
PEMBUATAN RADIONUKLIDA MOLIBDENUM-99 (^{99}Mo) HASIL AKTIVASI NEUTRON DARI MOLIBDENUM ALAM UNTUK MEMPEROLEH TEKNESIUM-99m ($^{99\text{m}}\text{Tc}$)

I. Saptiama, Herlina, Sriyono, E. Sarmini, Abidin, Kadarisman
Pusat Teknologi Radioisotop dan Radiofarmaka-BATAN
Kawasan Puspiptek, Serpong, Tangerang Selatan, 15314
e-mail: indra.saptiama@batan.go.id

(Naskah diterima : 20-04-2016, Naskah direvisi: 13-05-2016, Naskah disetujui: 19-05-2016)

ABSTRAK

PEMBUATAN RADIONUKLIDA MOLIBDENUM-99 (^{99}Mo) HASIL AKTIVASI NEUTRON DARI MOLIBDENUM ALAM UNTUK MEMPEROLEH TEKNESIUM-99m ($^{99\text{m}}\text{Tc}$). Pembatasan penggunaan uranium sebagai target untuk produksi $^{99\text{m}}\text{Tc}$ menyebabkan rumah sakit di Indonesia kesulitan mendapatkan pasokan $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Saat ini $^{99\text{m}}\text{Tc}$ diperoleh dari ^{99}Mo hasil fisi (pembelahan uranium). Pembuatan radionuklida ^{99}Mo dari aktivasi neutron molibdenum alam (MoO_3) di teras reaktor G.A Siwabessy digunakan sebagai metode alternatif untuk memperoleh $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Tujuan penelitian ini adalah untuk melakukan pembuatan radionuklida ^{99}Mo dari aktivasi neutron molibdenum alam untuk memperoleh $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Serbuk MoO_3 alam sebanyak 5 gram dikemas dalam ampul kuarsa dan dimasukkan ke dalam *inner capsul* selanjutnya dikemas menggunakan *outer capsul* sebagai bahan target. Bahan target diiradiasi di reaktor G.A Siwabessy selama 100 jam. Hasil perhitungan diperoleh aktivitas ^{99}Mo sebesar 65 % dari nilai maksimum yang dapat diperoleh. MoO_3 paska iradiasi dilarutkan dengan NaOH 4 M sehingga diperoleh larutan natrium molibdat (Na_2MoO_4). Radionuklida ^{99}Mo dan $^{99\text{m}}\text{Tc}$ diukur menggunakan spektrometer gamma. Radionuklida ^{99}Mo terdeteksi dalam produk larutan Na_2MoO_4 dengan aktivitas jenis ^{99}Mo yang diperoleh sebesar 0,81 Ci $^{99}\text{Mo}/\text{g Mo}$. Radionuklida anak luruh $^{99\text{m}}\text{Tc}$ dipisahkan dari radionuklida induk ^{99}Mo menggunakan kolom pemisah yang berisi material berbasis zirkonium (MBZ) sebagai penyerap ^{99}Mo . Radionuklida $^{99\text{m}}\text{Tc}$ hasil pemisahan diperoleh dalam bentuk natrium pertehnetat ($\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$). dengan *recovery* yang masih rendah yaitu sekitar 52 hingga 71 %.

Kata kunci: Molibdenum, teknesium, radionuklida, pemisahan, iradiasi.

ABSTRACT

PRODUCTION OF ACTIVATED NEUTRON MOLYBDENUM-99 (^{99}Mo) RADIONUCLIDE FROM NATURAL MOLYBDENUM TO OBTAIN TECHNETIUM-99m ($^{99\text{m}}\text{Tc}$). Uranium usage restriction causes the hospitals in Indonesia difficult to obtain the supply of $^{99\text{m}}\text{Tc}$. At present, $^{99\text{m}}\text{Tc}$ is obtained from molybdenum as a uranium fission product. Production of ^{99}Mo radionuclide resulted from neutron activated natural molybdenum (MoO_3) in G.A Siwabessy reactor could be used as an alternative method for producing $^{99\text{m}}\text{Tc}$. The aim of this research is synthesis of ^{99}Mo radionuclide from neutron activated natural molybdenum (MoO_3) to obtain $^{99\text{m}}\text{Tc}$. The five grams of MoO_3 powder was packed in a quartz ampule and inserted into inner capsule then also inserted into outer capsule as a target material. It was irradiated in G.A Siwabessy reactor for 100 hours. Based on theoretical calculation, about 65 % of maximum ^{99}Mo activity could be recovered. After irradiation, MoO_3 was dissolved by NaOH 4 M solution so it was sodium molybdate (Na_2MoO_4) solution. ^{99}Mo and $^{99\text{m}}\text{Tc}$ radionuclide were analyzed using gamma spectrometer. ^{99}Mo radionuclide was detected on Na_2MoO_4 solution as product that had specific activity of 0.81 Ci $^{99}\text{Mo}/\text{g Mo}$. $^{99\text{m}}\text{Tc}$ as daughter radionuclide was separated from ^{99}Mo as parent radionuclide using separated column containing zirconium based material (ZBM) as ^{99}Mo adsorbent. $^{99\text{m}}\text{Tc}$ radionuclide has been successfully separated using ZBM column although recovery of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ was quite low in which approximately 52 to 71 %. The $^{99\text{m}}\text{Tc}$ radionuclide was recovered in the form of sodium pertechnetate (NaTcO_4) solution.

Keywords: Molybdenum, technetium, radionuclide, separation, irradiation.

