

PENGEMBANGAN TEKNIK PEMISAHAN RADIOISOTOP ^{113m}In DENGAN SISTEM KROMATOGRAFI KOLOM ZIRKONIUM OKSIDA

THE DEVELOPMENT OF ^{113m}In RADIOISOTOP SEPARATION TECHNIQUE WITH A CHROMATOGRAPHY SYSTEM OF ZIRCONIUM OXIDE COLUMN

Duyeh Setiawan, M. Basit Febrian, Yanuar Setiadi

Pusat Sains dan Teknologi Nuklir Terapan – Badan Tenaga Nuklir Nasional

Jalan Tamansari No. 71 Bandung 40132

E-mail: d_setiawan@batan.go.id

Diterima 1 Februari 2018, diterima dalam bentuk perbaikan 18 Oktober 2018, disetujui 2 Mei 2019

ABSTRAK

PENGEMBANGAN TEKNIK PEMISAHAN RADIOISOTOP ^{113m}In DENGAN SISTEM KROMATOGRAFI KOLOM ZIRKONIUM OKSIDA. Radioisotop indium-113m (^{113m}In) mempunyai waktu paruh, $T_{1/2} = 1,7$ jam dan energi gamma, $E_\gamma = 391$ keV cocok dan memenuhi kriteria sebagai radioperunut di bidang industri. Radioisotop ^{113m}In diperoleh dari peluruhan tin-113 (^{113}Sn , $T_{1/2} = 115$ hari) hasil aktivasi neutron $^{112}\text{Sn}(n, \gamma)^{113}\text{Sn}$ dalam reaktor nuklir. Proses pemisahan radioisotop ^{113m}In menggunakan metode kolom kromatografi berbasis matriks zirkonium oksida dengan elusi menggunakan larutan HCl 0,05 M merupakan pengembangan teknik pemisahan dari kromatografi kolom silika gel. Uji kemurnian radionuklida menggunakan metode pengukuran energi ^{113m}In dengan spektrometri-gamma, serta kemurnian radiokimia dengan cara kromatografi kertas. Spesifikasi produk akhir dalam bentuk $^{113m}\text{InCl}_3$ berupa larutan jernih, pH 2, diperoleh yield > 90 %, kemurnian radionuklida > 90 %, kemurnian radiokimia sebesar $95,51 \pm 0,24$ % dan stabil selama 5 hari pada suhu kamar.

Kata kunci: radioisotop ^{113m}In , isotop alam, zirkonium oksida, kromatografi

ABSTRACT

THE DEVELOPMENT OF ^{113m}In RADIOISOTOP SEPARATION TECHNIQUE WITH A CHROMATOGRAPHY SYSTEM OF ZIRCONIUM OXIDE COLUMN OF MANUSCRIPT. The indium-113m (^{113m}In) radioisotope has a half-life, $T_{1/2} = 1.7$ hours and gamma energy, $E_\gamma = 391$ keV is suitable and meets the criteria as a radioperunut in the industry. ^{113m}In radioisotope was obtained from tin-113 decay (^{113}Sn , $T_{1/2} = 115$ days) of $^{112}\text{Sn}(n, \gamma)^{113}\text{Sn}$ neutron activation in nuclear reactor. The ^{113m}In radioisotope separation process using a zirconium oxide-based chromatographic column method with elution using a 0.05 M HCl solution was the development of a separation technique from silica gel column chromatography. The radionuclide purity test uses the ^{113m}In energy measurement method with gamma-spectrometry, as well as radiochemical purity by paper chromatography. The final product specification in the form of $^{113m}\text{InCl}_3$ is clear solution, pH 2, obtained yield of > 90 %, radionuclide purity of > 90%, radiochemical purity of 95.51 ± 0.24 % and stable for 5 days at room temperature.

