

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI SENYAWA KOMPLEKS RADIOLANTANIDA
LUTESIUM-177 (^{177}Lu) - DI-N-BUTIL DITIOKARBAMAT
UNTUK RADIOPERUNUT DI INDUSTRI**

Duyeh Setiawan

Pusat Teknologi Nuklir Bahan dan Radiometri – Bandung
Jalan Tamansari No.71 Bandung 40132
e-mail : ayah@batan.go.id

ABSTRAK

SINTESIS DAN KARAKTERISASI SENYAWA KOMPLEKS RADIOLANTANIDA ^{177}Lu -DI-N-BUTILDITIOKARBAMAT UNTUK RADIOPERUNUT DI INDUSTRI. Penggunaan radioisotop unsur tanah jarang atau lantanida dengan umur paro pendek menjadi perhatian di bidang industri, khususnya radioisotop pemancar gamma energi rendah. Radioisotop lutesium-177 (^{177}Lu) mempunyai umur paro 6,7 hari, pemancar gamma dengan energi maksimum 113 keV (6,4%) dan 208 keV (11%) yang cocok digunakan untuk perunut radioaktif di bidang industri. Sintesis senyawa kompleks menggunakan ligan golongan ditiokarbamat (-NC(=S)-S-) dengan suatu ion logam lantanida akan membentuk senyawa kompleks khelat yang netral dengan kemampuan mengikat logam yang kuat. Pada penelitian ini telah dilakukan sintesis dan karakterisasi senyawa ^{177}Lu -di-n-butilditiokarbamat untuk tujuan aplikasi teknik nuklir sebagai radioperunut di bidang industri. Metode sintesis didasarkan pada pembentukan kompleks antara ion logam ^{177}Lu dengan ligan di-n-butilditiokarbamat secara stoikiometri perbandingan mol dan lingkungan pH reaksi optimum. Hasil sintesis dan karakterisasi memperlihatkan kondisi optimum diperoleh pada perbandingan mol 1 : 6, pH 5, senyawa kompleks berbentuk kristal berwarna putih, larut dalam pelarut asam organik dan titik leleh di atas 350°C. Spektrum UV-Vis memberikan serapan yang spesifik di daerah panjang gelombang maksimum 244,8 nm. Spektrum inframerah menunjukkan adanya vibrasi ulur antara logam – ligan (Lu – S) pada puncak serapan di daerah bilangan gelombang $\nu_{\text{max.KBr}}$ 950 cm^{-1} . Kromatogram kertas menunjukkan migrasi senyawa kompleks ^{177}Lu -di-n-butilditiokarbamat dengan harga Rf 0,87 dan kemurnian radiokimia 97,10%. Hasil penelitian memberikan kesimpulan bahwa senyawa ^{177}Lu -di-n-butilditiokarbamat dapat disintesis dan bisa digunakan sebagai sediaan radioperunut untuk industri.

Kata kunci: ^{177}Lu , di-n-butilditiokarbamat, radioperunut, industri.

ABSTRACT

THE SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION OF ^{177}Lu -DI-N-BUTYLDITHIOCARBAMATE RADIOLANTHANIDE COMPLEX FOR INDUSTRIAL RADIOTRACER. The using of rare earth elements or lanthanides radioisotopes with short half life have been interested in industrial area, especially low energy gamma emitter radioisotopes. ^{177}Lu radioisotope with half life of 6.71 days and gamma radiation energy of E_{max} 113 keV (6.4%), and 208 keV (11%) is suitable to be used as radioactive tracer in industry. A complex compound synthesized from dithiocarbamate groups (-NC(=S)-S-) ligand and a lanthanide ion will form neutral chelate complex compound and has strong metal binding. A synthesis and characterization of ^{177}Lu -di-n-butylidithiocarbamate complex compound had been carried out for nuclear technique application in industrial area. The synthesis method is based on complex formation from lutetium ion (^{177}Lu) and di-n-butylidithiocarbamate with stoichiometrically mole comparison and optimum pH. The synthesis and characterization result showed the optimum condition obtained was in mol comparison of 1:6, pH 5, the complex compound of white crystal form, soluble in organic acid solvent, and a melting point of above 350 °C. The UV-Vis spectrum showed a specific absorption in maximum wavelength of 244.8 nm. The infrared spectrum showed a stretch vibration between metal and ligand (Lu-S) in absorption peak of wavenumber $\nu_{\text{max.KBr}}$ 950 cm^{-1} . The chromatogram showed a migration of ^{177}Lu -di-n-butylidithiocarbamate complex compound and gave an Rf of 0.87 with radiochemical purity of

97.10 %. The result gave a conclusion that ^{177}Lu -di-n-butildithiocarbamate complex compound can be synthesized and used as a radiotracer for industry.

