

PENGARUH PENCUCIAN LARUTAN NaOCl DAN PENAMBAHAN KOLOM KEDUA ALUMINA TERHADAP YIELD DAN LOLOSAN ^{99}Mo DARI GENERATOR $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ BERBASIS PZC

Adang H.G., A. Mutalib, Hotman L, R. Awaludin, Sulaeman
Pusat Radioisotop dan Radiofarmaka – BATAN
Kawasan Puspiptek Serpong, Tangerang

ABSTRAK

PENGARUH PENCUCIAN LARUTAN NaOCl DAN PENAMBAHAN KOLOM KEDUA ALUMINA TERHADAP YIELD DAN LOLOSAN ^{99}Mo DARI GENERATOR $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ BERBASIS PZC. Alumina merupakan salah satu bahan utama dalam generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ yang berfungsi sebagai zat pengadsorpsi molibdenum. Keterbatasan daya serap alumina terhadap molibdenum menyebabkan senyawa ini tidak dapat digunakan sebagai pengisi kolom untuk generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ yang menggunakan ^{99}Mo hasil aktivasi neutron. Dengan diketemukannya senyawa baru sebagai zat pengadsorpsi molibdenum yaitu PZC (*poly zirconium compound*), telah memberikan harapan baru untuk dapat dilakukannya pembuatan generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$. Penelitian pembuatan generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ dengan menggunakan senyawa PZC sebagai *adsorbent* merupakan bentuk kerjasama antara PRR-BATAN dengan JAERI dan Kaken Co. Jepang. Dalam penelitian ini telah dilakukan percobaan pembuatan generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ dengan melihat pengaruh penambahan pencucian menggunakan larutan NaOCl terhadap *yield* dan lolosan ^{99}Mo (*^{99}Mo breakthrough*) dalam larutan $^{99\text{m}}\text{Tc}$ hasil elusi. Parameter lainnya yang digunakan untuk mengurangi lolosan ^{99}Mo dalam $^{99\text{m}}\text{Tc}$ hasil elusi adalah penambahan kolom alumina yang ditempatkan setelah kolom ^{99}Mo -PZC. Hasil penentuan kapasitas serap senyawa PZC terhadap molibdenum diperoleh dengan melihat aktivitas ^{99}Mo setelah pemanasan 3 jam campuran PZC dan molibdenum dan diperoleh hasil setiap gram PZC mampu menyerap 80-95 % mg dari 268 mg molibdenum yang direaksikan. Hasil penentuan *yield* elusi generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ dengan larutan pencuci salin diperoleh < 50 % dan *yield* meningkat menjadi > 80 % setelah pencucian dilakukan dengan menggunakan larutan NaOCl 0,5% atau 1%. Penggunaan larutan pencuci NaOCl 0,5 % dan penggunaan kolom alumina sebagai kolom kedua mampu menjaga kestabilan *yield* hasil elusi dan meminimalkan lolosan ^{99}Mo pada $^{99\text{m}}\text{Tc}$ hasil elusi.

Kata kunci: alumina, generator PZC, ^{99}Mo , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, NaOCl

ABSTRACT

EFFECT OF NaOCl SOLUTION TREATMENT AND SECOND COLUMN OF ALUMINA ON THE YIELD AND BREAKTHROUGH OF Mo-99 FROM Mo-99/Tc-99m GENERATOR BASED ON PZC. Alumina is one of main material in $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ generator as molybdenum adsorbent. Limitation of alumina adsorption capacity to molybdenum cause this material cannot be applied as column filler for generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ using ^{99}Mo from neutron activation. The invention of a new compound as molybdenum adsorbent, PZC (*poly zirconium compound*), shows that the materials is a promising adsorbent for generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ from (n, γ) irradiated molybdenum. The research of generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ by using adsorbent PZC is a cooperation between PRR-BATAN with JAERI and Kaken Co. Japan. In this research, the effects of addition of NaOCl solution to elution yield and ^{99}Mo breakthrough have been done. The other parameter used in this experiment to minimize ^{99}Mo breakthrough in $^{99\text{m}}\text{Tc}$ is addition of second column alumina placed after ^{99}Mo -PZC column. Adsorption capacity of PZC material to molybdenum determined by heating ^{99}Mo solution with PZC up to 3 hours and the result indicated 1 gram PZC adsorbed 80-95% ^{99}Mo from the reacted 268 mg molybdenum. Yield percentage of the $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ generator without rinsed by saline solution obtained < 50 % and the yield increased > 80% after the column washing by using NaOCl 0,5% or 1% solutions. Usage of both NaOCl 0,5% solution and alumina column as second column can prevent of yield stability and minimized ^{99}Mo breakthrough at $^{99\text{m}}\text{Tc}$ effluent.

