

## **METODE PREPARASI SAMPEL PADA PENGUKURAN TRITIUM KONSETRASI RENDAH DALAM URIN**

Poppy Intan Tjahaja dan Putu Sukmabuana

Pusat Teknologi Nuklir Bahan dan Radiometri-BATAN, Jl. Tamansari no. 71, Bandung 40132 Email :  
intan24@telkom.net, poppyintan24@yahoo.com

### **ABSTRAK**

**METODE PREPARASI SAMPEL PADA PENGUKURAN TRITIUM KONSETRASI RENDAH DALAM URIN.** Pada pemantauan yang pernah dilakukan pada tahun 2004 terdeteksi adanya tritium dalam air tangki reaktor TRIGA 2000 sebesar 15 kBq/L dan dalam udara sebesar 1,5 Bq /L. Adanya tritium di udara ruang reaktor dalam bentuk molekul air, HTO, memungkinkan terhirupnya tritium oleh pekerja secara kronik. Tritium dalam bentuk HTO mempunyai organ target cairan tubuh, sehingga semua sampel cairan tubuh dapat digunakan untuk mengukur tritium yang masuk ke dalam tubuh. Pada penelitian ini digunakan sampel urin karena merupakan sampel yang paling mudah diperoleh. Untuk mengantisipasi rendahnya konsentrasi tritium dalam cairan tubuh, diperlukan preparasi sampel sebelum diukur menggunakan LSC. Pada penelitian ini dikembangkan lima metode penyiapan sampel untuk pengukuran tritium konsentrasi rendah dalam urin. Prinsip metode yang digunakan adalah pemurnian sampel urin hingga diperoleh sampel yang jernih dan terbebas dari bahan-bahan organik yang dapat mengganggu pencacahan dengan LSC. Sampel urin yang diperoleh dari orang dewasa sehat ditambah dengan tritium sehingga konsentrasinya menjadi 0,5 dan 1 Bq/mL. Kemudian sebanyak 2 mL sampel urin yang telah mengandung tritium ditambah dengan sintilator, dan diukur secara langsung (metode L) dengan LSC. Sisa sampel urin yang telah mengandung tritium diproses dengan 5 metode perlakuan (A, B, C, D, E). Dari hasil penelitian diketahui bahwa tritium dalam urin dengan konsentrasi 0,5 dan 1 Bq/mL tidak dapat terdeteksi oleh alat LSC apabila diukur secara langsung atau dipreparasi menggunakan metode A dan B. Pada sampel urin yang diberi perlakuan C, D, E tritium dapat terdeteksi dengan nilai efisiensi berkisar antara 5% - 45% dan 18% - 65% masing-masing untuk konsentrasi tritium dalam urin 0,5 dan 1 Bq/mL. Dari penelitian ini dapat disimpulkan bahwa metode terbaik untuk menentukan konsentrasi tritium dalam urin dengan konsentrasi 0,5 dan 1 Bq/mL adalah metode E, yaitu dengan cara filtrasi, distilasi dengan  $KMnO_4$  dan arang aktif, kemudian dengan destruksi menggunakan  $H_2SO_4$ .

**Kata kunci :** tritium, konsentrasi tritium, bioassay, urin

### **ABSTRACT**

**METHOD OF SAMPEL PREPARATION FOR LOW LEVEL TRITIUM CONCENTRATION MEASUREMENT IN URINE.** On primary cooling water of TRIGA 2000 reactor monitoring held in 2004, tritium was detected on cooling water at 15 kBq/L and it lead to the atmospheric tritium concentration in reactor hall to be 1.5 Bq/L air. The atmospheric tritium on reactor hall on the form of HTO can be inhaled chronically by radiation worker. The tritium water vapour enter the human body and reach body fluids as target organ, hence the body fluid sampel can be used for internal tritium concentration measurement. In this research the urine samples were used. To anticipate the low concentration of tritium in urine samples a sample preparation were applied before measurement using liquid scintillation counter (LSC). Five methods were applied to urine samples by purified the samples to be clear and free from organic matter disturbing the LSC counting. The urin samples obtained from healthy adult were contaminated with tritiated water until the concentration become 0,5 dan 1 Bq/mL. Then the 2 mL of each urine samples were added to the scintillation vial filled with 13 mL of scintillator, and counted using LSC. This is called the direct method. The remained urine samples were prepared