Keywords : ^{177}Lu , di-n-butylidithiocarbamate, radiotracer, industry

1. PENDAHULUAN

Akhir-akhir ini terdapat suatu kecenderungan yang nyata dalam penggunaan radioisotop lutesium-177 (^{177}Lu) pada beberapa aplikasi kesehatan. Radioisotop ^{177}Lu dapat menjadi kandidat utama untuk aplikasi terapi atau pengobatan gangguan fungsi organ tubuh manusia, karena radioisotop tersebut mempunyai karakteristik yang ideal yaitu umur paro pendek 6,7 hari, mengemisikan energi sinar beta, E_{maks} 497 keV (78,6 %), 384 keV (9,1 %) dan 176 keV (12,2 %) (1). Terapi tumor dengan antibodi bertanda ^{177}Lu merupakan aplikasi dari radioisotop ini, terapi perlakuan terhadap metastase tulang juga menggunakan senyawa kompleks ^{177}Lu -DMSA (*dimercarto succinic acid*) (2)

Keunggulan yang dimiliki oleh radioisotop ^{177}Lu adalah kegunaannya di segala bidang kebutuhan manusia, yaitu selain bidang kesehatan juga dapat dikembangkan untuk bidang industri. Radioisotop ^{177}Lu selain memancarkan partikel beta juga dapat meluruh menjadi unsur ^{177}Hf yang bersifat stabil dengan memancarkan sinar gamma dengan energi maksimum $E_{\gamma} = 0,113$ MeV (6,4 %) dan 0,208 MeV (11%), sehingga dapat diaplikasikan untuk perunut radioaktif di bidang industri.

Selama ini radioisotop yang sering digunakan pada aplikasi di bidang industri seperti lokalisasi *water flooding*, evaluasi

kapasitas produksi sumur minyak dan penentuan kebocoran pipa di bawah tanah, adalah senyawa organik bertanda ^{131}I , seperti $\text{C}_2\text{H}_5^{131}\text{I}$ (etil-iodida) atau $\text{CH}_3^{131}\text{I}$ (metil-iodida) dengan umur paro radioisotop ^{131}I adalah 8 hari dan memancarkan sinar gamma dengan $E_{\gamma}=0,364$ MeV (1,3). Akan tetapi senyawa organik yang mengandung gugus metil atau etil mempunyai kelemahan dalam hal cara menentukan efisiensi ekstraksi pemisahan sebagai pengompleks. Oleh karena itu perlu dikembangkan senyawa organik yang dapat memberikan efisiensi ekstraksi lebih tinggi, seperti kompleks dengan ligan dalam bentuk senyawa organik yang mempunyai gugus alkil lebih panjang. Salah satu ligan pengompleks tersebut adalah di-n-butilditiokarbamat yang mengandung gugus butil dan pada penelitian sebelumnya ligan ini telah berhasil disintesis.

Senyawa di-n-butilditiokarbamat dapat membentuk kompleks dengan sejumlah unsur terutama golongan lantanida (4-7), sehingga ligan di-n-butilditiokarbamat bisa dijadikan pilihan untuk sintesis senyawa kompleks bertanda radioisotop ^{177}Lu sebagai radioisotop perunut di bidang industri. Kelebihan dari ligan yang mengandung gugus alkil panjang seperti butil adalah efisiensi ekstraksi ke dalam fase organik lebih tinggi dibandingkan dengan ligan yang mengandung gugus alkil yang lebih pendek seperti etil atau metil. Semakin

panjang rantai alkil maka sifatnya semakin non polar, sehingga kompleks yang terbentuk makin mudah terekstraksi ke fase organik. Unsur-unsur lantanida dapat membentuk senyawa kompleks yang netral dengan ligan di-n-butilditiokarbamat dan dapat larut dengan baik dalam fase organik atau minyak (8).

Pada penelitian ini dilakukan sintesis dan karakterisasi senyawa ^{177}Lu -di-n-butilditiokarbamat untuk tujuan aplikasi teknik nuklir sebagai radioperunut di bidang industri.

2. TATA KERJA

2.1. Peralatan dan Bahan

Peralatan gelas yang digunakan dalam penelitian ini adalah gelas piala, labu erlenmeyer, labu ukur, gelas ukur, pipet volum, corong Buchner, corong saring, pipet tetes, batang pengaduk, kaca arloji, botol vial, jarum suntik, bejana kromatografi dan alat-alat gelas laboratorium lainnya. Alat yang digunakan terdiri dari neraca analitis digital (*Mettler Toledo, Al 204*), pH meter (*pH 192 WTW Germany*), pengukur titik leleh elektrik (*Fisher Scientific*), pemanas elektrik (*Hot plate 502 series PMC*), spektrofotometer ultraviolet-visible (*Ultraspec 3000 pro*), spektrofotometer infra merah (*Pourier Transform Infrared, Shimadzu*), *single channel analyzer (Ortec)* dan *dose calibrator (Victoreen)*. Bahan yang digunakan dalam penelitian ini terdiri dari karbon disulfida, di-n-butilamin, amonia, asam sitrat, natrium sitrat, lutesium oksida, asam klorida, asam nitrat, kalium klorida, natrium asetat, asam asetat, H_2O_2 30% dan

metanol. Semua bahan merupakan buatan E.Merck dengan tingkat kemurnian analitis.

2.2. Pembuatan Ligan Di-n-butilditiokarbamat (DBK) (9)

Ke dalam gelas kimia 250 mL yang didinginkan dalam campuran es dan garam, dimasukkan karbon disulfida sebanyak 43 mL (54,18 g \approx 0,7116 mol), kemudian ditambahkan amonia sebanyak 90 mL dan dikocok beberapa menit. Dalam keadaan dingin ditambahkan di-n-butilamin sebanyak 55 mL (41,8 g \approx 0,3234 mol) dengan cara tetes demi tetes disertai dengan pengadukan sampai di-n-butilamin habis. Ligan di-n-butilditiokarbamat berupa endapan yang terbentuk dipisahkan dengan cara penyaringan, lalu endapan dicuci dengan air suling dingin sebanyak 2-3 kali. Selanjutnya ligan yang didapat dikeringkan dan ditimbang lalu dikarakterisasi melalui penentuan titik leleh, spektrofotometri ultraviolet-visible dan inframerah.