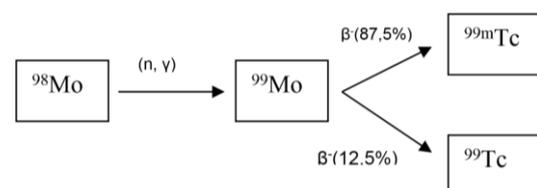
PENDAHULUAN

Teknesium-99m ($^{99\text{m}}\text{Tc}$) merupakan radionuklida medis yang banyak digunakan sebagai diagnosis di dalam kedokteran nuklir. Radionuklida $^{99\text{m}}\text{Tc}$ merupakan hasil luruh radionuklida ^{99}Mo ^[1]. Pada umumnya, $^{99\text{m}}\text{Tc}$ diperoleh dari generator $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$. Pada saat ini sebagian pasokan ^{99}Mo seluruh dunia diperoleh dari hasil fisi uranium dari pengkayaan tinggi (*High Enriched Uranium, HEU*) dan sebagian kecil menggunakan pengkayaan rendah (*Low Enriched Uranium, LEU*)^[2,3]. Penggunaan LEU bertujuan untuk mengurangi potensi adanya isu proliferasi atau penggunaan energi nuklir yang mengancam keamanan secara global. Hingga tahun 2011, setidaknya ada 7 (tujuh) reaktor penelitian memasok ^{99}Mo untuk memenuhi lebih dari 95 % pasokan global untuk aplikasi kedokteran nuklir antara lain (1) NRU-Kanada, (2) HFR-Belanda, (3) BR-2-Belanda, (4) Safari-1-Afrika Selatan, (5) Osiris-Perancis, (6) Maria-Polandia, (7) OPAL-Australia^[4,5]. Gangguan pasokan ^{99}Mo secara global meresahkan sebagian kalangan seperti pemerintah, rumah sakit, dokter maupun pasien yang berkaitan dengan penggunaan $^{99\text{m}}\text{Tc}$ sebagai diagnosis, meskipun rantai pasokan ^{99}Mo masih stabil untuk sementara waktu. Hal ini dikarenakan beberapa reaktor yang memproduksi ^{99}Mo telah memasuki batas waktu penggunaan (*on aging reactor*)^[5]. Oleh karena itu, para peneliti sedang mencari solusi untuk mengatasi krisis pasokan ^{99}Mo tersebut.

Seiring dengan berjalannya waktu, kemajuan teknologi telah memberikan beberapa metode alternatif untuk memperoleh ^{99}Mo . Produksi radionuklida ^{99}Mo dapat dilakukan dengan menggunakan baik reaktor penelitian maupun dengan pemercepat partikel^[6,7,8]. Di dalam reaktor, selain dapat menghasilkan ^{99}Mo melalui reaksi fisi (*fission production*) seperti HEU dan LEU juga dapat melalui non hasil fisi

(*non-fission production*) yakni dengan menggunakan aktivasi neutron dari molibdenum alam (MoO_3) dan molibdenum diperkaya hingga 96 % ^{98}Mo ^[9,10]. Penggunaan metode tersebut memiliki kelemahan dan keunggulan. Teknologi pemercepat partikel sudah mulai dikembangkan untuk memproduksi ^{99}Mo tanpa menggunakan HEU atau LEU sebagai target^[11,12]. Akan tetapi teknologi ini masih dalam tahap kajian atau skala percobaan (aktivitas ^{99}Mo rendah) dan belum pada tahap produksi ^{99}Mo (aktivitas ^{99}Mo tinggi). Produksi radionuklida ^{99}Mo melalui aktivasi neutron molibdenum alam (MoO_3) menjadi metode alternatif karena bahan target mudah diperoleh dan murah serta tidak sulit dalam pengolahan limbah hasil produksi. Kekurangannya adalah aktivitas jenis ^{99}Mo yang diperoleh rendah karena kandungan ^{98}Mo dalam alam hanya 24,19 %^[13]. Penggunaan molibdenum diperkaya dapat meningkatkan radioaktivitas jenis hingga 4 kali lipat, tetapi tidak ekonomis karena harga bahan target yang digunakan tidak murah serta perlu teknologi lebih lanjut untuk mendaur ulang ^{98}Mo yang tersisa dari hasil proses produksi^[13].

Pembuatan ^{99}Mo dari bahan target MoO_3 melibatkan reaksi inti $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ dimana ^{99}Mo yang terbentuk akan meluruh sebanyak 87,5 % menjadi $^{99\text{m}}\text{Tc}$ dan sisanya menjadi ^{99}Tc , sebagaimana terlihat pada Gambar 1.



Gambar 1. Reaksi aktivasi neutron ^{98}Mo menjadi ^{99}Mo dan peluruhannya

Gambar 1 menunjukkan bahwa ^{98}Mo setelah penangkapan neutron berubah menjadi ^{99}Mo yang selanjutnya meluruh menjadi $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (87,5%) dan ^{99}Tc (12,5%) disertai dengan melepaskan partikel beta

negatif (β^-). Laju penambahan jumlah ^{99}Mo sama dengan laju terbentuknya $^{99\text{m}}\text{Tc}$ dan ^{99}Tc . Secara matematis laju penambahan ^{99}Mo dapat dinyatakan sebagai berikut :

$$dN(^{99}\text{Mo})/dt = N(^{98}\text{Mo})\Phi\sigma - \lambda N(^{99}\text{Mo}) \quad (1)$$

dengan :

$dN(^{99}\text{Mo})/dt$: Laju pembentukan ^{99}Mo
(atom $^{99}\text{Mo}/\text{s}$)

$N(^{98}\text{Mo})$: Jumlah atom ^{98}Mo (atom)

$N(^{99}\text{Mo})$: Jumlah atom ^{99}Mo (atom)

Φ : Fluks neutron ($\text{neutron s}^{-1}\text{cm}^{-2}$)

