aktinida ^{238}Pu , ^{239}Pu , dan ^{241}Pu yang mengalami reaksi fisi dengan neutron [26, 27].



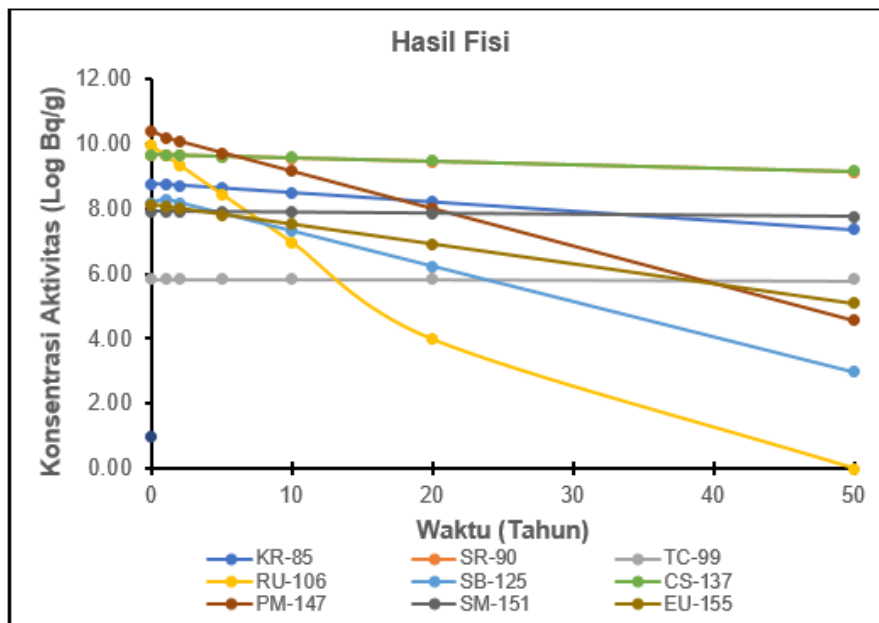
kemudian



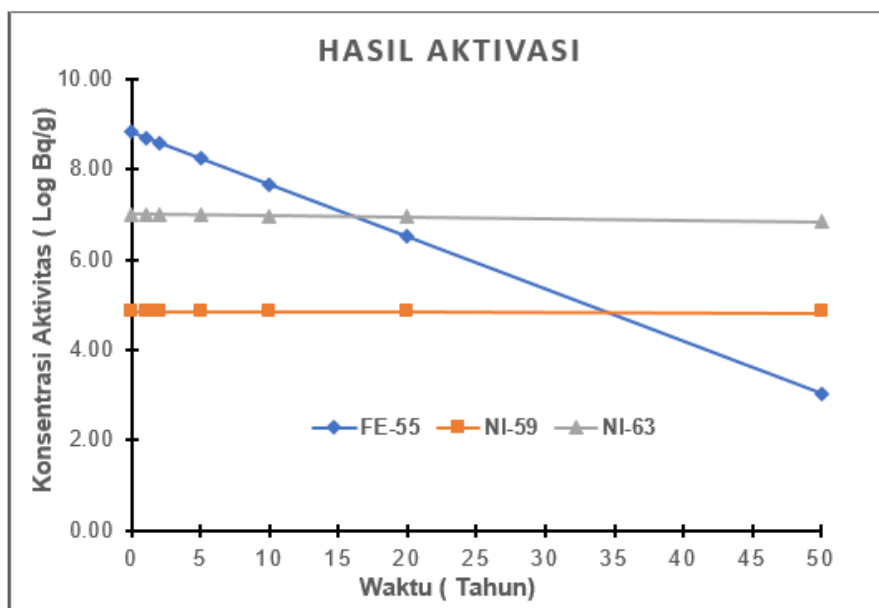
Pada target uranium pengayaan tinggi yang berarti kandungan ^{238}U rendah, maka aktinida yang muncul akan lebih sedikit jika dibandingkan dengan penggunaan target uranium dengan pengayaan rendah [1]. Tampak pada Gambar 3 bahwa limbah mengandung radionuklida pemancar alpha dengan umur paro yang sangat panjang yaitu sampai ratusan juta tahun dengan umur paro terpanjang adalah aktinida ^{238}U dengan waktu paro 4,5 miliar tahun. Oleh karena itu sampai dengan waktu peluruhan 50 tahun limbah ini masih memiliki konsentrasi aktivitas yang cukup tinggi yaitu sebesar $1,2 \times 10^5 \text{ Bq/g}$.