2.3. Pembuatan Senyawa Kompleks Lutesium-di-n-butilditiokarbamat Non Radioaktif, (Lu-DBK)

Larutan lutesium 0,04 g (\approx 0,14 mmol) dibuat sebanyak dua puluh empat vial masing-masing 25 mL, selanjutnya dibagi dalam empat kelompok berdasarkan pH yaitu 2, 3, 4, dan 5. Pada tiap kelompok ditambahkan ligan di-n-butilditiokarbamat tetes demi tetes dengan variasi mmol mulai 0,08 g (0,36 mmol); 0,12 g (0,54 mmol); 0,16 g (0,72 mmol); 0,20 g (0,90 mmol); 0,24 g (1,08 mmol); 0,28 g (1,26 mmol), sehingga perbandingan mol (lutesium : di-n-

butilditiokarbamat) menjadi 1:2, 1:3, 1:4, 1:5, 1:6, 1:7. Larutan dibiarkan pada suhu kamar selama satu hari sehingga terbentuk kristal berwarna putih. Selanjutnya kristal disaring dan dicuci dengan metanol lalu dikeringkan pada suhu kamar dan ditimbang. Sifat kimia dan sifat fisika kristal dikarakterisasi dengan menggunakan spektrofotometer UV-Vis, inframerah dan alat pengukur titik leleh.

2.4. Pembuatan Senyawa Kompleks ^{177}Lu -di-n-butilditiokarbamat Radioaktif, (^{177}Lu -DBK)

Senyawa kompleks ^{177}Lu -DBK disintesis berdasarkan hasil kondisi optimum pembuatan senyawa kompleks Lu-DBK non radioaktif. Sebanyak 0,065 g Lu_2O_3 dimasukkan ke dalam gelas kimia 50 mL lalu ditambahkan 3 mL HCl 6 M dan 3 mL H_2O_2 35%. Larutan dikisatkan sampai terjadi residu lalu dilarutkan dengan HCl 1 M sebanyak 5 mL. Selajutnya ke dalam larutan tersebut ditambahkan lutesium radioaktif (^{177}Lu) sebanyak 1 mL dengan aktivitas 3-3,6 mCi (27-33 ng ^{177}Lu) sebagai carrier. Keasaman larutan diatur sampai pH 5 dengan cara menambahkan larutan amoniak, lalu ditambahkan bufer asetat pH 5. Ke dalam larutan ditambahkan ligan di-n-butilditiokarbamat sebanyak 0,43 g/10mL dalam metanol dengan cara tetes demi tetes. Larutan disimpan pada suhu kamar selama 1 hari sehingga terbentuk kristal berwarna putih, lalu kristal dicuci dengan metanol 2-3 kali, masing-masing 5 mL dan dikeringkan pada suhu kamar. Radioaktivitas kristal ^{177}Lu -DBK diukur dengan alat dose *calibrator* (Dial 422= ^{58}Co).

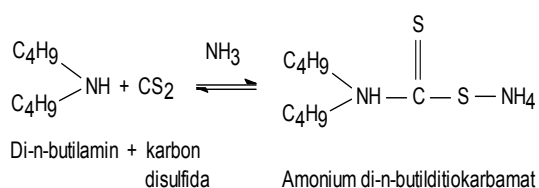
2.5. Kemurnian Radiokimia Senyawa Kompleks ^{177}Lu -DBK Menggunakan Metode Kromatografi Kertas

Ke dalam bejana kromatografi (35 cm x \varnothing 10 cm) dimasukkan 50 mL larutan NaCl 0,9% lalu dibiarkan selama 30 menit. Selanjutnya disiapkan kertas Whatman I dengan ukuran (2x25) cm^2 yang diberi nomor setiap sentimeter mulai -1, 0, 1, 2 sampai 15. Cuplikan senyawa kompleks ^{177}Lu -DBK ditotolkan di kertas pada posisi 0 (nol), lalu dikeringkan dan kemudian dimasukkan kedalam bejana kromatografi sampai ujung kertas tercelup ke dalam eluen \pm 0,5 cm. Kemudian dielusui dengan NaCl 0,9% sampai skala 15 cm. Selanjutnya kertas dikeluarkan dari bejana lalu dikeringkan di udara. Kemudian kertas dipotong-potong setiap sentimeter lalu diukur radioaktivitasnya menggunakan alat *single channel analyzer* (SCA) pada kondisi sebagai berikut : tegangan 800 volt, *window* 0,6; *lower level* 2,3 dan waktu cacah selama 10 detik.