using five methods, called A, B, C, D, E method, then counted using LSC. The counting results showed that the tritium on urine samples measured directly and the samples prepared using A and B method could not be detected by LSC instrument, both for samples containing 0,5 and 1 Bq/mL tritium. The tritium on the urine samples prepared using C, D, E method could be detected by LSC instrument with method efficiency of 5% - 45% and 18% - 65% for tritium concentration of 0,5 and 1 Bq/mL, respectively. The highest method efficiency was found for E method, which apply the filtration, distillation using  $KMnO_4$  and active charcoal, and destruction of organic matter contaminating the distillate using acid solution. From this research it was concluded that among the methods applied in the samples preparation, the E method is the best for tritium measurement of 0,5 and 1 Bq/mL, therefore, it is hoped can be used for tritium bioassay in human.

**Kata kunci :** tritium, tritium concentration, bioassay, urin

## 1. PENDAHULUAN

Pada pemantauan yang pernah dilakukan pada tahun 2004 terdeteksi adanya tritium dalam air tangki reaktor TRIGA 2000, PTNBR BATAN, sebesar 15 kBq/L dan dalam udara ruang reaktor sebesar 1,5 Bq /L [1,2]. Adanya tritium di udara ruang reaktor dalam bentuk molekul air, *tritiated water* (HTO), memungkinkan terhirupnya tritium oleh pekerja secara kronik [3]. Terlebih lagi dalam kasus kecelakaan, sangatlah mungkin terjadi lepasan tritium dengan konsentrasi lebih besar yang dapat mengkontaminasi pekerja secara akut. Untuk mengetahui besarnya radionuklida tritium yang terhirup oleh pekerja baik secara kronik maupun akut perlu dilakukan pengukuran kandungan tritium dalam tubuh, sehingga nantinya dapat diperkirakan besarnya dosis interna yang diterima oleh pekerja [4].

Radionuklida tritium mempunyai organ target cairan tubuh, sehingga pada prinsipnya semua jenis cairan tubuh dapat digunakan sebagai sampel untuk mengetahui konsentrasi tritium yang masuk ke dalam tubuh pekerja. Namun demikian, biasanya digunakan sampel cairan tubuh yang mudah diperoleh, yaitu urin. Kandungan tritium dalam sampel urin ditentukan dengan metode sintilasi cair. Pengukuran dengan metode sintilasi cair dapat dilakukan secara langsung apabila alat yang digunakan adalah pencacah sintilasi cair (*liquid scintillation counter* = LSC) dengan cacah latar rendah atau apabila konsentrasi tritium dalam urin cukup tinggi. Apabila alat LSC mempunyai cacah latar yang tinggi dan konsentrasi tritium dalam urin rendah diperlukan perlakuan tambahan terhadap sampel urin sebelum dicacah dengan LSC. Hal ini berkaitan dengan kandungan berbagai hasil metabolisme tubuh yang secara signifikan

mempengaruhi pengukuran tritium dengan LSC [4]. Hasil pencacahan sampel urin yang mengandung kontaminan berupa metabolit dapat meningkatkan laju cacah tritium pada alat LSC, yang diakibatkan oleh 2 fenomena yang berbeda, yaitu *luminescence* kimia dari kontaminan di dalam sampel dan yang lainnya adalah akibat radiasi dari  $^{14}C$  dari kontaminan dalam urin [5, 6]. Cacahan yang bukan berasal dari peluruhan tritium mengakibatkan over – estimasi konsentrasi tritium dalam urin, terutama dalam pengukuran tritium konsentrasi rendah dalam urin [6, 7]. Oleh karena itu diperlukan preparasi sampel urin untuk mengurangi atau menghilangkan kontaminan hasil metabolit.

Pada penelitian ini dikaji unjuk kerja beberapa metode preparasi sampel urin untuk analisis tritium konsentrasi rendah, sehingga selanjutnya dapat diterapkan dalam kajian bioassay tritium dalam tubuh pekerja radiasi yang berguna dalam prakiraan dosis interna yang diterima pekerja.