Gambar 4. Skema siklus transmudasi inti dari ^{238}U [23]

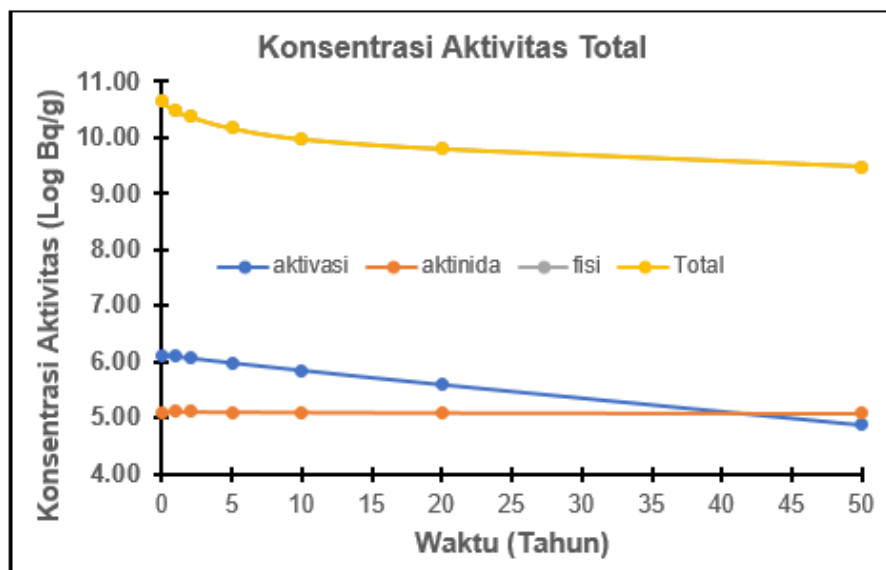


Gambar 5. Radionuklida produk fisi yang terkandung dalam limbah dari produksi ^{99}Mo



Gambar 6. Radionuklida hasil aktivasi yang terkandung dalam limbah kapsul baja tahan karat bekas target pada produksi ^{99}Mo

Pada Gambar 5 tampak limbah dengan karakteristik kandungan radionuklida hasil fisi yang berjumlah 9 radionuklida yaitu ^{85}Kr ($T_{1/2}$: 10,756 tahun), ^{90}Sr ($T_{1/2}$: 29,1 tahun), ^{99}Tc ($T_{1/2}$: $2,14 \times 10^5$ tahun), ^{106}Ru ($T_{1/2}$: 1,03 tahun), ^{125}Sb ($T_{1/2}$: 2,758 tahun), ^{137}Cs ($T_{1/2}$: 30,167 tahun), ^{147}Pm ($T_{1/2}$: 2,623 tahun), ^{151}Sm ($T_{1/2}$: 88,84 tahun), ^{155}Eu ($T_{1/2}$: 4,761 tahun). Radionuklida hasil fisi muncul karena adanya reaksi fisi dari ^{235}U dalam target dengan neutron yang membentuk hasil fisi [15]. Pada umumnya limbah ini mengandung radionuklida pemancar gamma dengan umur paro yang paling panjang sampai ribuan tahun[15]. Sampai dengan waktu peluruhan 50 tahun limbah ini masih memiliki konsentrasi aktivitas yang sangat tinggi yaitu sebesar $3,01 \times 10^9$ Bq/g. Untuk limbah kapsul target yang terbuat dari bahan baja tahan karat AISI 304L memiliki karakteristik radionuklida seperti yang ditunjukkan pada Gambar 6.



Gambar 7. Konsentrasi aktivitas total radionuklida dalam limbah

Secara teoritis, iradiasi kapsul baja tahan karat hanya akan menimbulkan radionuklida hasil aktivasi saja, karena komposisi kapsul tidak mengandung uranium. Oleh karena itu pada Gambar 6 tampak limbah kapsul baja tahan karat hanya mengandung 3 jenis radionuklida hasil aktivasi yaitu ^{55}Fe ($T_{1/2}$: 2,737 tahun), ^{59}Ni ($T_{1/2}$: $7,5 \times 10^4$ tahun), dan ^{63}Ni ($T_{1/2}$: 100,1 tahun). Radionuklida ^{55}Fe yang berasal dari reaksi $^{54}\text{Fe}(n,\gamma)^{55}\text{Fe}$. Radionuklida ^{59}Ni dan ^{63}Ni muncul karena adanya kandungan Ni dalam baja tahan karat sehingga terjadi reaksi aktivasi $^{58}\text{Ni}(n,\gamma)^{59}\text{Ni}$ dan $^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$ [28]. Limbah ini juga mengandung radionuklida berumur paro panjang yaitu sampai dengan ribuan tahun. Sampai dengan waktu peluruhan 50 tahun limbah ini memiliki konsentrasi aktivitas $7,11 \times 10^6$ Bq/g. Dengan demikian limbah radioaktif dari produksi ^{99}Mo memiliki karakteristik mengandung hasil aktivasi, aktinida dan hasil fisi dengan konsentrasi aktivitas total seperti yang ditunjukkan pada Gambar 7.