Keywords: ^{113m}In radioisotopes, natural isotopes, zirconium oxide, chromatography

PENDAHULUAN

Aplikasi teknologi nuklir dengan metode radioperunut telah berkembang dengan luas terutama dalam penggunaan radioisotop pemancar gamma berumur waktu paruh pendek, karena banyak aplikasi radioperunut di industri dan kedokteran nuklir biasanya membutuhkan penelusuran radioaktivitas selama beberapa menit sampai beberapa hari. Menggunakan perunut radioisotop berumur waktu paruh pendek, memungkinkan untuk mengulang pengukuran pada interval waktu tanpa harus khawatir tentang aktivitas yang tersisa dalam sistem dari tes/pengujian sebelumnya. Kelebihan radioperunut mempunyai sensitivitas deteksi

tinggi, mudah diterapkan dan biaya rendah dibanding metode perunut konvensional. Akan tetapi pemilihan radioisotop yang sesuai untuk digunakan sebagai *radiotracer* dalam penyelidikan tergantung pada waktu paruh, jenis radiasi yang dipancarkan dan energinya serta kemampuan untuk diproduksi [1].

Kelemahan radioisotop pemancar gamma berumur waktu paruh pendek yaitu hanya dapat digunakan di lokasi yang dekat dengan fasilitas reaktor nuklir, karena waktu paruhnya yang pendek membatasi masalah praktis transportasi pada jarak pengiriman. Oleh karena itu ketersediaan tepat waktu di lokasi penyelidikan merupakan salah satu hambatan paling utama yang membatasi berkembangnya pemanfaatan perunut radioisotop berumur pendek dalam industri dan kedokteran nuklir [2].

Sistem generator radioisotop (GR) merupakan strategi yang efektif dalam menyelesaikan masalah-masalah praktis untuk memfasilitasi pekerjaan di lokasi yang jauh dari fasilitas reaktor nuklir sehingga dapat memungkinkan penyediaan layanan yang cepat untuk masalah-masalah yang bersifat mendesak. Radioisotop ^{113}Sn berpeluang digunakan untuk sistem generator radioisotop (GR) $^{113}\text{Sn}/^{113\text{m}}\text{In}$ sebagai sumber penghasil radioisotop $^{113\text{m}}\text{In}$ pemancar energi gama 391,69 keV dan waktu paruh yang pendek 1,7 jam. Keuntungan lainnya dari radioisotop ^{113}Sn adalah waktu paruh yang panjang selama 115 hari sehingga dapat digunakan sampai satu tahun terus menerus sebagai sumber generator $^{113}\text{Sn}/^{113\text{m}}\text{In}$ tanpa harus diganti [3 - 8]. Radioisotop ^{113}Sn diperoleh dari hasil iradiasi aktivasi neutron terhadap ^{112}Sn dalam reaktor nuklir. Pemisahan Indium-113m ($^{113\text{m}}\text{In}$) dengan metode kromatografi kolom menggunakan eluen larutan HCl untuk mendapatkan ion $^{113\text{m}}\text{In}^{3+}$ ($^{113\text{m}}\text{InCl}_3$).

Proses pemisahan dalam sistem generator $^{113}\text{Sn}/^{113\text{m}}\text{In}$ berdasarkan cara kromatografi kolom dengan matriks silika gel telah dilakukan penelitian sebelumnya. Kelemahan menggunakan absorben silika gel dalam suasana asam menyebabkan terjadi perubahan sifat bentuk dari padat menjadi larutan gel yang mengakibatkan sulit untuk mendapatkan radionuklida $^{113\text{m}}\text{In}$ murni [9].

Berdasarkan hasil evaluasi pemisahan dengan cara kromatografi kolom berbasis matriks silika gel, maka selanjutnya dikembangkan teknik pemisahan menggunakan kolom kromatografi berbasis zirkonium oksida yang mempunyai sifat kestabilan dalam asam tidak berubah sifat bentuk (padat). Penguasaan pemisahan radioisotop $^{113\text{m}}\text{InCl}_3$ dari bahan sasaran tin-logam alam dengan metode pemisahan kromatografi kolom berbasis matriks zirkonium oksida merupakan tujuan penelitian ini.

METODOLOGI

Bahan

Bahan – bahan yang digunakan dalam penelitian ini terdiri dari timah (Sn) metal dari E. Merck, asam klorida, zirkonium oksida (100-200 mesh) [10], hidrogen peroksida (H_2O_2 30%), akuades, amonium molibdat (1%), buffer fosfat (Na_2HPO_4), kertas indikator pH universal, etanol 90%, aseton kering, kertas kromatografi Whatman 3MM, *inner/outer capsule* aluminium.