## 2. TATAKERJA

### 2.1. Alat dan bahan

Peralatan yang digunakan berupa perangkat distilasi yang terdiri dari labu ditilasi kapasitas 100 mL, labu penampung distilat, kondensor, termometer, adapter pipa gelas untuk luaran uap air, dan *heating mantle*. Bahan kimia yang digunakan adalah HTO (*tritiated water*), sintilator Ultima Gold buatan Packard,  $KMnO_4$ , arang aktif,  $H_2SO_4$ , NaOH, batu didih, *silica gel*, dan gas  $N_2$ . Standar tritium dengan aktivitas 2,4 Bq disiapkan dalam vial sintilasi untuk acuan pengukuran dengan LSC.

Dua buah sampel urin diperoleh dari orang dewasa sehat masing-masing sebanyak 50 mL

dikontaminasi dengan HTO sehingga konsentrasinya dalam urin menjadi 0,5 Bq/mL dan 1 Bq/mL. Penentuan konsentrasi didasarkan pada batas yang diizinkan untuk air minum adalah sebesar 0,5 – 1 Bq/mL yang berkaitan dengan dosis sebesar 4 mrem/tahun [8].

## 2.2. Percobaan

Uji unjuk kerja metode penentuan konsentrasi tritium dalam sampel urin dilakukan terhadap 6 metode, yaitu metode langsung (L) dan metode tidak langsung yang terdiri dari 5 metode perlakuan (A,B,C,D dan E) [7, 9]. Percobaan dilakukan sebanyak 3 kali ulangan (triplo). Sebagai kontrol dilakukan juga percobaan terhadap sampel urin yang berasal dari orang yang sama tanpa penambahan tritium.

## 2.3. Metode langsung

Sampel urin yang mengandung tritium dengan konsentrasi masing-masing 0,5 dan 1 Bq/mL sebanyak 2 mL ditambahkan ke dalam vial sintilator kapasitas 20 mL yang telah diisi dengan 13 mL sintilator. Campuran dikocok, kemudian didiamkan di tempat dingin dan gelap selama 24 jam. Sampel kemudian diukur menggunakan LSC selama 15 menit dengan tiga kali ulangan.

## 2.4. Metode tidak langsung

Sampel urin dengan konsentrasi tritium masing-masing 0,5 dan 1 Bq/mL diberi lima perlakuan yang berbeda (A, B, C, D, dan E) dengan tujuan untuk menghilangkan kontaminan dalam urin yang dapat mengganggu pengukuran dengan LSC.

Metode A : Sampel urin ditambah dengan arang aktif, dikocok, kemudian disaring. Filtratnya sebanyak 2 mL diambil untuk pengukuran dengan LSC.

Metode B : Sisa filtrat yang berasal dari metode A ditambah dengan arang aktif kemudian didistilasi secara sempurna pada suhu 70°C. Seperti pada metode A distilat sebanyak 2 mL diambil untuk pengukuran dengan LSC.

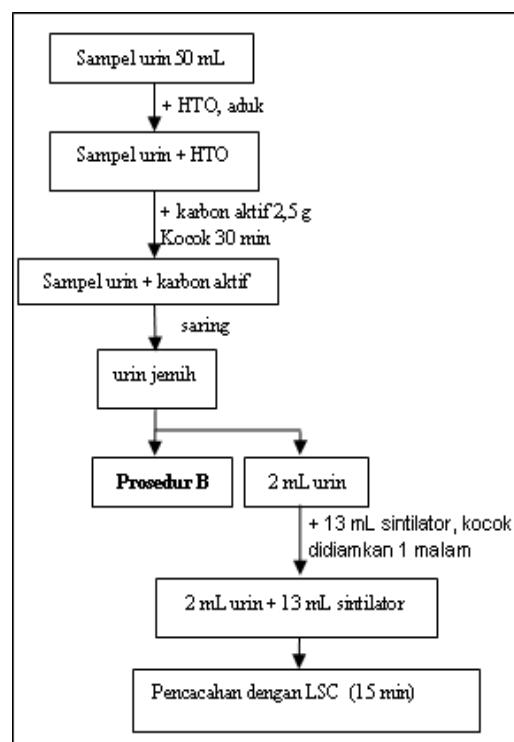
Metode C : Distilat dari metode B

ditambah dengan  $\text{KMnO}_4$  dan  $\text{H}_2\text{SO}_4$ , kemudian didistilasi secara sempurna pada suhu 70°C. Distilat sebanyak 2 mL diambil untuk diukur dengan LSC.