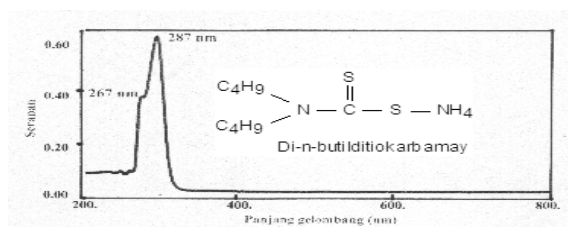
3. HASIL DAN PEMBAHASAN

3.1. Karakterisasi Ligan DBK

Ligan DBK (di-n-butilditiokarbamat) tidak dijual di pasaran, sehingga untuk keperluan penelitian ini dilakukan sintesis ligan terlebih dahulu (9). Ligan di-n-butilditiokarbamat dibuat dalam bentuk garam amonium di-n-butilditiokarbamat seperti reaksi sebagai berikut:



Senyawa amonium di-n-butilditiokarbamat berbentuk kristal berwarna putih yang mudah larut dalam pelarut organik seperti metanol, kloroform, benzene, heksan, etil asetat, etanol dan sedikit larut dalam air (20 ppm), meleleh pada suhu 42°C sampai 44°C. Pada titik lelehnya di-n-butil-ditio-karbamat terdekomposisi yang ditandai dengan perubahan warna, dari warna putih berubah menjadi bening kekuningan (10). Hasil percobaan diperoleh titik leleh pada suhu 42°C sampai 45°C, hal ini menunjukkan ligan di-n-butilditiokarbamat telah berhasil dibuat sesuai dengan acuan. Karakteristik elektronik dari ligan di-n-ditiokarbamat menggunakan metode spektrofotometri UV-Vis diperoleh spektrum serapan terhadap panjang gelombang seperti ditunjukkan pada Gambar 1.



Gambar 1. Spektrum UV-Vis ligan di-n-butilditiokarbamat dengan konsentrasi 20 mg/L dalam metanol.

Pada Gambar 1 dapat dilihat adanya puncak serapan maksimum pada panjang gelombang 267 nm dan 287 nm yang merupakan serapan karakteristik dari senyawa di-n-butilditiokarbamat. Serapan pada panjang gelombang tersebut diduga berasal dari transisi π ke π^* disebabkan oleh adanya ikatan rangkap C=S dan transisi n

ke π^* disebabkan oleh adanya elektron sunyi pada atom S yang biasanya menyerap pada panjang gelombang 250-380 nm (11).

Karakterisasi senyawa ligan di-n-butilditiokarbamat menggunakan metode spektrofotometri infra merah diperoleh pola spektrum seperti pada Gambar 2.

Spektrum inframerah dari ligan di-n-butilditiokarbamat ini menunjukkan adanya puncak-puncak yang intensitasnya kuat dan tajam pada daerah ν 2990 cm^{-1} - 2900 cm^{-1} , diduga berasal dari getar ulur C-H dari C_4H_9 . Puncak pada ν 1488 cm^{-1} diduga berasal dari getaran ulur C=S yang terikat pada atom nitrogen. Puncak pada ν 1420 cm^{-1} - 1380 cm^{-1} diduga berasal dari getaran ulur CH_3 simetri dari C_4H_9 . Puncak pada daerah ν 1298 cm^{-1} - 1195 cm^{-1} diduga berasal dari regangan C-N. Puncak pada daerah ν 1145 cm^{-1} - 1100 cm^{-1} diduga berasal dari regang C=S. Puncak pada daerah ν 970 cm^{-1} diduga berasal dari regang C-S. Puncak pada daerah 788 cm^{-1} - 745 cm^{-1} merupakan daerah sidik jari yang diduga berasal dari regangan C-S.

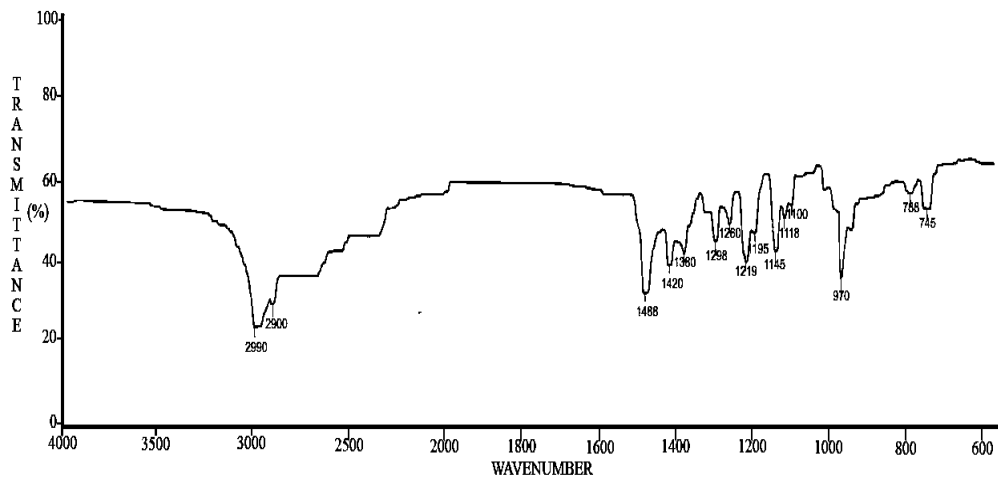
3.2. Karakterisasi Senyawa Kompleks Lutesium-di-n-Butilditiokarbamat (Lu-DBK) Non Radioaktif

Hasil reaksi antara lutesium dengan ligan di-n-butilditiokarbamat yang terbentuk tanpa pengaturan pH merupakan larutan yang bening seperti minyak. Diduga tidak terbentuk senyawa kompleks, dan cairan seperti minyak yang terbentuk merupakan hasil dekomposisi ligan (10). Salah satu ciri bahwa suatu reaksi terjadi adalah

terbentuknya suatu kristal.

