

PEMUNGUTAN ULANG BAHAN SASARAN ^{203}Tl MELALUI PEMBENTUKAN $^{203}\text{Tl}(\text{OH})_3$ DAN $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$

Sunarhadijoso Soenarjo ¹⁾, Triyanto ¹⁾, Nina Yuliana ²⁾, Dian Indriani ³⁾.

ABSTRAK.

PEMUNGUTAN ULANG BAHAN SASARAN ^{203}Tl MELALUI PEMBENTUKAN $^{203}\text{Tl}(\text{OH})_3$ DAN $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$. Bahan sasaran ^{203}Tl pengkayaan tinggi dipergunakan sebagai target pada produksi radioisotop medis ^{201}Tl melalui reaksi inti $^{203}\text{Tl} (p, 3n) ^{201}\text{Pb} \rightarrow ^{201}\text{Tl}$. Karena ^{203}Tl pengkayaan tinggi sangat mahal dan tidak selalu mudah didapatkan, maka diperlukan teknologi pemungutan ulang ^{203}Tl dari limbah proses radioisotop ^{201}Tl . Teknik pemungutan ulang yang menghasilkan bentuk akhir $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ padat menjadi pilihan karena $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ mempunyai kestabilan yang baik dan merupakan bahan dasar penyiapan sasaran. Rendemen pemungutan ulang juga mudah ditentukan karena hasil akhir berupa zat padat yang mudah ditimbang. Proses pemungutan ulang mencakup 4 tahapan penting yaitu pemisahan ^{203}Tl sebagai $^{203}\text{Tl}(\text{I})$ dari matriks limbah, oksidasi $^{203}\text{Tl}(\text{I})$ menjadi $^{203}\text{Tl}(\text{III})$ menggunakan Br_2 dalam CHCl_3 , pengendapan $^{203}\text{Tl}(\text{III})$ sebagai $^{203}\text{Tl}(\text{OH})_3$ dan pengubahan $^{203}\text{Tl}(\text{OH})_3$ menjadi $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$. Rendemen pemungutan ulang ditentukan dengan membandingkan berat $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ yang diperoleh terhadap kandungan ^{203}Tl dalam limbah yang ditentukan terlebih dahulu dengan spektrofotometri UV pada panjang gelombang 214 nm. Pada proses simulasi menggunakan Tl alam didapatkan rata-rata rendemen pemungutan ulang sebesar $(80,65 \pm 1,05) \%$ berdasarkan pada total Tl yang digunakan dalam simulasi limbah proses ^{201}Tl . Penerapan proses pemungutan ulang dari campuran limbah pra-iradiasi dan limbah pasca-iradiasi menghasilkan rendemen pemungutan ulang ^{203}Tl sebesar 81,02 %.

ABSTRACT.

CHEMICAL RECOVERY OF ^{203}Tl TARGET THROUGH PRECIPITATION OF $^{203}\text{Tl}(\text{OH})_3$ AND CONVERSION TO $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$. High-enriched ^{203}Tl is preferably used as target material for production of ^{201}Tl medical radioisotope through nuclear reaction of $^{203}\text{Tl} (p, 3n) ^{201}\text{Pb} \rightarrow ^{201}\text{Tl}$. Because of the high cost and limited availability of high-enriched ^{203}Tl , a chemical recovery of ^{203}Tl from ^{201}Tl -processing waste is necessary. Method of chemical recovery giving final product as $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ is chosen due to reasons that $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ is stable and suitable for target preparation and the efficiency of the recovery can be easily determined.

¹⁾ Pusat Pengembangan Radioisotop dan Radiofarmaka, BATAN, Serpong.

²⁾ Fakultas Teknik, Universitas Muhammadiyah, Jakarta.

³⁾ Fakultas Farmasi, Universitas Pancasila, Jakarta.

The chemical recovery covers the separation of ^{203}Tl as $^{203}\text{Tl(I)}$ from the waste matrices, oxidation of $^{203}\text{Tl(I)}$, precipitation of the oxidized ^{203}Tl as its hydroxide and conversion of the hydroxide to $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$. The yield of the recovery was determined by comparing the weight of the resulting $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ to the initial ^{203}Tl content that was previously measured by means of UV-spectrophotometry at a wavelength of 214 nm. From simulation processes using natural thallium, instead of enriched ^{203}Tl , an average-recovery yield was found to be $(80.65 \pm 1.05)\%$ based on the initial thallium used. The recovery of ^{203}Tl from a mixture of pre and post irradiation wastes of ^{203}Tl has been carried out giving a recovery yield of 81.02 %.

PENDAHULUAN

Radioisotop medis ^{201}Tl dihasilkan dalam siklotron melalui reaksi inti $^{203}\text{Tl} (p, 3n) ^{201}\text{Pb} \rightarrow ^{201}\text{Tl}$ [1,2,3]. Energi ambang partikel proton untuk menghasilkan ^{201}Pb menurut reaksi inti tersebut adalah 18 Mev, sementara penampang lintang maksimum didapatkan pada energi proton sebesar 30 Mev. Karena itu fasilitas siklotron di P2RR yang dapat menghasilkan proton dengan rentang energi 24 - 27 [4] sangat mungkin dimanfaatkan untuk tujuan pembuatan radioisotop ^{201}Tl .