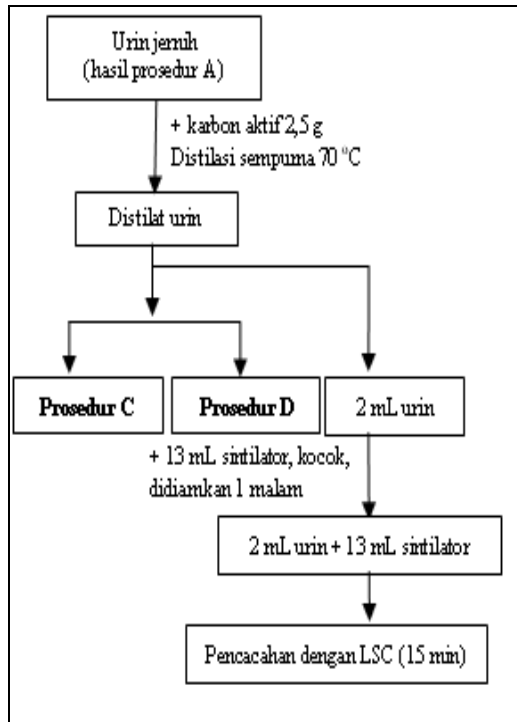
Metode D : Distilat dari metode B ditambah dengan  $\text{KMnO}_4$  dan  $\text{NaOH}$ , kemudian didistilasi secara sempurna pada suhu 70°C, dan distilat sebanyak 2 mL diukur dengan LSC.

Metode E : Distilat dari metode D ditambah dengan  $\text{H}_2\text{SO}_4$  pekat, kemudian campuran dialiri gas nitrogen untuk menghilangkan gas yang timbul. Sampel kemudian diukur dengan LSC.

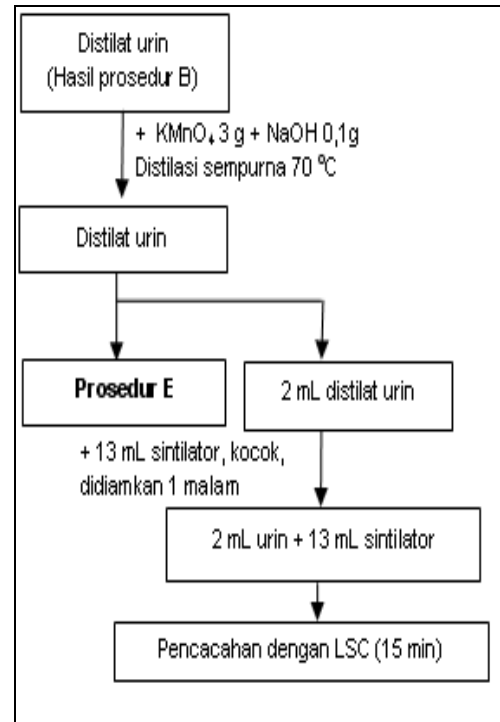
Pengukuran dengan LSC dilakukan dengan cara mencampur filtrat dari metode B, C, D, dan E masing-masing dengan 13 mL sintilator. Campuran dikocok, didiamkan di tempat dingin dan gelap selama 24 jam dan diukur dengan LSC selama 15 menit dengan ulangan sebanyak 3 kali. Skema prosedur preparasi sampel metode A, B, C, D, dan E dapat dilihat pada Gambar 1 - 5.



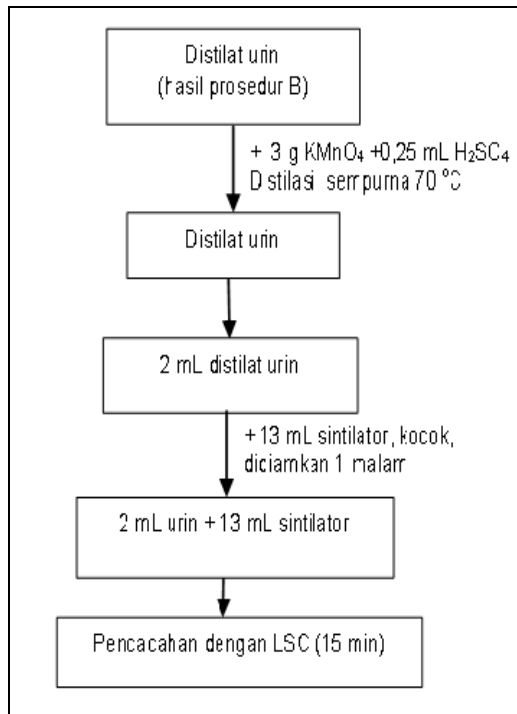
Gambar 1. Skema preparasi sampel urin dengan metode A