Konsentrasi aktivitas total limbah merupakan jumlah dari konsentrasi aktivitas untuk radionuklida hasil aktivasi, aktinida dan hasil fisi. Pada Gambar 7 tampak bahwa total konsentrasi aktivitas limbah berimpit dengan konsentrasi aktivitas radionuklida hasil fisi. Hal ini menunjukkan bahwa hasil fisi memiliki kontribusi yang cukup besar dalam besarnya konsentrasi aktivitas limbah dari produksi ^{99}Mo . Pada umumnya radionuklida hasil fisi didominasi oleh radionuklida pemancar gama, sedangkan untuk aktinida pada umumnya merupakan radionuklida pemancar alfa dan berumur paro sangat panjang. Seperti pada Gambar 7 bahwa konsentrasi aktivitas aktinida terlihat cukup stabil sampai dengan waktu peluruhan 50 tahun. Hal ini karena radionuklida aktinida memiliki umur paro yang sangat panjang. Selain itu seperti yang ditunjukkan pada Gambar 3, bahwa limbah ini juga banyak mengandung ^{235}U karena hanya sekitar 6 % saja ^{235}U yang berfisi dan sisanya akan terikut dalam limbahnya. Selain itu limbah ini juga mengandung radionuklida dengan kategori "toksisitas sangat tinggi", seperti ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu dan ^{241}Pu serta mengandung radionuklida dengan "toksisitas tinggi" seperti ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{106}Ru , ^{125}Sb , ^{152}Eu , ^{154}Eu dan ^{236}U . Pengertian radiotoksisitas adalah toksisitas yang terkandung dalam radiasi pengion yang dipancarkan oleh suatu radionuklida dan turunannya [22], [24], [29]–[33]. Radiotoksisitas tidak hanya dikaitkan dengan karakteristik radioaktivitas sumber, tetapi juga dengan sifat fisika dan kimianya, yaitu ukuran kemampuan radionuklida apabila masuk dalam tubuh menyebabkan kerusakan jaringan dan organ tubuh. Sampai dengan waktu peluruhan 50 tahun, limbah ini memiliki karakteristik mengandung radionuklida hasil aktivasi, aktinida dan anak luruhnya, serta radionuklida hasil fisi dengan total konsentrasi aktivitas limbah adalah $3,01 \times 10^9$ Bq/g. Limbah ini juga mengandung radionuklida dengan toksisitas yang sangat tinggi. Berdasarkan Peraturan Pemerintah tentang pengelolaan limbah radioaktif, maka limbah radioaktif RFW hasil produksi ^{99}Mo diklasifikasikan dalam limbah radioaktif tingkat sedang [17]. Sesuai dengan karakteristiknya limbah ini memerlukan pengelolaan dengan tingkat keselamatan yang tinggi antara lain dengan menurunkan tingkat pengayaan uranium yang terkandung dalam limbah melalui proses *down blending*. Melalui proses *down blending* pengayaan uranium dalam limbah akan diturunkan menjadi pengayaan rendah. Dengan demikian kandungan limbah akan lebih aman untuk diproses lebih lanjut maupun disimpan sementara.

