



Sintesis Zeolit dari Kaolin sebagai Carrier Amoksisilin

Deta Sri Wardani[✉], F. Widhi Mahatmanti, dan Jumaeri

Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Semarang
Gedung D6 Kampus Sekaran Gunungpati Telp. (024)8508112 Semarang 50229

Info Artikel

Diterima Mei 2020

Disetujui Juni 2020

Dipublikasikan Agustus
2020

Keywords:

Kaolin
Sintesis zeolit
Carrier amoksisilin

Abstrak

Pada penelitian ini dilakukan sintesis zeolit dari kaolin dan kemampuannya sebagai carrier amoksisilin. Proses sintesis zeolit diawali dengan kalsinasi kaolin menjadi metakaolin, kemudian ditambahkan larutan NaOH 3,0 M dan diaduk selama 2 jam. Proses pembentukan kristal zeolit menggunakan metode hidrotermal pada suhu 100°C selama 8 jam. Zeolit hasil sintesis dikarakterisasi menggunakan instrumen FT-IR, XRD, dan SAA. Zeolit sintetis digunakan sebagai carrier obat amoksisilin dengan parameter adsorpsi dan desorpsi. Hasil karakterisasi zeolit hasil sintesis dilihat dari gugus fungsi dan pola difraksi menunjukkan kemiripan dengan zeolit A. Diameter pori zeolit sintetis sebesar 7,44 Å dan luas permukaannya adalah 3,456 m²/g. Kondisi optimum zeolit hasil sintesis dalam mengadsorpsi amoksisilin terjadi pada pH 5 dan waktu kontak selama 75 menit, dan kapasitas adsorpsinya sebesar 5,356 mg/g atau 80,334%. Sedangkan untuk amoksisilin yang terlepas dari zeolit sebesar 1,561 mg/g atau 29,144%.

Abstract

This research is to know the of zeolite synthesis based kaolin ability as drug carrier amoxicillin. The synthesis process of zeolite begin with calcination of kaolin to methakaolin, then added 3.0 M NaOH solution and stirred for 2 hours. Followed by the process of making zeolite crystals using hydrothermal method at temperature 100°C for 8 hours. Synthetic zeolites was characterized using FT-IR, XRD, and SAA instruments. Synthetic zeolites are then used to drug carrier amoxicillin with parameter adsorption and desorption. The results of characterization of the synthesized zeolite seen from the functional groups and diffraction patterns show similarities with zeolite A. The pore diameter of synthetic zeolite is 7.44 Å and its surface area is 3.456 m²/g. While amoxicillin released for zeolite as 1.561 mg/g or 29.144%.

Pendahuluan

Zeolit merupakan mineral kristal alumina silika tetrahidrat berpori yang mempunyai struktur kerangka tiga dimensi, terbentuk oleh tetrahedral $[\text{SiO}_4]^{4-}$ dan $[\text{AlO}_4]^{5-}$. Sumber silika dan alumina yang dapat digunakan untuk sintesis zeolit antara lain kaolin (Darojah, 2017) dan abu layang batu bara (Jumaeri, 2014). Kaolin digunakan dalam sintesis zeolit dikarenakan kelimpahan kaolin yang tersebar banyak di Indonesia. Potensi dan cadangan kaolin di Indonesia terdapat di Kalimantan Barat, Kalimantan Selatan, Pulau Bangka Belitung dan tersebar di Pulau Jawa (Estianty, 2014). Struktur tiga dimensi pada zeolit yang menyebabkan zeolit ini bermuatan negatif. Penggantian Al^{3+} untuk Si^{4+} dalam lembaran tetrahedral. Permukaan zeolit pada umumnya bermuatan negatif. Pada saat ini sudah ditemukan sekitar 40 mineral zeolit alam dan lebih dari 150 zeolit sintetis. Zeolit memiliki pori yang teratur dan banyak kegunaan.

Firmantri (2013) melakukan sintesis zeolit menggunakan kaolin dengan metode hidrotermal. Karakterisasi zeolit menggunakan X-Ray Diffraction (XRD) menunjukkan fase kristal dengan puncak tertinggi terdapat pada $2\theta = 7,20^\circ$; $10,18^\circ$; dan $23,99^\circ$. Analisis FT-IR yang menunjukkan serapan khas zeolit, yaitu pada daerah 1004 ; $663,6$; $556,61$; dan $464,61 \text{ cm}^{-1}$. Hasil sintesis menunjukkan kemiripan dengan zeolit A.

