

## PEMBUATAN RADIOISOTOP $^{64}\text{Cu}$ BERBASIS REAKSI NUKLIR $^{64}\text{Ni}$ (p,n) $^{64}\text{Cu}$ : SIMULASI PREPARASI TARGET DAN PEMISAHAN RADIONUKLIDA

Sunarhadijoso Soenarjo, Wira Y. Rahman, Sriyono, Triyanto.

Pusat Radioisotop dan Radiofarmaka, BATAN,  
Kawasan PUSPIPTEK Serpong, Tangerang Selatan 15314.  
E-mail : soenarjo@batan.go.id.

### ABSTRAK

**PEMBUATAN RADIOISOTOP  $^{64}\text{Cu}$  BERBASIS REAKSI NUKLIR  $^{64}\text{Ni}$  (p,n)  $^{64}\text{Cu}$  : SIMULASI PREPARASI TARGET DAN PEMISAHAN RADIONUKLIDA.** Dalam upaya penguasaan teknologi produksi radioisotop  $^{64}\text{Cu}$  berbasis reaksi nuklir  $^{64}\text{Ni}$  (p,n)  $^{64}\text{Cu}$ , target nikel disiapkan melalui *electroplating* suasana asam larutan nikel klorida–asam borat dan *electroplating* suasana basa larutan nikel klorida–nikel sulfat pada permukaan perak keping penyangga target. Larutan simulasi matrik Ni(II)–Cu(II) dianggap sebagai larutan target nikel pasca iradiasi yang mengandung radiotembaga. Dalam percobaan ini iradiasi nikel tidak dilakukan, sedangkan radiotembaga dihasilkan dari aktivasi neutron pada target CuO. Pemisahan radiotembaga dilakukan dengan kromatografi kolom penukar anion pada kondisi Cu sebagai kompleks anion  $\text{CuCl}_4^{2-}$  dan Ni dalam bentuk kation  $\text{Ni}^{2+}$ . Hasil percobaan menunjukkan larutan nikel suasana asam memberikan deposit *electroplating* nikel yang lebih memuaskan dibandingkan dengan larutan nikel suasana basa. Dalam kondisi HCl 6 M spesi tembaga terindikasi dalam bentuk  $\text{Cu}^{2+}$  dan  $\text{CuCl}_4^{2-}$ , sedangkan nikel dalam bentuk  $\text{Ni}^{2+}$ . Dalam kondisi HCl 9 M, tembaga dalam bentuk  $\text{CuCl}_4^{2-}$ , sedangkan nikel dalam bentuk  $\text{Ni}^{2+}$  dan  $\text{NiCl}_4^{2-}$ . Kondisi pemisahan terbaik adalah dalam HCl 8 M yang mengkondisikan tembaga berada dalam bentuk  $\text{CuCl}_4^{2-}$ , sedangkan nikel dalam bentuk  $\text{Ni}^{2+}$ . Selanjutnya  $\text{CuCl}_4^{2-}$  yang tertahan di kolom diubah menjadi  $\text{Cu}^{2+}$  dan dielus dengan HCl 0,05 M. Pemeriksaan spektrometri- $\gamma$  menunjukkan puncak kuat pada energi 511 keV yang sesuai dengan energi  $\gamma$ -anihilasi radioisotop  $^{64}\text{Cu}$  dan puncak lemah pada 1346 keV sesuai dengan energi  $\gamma$  dari transisi energi internal  $^{64}\text{Cu}$

**Kata kunci:** reaksi nuklir  $^{64}\text{Ni}$  (p,n)  $^{64}\text{Cu}$ , target nikel, radioisotop  $^{64}\text{Cu}$ , kromatografi penukar anion.

### ABSTRACT

**PREPARATION OF  $^{64}\text{Cu}$  BASED ON NUCLEAR REACTION OF  $^{64}\text{Ni}$  (p,n)  $^{64}\text{Cu}$  : SIMULATIONS OF TARGET PREPARATION AND RADIONUCLIDIC SEPARATION.** As a preliminary study for production technology of  $^{64}\text{Cu}$  based on nuclear reaction of  $^{64}\text{Ni}$  (p,n)  $^{64}\text{Cu}$ , the nickel targets were prepared by electroplating method using acidic solution of nickel chloride – boric acid and basic solution of nickel sulphate – nickel chloride mixtures on a silver-surfaced-target holder. The simulated solution of Ni(II) – Cu(II) matrix was considered as the solution of post-proton-irradiated nickel containing radioactive copper. In the presented work the irradiation of nickel target was omitted, while the radioactive copper was obtained from neutron irradiation of CuO target. The separation of radioactive copper was based on anion exchange column chromatography in which the radiocopper was conditioned to form  $\text{CuCl}_4^{2-}$  anion complex, while the nickel was kept as  $\text{Ni}^{2+}$  cation. It was found that the electroplating deposit from the acidic solution was better than that from the basic solution. By conditioning the matrix solution in 6 M HCl, the radioactive copper was indicated in the forms of  $\text{Cu}^{2+}$  and  $\text{CuCl}_4^{2-}$  while the nickel was in the form of  $\text{Ni}^{2+}$ . In the condition of 9 M HCl, the radioactive copper was in the form of  $\text{CuCl}_4^{2-}$ , while the nickel was found as both  $\text{Ni}^{2+}$  and  $\text{NiCl}_4^{2-}$ . The best condition of separation was in 8 M HCl in which the radioactive copper was in the form of  $\text{CuCl}_4^{2-}$ , while the nickel was in the form of  $\text{Ni}^{2+}$ . The retained  $\text{CuCl}_4^{2-}$  was then changed back into  $\text{Cu}^{2+}$  cation and eluted out from the column by using 0.05 M HCl. The  $\gamma$ -spectrometric analysis showed a single strong peak at 511 keV in accordance to  $\gamma$ -annihilation peak coming from positron decay of  $^{64}\text{Cu}$ , and a very weak peak at 1346 keV related to  $\gamma$ -ray from internal energy transition of  $^{64}\text{Cu}$

**Key words:** nuclear reaction of  $^{64}\text{Ni}$  (p,n)  $^{64}\text{Cu}$ , nickel target,  $^{64}\text{Cu}$  radioisotope, anion exchange chromatography.