Sesuai dengan konstruksi fasilitas iradiasi yang ada, preparasi bahan sasaran dilakukan melalui proses elektroplating pada keping penyangga target yang pada proses elektroplating tersebut difungsikan sebagai katoda [3,5]. Penggunaan bahan sasaran ^{203}Tl pengkayaan tinggi (lebih dari 99 %) lebih menjadi pilihan dibandingkan bahan sasaran Tl-alam, karena ^{203}Tl dengan kelimpahan alami sebesar 70,5 % memungkinkan reaksi inti samping yang memberikan kontaminasi signifikan dalam produk ^{201}Tl yang dihasilkan [6]. Bahan sasaran ^{203}Tl umumnya tersedia dalam bentuk serbuk $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$, namun harganya sangat mahal (pada tahun 1992 mencapai \$ 2.890 per gram [7]). Karena itu upaya pemungutan ulang ^{203}Tl dari limbah proses radioisotop ^{201}Tl menjadi sangat penting artinya dalam efisiensi ekonomis penggunaan bahan sasaran ^{203}Tl tersebut.

Teknik pemungutan ulang yang menghasilkan bentuk akhir $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ padat lebih merupakan alternatif terpilih dibandingkan dengan teknik yang menghasilkan bentuk akhir larutan elektroplating [6]. Hasil pemungutan ulang dalam bentuk $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ sangat sesuai untuk preparasi bahan sasaran berikutnya, serta mempunyai kestabilan yang baik selama penyimpanan. Kecuali itu, bentuk akhir sebagai senyawa padat akan memudahkan penentuan efisiensi pemungutan ulang, karena produk akhir dapat langsung ditimbang.

Dalam percobaan ini dilakukan teknik pemungutan ulang ^{203}Tl diperkaya dari limbah proses radioisotop ^{201}Tl berdasarkan metoda yang dilaporkan Kayfus dan kawan-kawan [8]. Teknik pemungutan ulang mencakup 4 tahapan perlakuan, berturut-turut pemisahan Tl dari matriks limbah sebagai Tl(I), oksidasi Tl(I) menjadi Tl(III), pengendapan Tl(III) sebagai Tl(OH)₃ dan pengubahan Tl(OH)₃ menjadi Tl₂O₃.

Tujuan dari percobaan ini adalah untuk mengembangkan teknik dan metoda pemungutan ulang ^{203}Tl diperkaya dari limbah proses radioisotop ^{201}Tl sebagai upaya peningkatan efisiensi penggunaan bahan sasaran ^{203}Tl dan penerapan sistem jaminan kualitas dalam rangkaian proses radioisotop ^{201}Tl di P2RR.

TATA KERJA.

Bahan dan peralatan.

Larutan induk standar Tl disiapkan dengan melarutkan sejumlah Tl metal dalam asam sulfat pekat dan kemudian mengencerkannya dengan air yang telah dialiri dengan gas SO_2 . Limbah proses radioisotop ^{201}Tl diperoleh dari Laboratorium Radioisotop Siklotron P2RR. Limbah pra-iradiasi diterima dalam 2 wadah masing-masing berisi limbah sekitar 200 mL dan limbah pasca-iradiasi (yang telah diluruhkan) dalam 6 wadah masing-masing berisi kira-kira 50 mL. Bahan pereaksi kimia dengan tingkat kemurnian kimia p.a. adalah produksi E. Merck, kecuali gas SO_2 yang produksi Matheson. Air demineral diperoleh dari fasilitas pemurnian air di P2TRR, BATAN.

Spektrofotometer UV/Vis Model V-550 dari JASCO yang dilengkapi dengan unit komputasi, perangkat lunak Spectra Manager for Windows dan HP Desk Jet-400 Printer digunakan untuk penentuan Tl dalam larutan [9].

Pengukuran Tl secara spektrofotometri UV.

Pengukuran Tl secara spektrofotometri dilakukan pada panjang gelombang maksimum 214 nm dengan menggunakan persamaan regresi larutan baku $A = 0,0013 + 0,0223 C$ dengan C adalah konsentrasi Tl dalam mg/L [9]. Setiap cuplikan yang akan diukur diperiksa spektrum serapannya dan dibandingkan dengan spektrum serapan larutan Tl(I) standar. Reliabilitas pengukuran diuji melalui pengukuran langsung dengan jumlah Tl standar dan faktor pengenceran yang variatif.

Pemisahan Tl dari simulasi limbah proses radioisotop ^{201}Tl .

Sebelum perlakuan percobaan menggunakan limbah proses yang sebenarnya, dilakukan tahapan percobaan dengan simulasi limbah proses menggunakan Tl alam. Simulasi limbah proses disiapkan dengan tata kerja seperti dilaporkan sebelumnya [9].

Sejumlah tertentu Tl metal (0,70 – 1,25 g) dilarutkan dalam 2 mL H₂SO₄ pekat dengan bantuan pemanasan dan penambahan beberapa tetes H₂O₂ 30 %. Kemudian ditambahkan sebanyak 15 mL air yang telah dialiri gas SO₂ untuk tetap mempertahankan tingkat oksidasi Tl sebagai Tl(I), dan pH larutan diatur mencapai 2 – 3 dengan penambahan beberapa tetes larutan NaOH 10 M. Diasumsikan bahwa limbah proses mengandung matriks organik (m-kresol dan pepton) yang berasal dari proses pra-iradiasi dan matriks anorganik Fe(III), Cu(II) dan Ag(I) yang berasal dari proses pasca-iradiasi [5,9]. Matriks limbah tersebut berturut-turut ditambahkan dalam bentuk 1 mL larutan m-kresol, 2 mL larutan pepton (25 mg/mL), 1 mL larutan Fe(NO₃)₃ · 9H₂O (5 mg/mL), 1 mL larutan CuSO₄ (5 mg/mL) dan 1 mL larutan AgNO₃ (5 mg/mL).