Dalam perkembangannya zeolit dimanfaatkan dalam berbagai bidang seperti industri, pertanian, lingkungan, dan teknologi biologi (Rimoli, 2007). Kralj, 2003 menjelaskan bahwa zeolit tidak mengandung racun dan aman digunakan dalam pengobatan manusia dan hewan. Zeolit yang berbahan mikropori ini layak digunakan sebagai drug delivery system. Selain itu, zeolit yang dibuat dengan cara sintesis memiliki keuntungan diantaranya, tingkat kemurnian lebih besar dan kandungan komposisi yang jelas sehingga dapat digunakan sebagai drug delivery.

Amoksisilin adalah obat antibiotik jenis penisilin yang termasuk antibiotik β -laktam. Amoksisilin adalah antibiotik yang efektif dalam melawan bakteri gram positif dan gram negatif. Amoksisilin digunakan dalam pengobatan dan pencegahan berbagai infeksi saluran pernafasan atas dan bawah, diantaranya penyakit gonore, infeksi mulut, infeksi kulit, dan infeksi saluran empedu (Sweetman, 2007). Penggunaan amoksisilin yang berlebihan mempunyai efek samping diantaranya, diare. Diare adalah efek buruk yang paling sering terjadi serta mual, muntah, iritasi pada saluran gastrointestinal bagian bawah, dan ruam kulit merupakan dampak yang sering muncul pada pengguna amoksisilin yang diminum secara berlebihan. *Erythema multiforme* dan reversibel *leucopenia* termasuk dampak dari penggunaan amoksisilin, namun jarang di temukan pada penggunaan amoksisilin yang digunakan secara diminum (Kaur *et al.*, 2011). Dampak negatif yang ditimbulkan oleh amoksisilin ini maka diperlukan sebuah pengembangan sebagai *drug delivery*.

Metode

Alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah peralatan plastik (poli etilen), peralatan gelas, neraca analitik, oven, penyaring buchner, reaktor autoklaf stainless steel, muffle furnace, pH meter, magnetic stirrers, orbital shaker, kertas saring, pH indikator, X-Ray Diffraction (XRD), Fourier Transform Infrared (FT-IR), Surface Area Analyzer (SAA), dan Spektrofotometer UV-Vis. Bahan yang diperlukan dalam penelitian ini adalah kaolin, padatan NaOH, akuademin, aquades, obat amoksisilin, dan larutan buffer pH 1,2; 3; 4;5;6;7 dan 8.

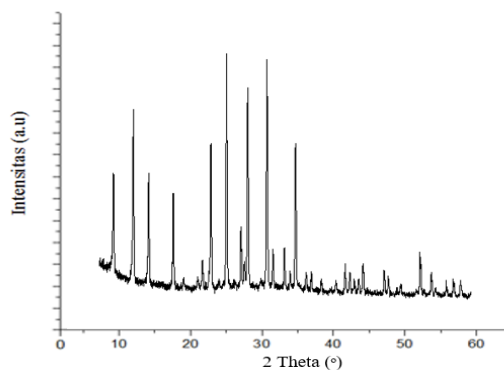
Sintesis zeolit dilakukan dengan 60 g serbuk kaolin dipanaskan menggunakan muffle furnace pada suhu 700°C selama 2 jam (Kovo, 2011). Setelah dipanaskan menggunakan furnace akan terbentuk metakaolin. Sintesis zeolit dengan metode hidrotermal. Metakaolin sebanyak 6,0 g dilarutkan dalam larutan NaOH 3,0 M. Rasio metakaolin/ larutan NaOH adalah 1,0 g/ 25 mL. Campuran digojog menggunakan pengaduk magnetik selama 120 menit kecepatan 500 rpm pada suhu kamar. Kristalisasi zeolit dilakukan dalam *autoclave* stainless steel Teflon. Larutan dimasukkan ke dalam *autoclave* dan ditutup rapat, kemudian dipanaskan selama 8 jam pada suhu 100°C . Sampel disaring dan dicuci menggunakan akuademin hingga pH 7. Residu yang sudah netral, lalu dikeringkan dengan menggunakan oven pada suhu 105°C selama 60 menit. Gougazeh & Buhl (2014) dan Johnson (2014). Zeolit hasil sintesis

dikarakterisasi dengan menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD) Rigaku Miniflex 600, *Fourier Transform Infrared* (FT-IR) Shimadzu Instrument Spectrum One 8400S, dan *Surface Area Analyzer* (SAA) Quantachrome Instruments Nova 1200e.