## 1. PENDAHULUAN

Radioisotop  $^{64}\text{Cu}$  merupakan salah satu radioisotop medik dengan penggunaan luas sebagai sediaan radiofarmaka untuk tujuan diagnosis maupun terapi karena memancarkan radiasi  $\gamma$ -anihilasi dan radiasi  $\beta^-$  (1-5). Radioisotop ini mempunyai waktu paruh 12,7 jam, memancarkan radiasi  $\gamma$  berenergi 1,34577 MeV dan meluruh melalui beberapa mekanisme, yaitu pemancaran positron (17,86%,  $E_{\beta^+} = 0,6531$  MeV) yang diikuti dengan pembebasan 2 kuantum radiasi  $\gamma$ -anihilasi (0,511 keV), peluruhan  $\beta^-$  (39,0%,  $E_{\beta^-} = 0,5787$  MeV), penangkapan elektron (43,075%) dan konversi internal (0,475%) (6). Potensi penggunaan yang luas dalam bidang kedokteran nuklir belum dapat ditawarkan di lingkungan domestik sekalipun, karena teknologi proses radioisotop primer dan radiofarmakanya belum dikuasai.

Dengan reaktor nuklir penelitian seperti reaktor G.A. Siwabessy di kawasan BATAN Serpong, sebenarnya  $^{64}\text{Cu}$  dapat dihasilkan melalui reaksi  $(n,\gamma)$  sederhana., Kelemahannya adalah walaupun digunakan target  $^{63}\text{Cu}$  pengkayaan tinggi akan dihasilkan  $^{64}\text{Cu}$  dengan aktivitas jenis yang relatif rendah, sehingga kurang baik untuk digunakan sebagai sediaan radiofarmasi. Reaksi nuklir berbasis  $(n,p)$  menggunakan target  $^{64}\text{Zn}$  pengkayaan tinggi merupakan alternatif lain untuk menghasilkan  $^{64}\text{Cu}$  dalam reaktor nuklir (7). Reaksi nuklir ini memerlukan berkas neutron cepat, yang tidak dimiliki reaktor G.A. Siwabessy, BATAN.

Didorong oleh potensi kebutuhan domestik akan penyediaan radioisotop  $^{64}\text{Cu}$  dan radiofarmakanya, maka reaksi nuklir

berbasis aktivasi dengan partikel proton di dalam siklotron menjadi pilihan untuk menghasilkan  $^{64}\text{Cu}$  bebas pengemban yang memenuhi kriteria untuk penggunaan di bidang kedokteran nuklir. Reaksi nuklir  $^{68}\text{Zn}(p,\alpha)^{64}\text{Cu}$  memerlukan berkas proton energi tinggi (lebih dari 30 MeV) (8) yang tidak dapat dihasilkan dengan siklotron yang dimiliki BATAN. Reaksi nuklir  $^{64}\text{Ni}(p,n)^{64}\text{Cu}$  (9,10,11) lebih menjadi pilihan meskipun harus menggunakan target yang harganya sangat mahal karena kelimpahan  $^{64}\text{Ni}$  yang sangat rendah (hanya 0,926 %) (12).

Sebagai langkah awal untuk menguasai teknologi produksi radioisotop  $^{64}\text{Cu}$ , penelitian ini bertujuan untuk mempelajari pemisahan radioisotop tembaga dari matrik target nikel yang diiradiasi dengan proton. Bahan target disiapkan dalam bentuk deposit *electroplating* pada permukaan keping penyangga target dari bahan tembaga yang berlapis perak, yang sesuai untuk iradiasi proton di fasilitas siklotron BATAN (13). Protokol pemisahan radionuklida dengan teknik kromatografi kolom didasarkan pada pembentukan kompleks anion tetrakloro-tembaga-(II) pada kondisi yang dapat mempertahankan spesi nikel-(II) tetap berada dalam bentuk kation  $\text{Ni}^{2+}$  (14). Dengan demikian fraksi kompleks anion kloro-tembaga-(II) akan tertahan pada kolom resin penukar anion sedangkan fraksi kation nikel-(II) terelusi keluar kolom. Selanjutnya fraksi kompleks anion tetrakloro-tembaga-(II) yang tertahan dalam kolom dapat dielusi dengan pelarut yang sesuai yang dapat mengubah kompleks anion tetrakloro-tembaga-(II) menjadi spesi kation  $\text{Cu}^{2+}$ .

Penelitian ini dilakukan dengan menggunakan target nikel alam yang tidak diiradiasi karena pertimbangan teknis dan ekonomis, sedangkan radioaktif tembaga disimulasikan menggunakan CuO yang disinari dengan neutron termal di reaktor. Hasil penelitian ini diharapkan dapat dimanfaatkan untuk proses rutin pemisahan radionuklida  $^{64}\text{Cu}$  dari matrik target Ni pada sistem berbasis reaksi nuklir  $^{64}\text{Ni} (p,n) ^64\text{Cu}$ .

## 2. TATA KERJA

### 2.1 Bahan dan Peralatan

Bahan kimia yang digunakan mempunyai tingkat kemurnian p.a.. Tembaga oksida (CuO), nikel klorida ( $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ ), asam klorida (HCl), dimetil glioxim (DMG,  $\text{C}_4\text{H}_8\text{O}_2\text{N}_2$ ) adalah produksi Merck, sedang Dowex AG 1X8 (Cl) diproduksi oleh Bio-Rad. Tabung kuartz derajat iradiasi neutron yang digunakan untuk ampul iradiasi dan kapsul iradiasi yang terbuat dari bahan almunium kemurnian tinggi diproduksi oleh perusahaan domestik (lokal). Iradiasi CuO untuk mendapatkan tembaga radioaktif dilakukan di fasilitas iradiasi pneumatik reaktor G.A. Siwabessy (BATAN, Serpong). Air bebas mineral (aqua DM) diperoleh dari fasilitas pemurnian air di Pusat Reaktor Serba Guna, BATAN, Serpong.