Alat

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini terdiri dari pemotong kuarsa, neraca analitik *Mettler Toledo AL 204*, pemanas (*Thermolyne*) merek Nouva II, pencacah γ saluran tunggal (SCA) ORTEC model 402 A, pencacah spektrometer- γ saluran ganda (MCA) dengan detektor HPGe Canberra DSA-1000, oven Heraeus T5050, reaktor nuklir TRIGA 2000 Bandung BATAN, *hot cell*, *glove box*.

Iradiasi Bahan Target Timah Metal (^{112}Sn)

Radionuklida ^{113}Sn diperoleh dari hasil iradiasi bahan target ^{112}Sn melalui reaksi inti (n,γ) di reaktor penelitian TRIGA 2000 Bandung. Sebanyak 1 gram bahan target timah metal (^{112}Sn) dimasukkan ke dalam gelas kuarsa, kemudian ditutup dengan cara pengelasan. Gelas kuarsa yang berisi target ditempatkan dalam *inner capsule* yang terbuat dari bahan aluminium. Selanjutnya dilakukan iradiasi selama ± 72 jam di dalam reaktor pada posisi iradiasi CT (*Centre Timble*) dengan fluks neutron $> 10^{13} \text{ n.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$.

Perlakuan Target Paska Iradiasi (Larutan Stok $^{113}\text{Sn} - ^{113m}\text{In}$)

Bahan target hasil iradiasi dikeluarkan dari dalam gelas kuarsa, kemudian dimasukkan ke dalam gelas kimia 250 mL lalu dilarutkan dalam 100 ml HCl 6 N. Proses pelarutan dilakukan di atas alat pemanas dengan suhu $\pm 80^\circ\text{C}$ sambil diaduk perlahan dengan *magnetic stirer* hingga larut sempurna, lalu ditambahkan 3 tetes H_2O_2 30 %. Larutan dikisatkan perlahan – lahan sampai kira-kira 50 mL. Dilakukan uji kualitatif Sn^{2+} terhadap larutan stok ($^{113}\text{Sn}-^{113m}\text{In}$) dengan dipipet 20 μL kemudian diencerkan hingga 1 mL ditambahkan 1 tetes ammonium molibdat perubahan warna biru menandakan adanya kation Sn^{2+} . Dalam proses ini diharapkan Sn pada larutan stok ($^{113}\text{Sn}-^{113m}\text{In}$) dalam bentuk kation Sn^{4+} . Larutan stok ($^{113}\text{Sn}-^{113m}\text{In}$) dipindahkan ke dalam vial gelas dan ditutup menggunakan tutup karet lalu diberi etiket bertuliskan aktivitas (μCi), volume (mL), tanggal/bulan/tahun dan jam serta disimpan dalam boks hasil akhir. Seluruh pekerjaan dilakukan dalam *hot cell*, *glove box*.

Penentuan aktivitas larutan stok ($^{113}\text{Sn}-^{113m}\text{In}$) dengan spektrometer- γ MCA-HPGe (*Multi Channel Analyzer – High Purity Germanium*). Larutan stok ($^{113}\text{Sn}-^{113m}\text{In}$) dipipet sebanyak 10 μL dan dimasukkan ke dalam vial 1 mL, lalu larutan diukur dengan spektrometer- γ MCA-HPGe dicacah selama 300 detik. Spektrum gamma yang diperoleh dianalisis sehingga didapatkan masing – masing aktivitas radioisotop pada larutan stok ($^{113}\text{Sn}-^{113m}\text{In}$) dengan energi gamma radioisotop induk ^{113}Sn pada 255 keV dan energi radioisotop anak ^{113m}In pada 391 keV.