Uji Kinerja Zeolit Sintesis sebagai Carrier Obat Amoksisilin dengan parameter adsorpsi dan desorpsi. Penentuan panjang gelombang maksimum larutan amoksisilin menggunakan larutan amoksisilin yang diukur pada panjang gelombang 200-400 nm. Parameter adsorpsi dengan variasi pH menggunakan larutan amoksisilin variasi pH 3-8, variasi waktu menggunakan waktu kontak 15, 30, 45, 60, 75, 90, 105, dan 120 menit yang diukur pada pH optimum serta panjang gelombang maksimum, serta variasi konsentrasi menggunakan larutan amoksisilin konsentrasi 50, 75, 100, 125, 150, dan 175 ppm pada pH dan waktu optimum serta diukur pada panjang gelombang maksimum. Parameter desorpsi dilakukan saat sudah mencapai titik optimum. Residu yang digunakan diatur pada pH dan waktu kontak optimum lalu, filtrat dianalisis menggunakan spektrofotometer uv-vis pada panjang gelombang maksimum Tripathi *et al.*, (2014), Mahmood (2017) dan Hu, Dongying (2016) yang dimodifikasi.

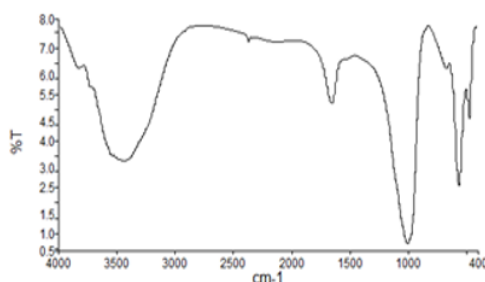
Hasil dan Pembahasan

Berdasarkan hasil sintesis zeolit yang dikarakterisasi menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD) yang disajikan dalam Gambar 1.



Gambar 1. Pola difraksi sinar-x zeolit hasil sintesis

Nilai d-spacing pada puncak tertinggi yang ditunjukkan pada Gambar 1 adalah 12,586 Å; 8,863 Å; 7,221 Å; 3,313 Å dan 3,740 Å. Difraksi zeolit hasil sintesis menunjukkan kemiripan dengan zeolit A dan terdapat fasa campuran dengan zeolit X. Karakterisasi dengan menggunakan *Fourier Transform Infrared* (FT-IR) dilakukan pada bilangan gelombang 400-4000 cm^{-1} dengan menggunakan pellet KBr. Zeolit secara umum mempunyai daerah serapan pada bilangan gelombang sekitar 1200-300 cm^{-1} , karena pada panjang gelombang tersebut terdapat vibrasi kerangka tetrahedral yang merupakan kerangka pembangun struktur zeolit. Spektra dari zeolit hasil sintesis disajikan dalam Gambar 2.