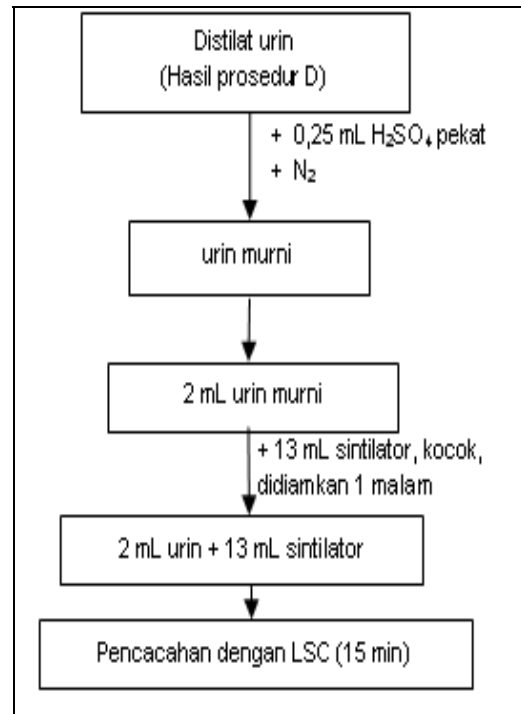
Gambar 2. Skema preparasi sampel urin dengan metode B



Gambar 4. Skema preparasi sampel urin dengan metode D



Gambar 3. Skema preparasi sampel urin dengan metode C



Gambar 5. Skema preparasi sampel urin dengan metode E

## 2.5. Analisis dan evaluasi data

Data yang diperoleh dari pengukuran dengan LSC berupa laju cacah kemudian dihitung untuk memperoleh aktivitas tritium dalam urin. Aktivitas tritium dalam urin hasil pengukuran dibandingkan dengan aktivitas tritium yang ditambahkan dalam sampel urin dikalikan seratus persen sehingga diperoleh nilai efisiensi masing-masing metode.

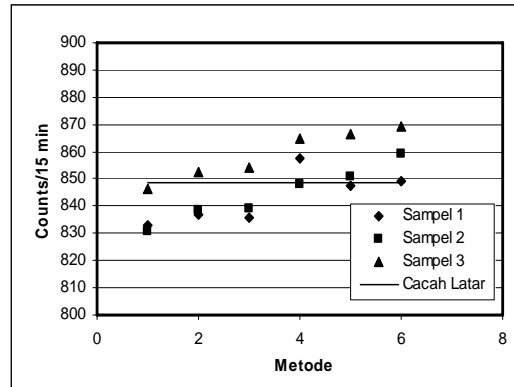
## 3. HASIL DAN PEMBAHASAN

Uji unjuk kerja metode pengukuran radionuklida tritium pada sampel urin baik secara langsung maupun dengan perlakuan dilakukan secara triplo. Hasil pengukuran sampel urin dengan LSC selama 15 menit diperlihatkan pada Gambar 6 dan 7. Dapat dilihat bahwa laju cacah meningkat berturut-turut dari metode langsung, A, B, C, D, dan E. Dengan metode langsung, metode A dan B, laju cacah sampel sama dengan latar (*background*) yaitu 803 - 850, sedang untuk metode C, D, dan E laju cacahnya lebih tinggi dari *background*. Hal ini disebabkan sampel L, A, dan B berwarna agak kekuningan dibandingkan dengan sampel C, D, E. Warna kuning pada sampel hasil preparasi dengan metode L, A, dan B disebabkan masih adanya metabolit dalam urin. Kondisi sampel yang baik untuk pengukuran menggunakan LSC adalah tidak berwarna dan jernih. Sampel hasil preparasi dengan metode C, D, dan E secara visual tampak tidak berwarna dan jernih mengindikasikan berkurangnya jumlah kontaminan di dalam sampel urin yang berlaku sebagai *quencher*. Sampel yang jernih dan tidak berwarna, mengakibatkan meningkatnya jumlah foton yang sampai ke detektor *photo multiplier tube* pada alat LSC [10].

