Urania Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir



Beranda jurnal: https://ejournal.brin.go.id/urania/

PENENTUAN KEMURNIAN RADIONUKLIDA DARI PRODUK GENERATOR Mo-99/Tc-99m NON-FISI MENGGUNAKAN SPEKTROMETER GAMMA

Nurul Fadila¹, Siska Febriana², Beta Nur Pratiwi¹

 ¹Universitas Islam Negeri Sultan Maulana Hassanudin Jl. Jendral Sudirman No.30. Serang, Banten 42118
 ²Pusat Riset Teknologi Radioisotop, Radiofarmaka, dan Biodosimetri – BRIN Kawasan Sains dan Teknologi B.J. Habibie, Gedung 720, Tangerang Selatan, Banten 15314 e-mail: sisk003@brin.go.id

(Naskah diterima: 27–06–2024, Naskah direvisi: 23–08–2024, Naskah disetujui: 27–08–2024)

ABSTRAK

PENENTUAN KEMURNIAN RADIONUKLIDA DARI PRODUK GENERATOR Mo-99/Tc-99m NON-FISI MENGGUNAKAN SPEKTROMETER GAMMA. Radionuklida medis teknesium-99m (Tc-99m) adalah jenis radionuklida yang paling banyak pemanfaatannya pada proses diagnostik di dalam dunia kedokteran nuklir. Hal ini berkaitan dengan karakteristiknya yang memiliki masa paruh selama 6 jam dengan melepaskan energi gamma tunggal (Ey) sebesar 140 keV. Tc-99m adalah produk dari generator Mo-99/Tc-99m dan merupakan anak luruh dari molibdenum-99 (Mo-99) yang memiliki masa paruh selama 66 jam. Radionuklida Mo-99 dapat diproduksi melalui reaksi aktivasi neutron yang membutuhkan target alam non fisi molibdenum trioksida (MoO₃) sebagai target di reaktor nuklir, sehingga disebut generator Mo-99/Tc-99m non fisi. Tujuan penelitian ini yaitu dapat menentukan nilai kemurnian produk Tc-99m dari generator Mo-99/Tc-99m non fisi menggunakan metode spektrometer gamma. Hal ini dilakukan dengan menganalisis kalibrasi energi dan efisiensi pada spektrometer gamma dengan menggunakan sumber standar cair (Liquid Source) campuran Ba-133 dan Eu-152, dan sumber standar titik (Point Source) Eu-152, sesuai geometri masing-masing untuk pengukuran lolosan Mo-99 dan produk Tc-99m yang dihasilkan secara berurutan untuk setiap proses elusi tiga generator. Proses aktivasi neutron dari molibdenum alam (MoO₃) dilakukan di reaktor nuklir G.A. Siwabessy, Indonesia. Kemurnian radionuklida produk Tc-99m dari generator Mo-99/Tc-99m non fisi diperoleh sebesar 99,999% untuk setiap elusi sedangkan lolosan Mo-99 terbesar yaitu 0,0018 dan terendah yaitu 1,04 x 10⁻⁴ µCi Mo-99/mCi Tc-99m. Hasil kelolosan Mo-99 yang diperoleh berada dibawah nilai 0,15 µCi Mo-99/mCi Tc-99m yang ditetapkan oleh US Pharmacopoeia, sehingga produk Tc-99m yang dihasilkan baik, dan menunjukan bahwa produk tersebut dapat digunakan untuk proses pelabelan menjadi radiofarmaka. Metode pengukuran kemurnian radionuklida ini dapat digunakan sebagai penentuan parameter kendali kualitas produk generator Mo-99/Tc-99m non fisi.

Kata kunci: Molibdenum-99, Teknesium-99m, Generator Mo-99/Tc-99m, Spektrometer Gamma.

ABSTRACT

DETERMINATION OF RADIONUCLIDE PURITY FROM NON-FISSION Mo-99/Tc-99m GENERATOR PRODUCTS USING A GAMMA SPECTROMETER. The medical radionuclide technetium-99m (Tc-99m) is the type of radionuclide that is most widely used in diagnostic processes in the world of nuclear medicine. This is related to its characteristic of having a half-life of 6 hours and releasing a single gamma energy (Ey) of 140 keV. Tc-99m is a product of the Mo-99/ Tc-99m generator and is a decay child of molybdenum-99 (Mo-99) which has a half-life of 66 hours. The Mo-99 radionuclide can be produced via a neutron activation reaction which requires the non-fission natural target molybdenum trioxide (MoO₃) as a target in a nuclear reactor, so it is called a non-fission Mo-99/Tc-99m generator. The aim of this research is to determine the purity value of the Tc-99m product from the non-fission Mo-99/Tc-99m generator using the gamma spectrometer method. This is done by analyzing the energy and efficiency calibration of the gamma spectrometer using a liquid standard source (Liquid Source) of a mixture of Ba-133 and Eu-152. and a point standard source (Point Source) of Eu-152, according to the geometry for the measurements of Mo-99 breakthrough and Tc-99m products respectively for each three-generator elution process. The neutron activation process of natural molybdenum (MoO₃) was carried out in the nuclear reactor G.A. Siwabessy, Indonesia. The purity of the Tc-99m product radionuclide from the non-fission Mo-99/Tc-99m generator was obtained at 99.999% for each elution while the largest Mo-99 breakthrough was 0,0018 μCi Mo-99/mCi Tc-99m and the lowest was 1,04 x 10-4 μCi Mo-99/mCi Tc-99m. The Mo-99 breakthrough results obtained were below the value of 0,15 μCi Mo-99/mCi Tc-99m set by the US Pharmacopoeia, so the resulting product of Tc-99m was good, and showed that the product could be used for the labeling process to become a radiopharmaceutical. This radionuclide purity measurement method can be used to determine quality control parameters for non-fission Mo-99/Tc-99m generator products.