Percobaan pembuatan kompleks lutesium di-n-butilditiokarbamat (Lu-DBK) dengan perlakuan perbandingan mmol 1:2,

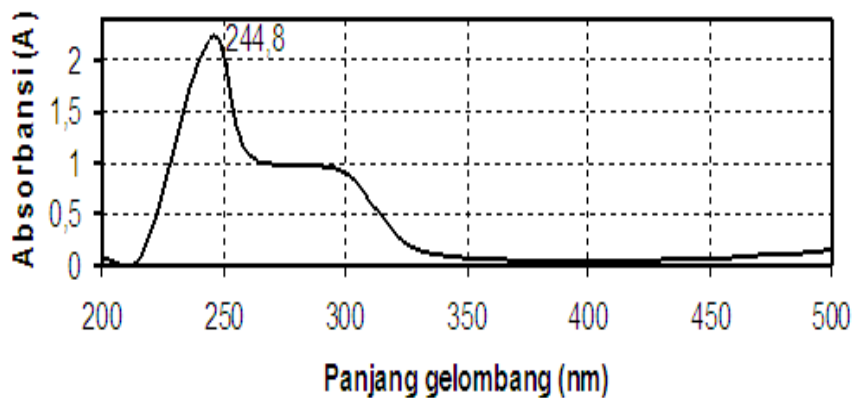
1:3, 1:4, 1:5, 1:6, 1:7 dan variasi pH 2, 3, 4, 5 menghasilkan data yang dirangkum dalam Tabel 1.



Gambar 2. Spektrum inframerah ligan di-n-butilditiokarbamat

Tabel 1. Data pembentukan kompleks Lu-DBK dari variasi perbandingan mmol dan variasi pH

Perbandingan mmol (Lu : DBK)	Variasi pH			
	2	3	4	5
	Kristal (g)	Kristal (g)	Kristal (g)	Kristal (g)
1:2	Tidak terbentuk	Tidak terbentuk	Tidak terbentuk	Tidak terbentuk
1:3	Tidak terbentuk	Tidak terbentuk	Tidak terbentuk	Tidak terbentuk
1:4	Tidak terbentuk	Tidak terbentuk	0,0422	0,0837
1:5	Tidak terbentuk	Tidak terbentuk	0,1116	0,1596
1:6	Tidak terbentuk	Tidak terbentuk	0,2016	0,2743
1:7	Tidak terbentuk	Tidak terbentuk	Tidak terbentuk	Tidak terbentuk



Gambar 3. Spektrum UV-Vis kompleks Lu-DBK .

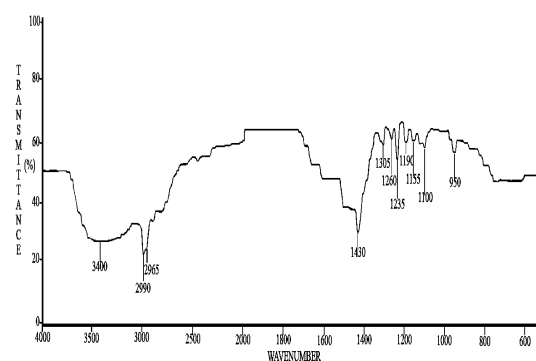
Tabel 1 menunjukkan bahwa pada perbandingan mmol 1:2, 1:3 dan 1:7 tidak terbentuk kristal kompleks Lu-DBK pada variasi pH 2, 3, 4, 5. Pada perbandingan mol Lu : DBK = 1 : 7 dengan pH 4 dan 5 tidak terbentuk kristal, hal ini disebabkan kelarutan Lu-DBK lebih besar dari konsentrasi DBK (reaktan DBK yang tidak membentuk kompleks), akibatnya terjadi kesetimbangan dalam sistem. Pada perbandingan mmol 1:4, 1:5 dan 1:6 dengan variasi pH 2 dan 3 tidak terbentuk kristal, sedangkan pada pH 4 dan 5 terbentuk kristal yang berwarna putih. Pada pH di atas 5 larutan lutesium mengendap, diduga terjadi hidrolisis membentuk senyawa kompleks lutesium hidroksida, sehingga perbandingan mmol antara lutesium dengan ligan di-n-butilditiokarbamat dan pH optimum adalah pada lingkungan pH 5 dan perbandingan mmol 1:6. Hasil karakterisasi menggunakan spektrofotometri ultraviolet dengan perbandingan mmol logam lutesium dan ligan di-n-butilditiokarbamat 1: 6 pada pH 5 seperti digambarkan pada Gambar 3.

Gambar 3 apabila dibandingkan dengan spektrum ultraviolet ligan amonium di-n-butilditiokarbamat (Gambar 1), menunjukkan terdapat perbedaan serapan yang mengakibatkan terjadi pergeseran panjang gelombang dari 287 nm ke daerah 244,8 nm yang merupakan adanya transisi n ke π^* dari elektron sunyi pada atom sulfur. Puncak yang menunjukkan transisi π ke π^* tidak muncul, mungkin dikarenakan pada saat ligan bereaksi dengan ion logam maka ikatan C=S putus dan elektron beresonansi disekitar cincin khelat.