Proses Pemisahan ^{113m}In dari ^{113}Sn Menggunakan Matriks Kolom ZrO_2 Dengan Eluen HCl 0,05 N

Zirkonium dioksida (ZrO_2) dengan ukuran 100-200 mesh seberat $\pm 1,5$ gram dimasukkan ke dalam kolom gelas (diameter 0,5 cm, panjang 7,5 cm). Kemudian kolom dan isinya dikondisikan dengan HCl 0,05 N selanjutnya dialirkan larutan $^{113m}\text{Sn}-^{113m}\text{In}$. Kolom dielusi dengan HCl 0,05 N sebanyak 15 mL. Eluat kemudian ditampung sebanyak 1 mL dalam vial berukuran 10 mL (n fraksi=15). Eluat hasil pemisahan disimpan sebagai sediaan larutan $^{113m}\text{InCl}_3$.

Karakterisasi Radioisotop ^{113m}In

Kemurnian radionuklida ditentukan dari analisis spektrum sinar gamma ^{113m}In dengan HPGe-MCA. Sebanyak 10 μL sediaan radionuklida $^{113m}\text{InCl}_3$ dimasukkan ke dalam vial 1 mL, selanjutnya dicacah selama 300 detik. Karakteristik spektrum sinar- γ dari $^{113m}\text{InCl}_3$ pada puncak energi 391 keV. Sedangkan kemurnian radiokimia ditentukan dengan kromatografi kertas menggunakan fasa gerak aseton kering dan fase diam Whatman 3MM, diamati pada R_f 0,7 dari $^{113m}\text{In}(\text{III})$. Dilakukan dengan menotolkan larutan $^{113m}\text{InCl}_3$ pada jarak 2 cm di bagian bawah kertas kromatografi Whatman 3MM, kemudian kertas dimasukkan ke dalam *chamber* kromatografi yang telah jenuh oleh eluen. Elusi dilakukan sampai jarak migrasi fasa gerak mencapai 16 cm. Kertas kromatogram dikeringkan, dipotong – potong setiap 1 cm dan dicacah dengan alat pencacah- γ saluran tunggal (SCA).

HASIL DAN PEMBAHASAN

Iradiasi Bahan Target Timah Metal (^{112}Sn)

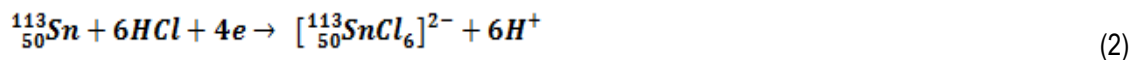
Radionuklida ^{113}Sn diperoleh dari hasil iradiasi bahan target ^{112}Sn melalui reaksi inti (n,γ) di reaktor TRIGA 2000 Bandung, selama 3 hari. Iradiasi ^{112}Sn dengan neutron lambat menghasilkan reaksi inti sebagai berikut:



Dalam proses ini, isotop yang semula stabil yaitu ^{112}Sn ditembak dengan neutron, kemudian neutron ini akan masuk ke dalam inti atom ^{112}Sn sehingga jumlah neutron dalam inti akan bertambah menjadi ^{113}Sn . Peristiwa ini dapat mengakibatkan ketidakstabilan inti atom sehingga ^{113}Sn berubah sifat menjadi unsur radioaktif dan meluruh menjadi ^{113m}In .

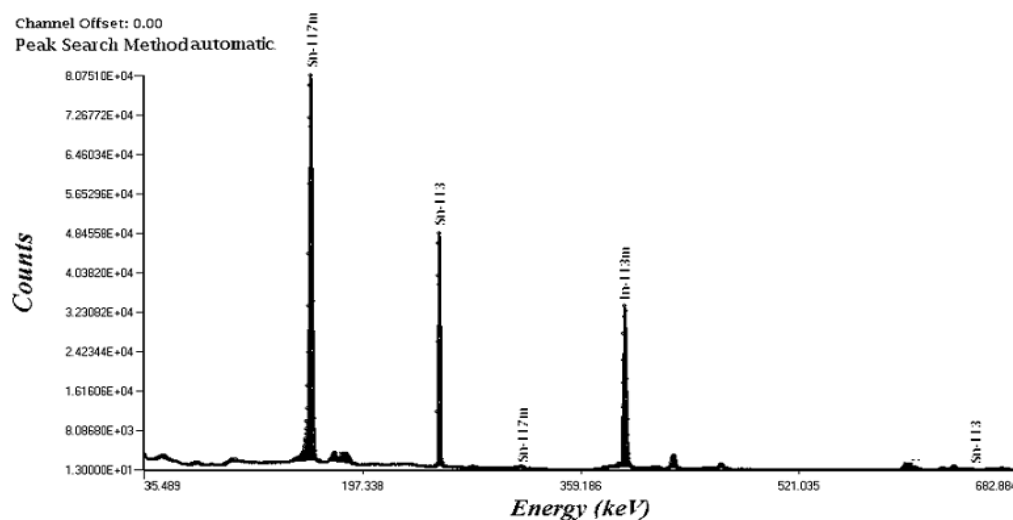
Perlakuan Target Paska Iradiasi (Larutan Stok ^{113}Sn – $^{113\text{m}}\text{In}$)