Keywords: Alumina, PZC generator, ^{99}Mo , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, NaOCl.

PENDAHULUAN

Teknesium-99m merupakan radionuklida yang paling banyak digunakan dalam kedokteran nuklir, diperoleh dari hasil peluruhan ^{99}Mo dalam bentuk $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ generator dengan menggunakan ^{99}Mo dari hasil fisi ^{235}U . Pada saat ini, radionuklida $^{99\text{m}}\text{Tc}$ umumnya diperoleh dari generator yang berbasis kromatografi kolom menggunakan alumina sebagai penyerap ^{99}Mo . Radionuklida $^{99\text{m}}\text{Tc}$ diperoleh dengan cara mengelusi generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ dengan larutan salin. Tingginya permintaan pemakaian $^{99\text{m}}\text{Tc}$ di dalam kedokteran nuklir disebabkan sifat fisiknya yang ideal untuk keperluan diagnosis yaitu memiliki waktu paruh pendek (6 jam), tidak memancarkan partikel bermuatan dan mempunyai sinar gamma 141 keV yang sangat ideal untuk kamera gamma. Molibdenum-99 yang digunakan dalam generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ umumnya merupakan hasil belah dari ^{235}U yang ditembak dengan neutron thermal di reaktor sehingga mempunyai aktivitas jenis yang tinggi. Molibdenum-99 juga dapat diperoleh dari reaksi aktivasi (n, γ) di reaktor dari target ^{98}Mo alam atau yang diperkaya, meskipun demikian, ^{99}Mo yang dihasilkan mempunyai aktivitas jenis yang rendah dibanding dengan ^{99}Mo hasil pembelahan ^{235}U [1,2,3].

Terbatasnya daya serap alumina terhadap molibdenum (<10 mg Mo/g alumina) mengakibatkan sulitnya pengembangan generator teknesium dengan menggunakan ^{99}Mo dari hasil aktivasi neutron yang menghasilkan radionuklida ^{99}Mo dengan aktivitas jenis yang rendah [4,5].

Pengembangan ^{99}Mo dengan spesifik aktivitas rendah dari hasil aktivasi netron pertama kali

dilakukan dengan generator gel dari zirkonium atau titanium molibdat dan hal ini dianggap sebagai salah satu alternatif untuk menghasilkan $^{99\text{m}}\text{Tc}$ meskipun proses pembuatannya sulit dan memakan waktu lama [1].

Pada tahun 1994-1999 berdasarkan kerjasama antara Kaken Co. Jepang dengan JAERI, telah berhasil disintesa suatu senyawa polimer anorganik dengan nama PZC (*poly zirconium compound*) yang mempunyai daya serap terhadap Mo sebesar ~ 250 mg Mo/g PZC. Penemuan ini telah memberikan harapan untuk dapat membuat generator $^{99\text{m}}\text{Tc}$ dari ^{99}Mo hasil reaksi (n, γ) dengan aktivitas yang tinggi, tanpa limbah radionuklida yang berwaktu paruh panjang dan harga yang jauh lebih murah dari yang ada pada saat ini (^{99}Mo dari hasil fisi). Pada tahun 2000-2003, dengan adanya kerjasama antara BATAN dengan Kaken Co. Jepang, telah dilakukan berbagai penelitian yang berkaitan dengan kemungkinan untuk pembuatan generator $^{99\text{m}}\text{Tc}$ dari Mo hasil reaksi (n, γ) dengan PZC [1,3].

Dalam makalah ini akan dilaporkan hasil penelitian Generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ yang berbasis PZC berkenaan dengan pengaruh penambahan larutan pencuci NaOCl dan penambahan kolom alumina sebagai kolom kedua terhadap *yield* dan lolosan ^{99}Mo (*^{99}Mo breakthrough*) pada $^{99\text{m}}\text{Tc}$ hasil elusi.