σ : Tampang lintang ^{99}Mo
($^{98}\text{Mo}=0,13 \text{ barn} = 1,3 \times 10^{-25}\text{cm}^2$)

λ : Konstanta peluruhan ^{99}Mo

t : lama iradiasi

Persamaan (1) diatas diselesaikan dengan memberi batas awal bahwa ketika proses iradiasi belum dilakukan maka belum terdapat ^{99}Mo ($N(^{99}\text{Mo}) = 0$ saat $t = 0$) maka menjadi persamaan 2.

$$N(^{99}\text{Mo}) = N(^{98}\text{Mo}) \phi \sigma (1 - e^{-\lambda t}) / \lambda \quad (2)$$

Harga aktivitas ^{99}Mo ($A(^{99}\text{Mo})$) dapat dinyatakan dengan perkalian antara jumlah atom ^{99}Mo dengan konstanta peluruhannya sehingga besarnya aktivitas ^{99}Mo dapat dinyatakan dengan persamaan (3).

$$A(^{99}\text{Mo}) = N(^{98}\text{Mo}) \Phi \sigma (1 - e^{-\lambda t}) \quad (3)$$

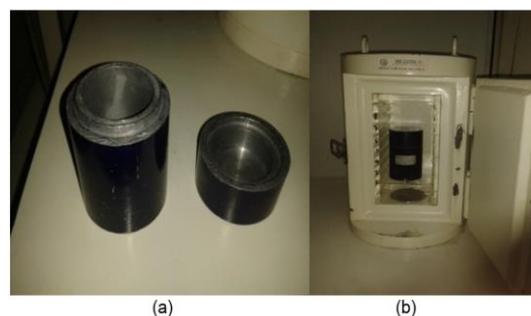
Persamaan (3) diatas merupakan persamaan umum yang sering digunakan dalam penentuan radioaktivitas hasil iradiasi dengan neutron. Persamaan ini digunakan untuk menghitung jumlah aktivitas ^{99}Mo yang diaktivasi di reaktor G.A Siwabessy selama 100 jam secara teoritis.

Tujuan penelitian ini adalah untuk mempelajari pembuatan ^{99}Mo dari aktivasi neutron dengan molibdenum alam (MoO_3) di reaktor G.A Siwabeesy yang memiliki *medium flux neutron* hingga memperoleh $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Penelitian diawali dengan melakukan perhitungan yang meliputi evaluasi pembuatan radionuklida ^{99}Mo di reaktor G.A Siwabessy, analisa radionuklida lain dalam produk Mo, perhitungan aktivitas jenis ^{99}Mo , serta hasil perolehan $^{99\text{m}}\text{Tc}$ menggunakan

metode kolom yang dikembangkan di Pusat Teknologi Radioisotop dan Radiofarmaka (PTRR)^[6,14]. Hasil penelitian ini diharapkan diperoleh radionuklida ^{99}Mo dari aktivasi neutron molibdenum alam dan radionuklida $^{99\text{m}}\text{Tc}$ yang bebas pengemban.

METODOLOGI

Bahan utama yang digunakan dalam penelitian ini adalah bahan target molibdenum oksida (MoO_3) alam, natrium hidroksida (NaOH), aquabidest steril dan larutan *saline* (NaCl 0,9%). Peralatan yang digunakan adalah *stirring hot plate*, timbangan analitik. Pengukuran aktivitas ^{99}Mo dan $^{99\text{m}}\text{Tc}$ menggunakan *dose calibrator* dan *Multi channel amplitude pulse analyzer (MCA) Ortec GEM-30* dengan detektor HPGe . Pengukuran aktivitas ^{99}Mo dilengkapi dengan perisai Pb pada saat pengukuran di dalam *chamber* seperti pada Gambar 2, dengan ketebalan 1 cm untuk meredam energi gamma 140,5 keV yang dipancarkan oleh $^{99\text{m}}\text{Tc}$.



Gambar 2. (a) Perisai Pb dan
(b) Chamber pengukuran MCA

Uji kebocoran dilakukan dengan dengan metode gelembung (*bubble test*) yang terdiri dari tabung kaca berisi air, pengukur kevakuman (*vacuum gauge*) dan pompa vakum. Perangkat las asetilen yang terdiri dari tabung gas, selang gas, tang penjepit, kaca mata pelindung dan torch serta perangkat las TIG /Argon. Kapsul *inner* dan *outer* terbuat dari aluminium dengan *grade nuclear* serta ampul kuarsa. Reaktor G.A Siwabessy dengan posisi iradiasi pada *Central Irradiation Position (CIP)*.

Target MoO_3 yang akan diradiasi di reaktor disiapkan dengan menimbang MoO_3 sebanyak 5 gram kemudian dipanaskan pada temperatur $500\text{ }^\circ\text{C}$ selama 1 jam di dalam *furnace* dengan tujuan pemanasan adalah untuk mencegah penggumpalan. Bahan target dimasukkan ke dalam ampul kuarsa dan ditutup dengan sistem pengelasan menggunakan perangkat las asetilen dan diuji kebocoran menggunakan metode gelembung dengan tingkat kevakuman 25-30 inHg. Ampul kuarsa selanjutnya dimasukkan ke dalam *inner capsule* yang terbuat dari aluminium kemurnian tinggi. *Inner capsule* juga ditutup dengan sistem pengelasan menggunakan mesin las TIG/argon, kemudian dilakukan pemeriksaan kebocoran dengan metode gelembung. *Inner capsule* selanjutnya dimasukan ke dalam *outer capsule* yang ditutup dengan sistem ulir. Setelah itu, target diiradiasi di posisi CIP di reaktor G.A Siwabessy selama 100 jam dengan fluks neutron $1,12 \times 10^{14} \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