Keywords: Molybdenum-99, Technetium-99m, Mo-99/Tc-99m Generator, Gamma Spectrometer

PENDAHULUAN

Perkembangan ilmu pengetahuan dan teknologi telah menjadi pilar utama dalam transformasi manusia selama beberapa dekade terakhir. Seiring waktu, eksplorasi potensi ilmu pengetahuan terus dilakukan untuk mencapai kemajuan yang lebih besar. Salah satunya yaitu pada teknologi ilmu nuklir. Teknologi kedokteran tersebut menggunakan radiasi yang dilepaskan, yang berasal pada peluruhan radionuklida secara buatan yang bertujuan untuk mendiagnostik melalui pemantauan proses biokimia dan fisiologis, dan riset medis [1].

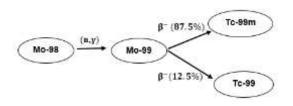
Salah satu jenis radionuklida yang paling umum dimanfaatkan untuk diagnosis dunia kedokteran dalam nuklir ialah Teknesium-99m (Tc-99m). Radionuklida dimanfaatkan Tc-99m dalam bidang 80% kedokteran sekitar untuk proses diagnosis, karena hal ini didasarkan pada karakteristik inti Tc-99m, sifat kimia, dan produksinva kemudahan yang bebas pengemban [2],[3]. Tc-99m merupakan anak luruh dari Molibdenum-99 (Mo-99) yang memiliki masa paruh selama 66 jam sedangkan Tc-99m sendiri mempunyai masa paruh selama 6 jam, dan kemudian berubah menjadi Tc-99 dengan melepaskan energi gamma (Εγ) 140 keV [4].

Di dalam reaktor, untuk menghasilkan Mo-99 dapat melalui reaksi fisi menggunakan bahan bakar LEU (Low Enriched Uranium), dan HEU (High Enriched Uranium), selain itu juga dapat melalui produksi non-fisi dengan aktivasi neutron dari molibdenum alam (MoO₃) dan molibdenum yang diperkaya hingga mencapai 96% (Mo-98) [5],[6].

Reaksi inti (n,γ) ini dapat memproduksi radionuklida yang memiliki waktu paruh panjang, dan mengalami peluruhan dengan pemancaran radiasi γ , untuk menghasilkan radionuklida baru yang tidak sejenis dengan target yang digunakan [7].

Gambar 1 memperlihatkan reaksi inti pembentukan Tc-99m menggunakan target alam (MoO₃) melalui reaksi aktivasi neutron. Pada saat Mo-98 diaktifkan dengan neutron, Mo-98 menyerap neutron untuk menghasilkan Mo-99, setelah itu Mo-99 meluruh menjadi radionuklida Tc-99m dan secara bersamaan melepaskan partikel β^- (beta negatif) [8].

$$Mo^{99}(n,\gamma) \rightarrow Mo^{99} \rightarrow Tc^{99m} + \beta^-$$



Gambar 1. Reaksi Aktivasi Neutron dan Peluruhan Mo-99.

Radionuklida Mo-99 yang telah teriradiasi diperoleh dalam bentuk serbuk. Proses pelarutan Mo-99 dilakukan dengan melarutkan Mo-99 menggunakan natrium hidroksida (NaOH) dan menghasilkan larutan jernih yaitu natrium molibdat (Na2Mo⁹⁹O₄) dengan reaksi yang terjadi sebagai berikut.

$${\rm Mo^{99}O_{3}}_{(s)} + 2{\rm NaOH_{(aq)}} \rightarrow {\rm Na_2Mo^{99}O_{4}}_{(aq)} + {\rm H_2O_{(l)}}$$

pH larutan diatur menggunakan asam klorida di dalam kolom generator, selanjutnya dilakukan proses pencucian menggunakan Aquadest (air suling). Proses pemisahan (elusi) dilakukan selama tiga hari di masingmasing generator. Elusi adalah proses pemisahan unsur campuran pada kolom kromatografi menghasilkan eluat produk, dengan cara mencuci atau membawa unsur campuran tersebut keluar dari kolom menggunakan larutan. Pemisahan dilakukan untuk menghasilkan radionuklida Tc-99m menggunakan generator Mo-99/Tc-99m non fisi [8].

Produksi radionuklida Mo-99 dengan aktivasi neutron pada target molibdenum alam (MoO₃) merupakan suatu pilihan alternatif karena bahan sasarannya mudah didapat, biayanya terjangkau, dan untuk pengolahan limbah produksi tidak sulit. Namun, kendalanya adalah kadar Mo-98 yang berada pada molibdenum alam (MoO₃) hanya sebesar 24,19% [9], sehingga dibutuhkan jumlah target yang besar untuk menghasilkan Mo-99 dengan aktivitas spesifik yang tinggi. Hal ini menyebabkan kemungkinan adanya lolosan Mo-99 yang masuk ke dalam produk Tc-99m semakin tinggi yang dikendalikan karena adanya lolosan ini terkait dengan proses pelabelan radiofarmaka Tc-99m menjadi tidak optimal [10]. Tujuan penelitian ini adalah untuk menentukan nilai kemurnian dari aktivitas radioknuklida Tc-99m

dari produk generator Mo-99/Tc-99m non-fisi menggunakan spektrometer gamma. Hal ini dilakukan dengan menganalisis nilai kalibrasi energi dan efisiensi radionuklida Mo-99 dan Tc-99m pada spektrometer gamma dengan detektor High-Purity Germanium (HPGe) No. GEM-S5020 (*ORTEC*) di Pusat Riset Radioisotop, Radiofarmaka, dan Biodosimetri BRIN.

Kalibrasi energi dilakukan menggunakan sumber standar campuran Ba-133 dan Eu-152, dan standar Eu-152 dengan spesifikasi seperti yang ditunjukkan pada Tabel 1. Pengukuran ini harus dilakukan dengan mengaplikasikan geometri yang sama dengan sampel radionuklida yang diukur agar diperoleh hasil pengukuran valid dan akurat.

Tabel 1. Jenis sumber standar yang digunakan dan aktivitas radionuklida acuannya.