*Electroplating* bahan target nikel menggunakan bejana *electroplating* dan keping penyangga target seperti yang digunakan untuk penyiapan target thalium pada pembuatan radioisotop  $^{201}\text{Tl}$  (13). Pemisahan matrik Ni(II)–Cu(II) dengan teknik kromatografi kolom penukar anion

menggunakan Econo-column 737-1010 (Bio-Rad USA). Perangkat spektrometer- $\gamma$  yang dilengkapi dengan analisator saluran ganda Canberra 1000 dan detektor HP-Ge buatan Canberra Industries digunakan untuk analisis radionuklida. Sebelum digunakan, sistem spektrometer dikalibrasi dengan standard sumber tertutup  $^{133}\text{Ba}$  (302,85 dan 356,01 keV),  $^{137}\text{Cs}$  (661,64 keV) dan  $^{60}\text{Co}$  (1173,23 dan 1332,51 keV) dari Du Pont (15). *Dose Calibrator* (Atom Lab) digunakan untuk mengukur radioaktivitas.

### 2.2 Pembuatan dan Pelarutan target Nikel

Dua macam larutan *electroplating* nikel disiapkan dengan mengadopsi prosedur yang dilaporkan oleh Kopeliovich (16). Larutan pertama dibuat dengan melarutkan 20,24 g  $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  dan 4,5 g  $\text{H}_3\text{BO}_3$  dalam 100 mL air untuk memperoleh pH larutan di bawah 3 kemudian diencerkan dengan air sampai volume 150 mL. Larutan yang kedua dibuat dengan melarutkan 40 g  $\text{NiSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  dan 5 g  $\text{NiCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  dalam 100 mL air, lalu pH diatur sampai di atas 7 dengan penambahan larutan  $\text{NH}_4\text{OH}$ , selanjutnya diencerkan dengan air sampai volume 150 mL. Masing-masing larutan *electroplating* disimpan dalam wadah tertutup dari bahan polietilen sampai saat digunakan. Untuk proses *electroplating* target nikel, keping penyangga target dari bahan tembaga yang dilapisi dengan permukaan perak yang telah diketahui beratnya, dipasangkan sebagai salah satu sisi bejana *electroplating* dan difungsikan sebagai katoda seperti ditunjukkan pada Gambar 1. Untuk anoda digunakan keping

tipis platina. Larutan *electroplating* diisikan ke dalam bejana *electroplating* dan kemudian *electroplating* dilakukan dengan arus bervariasi dan waktu *electroplating* selama 5 jam. Setelah *electroplating* selesai, larutan dipindahkan ke dalam tabung *header* dengan teknik tarikan vakum. Keping penyangga target dilepas dari bejana *electroplating* dan dikeringkan sebelum kemudian ditimbang untuk mengetahui berat deposit nikel yang dihasilkan. Pada proses sesungguhnya, target nikel disimpan dalam desikator dan siap untuk diiradiasi dalam siklotron. Akan tetapi, dalam proses simulasi ini iradiasi target nikel tidak dilakukan.



Gambar 1. Bejana *electroplating* dengan perangkat pendukungnya.

Dari kiri ke kanan : voltmeter dan amperemeter, unit *header* untuk perpindahan larutan dan bejana *electroplating* dengan keping penyangga target (berisi larutan nikel), Unit pompa vakum mini.

Untuk pelarutan target nikel, keping penyangga target dengan deposit nikelnya dipasangkan sebagai dasar bejana pelarutan. Sebanyak 10 mL larutan HCl (dengan molaritas yang bervariasi) diisikan ke dalam bejana pelarutan. Bejana pelarutan dipanaskan pada temperatur 80 - 90°C sambil secara berkala digetarkan untuk mengocok larutan di dalam bejana

tersebut. Beberapa tetes  $H_2O_2$  ditambahkan untuk memudahkan pelarutan. Pengamatan pelarutan dilakukan melalui perubahan warna permukaan penyangga target dari warna nikel menjadi warna perak atau tidak terlihat lagi terjadi gelembung gas dari dasar bejana. Larutan target nikel yang dihasilkan kemudian dipindahkan dengan penarikan vakum ke tabung *header* selanjutnya dipindahkan ke dalam wadah yang diberi label sebagai Larutan I untuk proses lebih lanjut.

### 2.3 Iradiasi target CuO dan pelarutan CuO pasca iradiasi

Sebanyak kira-kira 50 mg serbuk CuO dimasukkan ke dalam ampul kuartz, kemudian ampul ditutup dengan teknik pengelasan kuartz. Ampul kuartz ini dimasukkan ke dalam kapsul iradiasi yang selanjutnya ditutup dengan teknik pengelasan aluminium. Kapsul iradiasi dikirim ke fasilitas iradiasi pneumatik dan iradiasi dilakukan tidak lebih dari 1 jam. Setelah iradiasi selesai, kapsul iradiasi dikirimkan ke Hot Cell (*receiving cell*) untuk mengeluarkan ampul kuartz yang berisi target. Ampul kuartz dipindahkan ke dalam *processing glove box* di luar Hot Cell dan dipecahkan pada bagian ujung ampul. Serbuk CuO pasca iradiasi dipindahkan dari ampul kuartz ke dalam bejana gelas untuk pelarutan. Pelarutan menggunakan larutan HCl dengan molaritas yang bervariasi seperti yang digunakan untuk pelarutan deposit target nikel, dengan total volume sebesar 10 mL. Larutan ini ditandai sebagai Larutan II dan dicuplik untuk analisis spektrometri- $\gamma$ .