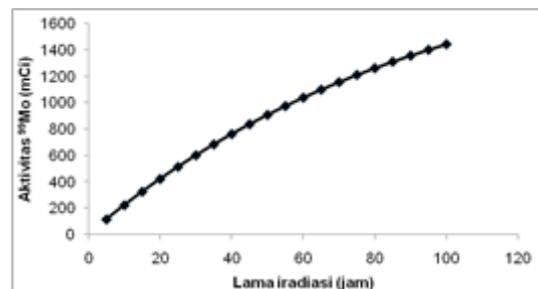
Target MoO_3 yang telah diradiasi di reaktor G.A Siwabessy, kemudian dikirim ke fasilitas *hotcell* di PTRR untuk dilakukan pengeluaran target MoO_3 dari kapsul iradiasi. *Inner capsule* dan kuarsa dipotong dengan *cutter* kemudian MoO_3 yang telah diiradiasi dituang ke dalam bejana gelas dan dilarutkan dengan NaOH 4 M. Pengadukan menggunakan *magnetic stirrer* selama 10 menit hingga diperoleh larutan jernih. Pengukuran aktivitas radionuklida ^{99}Mo dan $^{99\text{m}}\text{Tc}$ diukur dengan menggunakan dose kalibrator, sedangkan isotop diidentifikasi dengan spektrometer gamma menggunakan detektor *High purity Germanium* (HPGe).

Pemisahan radionuklida anak luruh $^{99\text{m}}\text{Tc}$ dari radionuklida induk ^{99}Mo dilakukan menggunakan kolom gelas yang berisi material penyerap MBZ yang telah berhasil disintesis oleh Pusat Teknologi Radioisotop dan Radiofarmaka (PTRR)^[6,14]. Larutan $\text{Na}_2^{99}\text{MoO}_4$ diserapkan ke penyerap MBZ (Material Berbasis Zirkonium) selama 3 jam

pada temperatur $\sim 90\text{ }^\circ\text{C}$ dan kemudian dikemas dalam kolom gelas berukuran 7,9 cm dengan diameter sebesar 2 cm. Kolom dibilas dengan larutan *saline* dan natrium hipoklorit 0,5% (NaOCl). Setiap selang 24 jam, kolom dielus dengan 25 mL larutan *saline* sehingga diperoleh larutan natrium pertehnetat (NaTcO_4) dan diakhiri dengan pembilasan kolom menggunakan sodium hipoklorit 0,5%.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil perhitungan aktivitas secara teoritis isotop ^{99}Mo sebanyak 5 gram MoO_3 ditunjukkan sebagai fungsi dari waktu terhadap aktivitas ^{99}Mo seperti yang ditunjukkan pada Gambar 3. MoO_3 sebanyak 5 gram yang diradiasi di reaktor merupakan jumlah yang ideal untuk keperluan penelitian di PTRR.



Gambar 3. Pengaruh lama iradiasi terhadap aktivitas ^{99}Mo

Berdasarkan Gambar 3 semakin lama waktu iradiasi maka semakin besar aktivitas ^{99}Mo yang dihasilkan. Selain itu, dari Gambar 3 diketahui bahwa dengan waktu iradiasi selama 100 jam, radioaktivitas masih menunjukkan kenaikan seiring dengan waktu. Hal ini disebabkan karena belum tercapai nilai maksimum dari hasil iradiasi. Oleh karena itu, waktu iradiasi masih dapat ditingkatkan agar diperoleh aktivitas ^{99}Mo dan aktivitas jenis ^{99}Mo yang maksimal. Waktu iradiasi selama 100 jam merupakan siklus waktu operasional produksi radioisotop PTRR dan siklus operasi reaktor di G.A Siwabessy.

Berdasarkan persamaan (3), suku $(1 - e^{-\lambda t})$ merupakan fungsi dari lama waktu iradiasi atau dapat digunakan untuk menentukan perbandingan antara jumlah radioaktivitas yang dihasilkan selama waktu t dengan nilai radioaktivitas maksimum yang biasa disebut dengan tingkat kejenuhan radioaktivitas. Untuk waktu iradiasi selama 100 jam, tingkat kejenuhan untuk ^{99}Mo sebesar 0,65. Hal ini berarti bahwa nilai radioaktivitas yang telah dicapai selama 100 jam iradiasi telah mencapai 65 % dari nilai maksimum yang dapat diperoleh, sehingga aktivitas ^{99}Mo masih dapat ditingkatkan dengan menambah waktu iradiasi. Hal ini menjadi penting karena untuk meningkatkan aktivitas jenis larutan yang dihasilkan, semakin besar aktivitas ^{99}Mo yang diperoleh dengan jumlah zat yang sama maka semakin besar aktivitas jenis yang diperoleh. Hal ini diperlukan dalam proses penyerapan ^{99}Mo menggunakan material penyerap dimana semakin besar aktivitas jenis Mo dalam larutan maka jumlah material penyerap yang digunakan semakin sedikit.