Matriks anorganik diendapkan dengan penambahan larutan NaOH 10 M diikuti dengan filtrasi dan pencucian endapan menggunakan larutan NaOH 0,05 M. Filtrat penyaringan dan filtrat pencucian disatukan dan diasamkan dengan penambahan H₂SO₄ pekat sampai mencapai pH 2 - 3, dan kemudian diekstraksi dengan benzen. Fase airnya dipisahkan, ditambahkan sedikit serbuk karbon dan dididihkan sebentar sebelum kemudian disaring dan dipindahkan secara kuantitatif ke dalam sebuah labu takar. Selanjutnya filtrat diperiksa spektrum serapannya dan dibandingkan dengan spektrum serapan larutan Tl(I) standar. Kandungan Tl ditentukan untuk meyakinkan bahwa Tl telah terpisah secara kuantitatif dalam bentuk Tl(I).

Oksidasi Tl(I) dan perubahan menjadi Tl₂O₃.

Fraksi Tl(I) hasil pemisahan dioksidasi menggunakan Br₂ dalam CHCl₃ yang ditambahkan sedikit demi sedikit dengan pengadukan magnetik yang kontinyu. Bila telah tidak terjadi perubahan warna Br₂/CHCl₃ yang ditambahkan, maka penambahan Br₂/CHCl₃ dihentikan. Fraksi airnya dipisahkan dan dicuci dengan CHCl₃, kemudian direaksikan dengan larutan NaOH 10 M yang ditambahkan secara bertahap untuk mengendapkan Tl teroksidasi sebagai Tl(OH)₃. Selanjutnya endapan dicuci dengan air sampai pH air cucian mencapai netral dan kemudian endapan dikeringkan di dalam oven pada suhu 90 - 100°C sampai diperoleh berat konstan sebagai Tl₂O₃.

Penetapan Tl dalam contoh limbah proses radioisotop ²⁰¹Tl.

Keseluruhan limbah proses dicampur dengan baik dan ditentukan total volumenya, kemudian dicuplik sebanyak 1 mL untuk penentuan kandungan taliumnya. Volume cuplikan diencerkan sampai kira-kira 10 mL dan kemudian ditambahkan sedikit demi sedikit larutan NaOH 10 M disertai dengan pengadukan secara berkala. Selanjutnya dilakukan tahapan pemisahan Tl seperti perlakuan pada larutan simulasi limbah.

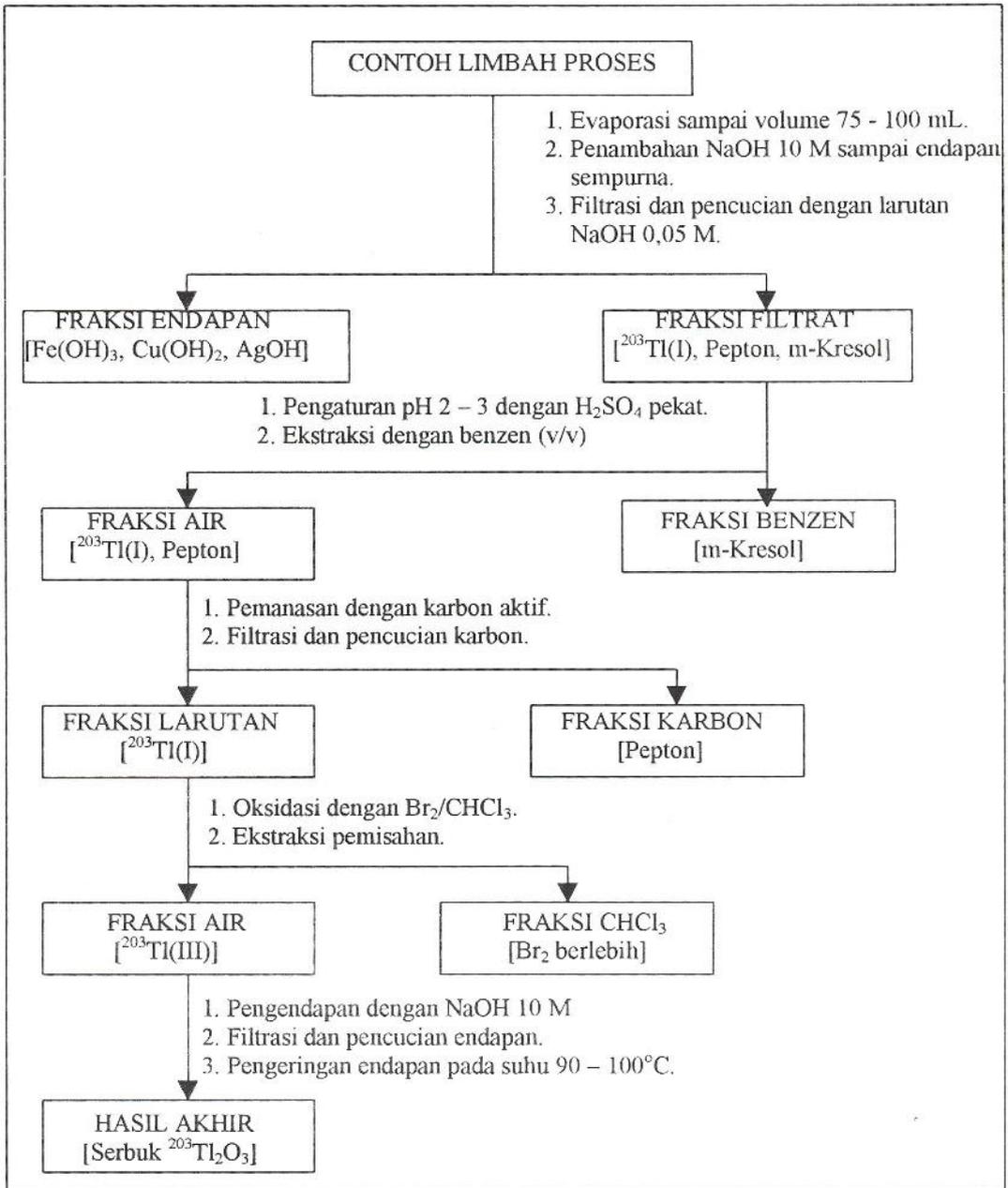
Larutan Tl(I) yang dihasilkan diukur secara spektrofotometri UV seperti diuraikan di atas. Reliabilitas pengukuran diuji melalui pengukuran adisi standar dengan jumlah penambahan standar Tl alam dan faktor pengenceran yang variatif.