Proses pelarutan dilakukan di dalam *Hot Cell* dengan menggunakan HCl 6N dan H_2O_2 30% sebanyak 3 tetes sebagai oksidator disertai pengadukan selama 4 jam dan pemanasan pada suhu 80°C . Larutan stok (^{113}Sn – $^{113\text{m}}\text{In}$) dikondisikan dalam suasana asam agar bilangan oksidasi Sn terjaga dalam bentuk Sn^{4+} dengan bentuk ionik $[\text{SnCl}_6]^{2-}$ dan $^{113\text{m}}\text{In}$ dalam bentuk ionik $[\text{InCl}_4]^-$ setelah larut sempurna disimpan dalam botol vial dan dimasukkan ke dalam kontiner Pb. Didapat larutan stok paska iradiasi sebanyak 50 mL berwarna jernih. Untuk memastikan kation Sn memiliki bilangan oksidasi +4 dilakukan uji kualitatif Sn^{2+} (menggunakan amonium molibdat hasil larutan menjadi biru). Hasil uji ditunjukkan dengan tidak adanya perubahan warna, ini menandakan bahwa Sn telah teroksidasi sempurna menjadi Sn^{4+} . Reaksi yang terjadi berdasarkan reaksi senyawa kompleks:



Penentuan aktivitas larutan stok (^{113}Sn – $^{113\text{m}}\text{In}$) dengan spektrometer- γ MCA-HPGe (*Multi Channel Analyzer – High Purity Germanium*).

Radioisotop yang terbentuk paska iradiasi seperti terangkum dalam Gambar 1 sebagai berikut:



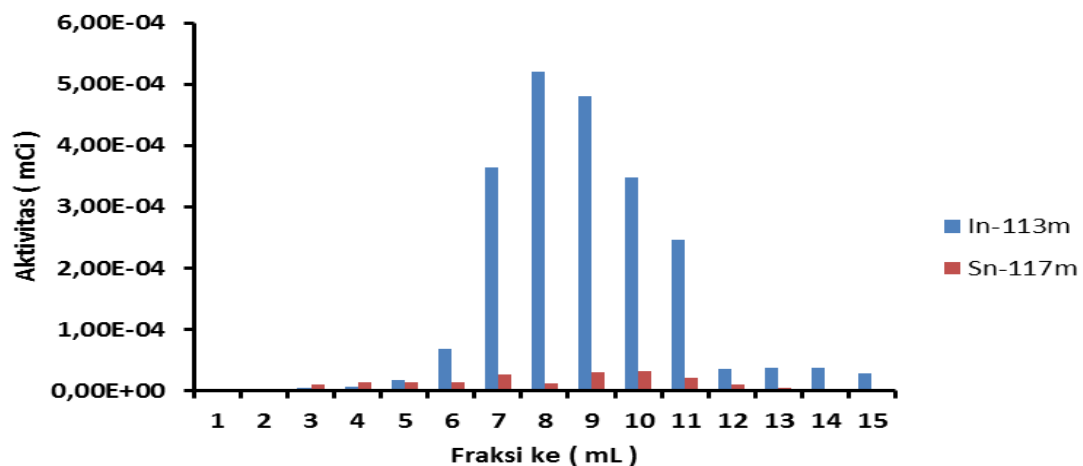
Gambar 1. Spektrum gamma larutan stok (^{113}Sn – $^{113\text{m}}\text{In}$).