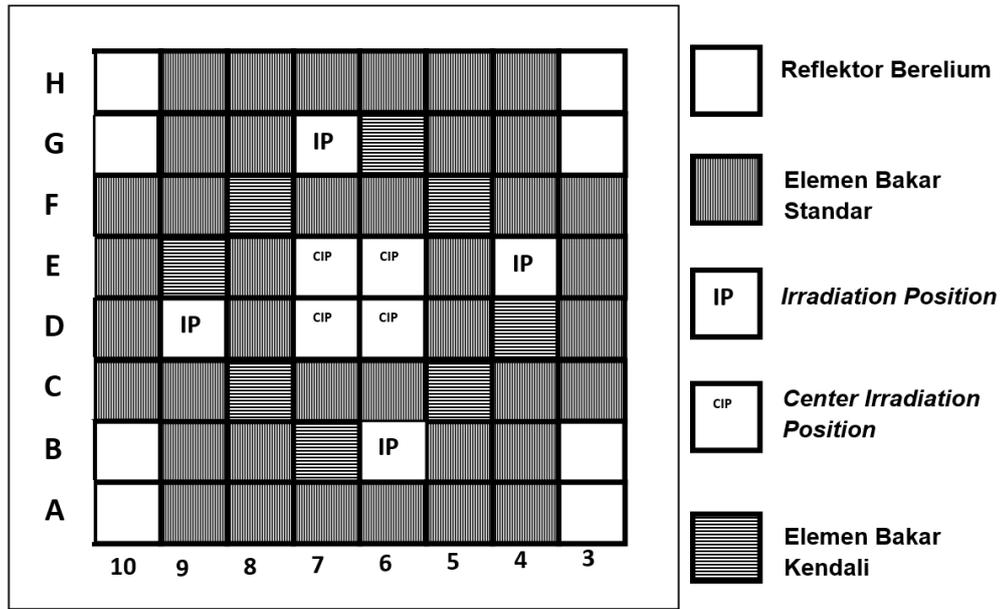
Aktivitas ^{99}Mo hasil pengukuran pada saat *End of Irradiation* (EOI) dari tiga percobaan dapat dilihat pada Tabel 1. Aktivitas ^{99}Mo yang diperoleh dari hasil pengukuran jauh lebih besar dibandingkan dengan hasil teoritis. Hal ini disebabkan adanya pengaruh neutron epithermal yang ikut berperan dalam reaksi aktivasi neutron

^{98}Mo , tidak hanya berasal dari reaksi ^{98}Mo dengan neutron termal. A.R. Jokar et.al, menyebutkan bahwa kontribusi neutron epitermal dapat mencapai 69 % dari total aktivitas neutron yang berinteraksi dengan ^{98}Mo ^[15]. Dalam persamaan(1), data tampang lintang reaksi ^{98}Mo adalah tampang lintang yang hanya berinteraksi dengan neutron termal sehingga perlu dikoreksi dalam perhitungan perolehan aktivitas ^{99}Mo dengan menggunakan tampang lintang yang mencakup rata-rata tampang lintang dari seluruh total aktivitas neutron pada ^{98}Mo . Fenomena ini biasa disebut dengan tampang lintang efektif atau *average effective cross section* (σ^*)^[16]. Beberapa nilai tampang lintang efektif ^{98}Mo yang diperoleh dari berbagai sumber pengolahan data nuklir (*evaluated nuclear data laboratory*) adalah 0,549 barn (JENDL-4), 0,526 barn (KAERI), dan 0,554 barn (Mughabghab)^[15]. Oleh sebab itu, perlu penelitian lebih lanjut untuk memperoleh data *average effective cross section* (σ^*) yang dapat digunakan dalam perhitungan teoritis ^{99}Mo dari hasil aktivasi MoO_3 . Perbedaan aktivitas ^{99}Mo yang diperoleh dari ketiga percobaan disebabkan oleh jumlah bahan target dan lamanya waktu iradiasi serta dipengaruhi juga oleh posisi atau konfigurasi bahan target di CIP pada teras reaktor seperti terlihat pada Gambar 4.

Tabel 1. Hasil aktivasi neutron MoO_3 dan perolehan aktivitas jenis ^{99}Mo

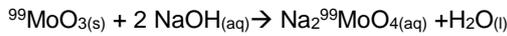
Proses	Berat MoO_3 (gram)	Lama iradiasi (jam)	Posisi CIP	Aktivitas Mo-99 (Teoritis)	Aktivitas Mo-99 (Percobaan)	Aktivitas jenis (Ci $^{99}\text{Mo/g}$ Mo)
1	5.02	101	E-7(B)	1488	3179	0,92
2	5.04	100	D-6	1456	2151	0,63
3	5.06	106	E7 (S)	1492	3001	0,88
				Rerata		0.81

* (B) : barat , (S) : Selatan

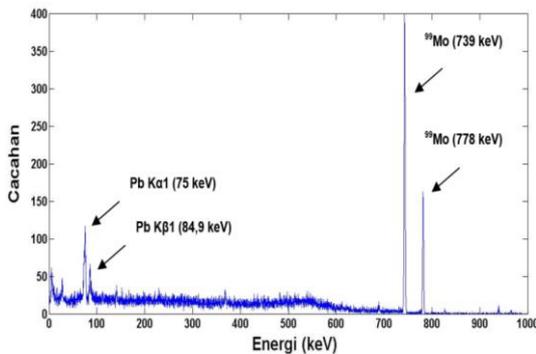


Gambar 4. Konfigurasi teras reaktor RSG-GAS

Radionuklida ⁹⁹Mo diperoleh dalam bentuk larutan jernih natrium molibdat (Na₂⁹⁹MoO₄) karena molibdenum oksida (MoO₃) setelah iradiasi dilarutkan di dalam natrium hidroksida (NaOH) dengan mengikuti persamaan reaksi sebagai berikut;



Larutan natrium molibdat dicuplik untuk mengukur kemurnian radionuklida ⁹⁹Mo dengan menggunakan spektrometer gamma. Pengukuran dari tiga percobaan menghasilkan pola spektrum ⁹⁹Mo yang tidak jauh berbeda seperti yang ditunjukkan pada Gambar 5.