Nomor Sertifikat	Jenis	Sumber Standar	Aktifitas (kBq)
	Cair	Ba-133	38,60 ± 4,19%
10/KN 04.01/KMR 5.2/06/2020	Campuran	Eu-152	$46,58 \pm 4,37\%$
	Titik	Eu-152	11.91 ± 5.36%

Tujuan kalibrasi yang dilakukan untuk memverifikasi lolosan Mo-99 dengan rentang energi dari sumber standar yang digunakan untuk tujuan analisis kualitatif apakah terdapat kontaminasi radionuklida (Mo breakthrough) atau lolosan di larutan Tc-99m [11]. Adanya lolosan radioknuklida Mo-99 tersebut dapat mengganggu atau mempengaruhi hasil Tc-99m dalam proses diagnosis, hal ini berdampak negatif sehingga berbahaya untuk tubuh manusia karena waktu paruh yang dimiliki Mo-99 yang cukup panjang [12].

Sementara itu, kalibrasi efisiensi detektor HPGe bertujuan untuk menghitung aktivitas radionuklida Mo-99 dan Tc-99m secara kuantitatif dengan menggunakan persamaan efisiensi yang didapatkan dari hasil kalibrasi menggunakan sumber standar yang digunakan acuan. Untuk mengetahui nilai suatu efisiensi energi pada radionuklida (sumber standar) diperoleh menggunakan persamaan 1 dengan $\varepsilon_{\it E}$ adalah efisiensi energi, N merupakan counting rate (laju pencacahan) atau pada saat sinar gamma mengirimkan energi sepenuhnya per detik, A merupakan aktivitas radionuklida dari sumber standar (Bq), I (intensitas) adalah probabilitas emisi pada (γ) sinar gamma, dan K adalah faktor koreksi peluruhan untuk radionuklida [13],[14][15].

$$\varepsilon_E = \frac{N}{A.I.K} \tag{1}$$

Ketidakpastian efisiensi dinyatakan pada persamaan 2 berikut.

$$u(\epsilon) = \epsilon \sqrt{\left(\frac{u(N)}{N}\right)^2 + \left(\frac{u(A)}{A}\right)^2 + \left(\frac{u(I)}{I}\right)^2 + \left(\frac{u(K)}{K}\right)^2} \quad \ (2)$$

counting rate N (laju pencacahan) diperoleh dengan menggunakan persamaan 3. Dengan t dan N_{γ} adalah waktu pengukuran dan net area puncak energi gamma. Setelah mendapatkan nilai $\epsilon_{\rm E}$ maka didapatkan grafik hubungan energi (E) dengan $\epsilon_{\rm F}$.

$$N = \frac{N_{\gamma}}{t} \tag{3}$$

Nilai aktivitas radionuklida Mo-99/Tc-99m, diperoleh menggunakan persamaan 4, dengan A_i merupakan aktivitas radionuklida ke-i dengan mengubah nilai aktivitas dari Bq menjadi μ Ci.

$$A_i = \frac{N}{\varepsilon_{F,I.K}} \quad [Bq] \tag{4}$$

$$C_{A_i} = \frac{A_i}{V} \quad [\mu \text{Ci/mL}] \tag{5}$$

Nilai kemurnian dapat diketahui dengan menggunakan persamaan 6, dengan *A* merupakan aktivitas radionuklida yang diamati, *A_i* merupakan nilai aktivitas radionuklida sebagai pengotor.

$$P_{RN}\% = \frac{A}{A_i + A} \times 100$$
 (6)

Nilai kemurnian dapat diketahui, selanjutnya menghitung uji kelolosan menggunakan persamaan 7.

Uji Kelolosan =
$$\frac{\text{Aktv Mo99 (µci)}}{\text{Aktv Tc99m (mci)}}$$
 (7)

Hal ini perlu dilakukan uji kelolosan radionuklida, karena Tc-99m berasal dari hasil peluruhan Mo-99. Maka, terdapat pengotor

radionuklida Tc-99m berasal dari Mo-99. Lolosan itulah yang ikut terelusi larutan salin, oleh sebab itu perlu adanya pengukuran uji kelolosan tersebut.

Uji kelolosan pada Mo-99 sudah ditetapkan oleh US Pharmacopoeia, yaitu jika suatu kelolosan Mo-99 lebih dari pada nilai 0,15 µCi Mo-99/mCi Tc-99m. Maka hal ini tidak diperbolehkan dalam bidang medis seperti diagnosis karena dapat membahayakan untuk tubuh manusia. Untuk mengetahui hubungan energi puncak terhadap probabilitas detektor sebagai pencatat seluruh puncak energi, hal ini dapat dikatakan bahwa proses kalibrasi efisiensi sangatlah penting untuk dilakukan [16].

Pengukuran dengan metode spektroskopi sangat baik digunakan untuk menentukan kemurnian radionuklida Mo-99. Hal ini dapat bermanfaat pada Tc-99m di bidang kedokteran untuk proses diagnosis. Tinjauan secara komputasi untuk respon detektor HPGe terhadap sumber berbagai geometri dapat dilakukan menggunakan perangkat lunak berbasis metode Monte Carlo (MCNP) [17],[18] dengan catatan harus memenuhi syarat dalam instrumen spektrometer gamma. Selain itu, diperlukan validasi metode pengukuran Tc-99m dan penentuan limit kuantifikasi aktivitas Mo-99. Limit kuantifikasi adalah parameter yang bergantung pada beberapa faktor seperti geometri, aktivitas, aktivitas latar belakang (background), waktu pencacahan dan lainlain.