Tabel 1 menunjukkan terbentuknya radioisotop lain selain ^{113}Sn dan $^{113\text{m}}\text{In}$, yaitu radionuklida $^{117\text{m}}\text{Sn}$ terbentuk dari penangkapan partikel neutron oleh ^{116}Sn dengan kelimpahan alam 14,54% [11].

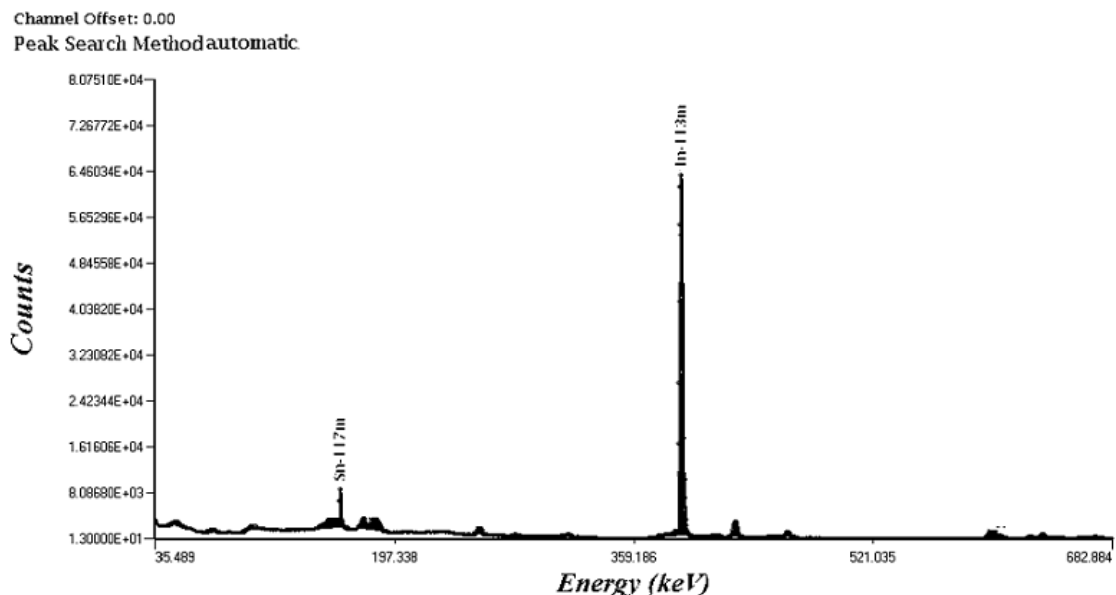
Pemisahan $^{113\text{m}}\text{In}$ dari ^{113}Sn menggunakan kolom matriks ZrO_2 dengan eluen HCl 0,05 N. Profil hasil proses pemisahan ditunjukkan pada Gambar 2. Persen *yield* $^{113\text{m}}\text{In}$ diperoleh di atas 90 % sedangkan persen *yield* $^{117\text{m}}\text{Sn}$ kurang dari 1 %, dan persen *yield* ^{113}Sn adalah 0 %.

Tabel 1. Radioisotop hasil aktivasi neutron terhadap target Sn.

No.	Radioisotop	Energi (KeV)
1.	$^{117\text{m}}\text{Sn}$	158,348
2.	$^{113\text{m}}\text{In}$	391,651
3.	^{113}Sn	254,924



Gambar 2. Profil elusi ^{113m}In dengan eluen HCl 0.05 N.



Gambar 3. Spektrum sinar gamma sediaan radioisotop $^{113m}\text{InCl}_3$.