#### 2.4 Simulasi pemisahan matrik Ni(II) – Cu(II) pasca iradiasi.

Larutan simulasi matrik Ni(II) – Cu(II) pasca iradiasi diperlakukan sebagai larutan matrik berbasis reaksi nuklir  $^{64}\text{Ni} (p,n) ^{64}\text{Cu}$  yang mengandung fraksi nikel dan fraksi tembaga radioaktif. Larutan matrik disiapkan dengan mencampurkan Larutan I (larutan target Ni) dan Larutan II (larutan radioisotop Cu) dengan volume masing-masing sebesar 5 mL. Selanjutnya larutan matrik dimasukkan ke dalam kolom kromatografi yang berisi resin Dowex 1X8 ( $\text{Cl}^-$ , 100 – 200 mesh) yang telah dikondisikan. Tinggi resin di dalam kolom tidak lebih dari 4 cm untuk memberikan ruang volum bagi 10 mL larutan matrik secara sekali *loading* (pengisian).

Fraksi eluat ditampung sebagai limbah, kemudian kolom dielusi dengan 10 mL larutan HCl pekat (molaritas bervariasi) dan kemudian dengan  $2 \times 5$  mL HCl encer (0,05 M). Kedua fraksi eluat HCl ditampung secara terpisah dan dilakukan pengukuran radioaktivitas dan analisis spektrometri- $\gamma$ .

#### 2.5 Pengukuran radioaktivitas dan analisis radionuklida

Radioaktivitas diukur dengan *dose calibrator* tipe sumur. Untuk memudahkan prosedur pengukuran, keseragaman faktor geometri tidak diperhatikan walaupun hal ini dapat berakibat pada penurunan akurasi dan presisi pengukuran. Untuk analisis radionuklida, Larutan II (larutan tembaga pasca iradiasi) digunakan sebagai pembanding. Antara 5 – 20  $\mu\text{L}$  dicuplik dan diserapkan pada kertas saring dengan diameter 2 cm. Kertas saring kemudian dikeringkan dan dimasukkan ke dalam

kantung plastik untuk pengukuran spektrometri- $\gamma$  dan kemudian dilakukan pencacahan pada rentang energi- $\gamma$  150 – 1600 keV untuk mendapatkan spektrum radiasi- $\gamma$  masing-masing cuplikan.

#### 2.6 Analisis Kimia

Analisis kimia secara khusus dimaksudkan untuk mengetahui apakah fraksi radiotembaga yang diperoleh terkontaminasi oleh nikel. Larutan cuplikan diteteskan pada kertas saring lalu ditetesi dengan larutan 1% DMG dalam etanol suasana asam, kemudian kertas saring diperlakukan dengan uap larutan  $\text{NH}_4\text{OH}$ . Pembentukan noda berwarna merah menunjukkan bahwa cuplikan masih mengandung spesi nikel (17).

### 3. HASIL DAN PEMBAHASAN

Nikel alam mengandung 5 macam isotop stabil (12). Kelimpahan serta produk reaksi nuklir di reaktor dan di siklotron dari masing-masing isotop stabil nikel tersebut ditunjukkan pada Tabel 1. Informasi dalam Tabel 1 penting untuk melihat potensi gangguan radionuklida lain dalam proses dan fenomena pemisahan matrik Ni (II)-Cu(II) nantinya. Ada 3 macam isotop radioaktif dan 2 macam isotop stabil nikel dihasilkan dari reaksi nuklir ( $n,\gamma$ ), 5 isotop radioaktif cobalt dari reaksi nuklir ( $n,p$ ) dan 5 isotop radioaktif tembaga dari reaksi nuklir ( $p,n$ ). Tetapi dari kombinasi besaran kelimpahan isotop dan umur paro ( $t_{1/2}$ ) radioisotop yang dihasilkan, radioisotop  $^{64}\text{Cu}$  merupakan produk radionuklida yang paling dominan.

Tabel 1. Isotop alam nikel dan produk reaksi nuklir dalam reaktor dan dalam siklotron.

ISOTOP DAN KELIMPAHAN (%)	REAKSI NUKLIR DI REAKTOR DAN SIKLOTRON					
	Reaktor	$t_{1/2}$ Produk	$E_{\gamma}$ (keV)	Siklotron	$t_{1/2}$	$E_{\gamma}$ (keV)
Ni-58 (68,077)	$^{58}\text{Ni}(n,\gamma)^{59}\text{Ni}$	$7,5 \times 10^4$ tahun	---	$^{58}\text{Ni}(p,n)^{58}\text{Cu}$	3,2 detik	511, 1454
	$^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$	70,8 hari	811			
Ni-60 (26,223)	$^{60}\text{Ni}(n,\gamma)^{61}\text{Ni}$	stabil	---	$^{60}\text{Ni}(p,n)^{60}\text{Cu}$	23 menit	511, 1332
	$^{60}\text{Ni}(n,p)^{60}\text{Co}$	5,3 tahun	1332,5			
Ni-61 (1,140)	$^{61}\text{Ni}(n,\gamma)^{62}\text{Ni}$	stabil	---	$^{61}\text{Ni}(p,n)^{61}\text{Cu}$	3,4 jam	511, 283
	$^{61}\text{Ni}(n,p)^{61}\text{Co}$	1,65 jam	909			
Ni-62 (3,634)	$^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$	100 tahun	---	$^{62}\text{Ni}(p,n)^{62}\text{Cu}$	9,74 menit	511, 1173
	$^{62}\text{Ni}(n,p)^{62}\text{Co}$	1,5 menit	1173			
Ni-64 (0,926)	$^{64}\text{Ni}(n,\gamma)^{65}\text{Ni}$	2,52 jam	1481	$^{64}\text{Ni}(p,n)^{64}\text{Cu}$	12,7 jam	511, 1346
	$^{64}\text{Ni}(n,p)^{64}\text{Co}$	0,3 detik	1346			

**Keterangan :** Semua isotop radioaktif tembaga yang dihasilkan dari reaksi nuklir (p,n) pada target nikel alam merupakan pemancar  $\beta^+$  (positron), sehingga menghasilkan radiasi  $\gamma$ -anihilasi dengan energi 511 keV.