Pemungutan ulang ^{203}Tl dari campuran limbah proses radioisotop ^{201}Tl .

Campuran limbah, setelah dicuplik untuk penentuan kandungan ^{203}Tl , diuapkan dengan pemanasan di bawah suhu didihnya sampai diperoleh volume antara 75 - 100 mL. Kemudian ditambahkan larutan NaOH 10 M secara bertahap untuk mengendapkan matriks anorganik. Selanjutnya dilakukan proses pemisahan spesi Tl, oksidasi Tl(I), pengendapan $\text{Tl}(\text{OH})_3$ dan pengubahan menjadi Tl_2O_3 mengikuti prosedur yang ditunjukkan pada Gambar 1.

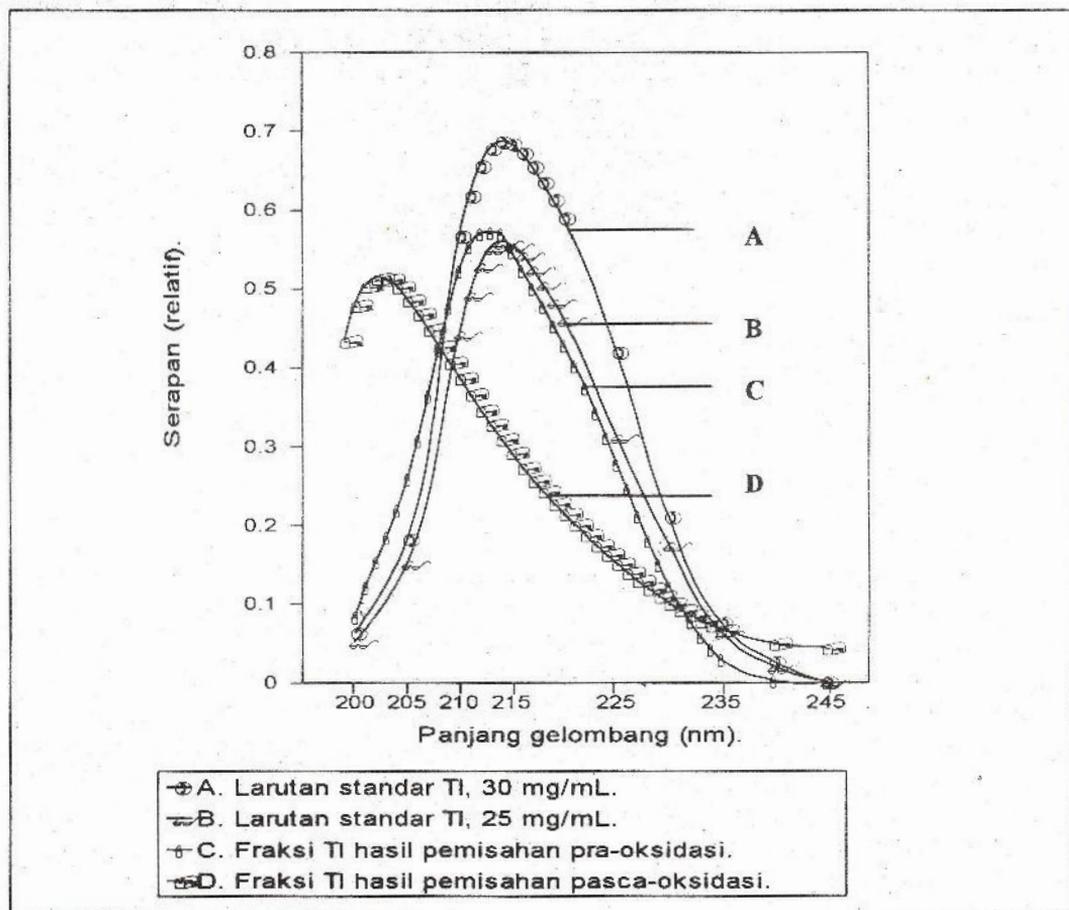
HASIL PERCOBAAN DAN PEMBAHASAN.