TATA KERJA

Bahan dan Peralatan

Bahan utama yang digunakan dalam penelitian ini adalah radionuklida ^{99}Mo yang diperoleh dari hasil irradiasi MoO_3 di RSG-GAS selama 10 hari pada fluks $1,3 \times 10^{14}$ n.cm⁻².s⁻¹. Larutan ^{99}Mo

dibuat dengan konsentrasi radioaktif 50-60 mCi/ ml dan kandungan molibdenum 53,4 mg Mo/ml. PZC (*poly zirconium compound*) diperoleh dari Kaken Co. Japan. Peralatan gelas seperti kolom, beaker gelas, erlenmeyer, gelas ukur dan pipet ukur menggunakan bahan dari gelas Pyrex. Bahan kimia lainnya seperti $\text{SnCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, HCl, NaOH, metanol, HNO_3 , aseton (semuanya buatan Merck). *Single channel analyzer* (Veenstra Instrument) digunakan sebagai pencacah radioaktivitas. Spektrometer gamma yang dilengkapi dengan perangkat lunak Genie 2000 digunakan untuk penentuan aktivitas ^{99}Mo , kemurnian radionuklida dan menghitung aktivitas lolosan ^{188}Mo dalam hasil elusi. Kertas kromatografi Whatman-1 digunakan untuk penentuan kemurnian radiokimia $^{99\text{m}}\text{Tc}$ hasil elusi menggunakan metode kromatografi kertas, *Dose calibrator* (Victoreen) digunakan sebagai pencacah larutan bulk. Peralatan lain yang digunakan adalah pH meter, termometer dan pelat pemanas.

Pembuatan kolom alumina

Sebanyak 3 g (kolom panjang) dan 1,5 g (kolom pendek) alumina disuspensikan dalam akuades, kemudian suspensi tersebut dimasukkan ke dalam kolom gelas ukuran 1 x 8 cm. Kedua ujung kolom ditutup dengan septa dan seal aluminium.

Proses Penyerapan ^{99}Mo pada PZC dan loading ke kolom generator

Sebanyak 5 ml larutan ^{99}Mo dimasukkan ke dalam beaker gelas 50 ml, kemudian ditambahkan 35 ml akuades. Pada larutan tersebut ditambahkan perlahan-lahan 1 g senyawa PZC. Campuran direaksikan dengan pemanasan pada 90°C selama 3

jam. Setelah pemanasan, campuran didinginkan dan kemudian didekantasi, dicuci dengan 40 ml larutan salin (atau NaOCl) dan dimasukkan ke dalam kolom gelas ukuran 1 x 8 cm.

Elusi generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$

Kolom alumina dipasang di bawah kolom generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$. Generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ dielusi setelah 24 jam dengan menggunakan larutan salin sebanyak 10 ml. Pada larutan hasil elusi dilakukan pengujian-pengujian :

1. Penentuan aktivitas ^{99}Mo dalam kolom alumina menggunakan GIC
2. *Yield* hasil elusi

Penentuan lolosan ^{99}Mo (*molibdenum breakthrough*) pada hasil elusi

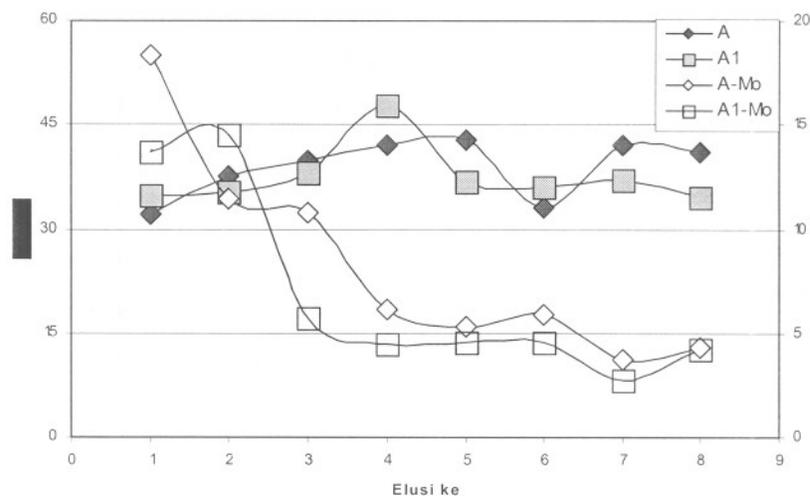
Larutan hasil elusi diluruhkan selama 2 minggu. Diambil 1 ml eluat, dimasukkan ke dalam vial 10 ml dan kemudian diencerkan dengan larutan salin sampai volume 10 ml. Besarnya aktivitas lolosan ^{99}Mo yang terdapat dalam larutan hasil elusi ditentukan menggunakan spektrometer gamma pada energi 366 keV.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Dari hasil perakitan generator Mo-99/Tc-99m, telah diperoleh bahwa kapasitas serap dari PZC terhadap molibdenum adalah sekitar 80 – 95 % (> 200 mg) dari total molibdenum yang direaksikan (268 mg molibdenum). Tingginya kapasitas serap PZC terhadap molibdenum ini akan memungkinkan untuk membuat suatu generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ dari hasil aktivasi yang mempunyai aktivitas spesifik rendah dibanding dengan ^{99}Mo hasil pembelahan ^{235}U .

