

Enkapsulasi Minyak Lemon (*Citrus limon*) Menggunakan Penyalut β -Siklodekstrin Terasetilasi

O S Priambodo[✉], E Cahyono, S B W Kusuma

Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Semarang, Indonesia

Info Artikel

Sejarah Artikel:

Diterima 11 Juli 2017

Disetujui 23 September 2017

Dipublikasikan 1 Oktober 2017

Keywords:

encapsulation, acetylated β -cyclodextrin and controlled release

Abstrak

Minyak lemon bermanfaat untuk mengurangi rasa tertekan dan menyegarkan pikiran bila dihirup uapnya. Minyak atsiri umumnya mudah menguap dan mudah rusak. Untuk mengatasi masalah tersebut, perlu dilakukan enkapsulasi. Senyawa β -siklodekstrin adalah penyalut yang baik untuk enkapsulasi minyak atsiri. Tujuan penelitian ini adalah melakukan enkapsulasi minyak lemon menggunakan penyalut β -siklodekstrin terasetilasi, dan mendapatkan rasio (b/b) terbaik β -siklodekstrin terasetilasi : minyak lemon melalui pengujian *controlled release* limonene dalam mikrokapsul minyak lemon. Penelitian yang dilakukan meliputi preparasi katalis Zr^{4+} -zeolit beta, asetilasi β -siklodekstrin, enkapsulasi minyak lemon dan pengukuran *controlled release*. Hasil yang didapatkan adalah sebanyak 6,40% logam zirkonium teremban dalam zeolit beta. Hasil spektra FTIR adalah intensitas-OH yang muncul pada bilangan gelombang 3336,93 cm^{-1} pada β -siklodekstrin terasetilasi mengalami penurunan, sedangkan C=O pada bilangan gelombang 1738,45 cm^{-1} mengalami peningkatan. *Controlled release* limonene terbaik dalam mikrokapsul minyak lemon terletak pada variasi A2 (β -siklodekstrin terasetilasi : minyak lemon = 2 gram : 2 gram). Hasil SEM mikrokapsul minyak lemon adalah kristal berbentuk menyerupai balok dan nampak lebih gelap daripada β -siklodekstrin terasetilasi yang diyakini adalah minyak lemon telah masuk ke dalam rongga β -siklodekstrin terasetilasi. Ukuran mikrokapsul yang dihasilkan rata-rata sebesar $< 2\mu m$.

Abstract

Lemon oil is useful for reducing stress and refresh the mind when inhaled its steam. Essential oils are generally volatile and easily damaged. To solve the problem, encapsulation needs to be done. The β -cyclodextrin is a good coating for the encapsulation of essential oils. The purpose of this study was to encapsulate the lemon oil using an acetylated β -cyclodextrin coating, and obtain the best (w/w) ratio of the acetylated β -cyclodextrin: lemon oil by testing controlled release limonene in the lemon oil microcapsules. The studies include preparation of Zr^{4+} -zeolite beta catalyst, acetylation of β -cyclodextrin, encapsulation of lemon oil and controlled release measurements. The result obtained is as much as 6.40% of zirconium metal is plugged in zeolite beta. The result of FTIR spectra is the OH-intensity that appears at 3336.93 cm^{-1} in β -cyclodextrin of acetylated decrease, whereas C = O at wave number 1738,45 cm^{-1} has increased. The best controlled release limonene in lemon oil microcapsules lies in the variation of A2 (β -cyclodextrin acetylated: lemon oil = 2 grams: 2 grams). The result of SEM microcapsule of lemon oil is crystal resembling a beam and appears darker than the β -cyclodextrin which is believed to be lemon oil has entered into the cetylated cytlodextrin cavity. The resulting microcapsule size averaged $< 2\mu m$.