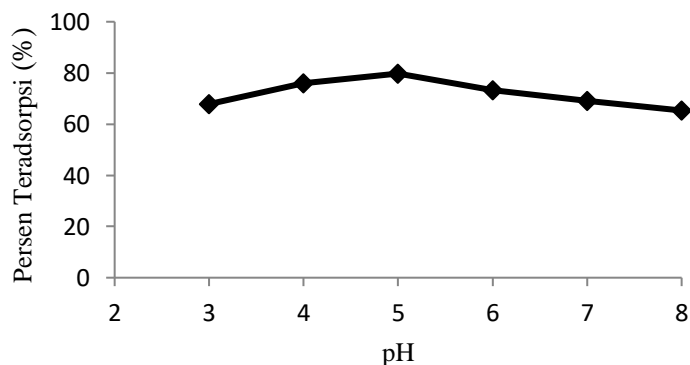


Gambar 2. Spektrum IR dari zeolit hasil sintesis

Pita serapan zeolit hasil sintesis yang dihasilkan pada daerah $3445,73\text{ cm}^{-1}$ menunjukkan adanya vibrasi rentang gugus O-H, $2368,79\text{ cm}^{-1}$ merupakan vibrasi tekuk gugus O-H dan $1653,96\text{ cm}^{-1}$ menunjukkan adanya vibrasi tekuk gugus O-H (Jumaeri et al., 2014). Bilangan gelombang $1001,37\text{ cm}^{-1}$ merupakan vibrasi asimetri ikatan Al-O. Pita serapan $666,67\text{ cm}^{-1}$ menunjukkan vibrasi simetri ikatan Al-O. Bilangan gelombang $554,68$ adanya vibrasi tekuk Al/Si-O-Al/Si. Sedangkan pada bilangan gelombang $466,58$ adanya vibrasi internal tetrahedron Si-O dan Al-O dari sodalite dan cancrinite, serta menunjukkan luas permukaan dari zeolit hasil sintesis sebesar $3,456\text{ m}^2/\text{g}$.

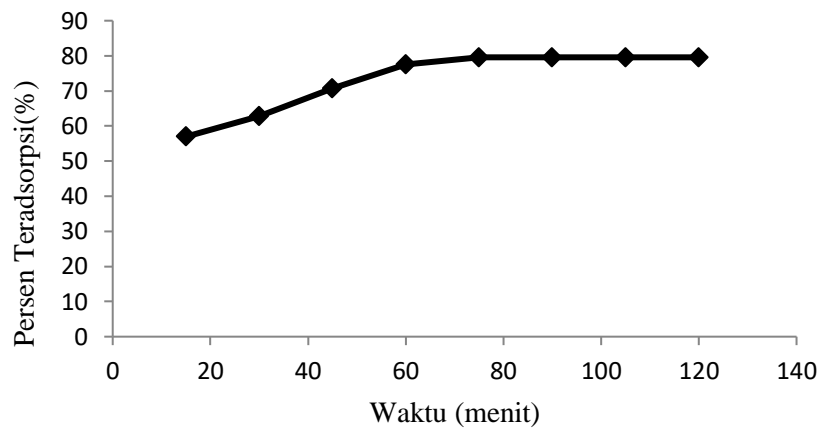
Zeolit hasil sintetik digunakan sebagai carrier obat amoksisilin ini menggunakan parameter adsorpsi dan desorpsi. Jenis amoksisilin yang digunakan dalam penelitian ini adalah amoksisilin trihidrat. Amoksisilin trihidrat memiliki kelarutan sangat kecil dalam pelarut etanol 96% dan tidak larut dalam minyak sehingga digunakan pelarut air. Adapun proses adsorpsi dilakukan untuk mengetahui kondisi optimum dari zeolit, meliputi pH, waktu kontak dan konsentrasi amoksisilin.

Nilai pH adalah salah satu faktor yang berperan penting dalam proses adsorpsi, karena mempengaruhi gugus-gugus fungsional silika yang berperan aktif serta mengetahui sifat dari obat tersebut. Variasi nilai pH dilakukan dari pH 3 – 8 untuk menentukan nilai pH optimum pada proses adsorpsi. Amoksisilin bersifat kationik pada pH <2,4 bersifat anionik pada pH <7,4 dan bersifat zwitterionic pada pH netral (Moussavi et al., 2013). Amoksisilin gugus karboksil (-COOH, pKa1 = 2,68), amine (-NH₂, pKa2 = 7,49) dan penolik (-OH, pKa3 = 9,63), kelompok pada gugus amoksisilin ini akan terionisasi pada nilai pH yang berbeda-beda. Nilai pH lebih besar dari nilai pKa1 grup amoksisilin akan terprotonasi sebagai -COOH/ -NH₃⁺/ -OH, nilai pH diantara nilai pKa1 dan pKa2 grup karboksil akan terdeprotonasi menjadi -COO⁻/ -NH₃⁺/ -OH, nilai pH diantara nilai pKa2 dan pKa3 grup karboksil dan amine akan terdeprotonasi menjadi -COO⁻/ -NH₂⁺/ -OH, dan nilai pH lebih besar dari pKa3 fenolik hidroksil akan terdeprotonasi menjadi -COO⁻/ -NH₂⁺/ -O⁻ (Song, 2018). Adsorpsi amoksisilin semakin meningkat seiring bertambahnya pH hingga mencapai pH maksimum pada pH 5 yang ditunjukkan Gambar 3.