Penentuan Tl(I) dapat dilakukan dengan metoda spektrofotometri UV karena pola spektrum serapan mempunyai puncak serapan tunggal yang stabil dan proporsional dengan konsentrasi, yaitu pada panjang gelombang 214 nm [9]. Akan tetapi adanya matriks anorganik Fe(III), Cu(II) dan Ag(I) serta matriks organik (pepton dan m-kresol) akan sangat mengganggu pengukuran sehingga harus dilakukan pemisahan terlebih dahulu. Pemisahan matriks anorganik dilakukan melalui pengendapan dengan larutan NaOH tetapi tidak dengan larutan NH_4OH karena Cu(II) dan Ag(I) dapat membentuk kompleks amoniakal yang larut dalam air. Matriks organik dipisahkan melalui ekstraksi pelarut menggunakan benzen diikuti dengan adsorpsi menggunakan karbon aktif. Kesempurnaan pemisahan Tl(I) dari matriks pengotornya dapat diamati melalui pemeriksaan pola spektrum serapan fraksi Tl(I) dibandingkan dengan pola spektrum serapan larutan Tl(I) standar [9].



Gambar 1. Skema proses pemungutan ulang ^{203}Tl dari limbah proses radioisotop ^{201}Tl

Pada Gambar 2 ditunjukkan contoh pola spektrum serapan fraksi Tl(I) hasil pemisahan dari matriks limbah (A) dibandingkan dengan spektrum serapan larutan Tl(I) standar (B). Kemiripan pola spektrum serapan (A) dan (B) menunjukkan bahwa Tl(I) dalam matriks limbah proses dapat dipisahkan dengan baik sebagai Tl(I). Di sisi lain, spektrum serapan larutan Tl pasca oksidasi (C) memberikan puncak serapan yang bergeser ke arah panjang gelombang yang lebih rendah, yaitu sekitar 202 – 203 nm dari panjang gelombang maksimum Tl(I) pada 213 – 214 nm. Fenomena ini menunjukkan bahwa perbedaan tingkat energi dasar dengan dengan tingkat energi tereksitasi dari elektron terluar pada Tl(III) adalah lebih besar dibandingkan pada Tl(I).



Gambar 2. Profil spektrum serapan larutan Tl pada daerah UV.

Pengukuran Tl(I) hasil pemisahan dari matriks simulasi limbah proses menunjukkan bahwa pemisahan Tl(I) dapat dilaksanakan secara kuantitatif. Hasil pengukuran juga menunjukkan tingkat kedapatulangan, ketepatan dan reliabilitas yang baik ditandai dengan standar deviasi yang rendah, perolehan kembali yang tinggi dan hasil uji-t di dalam rentang t-tabel seperti terlihat pada Tabel 1.

Tabel 1. Penentuan Tl dalam fraksi Tl(I) hasil pemisahan dari matriks simulasi limbah proses.

KANDUNGAN Tl STANDAR [g]	JUMLAH Tl TERUKUR [g] ^{a)}	PEROLEHAN KEMBALI Tl [%]	HASIL UJI-t	
			t-HITUNG	t-TABEL ^{c)}
0,7017 ^{b)}	(0,7035 ± 0,0043)	(100,26 ± 0,61)	0,957	Antara - 2,776 dan + 2,776
0,9047 ^{b)}	(0,9056 ± 0,0020)	(100,10 ± 0,22)	1,006	
1,0515 ^{b)}	(1,0522 ± 0,0030)	(100,07 ± 0,29)	0,545	
1,1222 ^{b)}	(1,1267 ± 0,0061)	(100,40 ± 0,54)	1,652	
1,2146 ^{b)}	(1,2176 ± 0,0052)	(100,24 ± 0,43)	1,254	

KETERANGAN :

- a). Harga rata-rata dari pengulangan N = 5.
- b). Cuplikan diukur dengan metoda pengukuran langsung, faktor pengenceran variatif antara 800 sampai 16.700 kali.
- c). Harga t-Tabel untuk Uji-t 2 arah dengan derajat kebebasan (N-1) = 4 dan aras keberartian P = 0,05 [14].

Tahapan oksidasi Tl(I) menjadi Tl(III) diperlukan karena Tl(I) tidak dapat diendapkan sebagai senyawa hidroksidanya [10], sedangkan Tl(III) dalam suasana basa akan mengendap sebagai Tl(OH)₃ dengan harga Ksp antara 10⁻³⁷ – 10⁻⁵³ [11]. Oksidasi Tl(I) menjadi Tl(III) dapat dilakukan dengan Br₂ [8,12]. Penggunaan sistem Br₂/CHCl₃ maupun sistem Br₂/H₂O menghasilkan rendemen perolehan Tl₂O₃ rata-rata yang kira-kira sama, namun sistem Br₂/H₂O menghasilkan fluktuasi hasil yang lebih lebar menunjukkan tingkat kedapatulangan yang lebih rendah (standar deviasi tinggi), seperti dapat dilihat pada Tabel 2. Karena itu penggunaan sistem Br₂/CHCl₃ lebih disarankan dari pada penggunaan sistem Br₂/H₂O.

Tabel 2. Rendemen perolehan kembali Tl sebagai Tl_2O_3 .