© 2017 Universitas Negeri Semarang

[✉] Alamat korespondensi:

E-mail: okky1993@gmail.com

PENDAHULUAN

Minyak atsiri merupakan komponen aroma, bersifat volatil dan berbentuk cair serta biasanya didapatkan dari tanaman (Supriyadi 2013). Salah satu minyak atsiri yang berguna dalam bidang aromaterapi adalah minyak lemon. Minyak atsiri lemon bermanfaat sebagai anti stress, karena minyak atsiri lemon mampu menenangkan, sehingga dapat membantu dalam menghilangkan kelelahan mental, pusing, gelisah, gugup, dan ketegangan saraf. Minyak atsiri lemon memiliki kemampuan untuk menyegarkan pikiran, yaitu dengan menciptakan pikiran dalam bingkai positif dan menghapus emosi negatif. Menghirup minyak atsiri lemon dapat membantu meningkatkan konsentrasi dan kewaspadaan. Meskipun banyak digunakan dalam berbagai bidang, minyak atsiri rentan terhadap suhu tinggi, oksidasi, sinar UV, dan kelembaban, sehingga diperlukan solusi untuk mengatasi permasalahan tersebut (Cevallos *et al.* 2010). Enkapsulasi dapat memberikan solusi atas permasalahan tersebut. Enkapsulasi merupakan teknik untuk melindungi bahan inti (*core*) yang semula berbentuk cair menjadi bentuk padatan sehingga mudah dalam penanganannya serta dapat melindungi bahan inti dari kehilangan *flavour* (Cevallos *et al.* 2010).

Metode relevan yang telah dikembangkan untuk enkapsulasi adalah pemanfaatan siklodekstrin sebagai penyalut dalam larutan berair. Rongga siklodekstrin yang sedikit polar ditempati oleh molekul air, karena itu molekul air dapat dengan mudah diganti oleh molekul tamu yang kurang polar daripada air. Teknik *freeze drying* atau pengeringan beku yang mencakup liopilisasi merupakan salah satu proses yang berguna untuk mengeringkan bahan yang sensitif terhadap panas dan tidak stabil dalam larutan air (Martin *et al.* 2010).

Penelitian terkait yang telah dilakukan mengenai enkapsulasi minyak lemon adalah Bhandari *et al.* (1999) yang memanfaatkan β -siklodekstrin sebagai penyalut dalam enkapsulasi minyak lemon. Dalam penelitiannya, diperoleh rasio terbaik dalam pembentukan kompleks β -siklodekstrin : minyak lemon adalah 88 : 12 (b/b) dengan waktu pencampuran optimum selama 15 menit. Pada waktu tersebut, diperoleh enkapsulasi

minyak lemon maksimum (97 mg/g pada β -siklodekstrin) yang dihasilkan dalam kompleks serbuk. Sejauh ini belum pernah ditemukan laporan penelitian tentang enkapsulasi minyak lemon menggunakan penyalut β -siklodekstrin terasetilasi.

Tujuan penelitian ini adalah melakukan enkapsulasi minyak lemon menggunakan penyalut β -siklodekstrin terasetilasi, dan mendapatkan rasio (b/b) terbaik β -siklodekstrin terasetilasi : minyak lemon melalui pengujian *controlled release* limonene dalam mikrokapsul minyak lemon.

METODE

Penelitian ini diawali dengan preparasi katalis Zr^{4+} -zeolit beta. Sebanyak 10 gram H-zeolit beta dipanaskan dalam oven pada temperatur 120°C selama 3 jam sehingga terbentuk H-zeolit beta aktif yang dikarakterisasi menggunakan SEM-EDS dan XRF. H-zeolit beta aktif direndam dalam 25 ml $ZrCl_4$ 0,1N dan diaduk dengan *magnetic stirrer* selama 24 jam. Kemudian, campuran disaring dan dicuci dengan aquademin. Setelah itu, filtrat dideteksi dengan larutan $AgNO_3$ hingga bebas ion Cl^- . Residu dikalsinasi pada temperatur 600°C selama 3 jam. Hasilnya berupa Zr^{4+} -zeolit beta yang dikarakterisasi menggunakan SEM-EDS dan XRF.