Gambar 3. Kurva hubungan pH dengan persen amoksisilin yang teradsorpsi

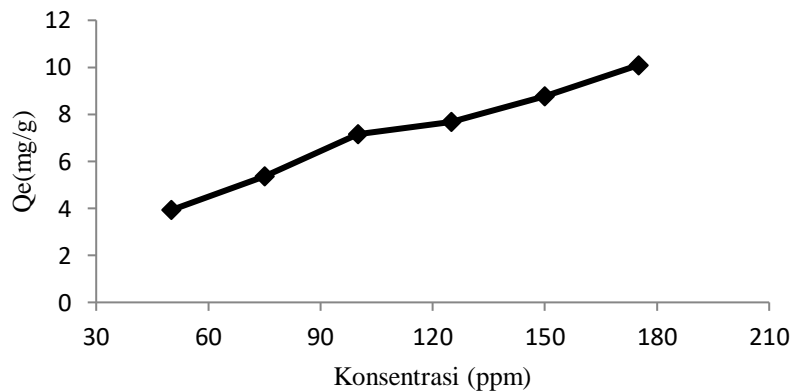
Penentuan waktu kontak untuk mengetahui daya zeolit dalam mengadsorpsi senyawa obat tersebut terkait dengan waktu serapan seberapa optimum senyawa obat tersebut teradsorpsi. Variasi waktu yang digunakan yaitu 15, 30, 45, 60, 75, 90, 105, dan 120 menit diatur nilai pH-nya sesuai dengan pH optimum, yaitu pH 5. Hasil dari adsorpsi amoksisilin dengan variasi waktu kontak ditunjukkan pada Gambar 4.



Gambar 4. Kurva hubungan waktu kontak dengan persen amoksisilin yang teradsorpsi

Adsorpsi yang dilakukan pada variasi waktu 15, 30, 45, 60, 75, 90, 105, dan 120 menit pada pH optimum. Adsorpsi meningkat pada waktu 15 menit hingga 75 menit dan pada 90 menit sudah tidak terjadi adsorpsi, dapat dikatakan bahwa proses adsorpsi sudah konstan. Pada menit 15 menit sudah terjadi proses adsorpsi sebesar 56,981%. Proses adsorpsi meningkat hingga waktu kontak 75 menit yaitu sebesar 79,568%. Hal tersebut dikarena sisi aktif dari zeolit sudah terisi penuh sehingga tidak mampu mengadsorpsi kembali.

Konsentrasi optimum dilakukan untuk mengetahui kemampuan maksimal daya adsorpsi zeolit sintesis terhadap amoksisilin. Variasi konsentrasi yang digunakan yaitu 50, 75, 100, 125, 150, dan 175 ppm. Kondisi perlakuan pada variasi konsentrasi adalah waktu kontak optimum yaitu 75 menit, dan pH optimum yaitu 5. Hasil perhitungan yang diperoleh kemudian diplotkan dalam grafik konsentrasi awal (C_0) versus jumlah penyerapan (Q_e) yang ditunjukkan pada Gambar 5.



Gambar 5. Penyerapan zeolit hasil sintesis

Penyerapan (Q_e) zeolit sintetis terhadap amoksisilin meningkat seiring dengan meningkatnya konsentrasi awal. Hal tersebut karena zeolit belum tepat jenuh dalam mengadsorpsi sehingga proses adsorpsi terjadi secara meningkat seiring dengan konsentrasi. Pada zeolit sintetis mengalami peningkatan dari konsentrasi awal sampai konsentrasi 75 ppm, sedangkan pada 100 ppm penyerapan mengalami penurunan. Hal tersebut menunjukkan bahwa zeolit sintetis dengan konsentrasi 75 ppm merupakan kondisi optimum pada sudah jenuh dalam mengadsorpsi sehingga kemampuan dalam mengadsorpsi pada konsentrasi 75 ppm.

Parameter desorpsi bertujuan untuk melepaskan amoksisilin dari zeolit saat zat tersebut sudah mencapai titik optimum. Jumlah dan persentase amoksisilin yang terlepas ditunjukkan pada persamaan 1 dan 2.

$$\text{Jumlah yang dilepas (mg/g)} = \frac{C_e \cdot V}{m} \dots\dots\dots 1$$

$$\% \text{ desorpsi} = \frac{\text{Jumlah desorbed}}{\text{Jumlah adsorbed}} \times 100\% \dots\dots\dots 2$$

Besarnya amoksisilin yang terserap oleh zeolit sebesar 5,356 mg/g sedangkan yang dapat dilepas sebesar 1,561 mg/g.