METODOLOGI

Bahan dan Alat

Penelitian ini menggunakan sumber standar cair campuran Ba-133 dan Eu-152 volume 5 mL (VBL 1), sumber standar titik Eu-152 dengan nomor kode (5202-08 PTKMR), sesuai spesifikasi yang tertera pada Tabel 1, molibdenum trioksida (MoO₃), larutan saline (NaCl), aquadest (air suling), kolom generator Mo-99/Tc-99m non-fisi, vial kaca 10 mL, shielding Mo-99 (Moly assay canister-Capintec, ketebalan timbal 0,5 inci, tinggi 3,68 inci dan diameter 2,10 inci), syringe 5 mL dan 10 mL, pinset, pipet, kertas Ph Universal, dan kertas saring whatman. Kalibrasi energi pengukuran aktivitas radionuklida dilakukan menggunakan dose calibrator (Biodex Atom Lab 100) dan spektrometer gamma dengan detector *High Purity Germanium* (HPGe) No. GEM-S5020 (*ORTEC*).

Kalibrasi energi dan efisiensi detektor menggunakan sumber standar cair campuran Ba-13 Eu-152, dan standar titik Eu-152

Pengukuran cacahan latar dengan geometri dan waktu yang sesuai dengan pengukuran pada sumber standar dapat dilakukan terlebih dahulu, sebelum dilakukan proses kalibrasi.

Kalibrasi pengukuran energi spektrometer gamma dilakukan dengan menggunakan sumber standar cair campuran antara Ba-133 dan Eu-152 pada jarak 4 cm (rak 2) dari detektor HPGe dengan geometri yang sama, sedangkan pengukuran sumber standar titik Eu-152 dilakukan pada jarak maksimal *chamber* vaitu 25 cm (rak maksimal) dari detektor, dengan waktu cacah masingmasing 10.800 detik dan 21.600 detik secara berturut-turut. Pengukuran dilakukan sebanyak tiga kali untuk sumber standar.

b. Iradiasi dan penyerapan

Radioknuklida Mo-99 diproduksi melalui reaksi aktivasi neutron yang membutuhkan target alam non molibdenum trioksida (MoO₃) sebagai target di reaktor, penelitian ini dilakukan di reaktor Serba Guna-G.A.Siwabessy (RSG-GAS), Indonesia dengan posisi iradiasi yang digunakan Central Irradiatiom Position (CIP) selama 4 hari. (MoO₃) yang telah diiradiasi dilarutkan menggunakan larutan natrium hidroksida dengan konsentrasi 4 M. Larutan Mo-99 yang akan diserapkan dalam kolom generator disesuaikan pH-nya menjadi 4 menggunakan larutan asam klorida, dengan 6 M kemudian dilakukan konsentrasi penyerapan Mo-99 ke dalam kolom generator dan penyucian kolom dengan 100 mL air suling, sehingga siap untuk proses elusi [19].

c. Proses elusi Mo-99/Tc-99m

Proses elusi generator Mo-99/Tc-99m non fisi ini dilakukan selama tiga hari produksi radionuklida Tc-99m pada tiga generator. Elusi dilakukan sebanyak enam fraksi (dalam 5 mL) dan diukur kemurniannya dari fraksi dengan aktivitas Tc-99m yang tertinggi dari

pengukuran dengan dose calibrator. Fraksi ini adalah fraksi yang mengandung konsentrasi aktivitas Tc-99m paling tinggi yang paling baik dilakukan proses pelabelan meniadi radiofarmaka. Eluat fraksi tersebut kemudian pengukuran dilakukan lolosan Mo-99 menggunakan moly assay canister, kemudian dicuplik 1-2 μL untuk pengukuran Tc-99m dengan spektrometer gamma masing-masing pada jarak 4 cm dan jarak tertinggi 25 cm dari detektor secara berurutan untuk setiap elusi generator.

d. Perhitungan/pengukuran kemurnian Mo-99 dan Tc-99m

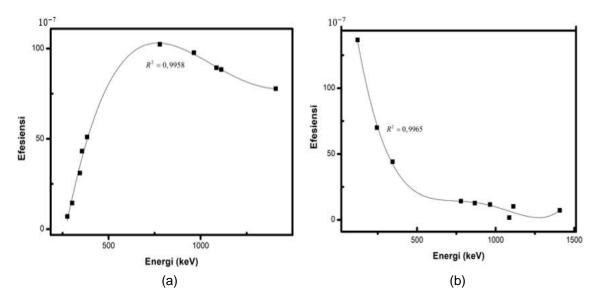
Penentuan kemurnian radionuklida Mo-99/Tc-99m dilakukan dengan menggunakan persamaan 1. Ketidakpastian efisiensi yang diperoleh dapat dinyatakan dari persamaan (2), dan nilai *counting rate* (laju pencacahan) dapat diketahui dengan menggunakan persamaan 3.

Nilai efisiensi energi ϵ_E yang akan digunakan pada Mo-99, dan Tc-99m yaitu dengan menggunakan nilai *range square* (R²) pada grafik hubungan E dengan ϵ_E yang telah diperhitungkan. Kemudian untuk mencari aktivitas untuk Mo-99 dan Tc-99m menggunakan persamaan 4.

Nilai kemurnian radionuklida P_{RN} ditentukan dengan menggunakan persamaan 6 [20]. Nilai aktivitas seluruh radionuklida dari persamaan 6 harus dihitung secara bersamaan, dengan perhitungan nilai P_{RN} .

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pengukuran nilai kemurnian radionuklida produk Tc-99m dari generator Mo-99/Tc-99m menggunakan non-fisi spektrometer gamma ditentukan melalui nilai kalibrasi energi dan efisiensi, yaitu dengan mengetahui nilai R2. Hasil nilai hubungan tersebut dapat ditunjukan pada Gambar 2.a dan 2.b. Gambar 2.a merupakan hubungan grafik energi dan efisiensi sumber standar cair campuran Ba-133 dengan Eu-152, pada rak 2 dengan waktu cacah 10.800 detik, dengan R² yang diperoleh sebesar 0,9958. Sedangkan pada Gambar 2.b merupakan hubungan grafik energi dan efisiensi sumber standar titik Eu-152 pada rak maksimal dengan waktu cacah 21600 detik, dengan R² yang diperoleh sebesar 0,9965, masing-masing menghasilkan persamaan dengan polinomial orde-4, karena nilai R2 yang diperoleh hasil keduanya mendekati nilai 1, maka garis regresi yang dibentuk oleh titik-titik data pengamatan memiliki kesesuaian pada sumbu x dan y.