Dari hasil pengukuran titik leleh

senyawa Lu-DBK diperoleh nilai di atas 350 °C dan uji kelarutan menunjukkan bahwa senyawa Lu-DBK larut dengan baik dalam asam organik (percobaan menggunakan asam asetat).

Karakterisasi menggunakan spektrofotometer inframerah dapat dilihat pada Gambar 4. Spektrum inframerah pada Gambar 4. menunjukkan adanya puncak yang tajam dan lebar pada ν 3700 cm^{-1} -3100 cm^{-1} yang berasal dari regangan O-H. Puncak pada ν 2990 cm^{-1} -2965 cm^{-1} diduga berasal dari getar ulur C-H dari C_4H_9 . Puncak pada ν 1430 cm^{-1} diduga berasal dari regangan C-N. Puncak pada ν 1305 cm^{-1} -1260 cm^{-1} diduga berasal dari getaran ulur CH_3 simetri alifatik dari C_4H_9 . Puncak pada ν 1235 cm^{-1} -1100 cm^{-1} diduga berasal dari regangan C-N. Puncak pada daerah ν 950 cm^{-1} yang merupakan daerah sidik jari yang diduga berasal dari regangan C-S.



Gambar 4 Spektrum inframerah senyawa Lu-DBK pada kondisi pembentukan pH 5 dengan perbandingan mmol (1: 6).

Dari spektrum inframerah senyawa kompleks Lu-DBK sangat jelas terlihat terjadinya pergeseran bilangan gelombang, hal ini diduga karena pengaruh logam lutesium dan membuktikan bahwa kompleks

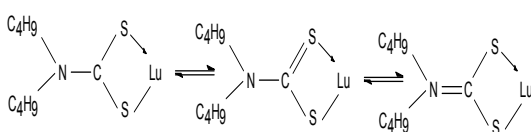
Lu-DBK dapat terbentuk.

Hasil analisis dari spektrum infra merah ligan DBK dan senyawa Lu-DBK yang dirangkum pada Tabel 2. Tabel 2 menunjukkan perbedaan spektrum inframerah senyawa kompleks Lu-DBK dengan ligan di-n-butilditiokarbamat (DBK).

Tabel 2. Data analisis spektrum inframerah senyawa kompleks Lu-DBK pada kondisi pembentukan pH 5 dengan perbandingan mmol 1: 6 dan ligan DBK

Dugaan	Ligan DBK	Senyawa Lu-DBK
Regang O-H	x	√
Getar ulur C-H dari C ₄ H ₉	√	√
Getar ulur C=S yang terikat pada N	√	x
CH ₃ simetri alifati dari C ₄ H ₉	√	√
Regang C=S	√	x
Regang C-S	√	√

Spektrum inframerah pada senyawa kompleks Lu-DBK terdapat puncak pada ν 3700 cm⁻¹ – 3100 cm⁻¹ yang diduga merupakan frekuensi regangan O-H. Puncak pada ν 1488 cm⁻¹ yang merupakan getaran ulur C=S yang terikat pada atom N tidak muncul lagi pada spektrum inframerah senyawa kompleks Lu-DBK. Hal ini diduga disebabkan oleh atom S pada gugus C=S berikatan kovalen koordinasi dengan ion logam membentuk cincin khelat dan elektron berdelokalisasi di sekitar cincin khelat. Selain itu, dimungkinkan juga elektron berdelokalisasi ke gugus C-N membentuk C=N, sehingga ikatan rangkap pada C=S putus (12), seperti diperlihatkan reaksi di bawah ini. :



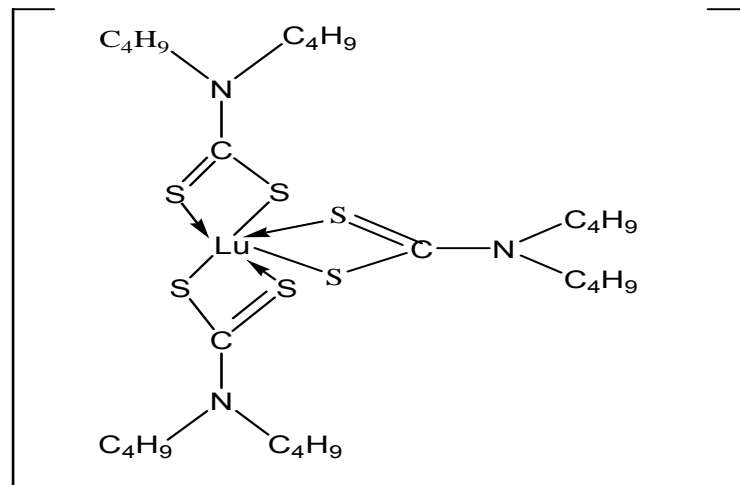
Berdasarkan spektrum inframerah yang diperoleh diketahui terjadi reaksi antara logam lutesium dengan ligan di-n-butilditiokarbamat yang ditandai dengan hilangnya gugus C = S menjadi C – S dan adanya gugus OH. Hasil analisis menggunakan spektrometer ultraviolet dan inframerah menunjukkan reaksi antara lutesium dengan ligan di-n-butilditiokarbamat diduga memiliki struktur kompleks seperti dilukiskan pada Gambar 5.