KESIMPULAN

Pada produksi radioisotop ^{99}Mo akan ditimbulkan beberapa jenis limbah radioaktif dengan salah satunya adalah limbah RFW. Hasil karakterisasi limbah RFW menggunakan program komputer ORIGEN 2.1 menunjukkan bahwa limbah RFW mengandung radionuklida hasil aktivasi, aktinida dan anak luruhnya serta produk fisi. Limbah ini juga mengandung ^{235}U sisa yang masih cukup besar karena hanya sekitar 6 % saja ^{235}U dalam target yang berfisi membentuk produk fisi termasuk radioisotope ^{99}Mo . Terdapat kandungan radionuklida umur paro panjang dalam limbah dengan tingkat toksisitas yang sangat tinggi. Sampai dengan waktu peluruhan 50 tahun, total konsentrasi aktivitas limbah ini adalah $3,01 \times 10^9$ Bq/g dan diklasifikasikan sebagai limbah radioaktif tingkat sedang dan memerlukan pengelolaan dengan tingkat keselamatan yang tinggi.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terimakasih kepada Kepala Pusat Teknologi Limbah Radioaktif atas dukungan dana penelitian, juga kepada Kepala Bidang Teknologi Pengolahan dan Penyimpanan Limbah beserta Kepala Kelompok Pradisposal Limbah Radioaktif atas koordinasinya dalam penyelesaian karya tulis ilmiah ini.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] S. K. Lee, G. J. Beyer, and J. S. Lee, "Development of Industrial-Scale Fission ^{99}Mo Production Process Using Low Enriched Uranium Target," *Nucl. Eng. Technol.*, vol. 48, no. 3, pp. 613–623, 2016.
- [2] L. S. Nagurney, "The Mo Supply Chain for Nuclear Medicine," *Biomed. Eng. Semin. I II, Dep. Electr. Comput. Eng. Univ. Hartford*, vol. BE 281-B, 2012.
- [3] A. Mohammad, T. Mahmood, and M. Iqbal, "Fission MOLY production at PARR-1 using LEU plate type target," *Nucl. Eng. Des.*, vol. 239, no. 3, pp. 521–525, 2009.
- [4] A. Mushtaq, M. Iqbal, and A. Muhammad, "Management of radioactive waste from molybdenum-99 production using low enriched uranium foil target and modified CINTICHEM process," *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol. 281, no. 3, pp. 379–392, 2009.
- [5] H. K. Chamgordani, S. M. Mostajaboddavati, and B. T. Sichani, "Comment on the paper 'post-Shutdown decay power and radionuclide inventories in the discharged fuels of HEU and potential LEU miniature neutron source reactors' by Mirza et al. [Ann. Nucl. Energy 37 (2010) 701-706]," *Ann. Nucl. Energy*, vol. 38, no. 12, pp. 2863–2864, 2011.
- [6] S. Ullah, S. E. Awan, N. M. Mirza, and S. M. Mirza, "Source term evaluation for the upgraded LEU Pakistan Research Reactor-1 under severe accidents," *Nucl. Eng. Des.*, vol. 240, no. 11, pp. 3740–3750, 2010.
- [7] L. Özdemir, B. B. Acar, and O. H. Zabunolu, "Determination of fissile fraction in MOX (mixed U + Pu oxides) fuels for different burnup values," *Ann. Nucl. Energy*, vol. 38, no. 2–3, pp. 540–546, 2011.
- [8] IAEA, "Non-HEU Production Technologies for Molybdenum-99 and Technetium-99m," *IAEA Nucl. Energy Ser. VIENNA*, no. No. NF-T-5.4, 2013.
- [9] G. Ivan Maldonado, J. Galloway, and H. Hernandez, "Recycling heterogeneous americium targets in a boiling water reactor," *Ann. Nucl. Energy*, vol. 37, no. 2, pp. 256–264, 2010.
- [10] K. Hadad, M. Nematollahi, and A. Golestani, "VVER-1000 cross-section library generation for ORIGEN-II based on MCNP calculations," *Int. J. Hydrogen Energy*, vol. 40, no. 44, pp. 15158–15163, 2015.
- [11] R. Anis Rohanda, "Komparasi Hasil Perhitungan Inventori Hasil Fisi Teras PLTN PWR 1000 MWE antara ORIGEN2.1 dengan ORIGEN-ARP," *Sigma Epsil.*, vol. 17, no. 1, pp. 1–8, 2013.
- [12] M. Zheng et al., "Development of a MCNP – ORIGEN burn-up calculation code system and its accuracy assessment," *Ann. Nucl. Energy*, vol. 63, pp. 491–498, 2014.
- [13] S. A. Birikorang, R. G. Abrefah, R. B. M. Sogbadji, B. J. B. Nyarko, J. J. Fletcher, and E. H. K. Akaho, "Ground deposition assessment of radionuclides following a hypothetical release from Ghana Research Reactor-1 (GHARR-1) using atmospheric dispersion model," *Prog. Nucl. Energy*, vol. 79, pp. 96–103, 2015.