Gambar 2. Hubungan antara energi (keV) dan efisiensi pada sumber standar Ba-133 dengan Eu-152 cair (a); dan hubungan antara energi (keV) dan efesiensi pada sumber standar titik Eu-152 (b).

Hal ini menunjukan fitting data pada pengukuran yang didapat memiliki ketepatan dan mendekati nilai sebenarnya, dimana hasil linieritas memenuhi ketentuan Eurcham [21], sehingga pengukuran yang dilakukan dapat dikatakan baik dan persamaan efisiensi yang diperoleh bisa digunakan ke tahap berikutnya yaitu uji kuantitatif aktivitas radionuklida.

Hasil evaluasi hubungan energi gamma dengan efisiensi detektor pada sumber standar cair campuran Ba-133 dan Eu-152 pada Gambar 2 dapat ditunjukkan pada Tabel 2. Tabel 2 merupakan rentang energi sumber standar cair campuran Ba-133, Eu-152. Nilai energi yang digunakan pada penelitian ini yaitu nilai energi yang memiliki intensitas diatas 7%. Hal ini dikarenakan nilai energi dibawah 276,29 keV memiliki nilai intensitas yang begitu kecil, sehingga dapat dinyatakan bahwa probabilitas yang didapat bernilai rendah. Faktor yang berpengaruh yaitu waktu atau jarak pada saat pengukuran, dan kemungkinan adanya pengaruh terhadap pemakaian shielding untuk menyesuaikan geometri pengukuran radionuklida Mo-99, yang dapat dijelaskan sebagai berikut: waktu yang digunakan pada saat pengukuran dapat berpengaruh pada nilai intensitas yang didapat. Ketika nilai suatu radionuklida yang didapat rendah, maka peneliti meningkatkan waktu pengukuran agar intensitas radionuklida tersebut dapat terbaca oleh spektrometer gamma. Begitu juga dengan jarak (jarak antara rak di dalam chamber spektrometer gamma). Jarak bisa didekatan dengan spektrometer gamma karena semakin dekat jarak sumber pada spektrometer gamma maka intensitas pada energi yang terbaca semakin besar. Faktor terakhir yang berpengaruh adalah adanya pemakaian shielding menggunakan moly assay canister dengan ketebalan timbal (Pb) sebesar 0,5 inci pada sumber standar cair. Penggunaan shielding disini berfungsi untuk menyamakan geometri pada pengukuran lolosan Mo-99, yang tujuannya untuk menahan energi Tc-99m yang besar, atau memisahkan energi Tc-99m dengan Mo-99, sehingga energi pada Mo-99 dapat terdeteksi spektrometer gamma. Hal menyebabkan beberapa energi dari sumber standar cair campuran Ba-133 dan Eu-152, seperti energi Ba-133 di 81 keV dengan probabilitas 34% dan energi Eu-152 di 121 dan 244 keV dengan probabilitas masing masing 29,4 dan 7,6%, tidak terdapat puncak energi pada spektrum pencacahan seperti yang terlihat pada gambar 3a.

Pengaruh shielding menyebabkan intensitas energi yang keluar pada sumber standar berkurang, dan kemungkinan tertahan sepenuhnya, namun tidak terdapat informasi spesifikasi rentang energi yang bisa ditahan oleh material shielding tersebut sehingga perlu dilakukan penentuan efek gamma dari sumber standar pada eksperimen berikutnya.

Tabel 2. Rentang energi dan intensitas sumber standar campuran cair Ba-133 dan Eu-152

Sumber Standar	Energi (keV)	Intensitas(%)	Efisiensi [x10 ⁻⁷]
Ba-133	276,29	7,30	4,1789 ± 0,0146
Ba-133	302,71	18,62	8,1521 ± 0,0285
Eu-152	344,30	27,00	16,3979 ± 0,0574
Ba-133	355,86	62,27	21,7025 ± 0,0760
Ba-133	383,70	8,84	$25,953 \pm 0,0908$
Eu-152	778,90	12,99	51,6693 ± 0,1808
Eu-152	964,00	14,58	49,0702 ± 1,7174
Eu-152	1085,80	10,29	44,564 ± 0,1560
Eu-152	1112,07	13,58	43,9027 ± 0,1537
Eu-152	1408,08	21,21	39,1098 ± 0,1369

Tabel 3 menunjukkan rentang energi sumber standar Eu-152 dengan geometri titik (*point source*) yang digunakan sebagai acuan untuk pengukura Tc-99m hasil elusi Generator Mo-99/Tc-99m non fisi. Nilai energi yang digunakan pada sumber standar titik ini adalah yang memiliki nilai intensitas diatas

4%. Hal ini dikarenakan intensitas energi dibawah 4% memiliki probabilitas yang rendah dimana pada spektrometer gamma tidak terbaca puncak pada energi tersebut. Faktor yang dapat menyebabkan nilai intensitas energi rendah adalah kurangnya waktu pengukuran dengan kondisi pengukuran pada

jarak terjauh, yaitu 25 cm dari detektor di dalam *chamber*. Agar intensitas energi pada sumber standar dapat terbaca oleh spektrometer gamma meningkat dapat dilakukan dengan menambah waktu pengukuran. Pengukuran aktivitas yang relevan terhadap sumber standar titik (*point source*) dapat dilakukan pada jarak 25 cm dari detektor [22].