SISTEM OKSIDATOR	JUMLAH Tl(I) [g]	Tl ₂ O ₃ YANG DIHASILKAN		RENDEMEN PEROLEHAN Tl RATA-RATA [%]
		JUMLAH [g]	RENDEMEN Tl [%]	
Br ₂ /CHCl ₃	1,000	0,901	80,60	(80,65 ± 1.04) %
	2,063	1,836	79,64	
	3,416	3,119	81,71	
Br ₂ /H ₂ O *)	2,097	2,059	87,87	(80,14 ± 5.86) %
	2,000	1,748	80,89	
	1,079	0,938	77,76	
	0,510	0,422	74,05	

KETERANGAN :

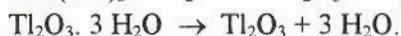
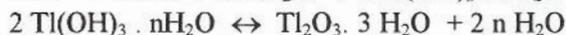
*) Kelebihan Br₂ dipisahkan dengan ekstraksi menggunakan CHCl₃.

Tidak kuantitatifnya rendemen perolehan kembali Tl menunjukkan sebagian Tl yang terlepas pada tahapan oksidasi sampai dengan pencucian endapan $\text{Tl}(\text{OH})_3$. Dilaporkan oleh Kayfus dan kawan-kawannya [8] bahwa kelarutan $\text{Tl}(\text{OH})_3$ dalam air akan menurun dengan kenaikan pH, dan pada pH 12 kelarutan $\text{Tl}(\text{OH})_3$ telah lebih rendah dari limit deteksi. Bersesuaian dengan hasil tersebut, dalam percobaan ini didapati bahwa $\text{Tl}(\text{OH})_3$ terendapkan sempurna pada penambahan NaOH 10 M sampai pH campuran mencapai 12, ditandai dengan tidak terjadinya kekeruhan pada penambahan lebih lanjut larutan NaOH ke dalam sistem $\text{Tl}(\text{III})/\text{Tl}(\text{OH})_3$. Karena itu diduga hilangnya sebagian Tl terjadi pada tahapan oksidasi dan pemisahan kelebihan Br₂. Walaupun masih perlu pembuktian lebih lanjut, diduga spesi Tl teroksidasi mengalami reaksi samping dengan Br₂ berlebih dalam suasana asam menghasilkan kompleks tetrabromida TlBr_4^- yang larut dalam CHCl₃.

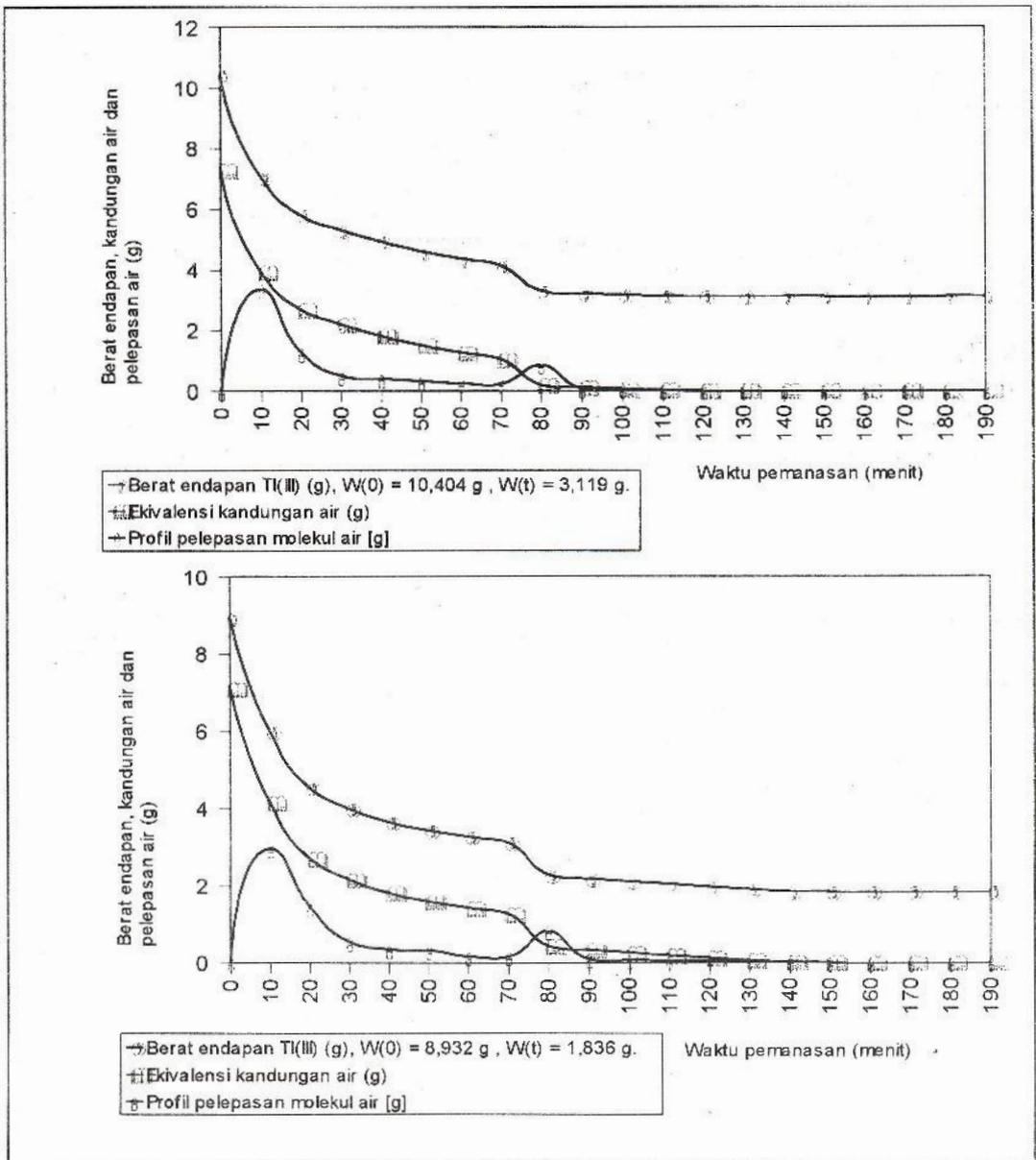
Konversi $\text{Tl}(\text{OH})_3$ menjadi Tl_2O_3 merupakan tahapan terakhir prosedur pemungutan ulang yang dilakukan. Analogi dengan pembentukan $\text{Tl}(\text{I})$ -oksida [Tl_2O] yang dapat dilakukan dengan memanaskan $\text{Tl}(\text{I})$ -hidroksida [TlOH] pada temperatur 100°C atau $\text{Tl}(\text{I})$ -karbonat [Tl_2CO_3] pada temperatur 700°C [12], maka dapat diharapkan bahwa pemanasan $\text{Tl}(\text{III})$ -hidroksida [$\text{Tl}(\text{OH})_3$] pada temperatur 100°C juga akan menghasilkan $\text{Tl}(\text{III})$ -oksida [Tl_2O_3]. Pada Gambar 3 terlihat bahwa pemanasan $\text{Tl}(\text{III})$ -hidroksida dengan berat awal yang berbeda, pada suhu 90 - 100°C, menghasilkan penurunan berat dengan profil yang sama.