Pada perakitan generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ dengan aktivitas $^{99}\text{Mo} > 100 \text{ mCi}$ dan dengan menggunakan larutan salin sebagai pencuci (Gambar 1), dari 8 kali elusi dengan larutan salin diperoleh $\text{yield} < 50 \%$ dengan lolaan ^{99}Mo antara $3 - 20 \mu\text{Ci } ^{99}\text{Mo}/\text{mCi } ^{99\text{m}}\text{Tc}$. Hasil ini menunjukkan bahwa yield dan lolaan ^{99}Mo yang diperoleh dalam $^{99\text{m}}\text{Tc}$ hasil elusi belum memenuhi persyaratan untuk generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ pada umumnya ($\text{yield} > 80 \%$ dan lolaan $^{99}\text{Mo} < 1,5 \mu\text{Ci } ^{99}\text{Mo}/\text{mCi } ^{99\text{m}}\text{Tc}$), sedangkan dari hasil penelitian yang dilakukan oleh Tanase dan kawan-kawan dengan aktivitas $^{99}\text{Mo} < 10 \text{ mCi}$ diperoleh bahwa yield hasil elusi $> 80 \%$ [1,2].

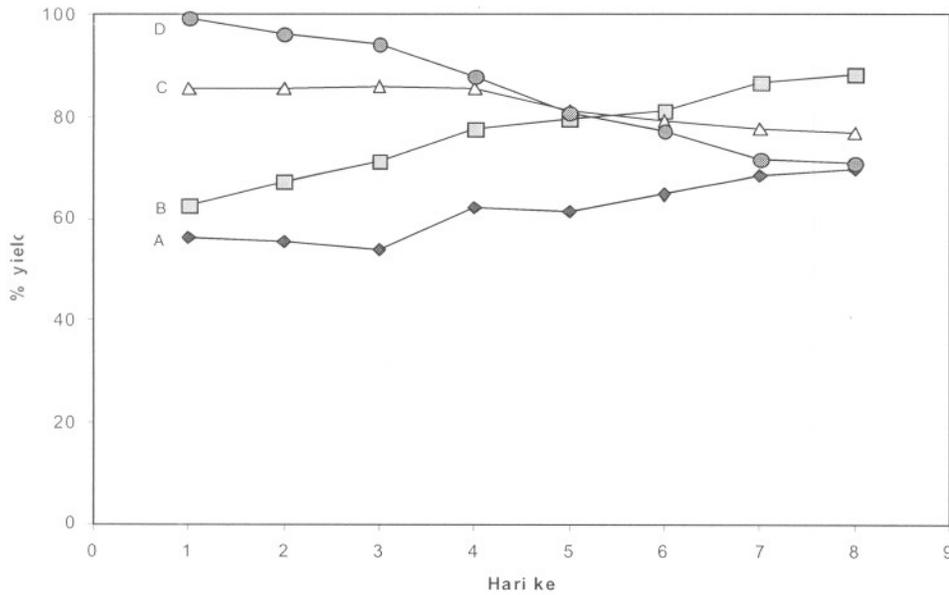
Rendahnya yield yang diperoleh kemungkinan disebabkan oleh adanya elektron tersolvatasi (*solvated electron*) yang terbentuk akibat radiasi partikel β tinggi dari ^{99}Mo yang akan mereduksi $^{99\text{m}}\text{Tc(VII)}$ dan $^{99}\text{Mo(VI)}$ membentuk valensi yang lebih rendah dari $^{99\text{m}}\text{Tc}$ dan ^{99}Mo . Terbentuknya $^{99\text{m}}\text{Tc}$ valensi rendah menyebabkan radionuklida tersebut akan tertahan pada kolom sehingga menghasilkan yield hasil elusi yang rendah dan terbentuknya ^{99}Mo valensi rendah akan menyebabkan tingginya lolaan Mo (^{99}Mo breakthrough) pada hasil elusi [3,4,5].