Tabel 3. Rentang energi dan intensitas sumber standar titik Eu-152

Sumber Standar	Energi (keV)	Intensitas (%)	Efisiensi [x10 ⁻⁶]	
Eu-152	121,78	29,24	13,700 ± 0,006	
Eu-152	244,67	7,616	$7,002 \pm 0,003$	
Eu-152	344,30	27,00	$4,407 \pm 0,002$	
Eu-152	778,90	12,99	$1,418 \pm 0,006$	
Eu-152	867,39	4,176	1,270 ± 0,051	
Eu-152	964,00	14,58	1,159 ± 0,046	
Eu-152	1085,80	10,29	1,699 ± 0,068	
Eu-152	1112,07	13,58	1,020 ± 0,041	
Eu-152	1408,08	21,21	$0,718 \pm 0,030$	

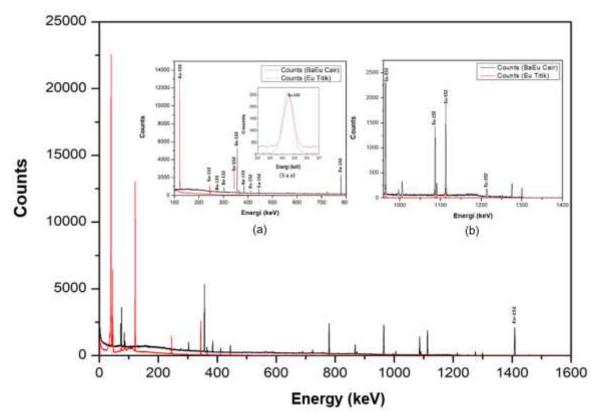
Berdasarkan hasil spektrum gamma dari sumber standar Eu-152 titik dan Ba-133, Eu-152 cair yang telah dilakukan, selanjutnya ditinjau cacahan puncak energi dari tingkat rendah hingga tingkat tinggi (0-1610 keV). Hal ini dapat dilihat pada Gambar 3 yang menunjukan sebaran cacahan nilai puncak energi. Puncak energi Ba-133 yang muncul yaitu 276, 302, 355 dan 383 keV dengan intensitas puncak maksimal di energi 355 keV sebesar 62,27%. Gambar 3.a merupakan nilai sebaran puncak rentang energi (100-800 keV) pada sumber standar Ba-133, Eu-152 cair dan Eu-152 titik. Puncak-puncak energi gamma Eu-152 cair dan titik yang berhimpitan yaitu 344 dan 778 keV dengan intensitas 27 dan 12%. Spektrum pada gambar 3.b. merupakan rentang energi (960-1400 keV) pada sumber Eu-152 cair dan Eu-152 titik. Puncak-puncak energi gamma Eu-152 yang berhimpitan dengan intensitas 14,58; 10,29; 13,58 dan 21,21%. Puncak energi gamma yang saling berhimpitan menunjukkan kalibrasi energi yang dilakukan baik, dimana posisi puncakpuncak energi radionuklida yang sama dengan geometri yang berbeda tidak bergeser jauh. Nilai cacah radionuklida Eu-152 cair pada energi gamma 778, 964, 1085, 1112 dan 1408 keV lebih tinggi dibandingkan Eu-152 disebabkan titik yang oleh aktivitas radionuklida sumber standar cair yang lebih besar terhitung pada waktu pengukuran dilakukan. Namun hal yang berbeda terlihat pada gambar 3.a untuk energi Eu-152 cair di 344 keV dengan dengan probabilitas 27%, intensitas gamma yang dipancarkan berkurang setelah melalui bahan timbal.

Penggunaan shielding menyebabkan tidak terbacanya cacahan puncak energi gamma sumber standar cair pada rentang energi (0-260 keV). Puncak energi gamma Eu-152 di 121 keV dengan intensitas 29,24% dan 244 keV dengan intensitas sebesar 7,616% dapat dilihat pada gambar 4. Gambar 4 memperlihatkan bahwa puncak energi tersebut pada Eu-152 cair secara penuh tertahan oleh bahan timbal, sedangkan untuk intensitas energi gamma di 344 keV hanya tertahan sebagian. Shielding ini juga dapat menahan semua energi gamma Ba-133 di bawah 276 keV. Sayangnya, spesifikasi moly canister/shielding timbal digunakan, tidak diketahui kemampuan bahan tersebut menahan radiasi gamma, sehingga perlu dilakukan penelitian lebih lanjut pengaruh interaksi sinar gamma radionuklida Ba-133 dan Eu-152 terhadap bahan shielding tersebut.

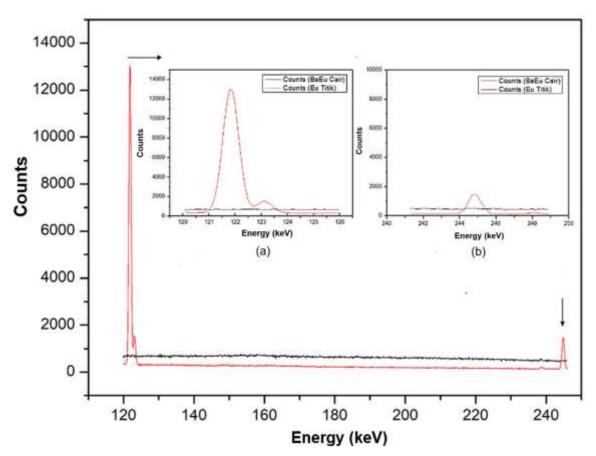
Geometri yang digunakan pada pengukuran standar Ba-133 Eu-152 cair dan geometri Eu-152 titik menyesuaikan pencacahan lolosan Mo-99 dan hasil elusi Tc-99m. Salah satu langkah penting yang harus diperhatikan dalam teknik spektrometri sinar gamma adalah memperoleh kurva efisiensi-energi yang tepat yang pada dasarnya bergantung kepada konfigurasi geometri yang digunakan pada pengukuran sampel dan standar pengkondisian sampel hasil elusi generator di dalam container timbal, posisi geometri relatif pencacahan sumber terhadap detektor, kuantitas atau volume sampel-standar yang digunakan dalam teknik pencacahan dan densitas