- [14] P. I. Y. Sudjatmi K.A., Reinaldy Nazar, K. Kamajaya, "The Assessment of Bandung Triga Reactor Tank Radioactivity," *Indones. J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 18, no. 2, pp. 109–116, 2017.
- [15] T. Akyurek, L. P. Tucker, and S. Usman, "Review and characterization of best candidate isotopes for burnup analysis and monitoring of irradiated fuel," *Ann. Nucl. Energy*, vol. 69, pp. 278–291, 2014.
- [16] R. Vicente and G. Hiromoto, "Temporal Evolution of Activities in Wastes from Mo-99," *Int. Nucl. Atl. Conf. Belo Horizonte, MG, Brazil*, 2011.
- [17] Pemerintah Republik Indonesia, "Peraturan Pemerintah Republik Indonesia Nomor 61 Tahun 2013 tentang Pengelolaan Limbah Radioaktif," 2013.
- [18] S. Pinem, P. H. Liem, T. M. Sembiring, and T. Surbakti, "Fuel element burnup measurements for the equilibrium LEU silicide RSG GAS (MPR-30) core under a new fuel management strategy," *Ann. Nucl. Energy*, vol. 98, pp. 211–217, 2016.
- [19] M. P. Unterweger, D. D. Hoppes, F. J. Schima, and J. S. Coursey, "Radionuclide Half-Life Measurements Data," *Phys. Meas. Lab. Nas. Inst. Stand. Technol.*, 2016.
- [20] Badan Pengawas Tenaga Nuklir, "Lampiran I Peraturan Kepala Badan Pengawas Tenaga Nuklir Nomor 16 Tahun 2012 tentang Tingkat Klerens untuk Radionuklida Buatan," pp. 1–4, 2012.
- [21] Badan Pengawas Tenaga Nuklir, "Lampiran II Peraturan Kepala Badan Pengawas Tenaga Nuklir Nomor 16 Tahun 2012 tentang Tingkat Klerens untuk Radionuklida Buatan," p. 2012, 2012.
- [22] A. A. Sameh, "Production Cycle for Large Scale Fission Mo-99 Separation by the Processing of Irradiated LEU Uranium Silicide Fuel Element Targets," vol. 2013, 2013.
- [23] E. M. Gonzalez, "Nuclear Waste Transmutation," *Eur. Phys. Soc. Nucl. Phys. Board*, Valencia, 2004.
- [24] E. Sartori, "Nuclear data for radioactive waste management," *Ann. Nucl. Energy*, vol. 62, pp. 579–589, 2013.
- [25] B. S. E. Triyono and Syarip, "Analisis Perhitungan Transmutasi Limbah Aktinida Minor : Kajian Awal Small-Scale Accelerator Driven System Berbasis Reaktor Kartini," *Pros. Semin. Nas. Teknol. Pengelolaan Limbah IX Pus. Teknol. Limbah Radioaktif-BATAN Fak. Tek. Univ. Sultan Ageng Tirtayasa ISSN*, vol. ISSN 1410-, pp. 21–32, 2011.
- [26] C. M. Cooling, M. M. R. Williams, E. T. Nygaard, and M. D. Eaton, "The application of polynomial chaos methods to a point kinetics model of MIPR: An Aqueous Homogeneous Reactor," *Nucl. Eng. Des.*, vol. 262, pp. 126–152, 2013.
- [27] T. Kooyman, L. Buiron, and G. Rimpault, "A comparison of curium, neptunium and americium transmutation feasibility," *Ann. Nucl. Energy*, vol. 112, pp. 748–758, 2018.
- [28] Aisyah and Y. Purwanto, "Estimasi Limbah Radioaktif Lazy Susan Dan Beamport Dalam Perencanaan Dekomisioning Reaktor Triga 2000 Bandung." *Jurnal Teknologi Pengelolaan Limbah, Pusat Teknologi Limbah Radioaktif, Badan Tenaga Nuklir Nasional*, pp. 1–14, 2012.
- [29] IAEA, "Production technologies for molybdenum-99 and technetium-99m," *IAEA-TECDOC-1065, VIENNA*, 1999.
- [30] R. Muenze *et al.*, "The fission-based⁹⁹Mo production process ROMOL-99 and its application to PINSTECH Islamabad," *Sci. Technol. Nucl. Install.*, vol. 2013, 2013.
- [31] A. Dash, F. F. Knapp, and M. R. A. Pillai, "⁹⁹Mo/^{99m}Tc separation: An assessment of technology options," *Nucl. Med. Biol.*, vol. 40, no. 2, pp. 167–176, 2013.
- [32] C. Kermisch, C. Depaus, and P. E. Labeau, "A contribution to the analysis of equity associated with high-level radioactive waste management," *Prog. Nucl. Energy*, vol. 92, pp. 40–47, 2016.
- [33] G. Alonso, E. Martinez, J. R. Ramirez, and H. Hernandez, "Radiotoxicity implications and reduction strategies of minor actinide in a boiling water reactor," *Ann. Nucl. Energy*, vol. 99, pp. 410–420, 2017.