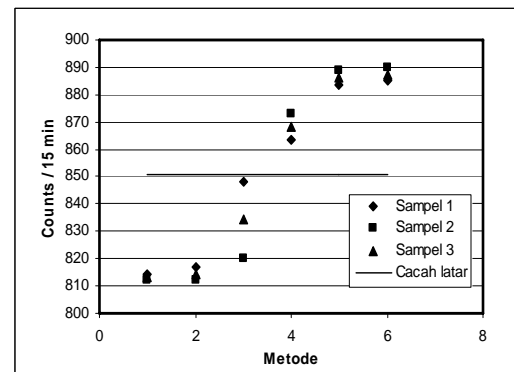
Faktor yang mempengaruhi besarnya laju cacah adalah *quenching*, yang mengakibatkan berkurangnya intensitas foton yang sampai ke PMT pada alat LSC, sehingga mengakibatkan menurunnya laju cacah. Faktor *quenching* bisa disebabkan oleh faktor kimia, yaitu adanya suatu senyawa yang berada di dalam larutan misalnya senyawa chloroetana, chloroform, benzen, serta dapat pula disebabkan oleh faktor fisik yang menyebabkan sampel keruh, atau berwarna [5, 10].

Dari hasil pengukuran sampel urin yang tidak diberi radionuklida tritium (*background*) diperoleh nilai antara 803 - 850 cacah/15 menit. Nilai laju cacah dikurangi dengan nilai

rata-rata *background* sehingga diperoleh cacah *netto*, yang kemudian dibandingkan dengan nilai hasil pengukuran standar tritium dengan aktivitas 2,4 Bq, sehingga diperoleh aktivitas radionuklida tritium yang ada dalam sampel urin dalam satuan Bq. Aktivitas tritium dalam sampel urin dengan konsentrasi 0,5 Bq/mL dapat dilihat pada Tabel 1, sedang untuk sampel urin dengan konsentrasi 1 Bq/mL dapat dilihat pada Tabel 2.



Gambar 6. Laju cacah tritium 0,5 Bq/mL dalam urin yang dipreparasi dengan metode langsung (1), A (2), B (3), C (4), D (5), E (6).



Gambar 7. Laju cacah tritium 1 Bq/mL dalam urin yang dipreparasi dengan metode Langsung (1), A (2), B (3), C (4), D (5), E (6).

Efisiensi metode dihitung dengan membandingkan aktivitas radionuklida yang ada dalam sampel dengan aktivitas radionuklida sebenarnya yaitu 1 Bq dan 2 Bq. Hasilnya diperlihatkan pada Tabel 1 dan 2. Efisiensi metode untuk prosedur L, A dan B tidak dapat dihitung karena jumlah cacahan sampel sama dengan *background* atau lebih kecil dari *background* untuk sampel urin dengan konsentrasi 0,5 Bq/mL dan 1 Bq/mL.

**Tabel 1. Konsentrasi tritium dan efisiensi metode preparasi sampel urin dengan konsentrasi 0,5 Bq/mL menggunakan metode L, A, B, C, D, E**

Metode	Konsentrasi Tritium dalam urin (Bq/mL)			Efisiensi metode (%)		
	1	2	3	1	2	3
L	0	0	0	0	0	0
A	0	0	0	0	0	0
B	0	0	0	0	0	0
C	0,024	0,048	0,111	4,768	9,536	22,252
D	0,087	0,095	0,138	17,483	19,073	27,550
E	0,111	0,228	0,175	22,252	45,563	34,967