Gambar 5. Hasil pengukuran spektrometer gamma dari cuplikan larutan Na₂⁹⁹MoO₄

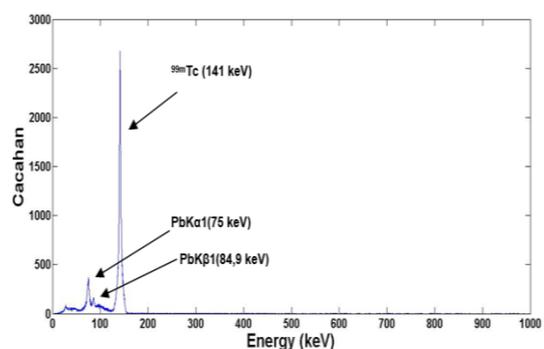
Gambar 5. menunjukkan spektrum radioisotop ⁹⁹Mo dengan energi 739 dan 778 keV, sedangkan spektrum pada energi 75 keV dan 84,9 keV merupakan energi sinar x karakteristik dari timbal (Pb) yakni Pb K_{α1} dan Pb K_{β1}. Perisai Pb setebal 1 cm digunakan dalam pengukuran aktivitas ⁹⁹Mo untuk menyerap energi dari radionuklida anak luruh ^{99m}Tc yang merupakan hasil peluruhan dari ⁹⁹Mo. Jika tidak menggunakan perisai Pb, maka sulit untuk mengukur energi ⁹⁹Mo yang sebenarnya karena terhalangi oleh intensitas energi dari ^{99m}Tc yang cukup tinggi yaitu pada energi 140 keV. Pada dasarnya ⁹⁹Mo merupakan pemancar partikel beta sehingga radiasi beta yang dipancarkan menumbuk perisai Pb yang menghasilkan efek *bremsstrahlung* dan energi sinar-x karakteristik dari Pb.

Reaksi inti utama dari aktivasi neutron MoO₃ alam adalah ⁹⁸Mo (n,γ) ⁹⁹Mo dan reaksi inti lainnya yang terjadi adalah ¹⁶O (n,p) ¹⁶N menghasilkan nitrogen-16 (¹⁶N) yang memiliki waktu paruh sangat pendek (T_{1/2} = 7,13 detik) sehingga dapat diabaikan. Radionuklida lainnya yang terbentuk selain radioisotop utama ⁹⁹Mo adalah ¹⁰¹Mo yang memiliki waktu paro pendek yang meluruh habis setelah pasca iradiasi. Beberapa

unsur lain dari hasil aktivasi Mo seperti ^{93}Mo , ^{94}Mo , ^{95}Mo , ^{96}Mo , ^{97}Mo dan ^{99}Mo merupakan unsur non radioaktif yang stabil di alam. Unsur-unsur non radioaktif tersebut menyumbangkan konsentrasi Mo ke dalam larutan natrium molibdat. Hal ini yang membedakan antara ^{99}Mo hasil fisi (menggunakan target uranium) dengan hasil aktivasi menggunakan molibdenum alam (MoO_3). Radionuklida ^{99}Mo yang diperoleh dari hasil fisi, murni dihasilkan dari reaksi inti uranium. Jika hasil Mo tersebut dikonversi ke dalam jumlah zat maka jumlah ^{99}Mo dalam larutan sangat kecil bahkan dalam orde nanogram sehingga aktivitas jenis larutan ^{99}Mo sangat tinggi hingga mencapai 1-100 Ci/0,01 mg Mo. Hal ini berpengaruh terhadap penyerap yang digunakan untuk proses pemisahan ^{99}Mo terhadap $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Pada teknologi ^{99}Mo hasil fisi, penyerap Mo yang digunakan untuk kolom pemisah adalah alumina yang memiliki kapasitas 2-20 mg Mo/g alumina^[17,18]. Untuk ukuran kolom generator Mo/Tc dengan aktivitas 1 Ci cukup hanya menggunakan alumina sebanyak 1 gram. Berdasarkan percobaan yang telah dilakukan, sebanyak 5 gram MoO_3 diaktivasi neutron akan menghasilkan aktivitas jenis sebesar 1,5Ci/3400 mg Mo, untuk membuat generator dengan aktivitas sebesar 1 Ci diperlukan 113 gram alumina, hal ini sangat tidak efisien. Oleh karena itu, penyerap alumina tidak dapat digunakan untuk penyerap Mo hasil aktivasi.

Teknologi untuk memperoleh $^{99\text{m}}\text{Tc}$ dari aktivasi neutron dengan molibdenum alam telah banyak dikembangkan diantaranya ekstraksi, elektrokimia, molibdenum gel, dan *polyzirconium compound* (PZC)^[19,20,21]. Pada saat ini, PTRR-BATAN sedang melakukan penelitian untuk mengembangkan material penyerap tinggi Mo, kapasitas serap Mo yang telah diperoleh mencapai 180 mg Mo/g penyerap^[6,14]. Material penyerap disebut dengan Material Berbasis Zirkonium (MBZ). Jumlah MBZ yang digunakan semakin

sedikit akan meningkatkan efisiensi penggunaan jika dilakukan dengan jumlah besar. Kapasitas serap Mo ini masih dapat ditingkatkan dengan melakukan optimasi sintesis MBZ. Untuk menyerap ^{99}Mo dengan aktivitas 208 mCi diperlukan material penyerap MBZ sebanyak 2,6 gram. Jika ingin mengurangi jumlah penyerap MBZ yang digunakan maka yang perlu dilakukan ada 2 cara yakni meningkatkan kapasitas serap MBZ dan atau meningkatkan aktivitas jenis ^{99}Mo dengan menambah waktu iradiasi hingga mencapai tingkat kejenuhan iradiasi (100%).



Gambar 6. Hasil pengukuran spektrometer gamma dari cuplikan larutan $\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$.