3.3. Karakterisasi Senyawa Kompleks Lutesium-177-di-n-Butilditiokarbamat (¹⁷⁷Lu-DBK) Radioaktif

Kompleks Lu-DBK dibuat sesuai kondisi optimum senyawa kompleks non radioaktif, dengan perbandingan mmol 1: 6, lingkungan pH 5. Percobaan dilakukan sebanyak tiga kali menggunakan *carrier* radioisotop ¹⁷⁷LuCl₃ dengan aktivitas antara 3 - 3,36 mCi.

Hasil pengukuran radioaktivitas dari senyawa kompleks ¹⁷⁷Lu-DBK dengan menggunakan alat *Dose Calibrator* dirangkum dalam Tabel 3. Aktivitas awal adalah aktivitas ¹⁷⁷Lu yang ditambahkan pada waktu pembuatan kompleks ¹⁷⁷Lu-DBK dan aktivitas akhir adalah aktivitas ¹⁷⁷Lu yang diperoleh setelah terjadi kompleks ¹⁷⁷Lu-DBK. Tabel 3 menunjukkan persentase penandaan (*yield*) senyawa kompleks ¹⁷⁷Lu-DBK, diperoleh nilai 89,99% dengan kemurnian radiokimia 97,10 %.

Hasil kromatografi kertas untuk penentuan kemurnian radiokimia senyawa kompleks ¹⁷⁷Lu-DBK diperlihatkan pada Gambar 6 (a) dan 6(b).

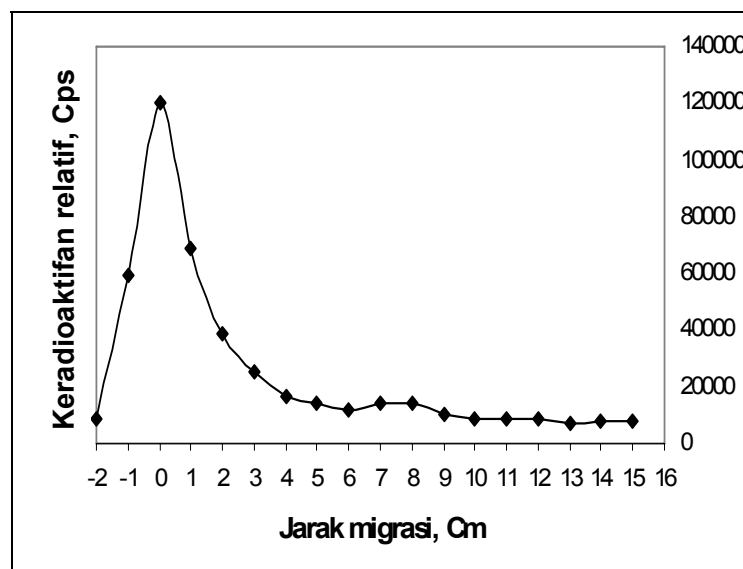


Gambar 5. Struktur kompleks lutesium-di-n-butilditiokarbamat (Lu-DBK)

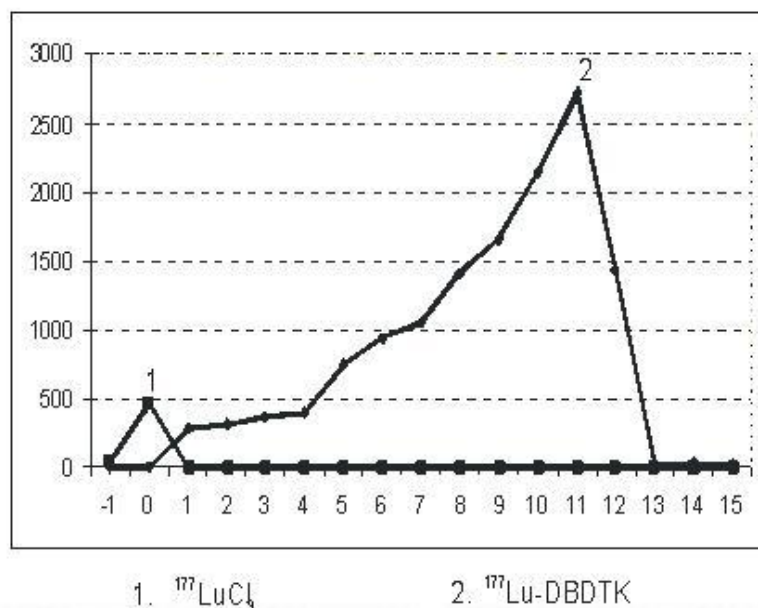
Tabel 3 Persentase penandaan (*yield*) senyawa kompleks ^{177}Lu -DBK.

No	Massa		Aktivitas $^{177}\text{LuCl}_3$ (mCi/mL)		Persentase Penandaan/ Yield (%) *)
	Lu_2O_3 (g)	DBK (g)	Awal	Akhir	
1	0,065	0,43	3,36	3,08	91,67
2	0,065	0,43	3,12	2,73	87,50
3	0,065	0,43	3,15	2,86	90,80
					% rata-rata = 89,99

Keterangan *) : % Yield = (Aktivitas akhir / Aktivitas awal) x 100%



Gambar 6 (a). Kromatogram $^{177}\text{LuCl}_3$ ($R_f = 0$) menggunakan pelarut NaCl 0,9 %



Gambar 6 (b). Kromatogram $^{177}\text{LuCl}_3$ ($R_f = 0$) dan $^{177}\text{Lu-DBK}$ ($R_f = 0,87$) menggunakan pelarut NaCl 0,9%.