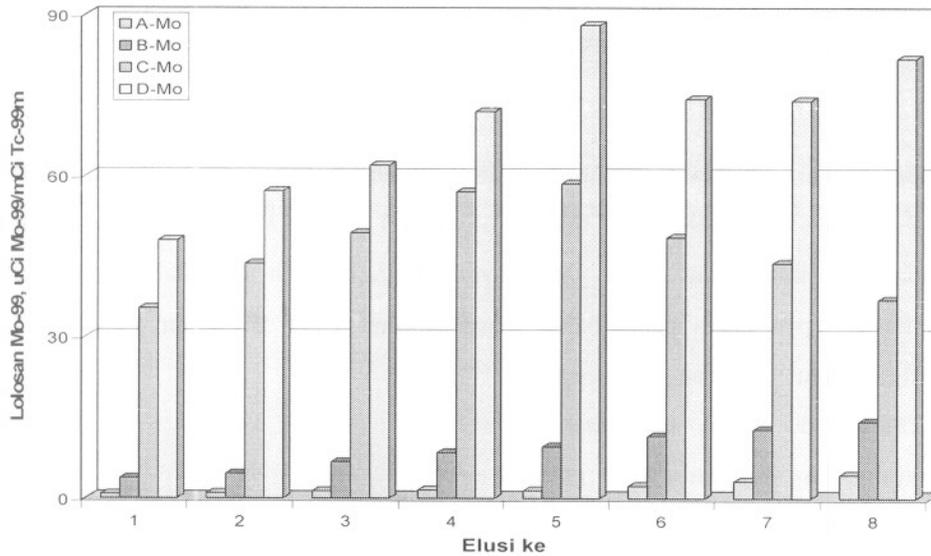
Gambar 1. Yield dan Lolosan ^{99}Mo dari sistem generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ Berbasis PZC dengan pencucian menggunakan NaCl 0,9 % (A = yield generator A, A-Mo = lolaan ^{99}Mo pada generator A, A1 = yield generator A1, A1-Mo = lolaan ^{99}Mo pada generator A1).

Penggunaan oksidator NaOCl dimaksudkan untuk menaikkan valensi $^{99\text{m}}\text{Tc}$ dan ^{99}Mo menjadi $^{99\text{m}}\text{Tc}^{7+}$ dan $^{99}\text{Mo}^{6+}$. Untuk mendapatkan konsentrasi NaOCl yang diperlukan dilakukan variasi konsentrasi yaitu 0,05 %, 0,1 %, 0,5 % dan 1 % sebagai larutan pencuci kolom generator sebelum dielusi dengan larutan salin. Hasil penggunaan variasi konsentrasi larutan pencuci NaOCl terhadap

yield dan lolaan ^{99}Mo dapat dilihat pada Gambar 2 dan Gambar 3. Pada konsentrasi larutan pencuci NaOCl 0,05 dan 0,1 % rata-rata yield yang diperoleh masih $< 80 \%$ dan lolaan ^{99}Mo masih tinggi ($0,73-15 \mu\text{Ci } ^{99}\text{Mo}/\text{mCi } ^{99\text{m}}\text{Tc}$) sedangkan untuk konsentrasi NaOCl 0,5 % dan 1 %, rata-rata yield diperoleh $> 80 \%$ tetapi lolaan ^{99}Mo naik dengan drastis menjadi $> 35 \mu\text{Ci } ^{99}\text{Mo}/\text{mCi } ^{99\text{m}}\text{Tc}$.