Hasil pemisahan ^{99}Mo dengan $^{99\text{m}}\text{Tc}$ menggunakan kolom gelas yang berisi material MBZ dapat dilihat dari pengukuran spektrometer gamma pada Gambar 6. Gambar 6 terlihat spektrum radionuklida $^{99\text{m}}\text{Tc}$ yang ditunjukkan pada energi 141 keV, sedangkan spektrum dari ^{99}Mo pada energi 739 dan 778 keV tidak terlihat pada Gambar 6. Hal ini menunjukkan bahwa $^{99\text{m}}\text{Tc}$ telah berhasil dipisahkan dari radionuklida induk ^{99}Mo menggunakan kolom MBZ secara sempurna. Peluruhan radionuklida induk ^{99}Mo terhadap radionuklida anak luruh $^{99\text{m}}\text{Tc}$ mengikuti kaidah peluruhan beruntun dimana radionuklida $^{99\text{m}}\text{Tc}$ akan meluruh menjadi nuklida ^{99}Tc dan Ruthenium-99 (^{99}Ru)^[22]. Meskipun pengukuran $^{99\text{m}}\text{Tc}$ dilakukan tidak menggunakan perisai Pb, spektrum energi sinar-x karakteristik dari Pb yakni unsur Pb $\text{K}_{\alpha 1}$ (75 keV) dan $\text{Pb K}_{\beta 1}$ (84,9 keV) terlihat

pada hasil pengukuran ^{99m}Tc menggunakan spektrometer gamma. Hal ini disebabkan oleh adanya interaksi partikel beta dari ⁹⁹Tc dengan *chamber* yang terbuat dari Pb sehingga menghasilkan spektrum dari sinar x karakteristik dari Pb.

Dalam usahan untuk memperoleh aktivitas maksimum dari radionuklida ^{99m}Tc, kolom MBZ kemudian dielusi dengan menggunakan larutan *saline* sebanyak 25 mL dalam selang waktu 24 jam, tetapi

selang waktu ini bukan merupakan selang waktu optimum. Selang waktu untuk memperoleh aktivitas yang maksimum dari radionuklida ^{99m}Tc adalah 22,9 jam^[23]. Jumlah radionuklida ^{99m}Tc yang telah berhasil dielusi dapat dilihat pada Tabel 2. Hasil dari 6 kali proses elusi diperoleh besar *recovery* ^{99m}Tc bervariasi sekitar 52 hingga 71 % tetapi aktivitas jenis ^{99m}Tc masih sangat rendah yakni kurang dari 5 mCi/mL.

Tabel 2. Hasil pemisahan ^{99m}Tc dengan kolom material berbasis zirkonium (MBZ).

Elusi Ke-	Aktivitas ⁹⁹ Mo dalam kolom (mCi)	Aktivitas ^{99m} Tc teoritis (mCi)	Aktivitas ^{99m} Tc eksperimen (mCi/20 mL)	Recovery ^{99m} Tc (%)
1	231,1	218,7	114,8	52,5
2	178,4	175,1	97,2	55,5
3	138,6	136,1	71,2	52,3
4	64,9	61,5	43,7	71,3
5	50,5	49,1	31,5	64,4
6	39,5	38,5	25,1	64,9

SIMPULAN

Radionuklida ⁹⁹Mo telah berhasil diperoleh dari iradiasi molibdenum alam di teras reaktor G.A Siwabessy dalam bentuk larutan jernih dengan rumus kimia Na₂MoO₄. Berdasarkan perhitungan, selama 100 jam iradiasi diperoleh aktivitas ⁹⁹Mo sebesar 65 % dari nilai maksimum yang dapat diperoleh. Radioisotop ⁹⁹Mo terdeteksi dalam produk larutan Na₂MoO₄ dengan aktivitas jenis ⁹⁹Mo yang diperoleh sebesar 0,81 Ci ⁹⁹Mo/ g Mo. Selain itu, radionuklida anak ^{99m}Tc juga telah berhasil dipisahkan menggunakan kolom MBZ meskipun aktivitas jenis ^{99m}Tc masih sangat rendah dibandingkan dengan perolehan ^{99m}Tc dari kolom generator yang menggunakan sumber ⁹⁹Mo dari hasil fisi (HEU/LEU).

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis berterima kasih kepada Drs. Hotman Lubis selaku Kepala Bidang Teknologi Radioisotop, Adang Hardi G,

Marlina M.Si, Miftakul munir S.Far, Hambali, dan Eni Lestari atas diskusi dan bantuannya sehingga penelitian ini dapat diselesaikan dengan baik.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] A. Stolarz, J. A. Kowalska, P. Jasin, T. Janiak, and J. Samorajczyk, (2015), *Molybdenum Targets Produced by Mechanical Reshaping. J. Radioanal. Nucl. Chem.*,305, (947–952).
- [2] A. P. Ilyin, S. A. Korovin, L. I. Menshikov, V. F. Petrunin, A. N. Semenov, and D. Y. Chuvilin, (2015,). *Usage of Molybdenum Nanocrystalline Powder for Radioisotope Production. Phys. Procedia*, 72,548–551.
- [3] M. Raghavan, A. Pillai, A. Dash, F. F. R. Knapp, (2014), *Sustained Availability of 99m Tc: Possible Paths Forward. J. Nucl. Med.*, 54(2), 313-323.
- [4] P. H. Liem, H. N. Tran, and T. M. Sembiring, (2014), *Design Optimization of a New Homogeneous Reactor for Medical Radioisotope Mo-99/Tc-99m*