Matrik campuran Ni(II)–Cu (II) pasca iradiasi tidak berpotensi mengandung pengotoran radionuklida nikel. Dari reaksi nuklir (n, $\gamma$ ), pembentukan radioisotop nikel dengan umur paro yang panjang ( $^{59}\text{Ni}$  dan  $^{63}\text{Ni}$ ) akan sangat tidak signifikan dengan waktu iradiasi yang digunakan (apabila dilakukan iradiasi target nikel di reaktor), sedangkan radionikel dengan umur paro waktu paruh pendek ( $^{65}\text{Ni}$ ) akan meluruh dengan cepat dan praktis akan telah habis pada akhir proses simulasi pemisahan. Secara analogi, dapat dipahami juga bahwa tidak ada radioisotop Co hasil reaksi nuklir (n,p) yang perlu dicemaskan.

Dari reaksi nuklir (p,n) dihasilkan radioisotop tembaga dengan waktu paruh yang sangat pendek, kecuali  $^{64}\text{Cu}$ . Dengan demikian hanya radioisotop  $^{64}\text{Cu}$  inilah yang perlu dipertimbangkan. Karena itu secara teknis dalam percobaan ini iradiasi nikel di reaktor maupun di siklotron dapat tidak dilakukan karena tidak mempengaruhi fenomena pemisahan yang terjadi. Di sisi

lain, radioisotop  $^{64}\text{Cu}$  yang dalam matrik sebenarnya berasal dari reaksi nuklir  $^{64}\text{Ni}$  (p,n)  $^{64}\text{Cu}$  dapat dipresentasikan dengan  $^{64}\text{Cu}$  dari reaksi nuklir  $^{\text{NAT}}\text{Cu}$  (n, $\gamma$ )  $^{64}\text{Cu}$ . Isotop alam tembaga terdiri dari  $^{63}\text{Cu}$  dengan kelimpahan 69,17 % yang menghasilkan  $^{64}\text{Cu}$  dan  $^{65}\text{Cu}$  dengan kelimpahan 30,83 % yang menghasilkan  $^{66}\text{Cu}$ . Dalam percobaan ini keberadaan  $^{66}\text{Cu}$  dapat diabaikan karena waktu paruhnya sangat pendek, yaitu hanya 5,12 menit (18) sehingga pada proses pemisahan hanya tinggal radioaktivitas dari  $^{64}\text{Cu}$  saja.

Teknik *electroplating* merupakan teknik preparasi target padat yang paling sesuai untuk iradiasi di fasilitas siklotron BATAN. Dalam percobaan ini *electroplating* target nikel didasarkan pada metode yang dilaporkan oleh Kopeliovich (16) dengan menggunakan keping penyangga target seperti yang digunakan untuk penyiapan target thalium pada produksi radioisotop  $^{201}\text{Tl}$  (13) seperti terlihat pada Gambar 1.

Hasil pengulangan *electroplating* dengan kondisi *electroplating* yang variatif ditampilkan pada Tabel 2. Terlihat bahwa *electroplating* target nikel menggunakan larutan nikel klorida – asam borat pH < 3 dengan pemakaian arus 100 – 120 mA memberikan hasil *electroplating* yang paling baik. Hasil *electroplating* dengan kondisi tersebut akan dipergunakan lebih lanjut sebagai target yang paling layak diiradiasi di siklotron. Untuk pelarutan selanjutnya, deposit target dilarutkan dalam larutan HCl dengan molaritas yang divariasikan sesuai dengan molaritas HCl yang digunakan pada proses elusi kolom kromatografi.

Larutan simulasi target nikel pasca iradiasi dengan proton diasumsikan berisi nikel pasca iradiasi dan radioisotop tembaga hasil reaksi nuklir (p,n) pada target nikel. Karena itu matrik larutan simulasi target pasca iradiasi dibuat dengan pencampuran 5 mL larutan target nikel (Larutan I) dan 5 mL larutan target CuO pasca iradiasi (Larutan II). Larutan simulasi target pasca

iradiasi ini dimasukkan (*diload*) ke dalam kolom kromatografi dalam satu kali *loading*.

Eluat pemisahan dipisahkan dalam 3 fraksi yaitu 10 mL eluat limbah, 10 mL eluat HCl pekat (molaritas bervariasi) dan 2 × 5 mL eluat HCl encer (0,05M). Distribusi radioaktivitas yang dihasilkan ditunjukkan pada Tabel 3.

Data yang dipresentasikan pada Tabel 3 menunjukkan presisi dan akurasi yang secara statistik kurang memuaskan, diduga karena pengukuran radioaktivitas dilakukan dengan tidak memperhatikan keseragaman geometri pengukuran. Tetapi secara kualitatif terlihat kecenderungan yang konsisten yaitu bahwa fraksi radiotembaga terikat pada kolom resin penukar anion pada kondisi HCl pekat (8 M dan 9 M) karena berada dalam bentuk kompleks anion tetrakloro tembaga(II),  $\text{CuCl}_4^{2-}$ , dan kemudian terelusi dari kolom dengan larutan HCl encer (0,05 M) karena berubah menjadi kation  $\text{Cu}^{2+}$ .

Tabel 2. Hasil *electroplating* selama 5 jam pada simulasi preparasi target nikel.

No.	Arus (mA)	pH	Berat deposit Ni (mg)	Ketebalan deposit (mg/cm <sup>2</sup> )	Karakteristika hasil elektroplating
1.	100	>7	430,0	30,71	Fluktuasi kurang baik, kualitas permukaan deposit kurang baik, deposit mudah rontok (tidak stabil).
2.	100	>7	180,0	12,86	
3.	100	>7	323,0	23,07	
4	80	<3	366,3	26,16	Perlu waktu lebih lama untuk memperoleh ketebalan deposit yang sesuai, arus tidak stabil.
5	100	<3	443,6	31,69	Fluktuasi baik, kualitas permukaan deposit baik, kestabilan deposit pada target baik, arus relatif stabil.
6	100	<3	417,9	29,85	
7	120	<3	526,8	37,63	
8	120	<3	499,9	35,71	
9	140	<3	587,9	41,99	Kualitas permukaan deposit kurang baik, deposit mudah rontok (tidak stabil).
10	160	<3	680,4	48,60	

Tabel 3. Distribusi radioaktivitas dalam fraksi eluat hasil pemisahan.