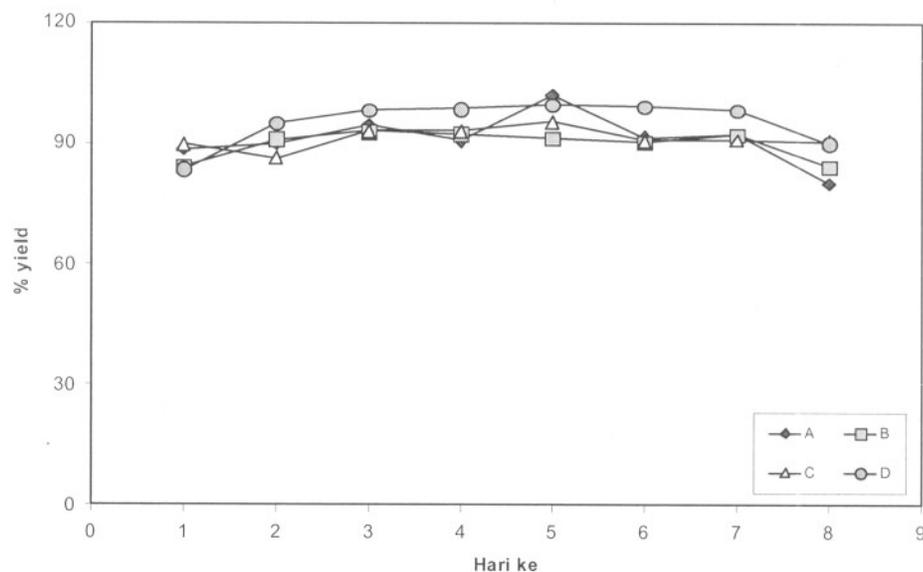
Gambar 2. Pengaruh pencucian dengan variasi kadar NaOCl terhadap yield molibdenum pada generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ berbasis PZC (A: dengan NaOCl 0,05 %, B: dengan NaOCl 0,1 %, C: dengan NaOCl 0,5 %), D: dengan NaOCl 1 %).



Gambar 3. Pengaruh pencucian dengan variasi kadar NaOCl terhadap lolosan Mo-99 (*Mo-99 breakthrough*) pada sistem Generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ berbasis PZC (A: dengan NaOCl 0,05 %, B: dengan NaOCl 0,1 %, C: dengan NaOCl 0,5 %), D: dengan NaOCl 1 %).

Dengan melihat hasil elusi dari variasi konsentrasi pencuci NaOCl pada Gambar 2 dan 3 dapat disimpulkan bahwa untuk meminimalkan lolosan ^{99}Mo pada hasil elusi perlu tambahan bahan yang dapat menyerap ^{99}Mo . Dalam penelitian ini dengan 5 ml larutan pencuci NaOCl 0,5 %, sebagai penyerap ^{99}Mo digunakan alumina yang dibuat

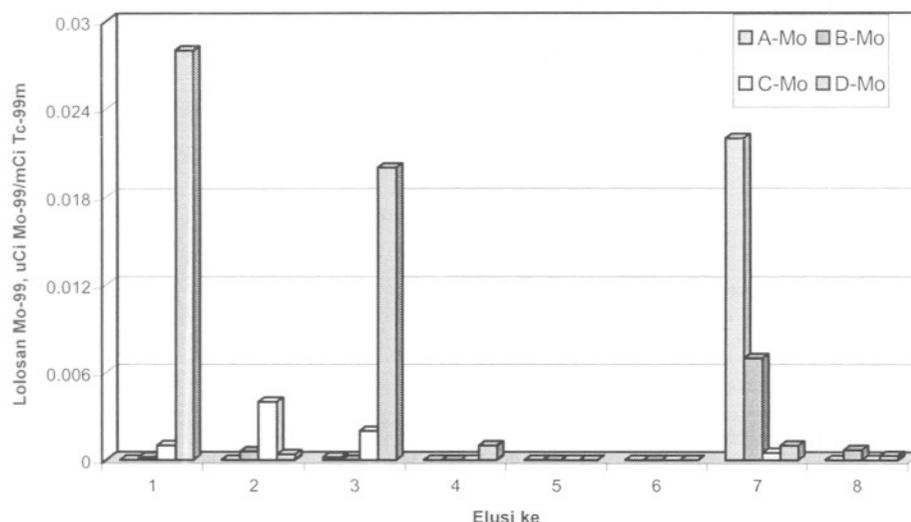
dalam ukuran kolom panjang yang berisi 3 g alumina dan kolom pendek yang berisi 1 g alumina. Hasil yang diperoleh dari penambahan kolom alumina sebagai kolom kedua dapat dilihat pada Gambar 4 dan 5.