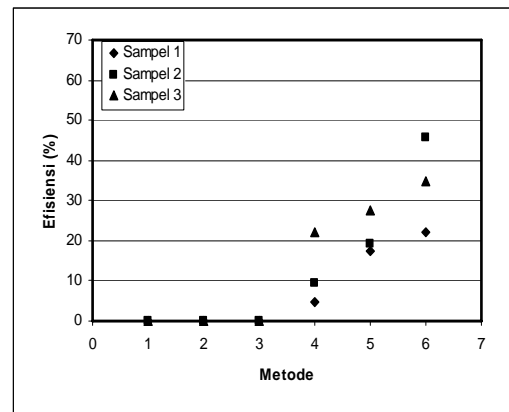
**Tabel 2. Konsentrasi tritium dan efisiensi metode preparasi sampel urin dengan konsentrasi 1 Bq/mL menggunakan metode L, A, B, C, D, E**

Metode	Konsentrasi Tritium dalam urin (Bq/mL)			Efisiensi metode (%)		
	1	2	3	1	2	3
L	0	0	0	0	0	0
A	0	0	0	0	0	0
B	0	0	0	0	0	0
C	0,180	0,381	0,273	18,013	38,146	27,285
D	0,503	0,636	0,562	50,331	63,576	56,159
E	0,525	0,652	0,580	52,450	65,166	58,013

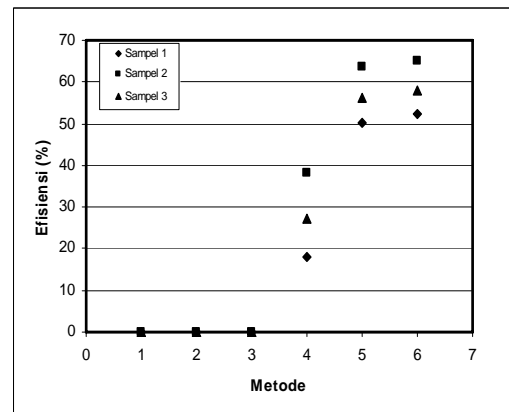
Dari dua pengukuran sampel urin dengan konsentrasi masing-masing 0,5 dan 1 Bq/mL diketahui bahwa nilai efisiensi metode meningkat dengan semakin jernihnya sampel urin (berturut-turut sampel C, D, E). Dari metode analisis radionuklida tritium dalam sampel urin diketahui bahwa dengan preparasi menggunakan metode L, A dan B, radionuklida dalam sampel urin tidak dapat dideteksi. Sedang dengan metode preparasi sampel C, D, dan E, radionuklida tritium dalam sampel urin dapat dideteksi dengan nilai efisiensi mencapai lebih dari 50% untuk prosedur E pada konsentrasi tritium dalam urin 1 Bq/mL (Gambar 9). Untuk sampel urin yang konsentrasinya 0,5 Bq/mL efisiensi metode lebih rendah, tidak mencapai 50 % untuk metode E (Gambar 10).

Pada metode C dan D dilakukan distilasi dengan penambahan  $KMnO_4$  untuk mengoksidasi senyawa organik dalam sampel urin. Rendahnya efisiensi metode analisis C dan D disebabkan oleh bahan-bahan residu yang menguap pada saat proses ditilasi akhir, mendekati sampel menjadi kering. Fenomena ini dibuktikan oleh Momoshima [7] dengan cara membagi proses ditilasi menjadi 3 fraksi. Pada dua fraksi pertama tidak dijumpai adanya bahan organik dalam distilat yang dibuktikan dengan menguji distilat menggunakan UV

spektrometer. Pada fraksi ke tiga, yaitu pada saat sampel yang didistilasi hampir kering, pada distilatnya dijumpai kontaminan senyawa organik yang dapat mengganggu hasil pengukuran dengan LSC. Keadaan ini tidak dapat dihindari, karena pada proses analisis tritium diperlukan distilasi sempurna, yaitu sampai sampel kering untuk mencegah fraksinasi isotopik, yang artinya tritium akan tertinggal dalam residu karena menguap lebih lambat dibandingkan isotop hidrogen dan deuterium.



**Gambar 9. Kenaikan efisiensi metode preparasi sampel urin dengan konsentrasi 1 Bq/mL. (1 = metode L; 2 = metode A; 3 = metode B; 4 = metode C; 5 = metode D; 6 = metode E)**



**Gambar 10. Kenaikan nilai efisiensi metode preparasi sampel urin dengan konsentrasi 0,5 Bq/mL (1 = metode L; 2 = metode A; 3 = metode B; 4 = metode C; 5 = metode D; 6 = metode E)**

Pada metode E, hasil distilasi prosedur D yang diduga masih mengandung senyawa organik ditambah  $H_2SO_4$  untuk mengurai senyawa organik yang masih tersisa dalam

distilat D. Dari hasil reaksi tampak timbulnya gelembung yang menandakan dibebaskannya gas CO<sub>2</sub> hasil reaksi senyawa organik dengan H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>. Gas CO<sub>2</sub> yang muncul kemudian dikeluarkan dengan cara mengalirkan gas nitrogen ke dalam distilat sampel.