Molaritas HCl yang digunakan untuk pelarutan deposit target	6 M	8 M		9 M	
Volume matrik larutan target yang diisi ke dalam kolom (mL)	10	10	10	10	
Radioaktivitas larutan matrik target (mCi [%])	249 [100]	8,97 [100]	2,54 [100]	2,50 [100]	0,741 [100]
Distribusi radioaktivitas setelah <i>loading</i> larutan matrik					
Kolom (%)	96,79	99,55	98,43	98,80	93,25
Eluat limbah, 10 mL (%)	0,23	0,11	0,50	1,61	6,33
Selisih aktivitas (%)	+2,98	+0,34	+1,07	-0,41	+0,42
Distribusi radioaktivitas pasca elusi kolom dengan larutan HCl pekat (6 M, 8 M atau 9 M)					
Kolom (%)	65,74	87,63	80,71	97,20	90,28
Eluat HCl pekat, 10 mL (%)	29,56	9,96	15,28	2,80	8,07
Selisih aktivitas (%)	+1,49	+1,96	+2,44	-1,20	-5,10
Distribusi radioaktivitas pasca elusi kolom dengan larutan HCl encer (0.05 M, 2 × 5 mL)					
Kolom (%)	0,38	3,68	0,41	26,48	13,17
Eluat-I, 5 mL (%)	62,97	74,92	77,89	68,03	77,60
Eluat-II, 5 mL (%)	0,21	0,21	0,51	1,63	6,73
Selisih aktivitas (%)	+2,18	+8,82	+1,90	+1,06	-7,22

Pada kondisi HCl 6 M fraksi radio-tembaga berada dalam bentuk campuran anion  $\text{CuCl}_4^{2-}$  dan kation  $\text{Cu}^{2+}$  sehingga radioaktivitas radiotembaga terdistribusi secara signifikan pada kolom resin dan pada larutan eluat HCl 6 M. Fenomena yang diamati dapat dijelaskan dalam urutan reaksi kimia sebagai berikut :

- $\text{Cu}^{2+}_{(aq)} + 4 \text{HCl}_{(8 \text{ M atau } 9 \text{ M})} \rightarrow \text{CuCl}_4^{2-}_{(aq)} + 4 \text{H}^+_{(aq)}$
- $\text{CuCl}_4^{2-}_{(aq)} + 2 \text{Dowex}-(\text{Cl}^-) \rightarrow (\text{Dowex})_2-(\text{CuCl}_4^{2-}) + 2 \text{Cl}^-_{(aq)}$
- $(\text{Dowex})_2-(\text{CuCl}_4^{2-}) + 2 \text{HCl}_{(0.05 \text{ M})} \rightarrow 2 \text{Dowex}-(\text{Cl}^-) + \text{Cu}^{2+}_{(aq)} + 4 \text{Cl}^-_{(aq)} + 2 \text{H}^+_{(aq)}$

Atau :

- $2 \text{Cu}^{2+}_{(aq)} + 4 \text{HCl}_{(6 \text{ M})} \rightarrow \text{CuCl}_4^{2-}_{(aq)} + 4 \text{H}^+_{(aq)} + \text{Cu}^{2+}$
- $\text{CuCl}_4^{2-}_{(aq)} + 2 \text{Dowex}-(\text{Cl}^-) \rightarrow (\text{Dowex})_2-(\text{CuCl}_4^{2-}) + 2 \text{Cl}^-_{(aq)}$
- $(\text{Dowex})_2-(\text{CuCl}_4^{2-}) + 2 \text{HCl}_{(0.05 \text{ M})} \rightarrow 2 \text{Dowex}-(\text{Cl}^-) + \text{Cu}^{2+}_{(aq)} + 4 \text{Cl}^-_{(aq)} + 2 \text{H}^+_{(aq)}$

Fenomena yang dijelaskan di atas bersesuaian dengan publikasi dari Jentsch

and Frotsher (14) yang menyatakan bahwa tembaga membentuk kompleks anion dalam kondisi normalitas HCl yang lebih besar dari 4 N tetapi tidak membentuk kompleks anion pada kondisi normalitas HCl kurang dari 1,5 N. Dalam publikasi lainnya, Wauty dan kelompoknya (19) melaporkan bahwa dalam kondisi HCl 7 M spesi tembaga dapat berada dalam bentuk  $\text{CuCl}_2$  atau  $\text{CuCl}_4^{2-}$ . Dengan demikian sangatlah beralasan bahwa dalam kondisi HCl 6 M radiotembaga memang berada dalam bentuk campuran spesi kation ( $\text{Cu}^{2+}$ ) dan spesi kompleks anion ( $\text{CuCl}_4^{2-}$ ).

Di sisi lain, keberadaan spesi nikel dengan konsentrasi rendah dalam larutan dapat dideteksi secara sederhana dengan menggunakan pereaksi DMG (17), sedangkan bila konsentrasi nikel cukup tinggi maka secara visual larutan akan berwarna hijau yang spesifik. Hasil uji tetes DMG dan pengamatan secara visual pada fraksi hasil pemisahan yang dilakukan ditunjukkan pada Tabel 4.



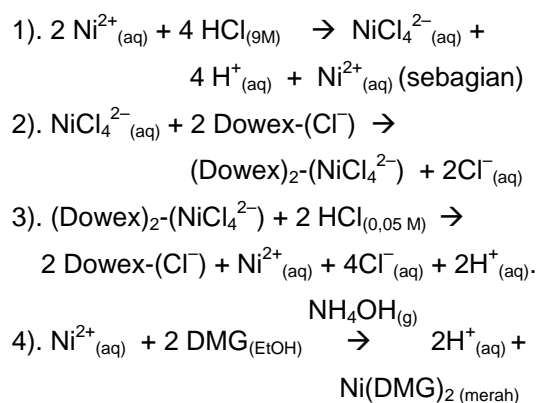
Tabel 4. Visualisasi warna dan uji tetes DMG pada fraksi eluat hasil pemisahan.