sampel. Adanya spektrum sumber standar yang dimiliki, maka kuantitas nilai cacahan ini dapat digunakan sebagai acuan pengukuran kalibrasi sebelum diaplikasikan pada alat spektrometer gamma untuk pengukuran lolosan Mo-99 ataupun Tc-99m. Tabel 4 menunjukkan nilai aktivitas, kemurnian, dan kelolosan Mo-99/Tc-99m yang diperoleh pada penelitian ini. Nilai aktivitas pada Mo-99 dan Tc-99m yang diperoleh dapat dilihat pada Tabel 4, dimana untuk nilai aktivitas Mo-99, nilai aktivitas terbesar yang didapat sebesar 834 Bg dalam volume 5 mL saline elusi. Nilai kemurnian dihitung menggunakan persamaan 4 dan dapat dinyatakan bahwa nilai kemurnian produksi radionuklida Mo-99/Tc-99m rata-rata mencapai 99,999%. Persamaan 5 digunakan untuk mendapatkan nilai kelolosan Mo-99

dengan nilai kelolosan terbesar Mo-99 pada produksi generator Mo-99/Tc-99 non-fisi sebesar 0,0018 μCi Mo-99/mCi Tc-99m. Hal ini menunjukkan bahwa Tc-99m sangat baik dan dapat digunakan untuk proses pelabelan menjadi radiofarmaka dan digunakan untuk keperluan diagnosis dalam bidang medis, karena uji kelolosan yang didapat tidak melebihi nilai yang telah ditetapkan oleh US Pharmacopoeia yaitu 0,15 µCi Mo-99/ mCi Tc-99m. Pengukuran kemurnian produk eluat generator Mo-99/Tc-99m menggunakan metode spektrometer gamma ini dapat dilakukan setiap saat setelah proses elusi generator dan dapat dilakukan pada setiap fraksi dari elusi maupun gabungan dari semua fraksi elusi generator.



Gambar 3. Standar BaEu cair dan Eu titik pada rentang energi 121-867 keV (a) serta standar Eu cair dan Eu titik pada rentang energi 960-1300 keV (b)



Gambar 4. Standar Eu titik dengan rentang energi 120-245 (keV) dibandingkan dengan standar Eu-152 titik pada rentang energi 120-126 keV (a); dan standar Eu-152 titik dengan pada rentang energi 243-246 KeV (b).

Tabel 4 Nilai aktivitas, kemurnian dan kelolosan Mo-99/Tc-99m kolom generator

Generator	Elusi	Aktivitas Mo-99 (µCi/5mL) [x10 ⁻²]	Aktivitas Tc-99m (mCi/5mL)	Kemurnian (%)	Kelolosan (μCi Mo-99/mCi Tc-99m)
	Elusi Ke-1 Hari Ke-1	2,07 ± 0,31	29,080 ± 0,090	99,999	0,000712
1	Elusi Ke-2 Hari Ke-2	$0,69 \pm 0,21$	9,120 ± 0,022	99,999	0,000756
	Elusi Ke-3 Hari Ke-3	$0,14 \pm 0,03$	13,269 ± 0,018	99,999	0,000104
	Elusi Ke-1 Hari Ke-1	0,90 ± 0,07	5,379 ± 0,004	99,999	0,001667
2	Elusi Ke-2 Hari Ke-2	$2,20 \pm 0,08$	12,322 ± 0,017	99,999	0,001783
	Elusi Ke-3 Hari Ke-3	0.82 ± 0.19	6,087 ± 0,011	99,999	0,001347
	Elusi Ke-1 Hari Ke-1	$0,48 \pm 0,04$	17,887 ± 0,013	99,999	0,000269
3	Elusi Ke-2 Hari Ke-2	$0,99 \pm 0,03$	5,503 ± 0,011	99,999	0,001807
	Elusi Ke-3 Hari Ke-3	0.82 ± 0.03	9,693 ± 0,014	99,999	0,000848

KESIMPULAN

Metode pengukuran dengan spektroskopi sangat baik dan cukup sensitif digunakan untuk menentukan kemurnian radionuklida Tc-99m. Kemurnian radionuklida Tc-99m dari tiga generator Mo-99/Tc-99m non fisi rata rata yang diperoleh sebesar 99,999% dan lolosan radionuklida Mo-99 terbesar yaitu 0,0018 μCi Mo-99/mCi Tc-99m. Hal ini dapat dinyatakan bahwa larutan Tc-99m sangat baik dan dapat digunakan untuk proses pelabelan menjadi radiofarmaka dan digunakan untuk keperluan diagnosis dalam bidang medis, karena uji kelolosan yang didapat tidak melebihi nilai telah ditetapkan yang oleh US Pharmacopoeia yaitu 0,15 μCi Mo-99/mCi Tc-99m.

UCAPAN TERIMA KASIH

Terima kasih diucapkan kepada Kepala Pusat Riset Teknologi Radioisotop, Radiofarmaka, dan Biodosimetri (PRTRRB), Badan Riset dan Inovasi Nasional (BRIN) dan seluruh pihak terkait yang memberikan pendanaan melalui program ORTN HITN 2024. Ucapan terima kasih juga penulis sampaikan kepada seluruh tim generator Mo-99/Tc-99m non fisi Indonesia: Marlina, Arni Aries, Endang Sarmini, Witarti, Indra Saptiama, Herlan Setiawan, Munir, Chaidir Pratama dan Ahid Nurmanjaya.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] N. E. Rosilawati, I. Nasution, T. W. Murni, "Penggunaan radiofarmaka untuk diagnosa dan terapi di indonesia dan asas keamanan penggunaan obat," *Jurnal Hukum Kesehatan*, vol.3, no. 1, hal. 60-73, 2017.
- [2] N. Uzunov et al., "Quality assurance of Mo-99/Tc-99m radionuclide generators," *Acta Scientifica Naturalis*, vol. 5, no. 1, pp. 40–47, 2018. doi: 10.2478/asn-2018-0006.
- [3] E. M. Hahn, A. Casini, and F. E. Kühn, "Re(VII) and Tc(VII) trioxo complexes stabilized by tridentate ligands and their potential use as radiopharmaceuticals," *Coordination Chemistry Reviews*, vol. 276, pp. 97-111, 2014. doi: 10.1016/j.ccr.2014.05.021.
- [4] M.- Mawar, S. D. Astuti, and S. Febriana, "Deteksi Karakteristik