Ekivalensi kandungan air dalam endapan dan pelepasan air selama pemanasan menunjukkan bahwa terdapat fraksi air yang terikat secara fisik sebagai kebasahan dan ada fraksi air yang terikat sebagai hidrat, ditandai dengan adanya dua puncak pada kurva pelepasan molekul air.

Struktur kimia yang tepat untuk senyawa hidrat Tl(III) masih banyak diperdebatkan [8,12], tetapi karakterisasi difraksi sinar X dari serbuk hidrat Tl(III) menunjukkan kesamaan pola spektrum difraksi dengan kristal Tl_2O_3 [12]. Visualisasi fisis produk pemungutan ulang yang dihasilkan pada percobaan ini sesuai dengan sifat fisik Tl(III)-oksida atau *thallium sesquioksida* [13], yaitu serbuk kristal berwarna coklat dan tidak larut dalam air. Fenomena ini memperkuat asumsi bahwa pembentukan Tl_2O_3 mengikuti persamaan reaksi berikut :



Contoh limbah proses radioisotop ^{201}Tl merupakan campuran limbah preparasi target (pra-iradiasi) dan limbah pemisahan radionuklida (pasca-iradiasi), namun belum diketahui jumlah kandungan ^{203}Tl -nya. Karena itu dilakukan pencuplikan untuk pengukuran ^{203}Tl . Reliabilitas pengukuran diuji kembali dengan metoda adisi standar. Hasilnya ditampilkan pada Tabel 3, menunjukkan perbedaan yang tidak signifikan antara hasil pengukuran secara langsung dan hasil pengukuran secara adisi standar. Perhitungan rata-rata menunjukkan bahwa di dalam contoh limbah yang diperiksa masih terdapat kandungan ^{203}Tl sebanyak $(5,8084 \pm 0,0153)$ mg/mL.



Gambar 3. Profil efek pemanasan (suhu 90 - 100°C) pada endapan $\text{Tl}(\text{OH})_3$.

Tabel 3. Penentuan kandungan ^{203}Tl dalam contoh limbah proses radioisotop ^{201}Tl .

NOMOR PROSES	TEKNIK PENGUKURAN	KADAR TI YANG DITAMBAHKAN (mg/mL)	KADAR TI TERUKUR ^{a)} (mg/mL)	KANDUNGAN ^{203}Tl DALAM LIMBAH ^{b)} (mg/mL)
1	Langsung	---	(5,7892 ± 0,0274)	(5,8084 ± 0,0153)
2	Langsung	---	(5,8266 ± 0,0452)	
3	Adisi standar	0,6008	(6,4104 ± 0,0112)	
4	Adisi standar	1,2016	(7,0098 ± 0,0050)	

KETERANGAN :

- Rata-rata pengukuran dengan jumlah pengulangan $N = 5$ dan faktor pengenceran variatif antara 200 sampai 400 kali.
- Hasil perhitungan rata-rata dari pengukuran secara langsung dan pengukuran secara adisi standar.

Dengan volume total sebanyak 700 mL maka diperkirakan dalam contoh limbah tersebut masih terdapat kandungan ^{203}Tl sebanyak kira-kira 4,067 gram yang tentunya cukup layak untuk dapat diperoleh kembali. Proses pemungutan ulang dengan prosedur yang ditunjukkan pada Gambar 1 menghasilkan produk akhir serbuk $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ sebanyak 3,685 gram. Jumlah ini ekuivalen dengan kandungan ^{203}Tl sebesar 3,295 gram. Dengan demikian dihasilkan rendemen perolehan kembali ^{203}Tl sebesar 81,02 %, bersesuaian dengan hasil yang didapatkan dari proses simulasi sebesar $(80,65 \pm 1,05) \%$. Rangkuman data limbah dan hasil pemungutan ulang secara keseluruhan ditunjukkan pada Tabel 4.