Molaritas HCl untuk pelarutan target	6 M	8 M			9 M
Visualisasi warna fraksi eluat HCl pekat	Hijau	Hijau	Hijau	Hijau	Hijau pucat
Uji tetes DMG pada fraksi eluat HCl encer	-	-	-	-	+

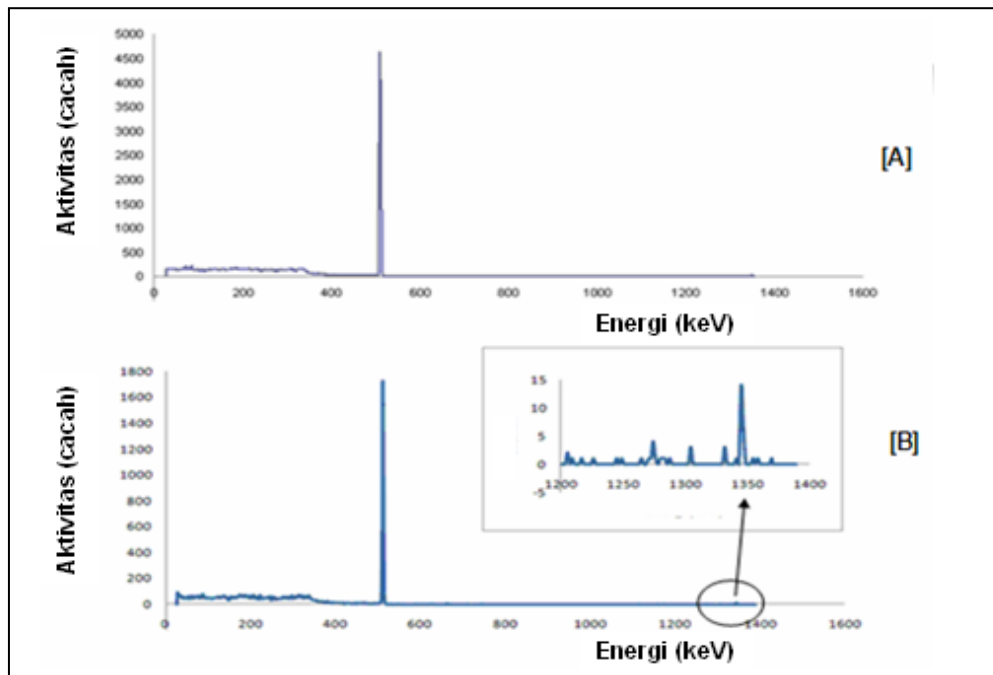
Dalam kondisi HCl 6 M atau 8 M, nikel tidak tertahan pada kolom resin dan terelusi keluar dari kolom dalam bentuk kation  $\text{Ni}^{2+}_{(\text{aq})}$  yang berwarna hijau. Fenomena tersebut bersesuaian juga dengan pengamatan Jentzsch dan Frotscher (14) yang menunjukkan bahwa nikel akan berada dalam bentuk kompleks anion  $\text{NiCl}_4^{2-}$  dalam kondisi HCl 10 N sampai 11 N tetapi tidak membentuk kompleks anion dalam normalitas HCl kurang dari 7,5 N. Dengan demikian pada kondisi molaritas HCl kurang dari 7,5 M fraksi nikel tidak tertahan pada kolom resin penukar anion karena berada dalam bentuk spesi kation ( $\text{Ni}^{2+}$ ). Pada kondisi HCl 8 M spesi kompleks anion  $\text{NiCl}_4^{2-}$  belum terjadi sehingga kolom resin tercuci bersih dari nikel. Ketika kemudian dielus dengan HCl encer (0,05 M), tak ada lagi  $\text{Ni}^{2+}$  yang terelusi sehingga uji tetes DMG memberikan hasil yang negatif.

Dalam kondisi HCl 9 M, pembentukan kompleks anion  $\text{NiCl}_4^{2-}$  mulai atau telah terjadi, tetapi sebagian spesi nikel tetap berada dalam bentuk kation  $\text{Ni}^{2+}_{(\text{aq})}$  yang memberikan warna hijau pucat pada fraksi eluat HCl 9 M karena konsentrasi  $\text{Ni}^{2+}_{(\text{aq})}$  telah semakin berkurang. Spesi nikel yang berada dalam bentuk kompleks anion  $\text{NiCl}_4^{2-}$  terikat pada resin penukar anion dalam kolom dan selanjutnya terelusi keluar kolom dengan larutan HCl encer (0,05 M) karena berubah menjadi kation  $\text{Ni}^{2+}_{(\text{aq})}$  dan terlepas

dari ikatannya dengan resin. Dengan demikian uji tetes DMG memberikan hasil uji yang positif. Fenomena yang terjadi dapat dinyatakan melalui persamaan reaksi seperti berikut :



Berkaitan dengan hasil analisis radionuklida, fraksi radiotembaga dalam eluat HCl 0,05 M dibuat spektrum radasinya pada rentang  $E_\gamma$  antara 150 sampai 1600 keV dan dibandingkan dengan spektrum radiasi- $\gamma$  larutan target CuO pasca iradiasi di reaktor. Hasilnya ditunjukkan pada Gambar 2. Terlihat kedua gambar spektrum radiasi- $\gamma$  mempunyai pola yang sangat mirip, yaitu puncak tunggal pada energi 511 keV sesuai dengan energi radiasi- $\gamma$ -anihilasi seperti yang ditunjukkan pada Tabel 1. Satu puncak lagi yang sangat lemah dapat diamati melalui perbesaran parsial daerah energi 1300 – 1400 keV merupakan energi radiasi- $\gamma$  dari transisi energi internal  $^{64}\text{Cu}$  dengan  $E_\gamma$  sebesar 1346 keV.



Gambar 2. Pola spektrum radiasi- $\gamma$  larutan target CuO pasca iradiasi (A) dan fraksi eluat HCl encer (0,05 M) (B).