Karakterisasi Radioisotop ^{113m}In Hasil Proses Pemisahan

Penentuan kemurnian radionuklida ^{113m}In

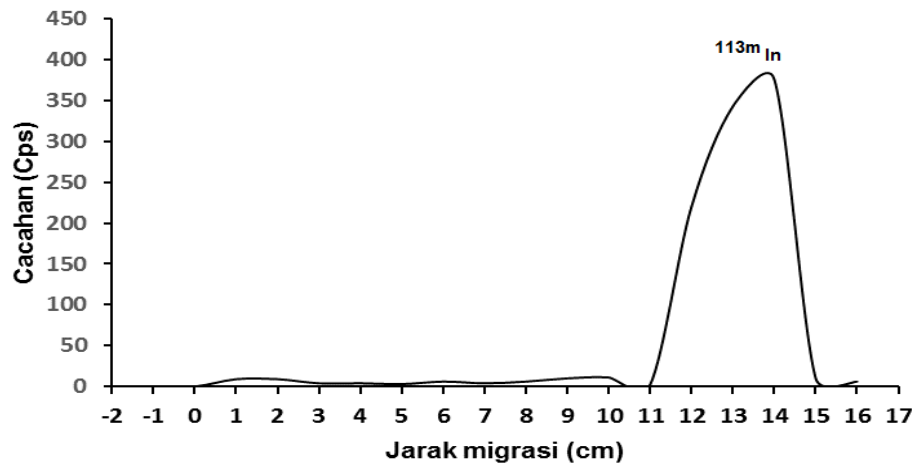
Kemurnian radionuklida pada sediaan $^{113m}\text{InCl}_3$ diuji menggunakan MCA-HPGe dengan hasil spektrum sinar gamma seperti ditunjukkan pada Gambar 3. Karakteristik spektrum sinar gamma dari $^{113m}\text{InCl}_3$ pada puncak energi 391,675 keV dan radioisotop ^{117m}Sn pada puncak energi 158,56 keV. Hal ini sesuai dengan penjelasan Allan K.F et all [3] bahwa radioisotop ^{113m}In memiliki waktu paruh 1,7 jam pada pemancar gamma (391.675 keV). Kemurnian radionuklida (KRN) yang didapat di atas 90 %.

Penentuan Kemurnian Radiokimia ^{113m}In

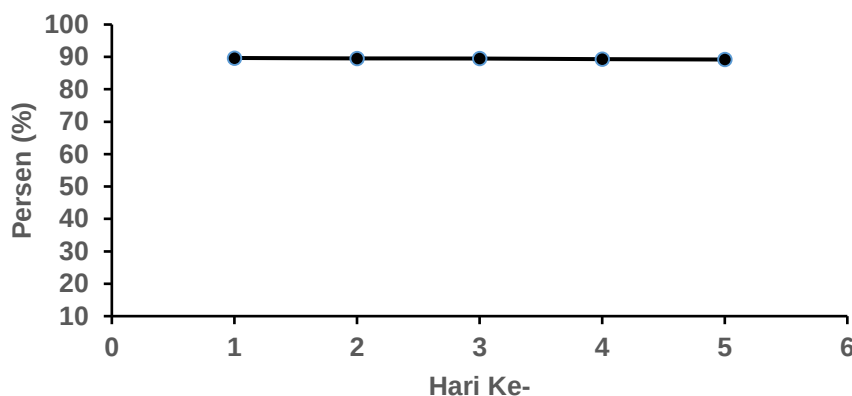
Menggunakan metode kromatografi kertas dengan fasa diam kertas kromatografi 3MM dengan fasa gerak aseton kering. Kromatogram radioisotop ^{113m}In seperti ditunjukkan pada Gambar 4. Radioisotop ^{113m}In bermigrasi

mencapai harga Rf 0,7-0,8 dan kemurnian radiokimia di atas 95 %, sehingga kondisi dengan menggunakan fasa diam kertas kromatografi 3MM dan fasa gerak aseton kering dapat digunakan selanjutnya untuk menentukan kestabilan radiokimia ^{113m}In tersebut.

Hasil uji kestabilan sediaan radioisotop ^{113m}In pada penyimpanan suhu kamar 25°C menunjukkan bahwa larutan $^{113m}\text{InCl}_3$ tetap jernih dan berada pada lingkungan pH 2. Sediaan $^{113m}\text{InCl}_3$ dapat mempertahankan kemurnian radiokimia selama 5 hari seperti yang ditunjukkan pada Gambar 5.



Gambar 4. Kromatogram ^{113m}In menggunakan fasa diam kertas kromatografi 3MM dengan fasa gerak aseton kering.



Gambar 5. Kestabilan kemurnian radiokimia $^{113m}\text{InCl}_3$.