Gambar 4. Pengaruh pemakaian kolom alumina sebagai penangkap lolosan Mo-99 pada *yield* generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ berbasis PZC (A dan B = kolom dengan berat alumina 3 g, C dan D = kolom dengan berat alumina 1 g)

Hasil percobaan variasi berat alumina terhadap *yield* hasil elusi (Gambar 4) tidak berpengaruh terhadap kestabilan *yield* yang diperoleh. Dari hasil percobaan penambahan kolom alumina dengan berat 3 g dan 1 g seperti yang terlihat pada Gambar 5, dapat menjelaskan bahwa untuk meminimalkan lolosan ^{99}Mo pada $^{99\text{m}}\text{Tc}$ hasil elusi diperlukan penambahan kolom alumina dengan berat minimum 1 g. Penggunaan berat alumina 1g didasarkan pada hasil yang

diperlihatkan dari Gambar 5 yaitu dengan berat alumina 1 g atau 3 g memperlihatkan lolosan ^{99}Mo yang terjadi masih 1/20 kali lebih kecil dari batas maksimum yang diijinkan ($0,15 \mu\text{Ci } ^{99}\text{Mo}/\text{mCi } ^{99\text{m}}\text{Tc}$).



Gambar 5. Lolosan ⁹⁹Mo pada hasil elusi ^{99m}Tc dari sistem generator ⁹⁹Mo/^{99m}Tc berbasis PZC (*poly zirconium compound*) dengan kolom alumina. (A-Mo dan B-Mo = lolosan ⁹⁹Mo dari kolom dengan 1 g alumina , C-Mo dan D-Mo = lolosan ⁹⁹Mo dari kolom dengan 3 g alumina).

KESIMPULAN

Dari hasil penelitian mengenai Generator ⁹⁹Mo/^{99m}Tc berbasis PZC dengan melihat pengaruh pencucian NaOCl dan penambahan kolom alumina terhadap kualitas ^{99m}Tc yang dihasilkan (*yield* dan lolosan ⁹⁹Mo), dapat disimpulkan bahwa pencucian dengan larutan NaOCl 0,5 % dapat menaikkan *yield* hasil elusi meskipun diikuti dengan kenaikan lolosan ⁹⁹Mo. Penambahan kolom alumina (1 g alumina) yang dipasang setelah kolom Generator ⁹⁹Mo-PZC dapat meminimalkan jumlah lolosan ⁹⁹Mo pada ^{99m}Tc hasil elusi. Kapasitas serap dari senyawa PZC terhadap molibdenum menunjukkan bahwa dari 268 mg molibdenum yang direaksikan dapat diserap sebesar 80-95 % .

DAFTAR PUSTAKA

1. TANASE M., TATENUMA K., ISHIKAWA K., KUROSAWA K., NISHINO M., HASEGAWA Y., A ^{99m}Tc Generator using a

New Inorganic Polymer Adsorbent for (n, γ) ⁹⁹Mo (1997), *Appl. Radiat. Isot.* Vol. 48, No. 5.

2. ANONIM, Quality Control Manual Mo-99 Fission Product, Medi Physics, USA.
3. MUTALIB A., GUNAWAN A.H., LUBIS H., AWALUDIN R., HAMID, SULAEMAN, ISHIKAWA K., SUMIYA K., HISHINUMA Y., YOSHIDA K., TATENUMA K., A Performance of (n, γ) ⁹⁹Mo/^{99m}Tc Generators Produced by Using PZC Materials and Irradiated Natural Molybdenum, Proceedings of The 2001 Workshop on the Utilization of Research Reactors, Beijing China.
4. VESELY P., CIFKA J., Some Chemical and Analytical Problems Connected with Technetium-99m Generators, Radiopharmaceuticals from Generator Produced Radionuclides, Proceeding of Panel, Vienna, IAEA, 1070, pp. 71.

-
5. STEIGMAN J., Chemistry of the Alumina Column, *J. Appl. Radiat. Isot.*, Vol 33 (1982), pp. 829-834.