#### 4. KESIMPULAN

Dari hasil penelitian diketahui bahwa : Tritium dalam urin dengan konsentrasi 0,5 dan 1 Bq/mL tidak dapat diukur oleh alat LSC secara langsung. Dengan preparasi sampel berupa distilasi disertai dengan penambahan KMnO<sub>4</sub> dan arang aktif sebelum pengukuran dengan LSC adanya tritium dalam urin dapat dideteksi.

Dari lima metode preparasi yang dipelajari diperoleh tiga metode preparasi yang dapat digunakan untuk mengukur kandungan tritium sebesar 1 Bq/mL atau lebih dalam sampel urin (metode C, D, dan E) dengan efisiensi metode kurang dari 50% untuk metode C dan lebih dari 50 % untuk metode D dan E. Untuk kandungan tritium dalam urin sebesar 0,5 Bq/mL dengan preparasi sampel menggunakan metode C, D, dan E nilai efisiensi deteksi kurang dari 50%.

Metode terbaik untuk menentukan konsentrasi tritium dalam urin dengan konsentrasi 1 Bq/mL untuk keperluan bioassay adalah metode E dengan efisiensi mencapai lebih kurang 56%.

#### 5. DAFTAR PUSTAKA

1. **SUKMABUANA, P.**, Fluktuasi konsentrasi tritium dalam air tangki reaktor TRIGA 2000 pasca peningkatan daya, *J. Sains dan Teknologi Nuklir Indonesia* **6** (1), 2005, 13 - 24.
2. **SUKMABUANA, P., TJAHAJA, P. I., RUKMINI, E., dan, OETAMI, R. H.**, Distribusi konsentrasi tritium di udara ruang reaktor TRIGA 2000, *Prosiding Seminar Sains dan Teknik Nuklir, P3TkN, BATAN, Bandung, 2005*, 245-250.
3. **PUHAKAINEN, M. and HEIKKINEN, T.**, Tritium in the urine in Finnish people, *Radiat. Prot. Dos. Advance Access*, 2007, 1-4.
4. **TRIVEDI, A., GALERIU, D., and LAMOTH, E. S.**, Dose contribution from metabolized organically bound tritium after chronic tritiated water intakes in human, *Health Phys.*, **78**, 2000, 2-7.
5. **RUSCONI, R., FORETE, M., CARESANA, M., BELLINZONA, S., CAZZANIGA, M. T., and SGORBATI, G.**, The evaluation of uncertainty in low-level LSC measurement of water samples. *Appl. Radiat. and Isot.*, **64**, 2006, 1124-1129.
6. **GRONING, K/ R. M.**, Quantifying uncertainties of Carbon-14 assay in water samples using benzene synthesis and liquid scintillation spectrometry, [www.iaea.or.at/programmes/rial/pci/isotopehydrology/docs/intercomparison/vienna/30-04-2004](http://www.iaea.or.at/programmes/rial/pci/isotopehydrology/docs/intercomparison/vienna/30-04-2004).
7. **MOMOSHIMA, N., NAGASATO, Y., and TAKASHIMA, Y.**, A sensitive method for the determination of tritium in urine, *Environmental Tritium Measurement*, Kyushu University, Fukuoka, 1986, 78 - 84.
8. **US ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY (EPA)**. National Interim Drinking Water Regulations, EPA-5709-76-003, Washington DC, 1976.
9. **BHATT, A. R., GREENHALGH, R., and ORTEL, C. P.**, Determination of tritium in urine samples and validity of results, *Idaho National Engineering and Environmental Laboratory*, 2002, 1-5.
10. **HARIHARAN, C. and MISHRA, A. K.**, Quenching of liquid scintillator fluorescence by chloroalkanes and chloroalkenes, *Radiat. measurement*, **32**, 2000, 113-121.