Simpulan

Zeolit hasil sintesis sudah menunjukkan kemiripan dengan zeolit A dengan campuran fasa dari zeolit X. Zeolit hasil sintesis digunakan sebagai carrier obat amoksisilin. Kondisi optimum zeolit hasil sintesis dalam mengadsorpsi amoksisilin terjadi pada pH 5, waktu kontak selama 75 menit, dan pada konsentrasi larutan 75 ppm. Zeolit hasil sintesis yang digunakan sebagai carrier obat kurang efektif. Hasil penyerapan amoksisilin sebesar 5,356 mg/g sedangkan yang dapat dilepas sebesar 1,561 mg/g.

Daftar Pustaka

Darojah, L.I., Jumaeri., dan E. Kusumastuti. 2017. Modifikasi Zeolit A dengan Surfaktan HDTMA dan Aplikasinya sebagai Adsorben Ion Nitrat. *Indonesian Journal of Chemical Science*, 6(2): 1-8

Estiaty, L.M., dan D. Fatimah. 2014. Pengolahan Kaolin Alam Cipatujah dan Bangka Belitung: Pengurangan Pengotor Silika dengan Pelarut HF. *Prosiding Pemaparan Hasil Penelitian Pusat Penelitian Geoteknologi LIPI Tahun 2014*: 463-74

Firmantri, O. 2017. *Sintesis Zeolit Berbahan Dasar Kaolin dengan Metode Hidrotermal*. Seminar Nasional Kimia dan Pendidikan Kimia 2017, 5: 1-4

Gougazeh, M., J.Ch. Buhl. 2014. Synthesis and Characterization of Zeolite A by Hydrothermal Transformation of Natural Jordania Kaolin. *Journal of the Association of Arab Universities for Basic and Applied Sciences*,15: 35-42

Johnson, E.B.G., Sazmal, E. Arshad., dan Jahimin, A. 2014. Hydrothermal Synthesis of Zeolite A Using Natural Kaolin from KG. Gading Bogawan Sabah. *Journal of Applied Scinces*, 14(23): 3282-87

Jumaeri., S.J. Santoso., Sutarno., dan E.S. Kunarti. 2014. Synthesis of Zeolite A from Fly Ash by Alkali Fusion and Hydrothermal. *Advanced Materials Research*, 1043: 198- 203

Hu, D., dan LiJuang, Wang. 2016. Adsorption of Amoxicillin Onto Quaternized Cellulose from Flax Noil: Kinetic, Equilibrium and Thermodynamic Study. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engginers*, 1-8

Kaur, S.P., R. Rao., dan S. Nanda. 2011. Amoxicillin: A Broad Spectrum. *International Journal of Pharmacy and Pharmaceutical Sciences*, 3(3): 30-37

Khodaverdi, E., H. Ali. Soleimani., Fatemeh, Mohammadpour., dan Farzin, Hadizadeh. 2016. Synthetic Zeolites as Controlled-Release Delivery Systems for Anti-Inflammatory Drugs. *Chemical Bio Drug*, 87: 849-57

Kovo, A. S. 2011. Development of Zeolites and Zeolite Membranes From Nigeria Kaolin. *PhD Thesis*. Manchester: The University Manchester

Kralj, M., dan K. Pavelic. 2003. Medicine on a Small Scale. *Embo Rep*, 4:1008-12

Mahmood, N. Al-Huda., dan Yassar, R. Abdulmajeed. 2017. Adsorption Amoxicillin onto Activated Carbon from Aqueous Solution. *International Journal of Current Engginering and Technologi*, 7(1): 62-67

- Rimoli, M.G., M.R. Rabaioli., D. Melisi., A. Curcio., S. Mondello., R. Mirabelli., dan E. Abignente. 2007. Synthesis Zeolit as a New Tool for Drug Delivery. *Journal of Biomedical Materials Research Part A*, 153-156
- Song, Y. 2018. The Adsorption of Amoxicillin by Mesoporous Silica Supported Polymers. *Thesis*. New Jersey :University New Jersey
- Sweetman, S. 2007. *Martindale: The Complete Drug Reference 7ed.* London: The Pharmaceutical Press
- Tripathi, G.K., S. Singh., dan M. Gupta. 2014. U.V. Spectroscopy Technique for Analysis of Amoxicillin Trihydrate in pH Stimuli Sensitive Formulation. *Pelagia Research Library*,5(1): 29-33