- Production.Prog. Nucl. Energy*, 82, page 191–196.
- [5] M. Lyra, P. Charalambatou, E. Roussou, S. Fytros, and I. Baka, (2011), *Alternative Production Methods to Face Global Molybdenum-99 Supply Shortage. Hell. J. Nucl. Med.*, 14(1), page 49–55.
- [6] R. Awaludin, A. Gunawan, H. Lubis, Sriyono, Herlina, A. Mutalib, A. Kimura, K. Tsuchiya, M. Tanase, and M. Ishihara, (2014), *Mechanism of ^{99}Mo Adsorption and $^{99\text{m}}\text{Tc}$ Elution from Zirconium-Based Material in $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ Generator Column using Neutron-Irradiated Natural Molybdenum. J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 303, page 1481–1483.
- [7] Guerin. B, Sebastien. T, Serge. R, Jacques. A.R. (2015), *Cyclotron Production of $^{99\text{m}}\text{Tc}$: An Approach to the Medical Isotope Crisis. J. Nucl. Med.*, 51(4), page 13–17.
- [8] Y. Nagai. (2014), *^{99}Mo Production via $^{100}\text{Mo}(n,2n)^{99}\text{Mo}$ using Accelerator Neutrons. EPJ Web Conf.*, 66, page (1-4).
- [9] J. Welsh, C. I. Bigles, and A. Valderrabano. (2015). *Future U.S. Supply of Mo-99 Production Through Fission Based LEU/LEU Technology. J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 305(1), page 9–12.
- [10] M. A. El-Absy, M. A. El- Amir, T. W. Fasih, H. E. Ramadan, M. F. El-Shahat. (2014), *Preparation of $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ Generator Based on Alumina. J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 299, page 1859–1864.
- [11] S. M. Qaim, S. Sudár, B. Scholten, A. J. Koning, and H. H. Coenen. (2014). *Evaluation of excitation functions of $^{100}\text{Mo}(p,d+pn)^{99}\text{Mo}$ and $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99\text{m}}\text{Tc}$ reactions: Estimation of long-lived Tc-impurity and its implication on the specific activity of cyclotron-produced $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Appl. Radiat. Isot.*, 85, page 101–113.
- [12] V. N. Richards, E. Mebrahtu, and S. E. Lapi. (2013). *Cyclotron Production of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ using $^{100}\text{Mo}_2\text{C}$ targets. Nucl. Med. Biol.*, 40(7), page 939–945.
- [13] S. C. Van Der Marck, A. J. Koning, and K. E. Charlton, (2010), *The options for the future production of the medical isotope ^{99}Mo . Eur. J. Nucl. Med. Mol. Imaging*, 37(10), page 1817–1820.
- [14] I. Saptiama, E. Sarmini, and H. Setiawan, (2015), *The Use of Sodium Hypochlorite Solution for (n, γ) $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ Generator Based on Zirconium-Based Material (ZBM). Indonesia Atom Journal*, 41(2), page 103–109.
- [15] A. R. Jokar, M. R. Davarpanah, and M. Keyvani Ghamsari, (2014), *Measurement of effective neutron cross section of the reaction $^{98}\text{Mo}(n, \gamma)^{99}\text{Mo}$ in TRR nuclear reactor by using thermal neutrons. Ann. Nucl. Energy*, 63, page 653–657.
- [16] A. I. Ryabchikov, V. S. Skuridin, E. V. Nesterov, E. V. Chibisov, and V. M. Golovkov, (2004), *Obtaining Molybdenum-99 in the IRT-T Research Reactor using Resonance Neutrons. Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. with Mater. Atoms*, 213, page 364–368.
- [17] S. Chattopadhyay and M. K. Das, (2008), *A Novel Technique for the Effective Concentration of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ from a Large Alumina Column Loaded with Low Specific-Activity (n, γ)-produced ^{99}Mo . Appl. Radiat. Isot.*, 66, page 1295–1299.
- [18] S. Chattopadhyay, S. S. Das, M. K. Das, and N. C. Goomer, (2008), *Recovery of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ from $\text{Na}_2[^{99}\text{Mo}]\text{MoO}_4$ Solution Obtained from Reactor-Produced (n, γ) ^{99}Mo using a tiny Dowex-1 Column in Tandem with a Small Alumina Column. Appl. Radiat. Isot.*, 66, page 1814–1817.
- [19] S. Chattopadhyay, S. S. Das, and L. Barua, (2010), *A Simple and Rapid Technique for Recovery of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ from*

- Low Specific Activity (n,γ) ^{99}Mo Based on Solid-Liquid Extraction And Column Chromatography methodologies.* *Nucl. Med. Biol.*, 37(1), 17–2010.
- [20] M. R. Davarpanah, S. Attar Nosrati, M. Fazlali, M. Kazemi Boudani, H. Khoshhosn, and M. Ghannadi Maragheh. (2009). *Influence of Drying Conditions of Zirconium Molybdate Gel on Performance of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ Gel Generator.* *Appl. Radiat. Isot.*, 67(10), page 1796–1801.
- [21] M. Tanase, K. Tatenuma, K. Ishikawa, K. Kurosawa, M. Nishino, and Y. Hasegawa. (1997). *A $^{99\text{m}}\text{Tc}$ Generator using a New Inorganic Polymer Adsorbent for (n,γ) ^{99}Mo .* *Appl. Radiat. Isot.*, 48(5), page 607–611.
- [22] V. S. Le, Z. P. Do, M. K. Le, V. Le, and N. N. Le. (2014). *Methods of Increasing the Performance of Radionuclide Generators Used in Nuclear Medicine: Daughter Nuclide Build-Up Optimization, Elution-Purification-Concentration Integration, and Effective Control of Radionuclidic Purity.* *Molecules*, 19, page 7714–7756.
- [23] V. S. Le, N. Morcos, and Z. Bogulski. (2014). *Development Of Multiple-Elution Cartridge Based Radioisotope Concentrator Device for Increasing the $^{99\text{m}}\text{Tc}$ and ^{188}Re Concentration and the Effectiveness of $^{99\text{m}}\text{Tc}/^{99}\text{Mo}$ Utilization.* *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 303(2), page 1173–1178