KESIMPULAN

Pemisahan radioisotop induk ^{113}Sn dengan radioisotop anak ^{113m}In menggunakan kolom matriks zirkonium oksida (ZrO_2) ukuran 100-200 mesh sebanyak 1,5 gram, eluen HCl 0,05 N menghasilkan persen *yield* ^{113m}In di atas 90 %. Karakteristik sediaan radionuklida ^{113m}In dalam bentuk $^{113m}\text{InCl}_3$ berupa larutan jernih, memiliki pH 2. Adapun kemurnian radionuklida (KRN) di atas 90 %, kemurnian radiokimia di atas 95 % dan stabil selama 5 hari pada suhu kamar.

UCAPAN TERIMA KASIH

Ucapan terima kasih disampaikan kepada PSTNT-BATAN Bandung yang telah memberikan dana penelitian ini dan saudari Fuji Octa Indah Suciati mahasiswa program sarjana kimia Universitas Jendral Achmad Yani yang telah membantu menyelesaikan kegiatan ini.

DAFTAR PUSTAKA

- [1]. H.J.Pant, V.K.Sharma, G. Sunil, S. Gursharan. Radiotracer investigations for sediment transport in parts of India. BARC Newsletter, No. 334, p 10-19, 2013.
- [2]. F.C.F. Camargo, A.M.F. Pinto, R.M. Moreira. Development of $^{115}\text{Cd}/^{115m}\text{In}$ generator for industri and environmental applications. Chemical Engineering Transactions. vol. 32, p 295-300, 2013.
- [3]. K.F. Allan, M.M.S.Ali, H.A. Hanafi, K.M. Azony. Separation of ^{113}In from ^{113}Sn on Activated Carbon Used as Column Matrix. Isotope & Rad.Res.41. vol. 4, no.2,p.1495-1504,2009.
- [4]. M. Mustafa, A.A. El-Sadek, H. El-Said, A. El-Amir. $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc} - ^{113}\text{Sn}/^{113m}\text{In}$ Dual Radioisotope Generator Based On 6-Tungstocerate (IV) Column Matrix. Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences. vol.10, no.1, p 1-12, 2009.
- [5]. IAEA. Radiotracer generators for industrial applications. Radiation Technologi Series No.5, Vienna, p 103-109, 2013.
- [6]. A. Dash, F.F. Knapp, M.R.A. Pillai. Industrial radionuclide generator: a potential step to wards accelerating radiotracer investigation in industry. Journal Royal Society of Chemistry. vol. 3, p 14890-14909, 2013.
- [7]. F. Tarkanyi, A. Hermanne, B. Kiraly, S.Takacs, F.Ditroi, M. Baba, A.V. Ignatyuk. Investigation of activation cross sections of deuteron induced reactions on indium up to 40 Mev for production of a $^{113}\text{Sn}/^{113m}\text{In}$ generator. Applied Radiation and Isotopes. vol 69, p 26-36, 2011.
- [8]. B. Ponsard, S.C. Srivastava, L.F. Mausner, F.F. Knapp, M.A. Gerland, S. Mirzadeh. Production of Sn-117m in the BR2 high-flux reactor. Applied Radiation and Isotopes. vol. 67, p 1158-1161, 2009.
- [9]. D. Setiawan, M. Basit Febrian, Yanuar Setiadi. Radioisotopes ^{113m}In separation of irradiated Sn (Tin) isotopes natural target based silica gel column chromatography. Submit Jurnal Molekul, 2017.
- [10]. D. Setiawan, F.O.I. Suciati. Sintesis dan karakterisasi zirkonium dioksida untuk digunakan sebagai matriks kolom generator radioisotop $^{113}\text{Sn} - ^{113m}\text{In}$. Jurnal Iptek Nuklir Ganendra. vol. 20, no.1, p 41-48, 2017.
- [11]. D. Setiawan, N. Suherman, T. Srimulyati. Analisis fisiko-kimia radioisotop ^{117m}Sn aktivitas jenis tinggi dari sasaran timah oksida menggunakan reaksi szilard-chalmers. Prosiding Seminar Nasional TAN PTAPB – BATAN Yogyakarta 22 Oktober 2013, p 16-22, 2013.