Tabel 4. Hasil pemungutan ulang ^{203}Tl dari limbah proses radioisotop ^{201}Tl .

VARIABEL	BESARAN TERUKUR
Jenis dan volume limbah	Limbah pra-iradiasi, 2 x 200 mL Limbah pasca-iradiasi, 6 x 50 mL
Kandungan Tl terukur ^{a)}	(5,8084 ± 0,0153) mg/mL
Estimasi total ^{203}Tl ^{b)}	4,067 gram
Berat $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ yang diperoleh	3,685 gram
Kandungan ^{203}Tl yang diperoleh	3,295 gram
Rendemen pemungutan ulang	81,02 %

KETERANGAN:

a). Dari data pada Tabel 3.

b). Volume pencuplikan 1 mL diabaikan terhadap volume total sebesar 700 mL.

KESIMPULAN.

Pemungutan ulang bahan sasaran ^{203}Tl pengkayaan tinggi dari limbah proses radioisotop ^{201}Tl dapat dilakukan melalui tahapan pemisahan fraksi ^{203}Tl sebagai $^{203}\text{Tl}(\text{I})$, oksidasi $^{203}\text{Tl}(\text{I})$ menjadi $^{203}\text{Tl}(\text{III})$ dan pengendapan $^{203}\text{Tl}(\text{OH})_3$ diikuti dengan pengubahan menjadi $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$. Matriks anorganik dalam limbah dipisahkan sebagai senyawa hidroksidanya, sedangkan matriks organik dipisahkan melalui ekstraksi pelarut diikuti dengan adsorpsi karbon aktif.

Oksidasi Tl(I) dilakukan dengan oksidator Br_2 dalam CHCl_3 . Diduga terjadi reaksi samping pembentukan kompleks tetrabromida TlBr_4^- yang larut dalam CHCl_3 dan mengakibatkan tidak kuantitatifnya rendemen pemungutan ulang. Rendemen pemungutan ulang ditentukan dengan membandingkan berat $^{203}\text{Tl}_2\text{O}_3$ yang dihasilkan terhadap total kandungan ^{203}Tl dalam limbah, yang ditentukan melalui spektrofotometri UV dengan panjang gelombang maksimum pada 214 nm. Diperoleh rendemen pemungutan ulang sebesar 81,02 %, bersesuaian dengan hasil simulasi menggunakan Tl alam yang menghasilkan rendemen pemungutan ulang rata-rata sebesar (80,65 ± 1,05) %.

DAFTAR PUSTAKA.

1. M.C. LAGUNAS-SOLAR, F.E. LITTLE, C.D. GOODART, "An Integrally Shielded, Transportable Generator System for Thallium-201 Production", *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 33 (1982) 1439 - 1443.
2. A.B. MALININ, M.D. KOZLOVA, A.S. SEVASTYANOVA, et al., "Production of No-Carrier-Added ^{201}Tl ", *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, 35[7] (1984) 685 - 687.
3. S. SOENARJO, H. SURYANTO, SILAKHUDIN, et al., "Penggunaan Fasilitas Siklotron BATAN Untuk Produksi Talium-201", *Majalah BATAN*, XXV[1/2] (1992) 26 - 40.
4. S. SOENARJO, S. ABRAHAM, H. SURYANTO, et al, "Modifikasi Siklotron CS-30 BATAN Menjadi Siklotron Ion Negatif", *Prosiding Pertemuan dan Presentasi Ilmiah Teknologi Akselerator dan Aplikasinya*, vol. 1 [2], (1999) 125 - 131.
5. S. SOENARJO, "Proses Produksi Tl-201 dan Ga-67", *Latihan Keahlian Operator Produksi Radioisotop*, PPR-Pusdiklat, BATAN (1991).
6. ANONYMOUS, "BATAN DMF-5068, AECL-VCR, Tl-201/Pb-201, DMF CP VCR 830-2", TRIUMF, Vancouver, *Unpublished Document* (1986).
7. P. QUINNEY, "Letter To Procurement Division of UPT-MPIN, From Nordion International INC.," February 12 (1992).
8. G.P. KAYFUS, T.E. BOOTHE, J.A. CAMPBELL, et al, "Chemical Recovery of Thallium-203 Following Production and Separation of Lead-201", *J. Radioanal. Chem.* 68[1-2] (1982) 269 - 276.
9. S. SOENARJO, D. INDRIANI, P. SARNIANTO, et al., "Determination of Thallium Content in ^{201}Tl -Processing Waste by UV-Spectrophotometry", *Atom Indonesia*, 24[1] (1998) 1 - 14.
10. G. SVEHLA, "Vogel's Qualitative Inorganic Analysis", 6th Edition, Longman Scientific & Technical, Harlow (1987) 246 - 248.
11. I.M. KORENMAN, "Analytical Chemistry of Thallium", Ann Arbor-Humphrey, Science Publisher, Inc., Ann Arbor (1969).
12. A.G. LEE, "The Chemistry Of Thallium", Elsevier Publishing Company, Amsterdam (1971) 92 - 102.
13. M. WINDHOLZ, S. BUDAVARI, L.Y. STROUMTSOS, G. FERTIG, "The Merck Index", 9th Edition, Merck & Co., Inc., Rahway (1976) 1194.
14. R.A. FISHER, F. YATES, "Statistical Tables for Biological, Agricultural, and Medical Research", Edinburg, Oliver and Boyd, Ltd. (1948).