4. KESIMPULAN

Berdasarkan data hasil pengamatan dari percobaan yang dilakukan dapat diambil kesimpulan bahwa senyawa kompleks ^{177}Lu -di-n-butilditiokarbamat disintesis pada kondisi optimum melalui reaksi stoikiometri perbandingan mol lutesium terhadap ligan di-n-butilditiokarbamat adalah 1:6, lingkungan reaksi pada pH 5, berbentuk kristal berwarna putih, larut dalam pelarut asam organik, mempunyai suhu penguraian di atas 350°C . Hasil karakterisasi menggunakan metode spektrofotometer ultraviolet memperlihatkan senyawa kompleks ^{177}Lu -di-n-butilditiokarbamat memberikan serapan yang spesifik di daerah panjang gelombang maksimum 244,8 nm. Hasil analisis dari spektrum inframerah menunjukkan adanya vibrasi ulur antara logam dengan ligan (Lu-S) dalam kompleks ^{177}Lu -di-n-butilditiokarbamat pada puncak serapan di daerah bilangan

gelombang ($U_{\text{maksKBr}} = 950/\text{cm}$).

Penentuan kemurnian radiokimia senyawa kompleks ^{177}Lu -di-n-butilditiokarbamat dengan cara metode kromatografi kertas menggunakan fase diam kertas Whatman I dan fase gerak NaCl 0,9%, menunjukkan migrasi senyawa kompleks lutesium-177-di-n-butilditiokarbamat pada $R_f = 0,87$ dengan kemurnian radiokimia 97,10%. Senyawa kompleks ^{177}Lu -di-n-butilditiokarbamat dapat disintesis dengan persentase penandaan 89,99% dan bisa digunakan sebagai sediaan radioperunut di industri.

5. UCAPAN TERIMAKASIH

Terimakasih dan apresiasi disampaikan kepada saudara Dwi Denis Putra mahasiswa program S-1 Universitas Padjadjaran Bandung yang telah terlibat dalam penelitian ini.

6. DAFTAR PUSTAKA

1. Setiawan D. Pembuatan radioisotop lutesium-177 (^{177}Lu) dari Lu_2O_3 alam menggunakan reaktor TRIGA 2000. JSTNI 2005; 6 (2): 1-14.
2. Chakraborty S, Das T, Unni PP, Sarma HD, Samuel G, Banerje S et al. ^{177}Lu labelled polyammino-phosphonates as potential agent for bone pain palliation. Nucl Medic Commun 2002; 23: 67-74.
3. Idris I, Djajasudarma W S. Pembuatan metil iodida bertanda ^{131}I . Prosiding Seminar Pendayagunaan Reaktor Nuklir Untuk Kesejahteraan Masyarakat PPTN-BATAN Bandung 26-27 September 1990; 223- 6.
4. Ayuni NPS. Kajian reaksi antara logam serium(III) dengan ligan di-n-butilditiokarbamat. Skripsi FMIPA Jurusan Kimia. Jatinangor : UNPAD; 2005.
5. Wardani S. Pemisahan logam-logam transisi dengan metode KCKT fasa terbalik menggunakan pengompleks ligan di-n-butilditiokarbamat. Tesis Program Magister Ilmu Kimia Bandung : UNPAD; 2001.
6. Wilmansyah T. Kajian reaksi antara logam itrium(III) dengan ligan di-n-butilditiokarbamat. Skripsi FMIPA Jurusan Kimia Jatinangor : UNPAD; 2005.
7. Yuliaty N. Kromatografi cair kinerja tinggi untuk pemisahan serium dari monasit melalui pembentukan kompleks dengan di-n-butilditiokarbamat. Skripsi MIPA Jurusan Kimia Jatinangor :UNPAD; 2003.
8. Wai CM, Wang Shaofen and Yu Jyayyun. Solubility parameter and solubility of metal dithiocarbamates in supercritical carbon dioxide. J Anal Chem 1996; 68: 3516-19.
9. Sidik R. Sintesis ligan di-n-butilditiokarbamat dan penggunaannya untuk ekstraksi dan kromatografi logam-logam berat. Skripsi FMIPA Jurusan Kimia Bandung : UNPAD; 1997.
10. Syafi'i MH. Sintesis ligan di-n-butilditiokarbamat dan penggunaannya untuk ekstraksi dan kromatografi logam Ni(II), Pb(II), Fe(II) dan Fe(III). Skripsi FMIPA Jurusan Kimia Bandung: UNPAD; 1998.
11. Silverstein RM, Bassler GC, Morrill TC. Spectrofotometric identification of organic compound. 5th ed. New York: John Wiley & Sons Inc. 1991.
12. Zhang W. Synthesis and structure of bis(Dibutyl dithiocarbamate)zinc(II): $\text{Zn}_2[(\text{n-Bu})_2\text{NCSS}]_4$, www.mdpi.org.,2003.