#### 4. KESIMPULAN

Target nikel untuk pembuatan radioisotop  $^{64}\text{Cu}$  berbasis reaksi nuklir  $^{64}\text{Ni}$  (p,n)  $^{64}\text{Cu}$  di siklotron dibuat dengan teknik *electroplating* larutan suasana asam campuran nikel klorida dan asam borat pada permukaan lapisan perak dari keping penyangga target yang sesuai untuk proses iradiasi di fasilitas siklotron BATAN. Pelarutan deposit target nikel sebaiknya dilakukan menggunakan larutan HCl 8 M. Di dalam studi pemisahan radionuklida, fraksi radiotembaga hasil reaksi nuklir  $^{64}\text{Ni}$  (p,n)  $^{64}\text{Cu}$  dapat dipresentasikan dengan radiotembaga hasil iradiasi target CuO dengan berkas neutron termal.

Simulasi pemisahan matrik Ni(II) – Cu(II) yang dilakukan dapat diaplikasikan pada proses produksi radioisotop  $^{64}\text{Cu}$  berbasis reaksi  $^{64}\text{Ni}$  (p,n)  $^{64}\text{Cu}$ . Fraksi

radiotembaga dipisahkan dari matrik target pasca iradiasi dengan teknik kromatografi kolom penukar anion pada kondisi HCl 8 M. Pada kondisi ini fraksi radiotembaga berada dalam bentuk kompleks anion  $\text{CuCl}_4^{2-}$ , sedangkan fraksi nikel tetap berada dalam bentuk kation  $\text{Ni}^{2+}$ . Selanjutnya fraksi radiotembaga yang tertahan di dalam kolom resin diubah kembali menjadi dalam bentuk kation  $\text{Cu}^{2+}$  dengan dielusi ke luar kolom menggunakan larutan HCl encer (0,05 M).

#### 5. DAFTAR PUSTAKA

1. Green MA. Assessment of Cu-ETS as a PET radiopharmaceutical for evaluation of regional renal perfusion. Nucl Med Biol 2007; 34[3] : 247-55.
2. Sun X. In vivo behavior of copper-64-labeled methanephosphonate tetraaza macrocyclic ligands. J Biol Inorg Chem 2003; 8 : 217-25.

3. Sprague JE. "Synthesis, characterization and In vivo studies of Cu(II)-64-labeled cross-bridged tetraazamacrocyclic-amide complexes as models of peptide conjugate imaging agents. *J Med Chem* 2007; 50[10] : 2527-35.
4. Lewis JS. Copper-64-diacetyl-bis(N4-methylthiosemicarbazone): an agent for radiotherapy. *Proceedings of the National Academy of Sciences*; 2000, 98[3], p. 1206-11.
5. Lewis MR, Wang M, Axworthy DB, et al, "In vivo evaluation of pretargeted  $^{64}\text{Cu}$  for tumor imaging and therapy, *J Nucl Med* 2003; 44 [ 8] : 1284-92.
6. [Http://en.wikipedia.org/wiki/Copper-64](http://en.wikipedia.org/wiki/Copper-64), (Diakses 12 Januari, 2010).
7. Zinn KR, Chaudhuri TR. Production of no-carrier added  $^{64}\text{Cu}$  from zinc metal irradiated under boron shielding, *Cancer* 1994; 73[3] : 774- 8.
8. Bonardi ML, Birattari C, Groppi F, *et al.* Copper-64 production studies with natural zinc targets at deuteron energy up to 19 MeV and proton energy from 141 down to 31 MeV". *Proceedings of the 8<sup>th</sup> Conference : Astroparticle, Particle and Space Physics, Detectors and Medical Physics Applications*, Villa Olmo, Como, Italy; 2003, p. 343 – 9.
9. Kim JY, Park H, Lee JC, *et al*, "A Simple Cu-64 Production and Its application of Cu-64 ATSM", *Appl Rad and Isot* 2009 67[7] :1190-4.
10. Burke P, Golovko O, Clark JC, *et al.* An automated method for regular productions of copper-64 for PET radiopharmaceuticals, *Inorg Chim Acta* 2010: 363[6] ; 1316 – 9.
11. McCarthy WD, Shefer RE, Klinkowstein RE. Efficient production of high specific activity  $^{64}\text{Cu}$  using a biomedical cyclotron. *Nucl Medic and Biol* 1997; 24[1] : 35-43
12. [Http://education.jlab.org/itselemental/iso028.html](http://education.jlab.org/itselemental/iso028.html) (Diakses 19 April, 2010).
13. Soenarjo S, Suryanto H, Silakhudin, *et al.* Penggunaan fasilitas siklotron BATAN untuk produksi talium-201", *Maj. BATAN* 1992: XXV [1/2]: 26 - 40.
14. [Http://www.dow.com/Publishedliterature/dh\\_005b/0901b8038005b46b.pdf?](http://www.dow.com/Publishedliterature/dh_005b/0901b8038005b46b.pdf) (Diakses 9 April, 2010)].
15. Soenarjo S, Wisnukaton K, Sriyono, *et al.* Radionuclidic separation of radioactive indium for medical and biological research applications from target matrix based on nuclear reaction of  $^{nat}\text{Cd} (n,\gamma) ^{115}\text{Cd} \rightarrow ^{115m}\text{In}$ ", *J. Ilm. Aplikasi Isot. dan Rad.*, 2009; 5(2):147-64
16. Kopeliovich D. Nickel electroplating, in : [Http://www.substech.com/dokuwiki/doku.php?id=nickel\\_electroplating](http://www.substech.com/dokuwiki/doku.php?id=nickel_electroplating) (Last modified February, 20, 2010) Accessed in April 9, 2010.
17. Svehla G. Vogel's qualitative inorganic analysis, 6<sup>th</sup> edition. New York: Longman Scientific & Technical and John Wiley & Sons Inc ; 1987.
18. [Http://education.jlab.org/itselemental/iso029.html](http://education.jlab.org/itselemental/iso029.html) (Diakses 19 April, 2010).
19. Wanty RB, Ridley WI, Wolf R, *et al.* Separation of copper, iron and zinc from complex aqueous solutions for isotopic measurement: metal sources and processes of acid-rock drainage. Paper No. 20-10, Salt Lake City Annual Meeting 2005 October 16–19.