- Peluruhan Radionuklida Medis 99Mo Untuk Memperoleh 99mTc Menggunakan Spektrometer Gamma dengan Sumber Standar Cair Campuran 133Ba dan 152Eu," *Jurnal Fisika Indonesia*, vol. 24, no. 2, p. 96, 2020. doi: 10.22146/jfi.v24i2.54405.
- [5] M. A. El-Absy, M. A. El-Amir, T. W. Fasih, H. E. Ramadan, and M. F. El-Shahat, "Preparation of 99Mo/99mTc generator based on alumina 99Mo-molybdate (VI) gel," *J Radioanal Nucl Chem*, vol. 299, no. 3, pp. 1859–1864, 2014, doi: 10.1007/s10967-014-2930-7.
- [6] J. Welsh, C. I. Bigles, and A. Valderrabano, "Future U.S. supply of Mo-99 production through fission based LEU/LEU technology," J Radioanal Nucl Chem, vol. 305, no. 1, pp. 9–12, Jul. 2015, doi: 10.1007/s10967-015-4090-9.
- [7] S. Sunarhadijoso, "Radioisotop dan radiofarmaka: dari teori atom sampai teknik produksi dan pemeriksaan kualitas" Pusat Pengembangan Informatika Nuklir, BATAN, 2013.
- [8] I. Saptiama, dkk., "Pembuatan radionuklida molibdenum-99 (99Mo) hasil aktivasi neutron dari molibdenum alam untuk memperoleh teknesium-99m (99mTc)," *Urania: Jurnal Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir,* vol. 22 no.2, hal. 121-132, 2016. doi: 10.17146/urania.2016.22.2.3094
- [9] S. Hasan and M. A. Prelas, "Molybdenum-99 production pathways and the sorbents for 99Mo/99mTc generator systems using (n, γ) 99Mo: a review," Nature, 2020. doi: 10.1007/s42452-020-03524-1.
- [10] E. L. Dewi et al., "Development of UV-Vis spectrophotometric method for determination of Mo release content in technetium-99m (99mTc) eluate from 99Mo/99mTc generator," AIP Conf. Proc. 2493, 030007, Sep. 2022, p. 030007. doi: 10.1063/5.0110067.
- [11] S. Febriana and I. Mirda, "Gamma spectrometer calibration of liquid standard sources of Mix 133Ba, 137Cs and 60Co toward the measurement of 99Mo breakthrough of 99Mo/99mTc generator," in *Journal of Physics:*

- Conference Series, Institute of Physics, 2023. doi: 10.1088/1742-6596/2596/1/012032.
- [12] S. Febriana, E. Sarmini, and A. Nurmanjaya, "Relative method of 99Mo activity measurement from medical 99Mo/99mTc generator," Prosiding Seminar Nasional Inovasi dan Pendayagunaan Teknologi Nuklir 2020, Serpong, 18-19 November 2020"
- [13] M. Konstantinova, D. Germanas, A. Gudelis, and A. Plukis, "Efficiency calibration of high-purity germanium detector using monte carlo simulations including coincidence-summing corrections: Volume source case," *Lithuanian Journal of Physics*, vol. 61, no. 1, pp. 66–73, 2021, doi: 10.3952/PHYSICS.V61I1.4408.
- [14] H. Candra, G. Wurdiyanto, and Holnisar, "Analisis kurva kalibrasi efisiensi spektrometer gamma menggunakan sumber standar 152eu pada rentang energi 121 1408 kev," in Prosiding Seminar Nasional Infrastuktur Energi Nuklir 2019, 2019.
- [15] "Investigation of Uncertainty Sources in the Determination of Gamma Emitting Radionuclides in the UAL." Accessed: Aug. 22, 2024. [Online]. Available: https://www.ns.iaea.org/downloads/rw/ ppss/quality-management/uncertaintygamma-measurement.pdf
- [16] A. K. Chakraborty, M. S. Uddin, M. A. Shariff, S. A. Latif, M. A. Rashid, and M. U. Khandaker, "Efficiency calibration of γ -ray detector for extended sources," *Journal of Physics*, vol. 92, no. 4, Apr. 2019, doi: 10.1007/s12043-019-1735-1.
- [17] A. Saraiva, C. Oliveira, M. Reis, L. Portugal, I. Paiva, and C. Cruz, "Study of the response of an ORTEC GMX45

- HPGe detector with a multi-radionuclide volume source using Monte Carlo simulations," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 113, pp. 47–52, Jul. 2016, doi: 10.1016/j.apradiso.2016.04.016.
- [18] J. G. Guerra et al., "Computational characterization of HPGe detectors usable for a wide variety of source geometries by using Monte Carlo simulation and a multi-objective evolutionary algorithm," *Nucl Instrum Methods Phys Res A*, vol. 858, pp. 113–122, Jun. 2017, doi: 10.1016/j.nima.2017.02.087.
- [19] Marlina, et al., "Surface modification of acid-functionalized mesoporous gamma-alumina for non-fission 99Mo/99mTc generator," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 187, Sep. 2022, doi: 10.1016/j.apradiso.2022.110342.
- [20] B. Neacsu, C. Cimpeanu, and C. Barna, "Radionuclidic purity - An essential parameter in quality control of radiopharmaceuticals," Romanian Reports in Physics, vol. 65, pp. 155-167, 2013.
- [21] Noviarty, I. Haryati, and S. Nisa, "Analisis radionuklida dalam batuan menggunakan spektrometer gamma," *Majalah Ilmiah, Pengelolaan Instalasi Nuklir*, vol 10, pp. 37–46, 2017.
- [22] P. Dryak and P. Kovar, "Experimental and MC determination of HPGe detector efficiency in the 40-2754 keV energy range for measuring point source geometry with the source-to-detector distance of 25 cm," *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 64, no. 10–11, pp. 1346–1349, Oct. 2006, doi: 10.1016/j.apradiso.2006.02.083.