Reaksi asetilasi β -siklodekstrin mengacu pada prosedur Sutyagin *et al.* (2002) yang dimodifikasi. Ke dalam labu leher 3 yang dilengkapi dengan pendingin dan pengaduk magnet, dimasukkan 1 gram katalis Zr^{4+} -zeolit beta ditambah 30 mL anhidrida asetat dan 5 mL DMF, kemudian diaduk dengan *magnetic stirrer* selama 15 menit dengan kecepatan 250 rpm. Selanjutnya, sebanyak 20 gram β -siklodekstrin yang dilarutkan dalam 50 mL DMF, dimasukkan perlahan sedikit demi sedikit sampai habis sambil diaduk dengan *magnetic stirrer* selama 36 jam pada temperatur ruang dengan dialiri gas N_2 . Hasilnya akan terbentuk siklodekstrin yang sudah terasetilasi. Setelah itu disaring, diambil filtrat dan diuapkan sampai setengah volume dari yang dihasilkan. Kemudian ditambah aseton untuk menghasilkan endapan putih yang halus. Selanjutnya dianalisis menggunakan FTIR untuk mengetahui struktur

produk reaksi dan SEM untuk mengetahui morfologinya.

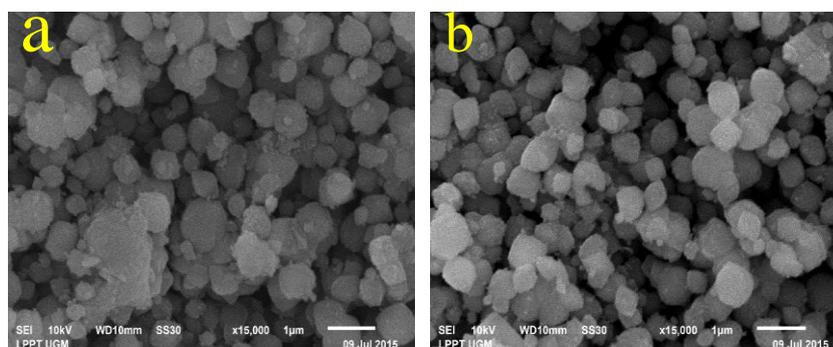
Enkapsulasi minyak lemon menggunakan penyalut β -siklodekstrin terasetilasi mengacu pada prosedur Cevallos *et al.* (2010) dan Ayala-Zavala *et al.* (2008) yang dimodifikasi. Sebanyak 2 gram β -siklodekstrin terasetilasi ditambahkan 12 mL etanol 70% sambil diaduk menggunakan *magnetic stirrer* selama 15 menit pada temperatur $\pm 55^\circ\text{C}$ dengan kecepatan pengadukan 500 rpm. Selanjutnya 1,5 gram minyak lemon ditambahkan secara perlahan dalam larutan β -siklodekstrin terasetilasi dalam etanol 70%. Setelah penambahan selesai, diaduk dengan *magnetic stirrer* lagi selama 4 jam dengan kecepatan 500 rpm tanpa pemanasan. Suspensi minyak lemon, etanol 70% dan β -siklodekstrin terasetilasi ditempatkan pada botol kaca 20 mL dan disimpan di dalam *freezer* dengan temperatur -80°C selama 4 jam. Setelah itu, dimasukkan dalam alat *freeze dryer* untuk proses enkapsulasi sampai menjadi serbuk selama 48 jam. Serbuk mikrokapsul minyak lemon dianalisis morfologinya menggunakan SEM. Reaksi diulang dengan menggunakan 2 dan 2,5 gram minyak lemon.

Pengukuran *controlled release* komponen volatil dalam minyak atsiri lemon menggunakan

prosedur Ayala-Zavala *et al.* (2008) yang dimodifikasi. Dalam penelitian ini, pengukuran *controlled release* dilakukan menggunakan instrumen *Gas Chromatography (GC)*. Pengukuran dilakukan pada rentang 8 hari, yakni setiap 2 hari sekali (hari ke 0, 2, 4, 6 dan 8). Sebanyak 0,2 gram serbuk minyak lemon dilarutkan dalam 2,5 ml n-heksana. Campuran *divortex* selama 5 menit. Hasil larutannya *diinjeksikan* ke GC. Sebagai pembandingan, diukur juga *controlled release* untuk minyak lemon yang tidak dienkapsulasi.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Penelitian ini meliputi preparasi katalis Zr^{4+} -zeolit beta, asetilasi β -siklodekstrin, enkapsulasi minyak lemon dan pengukuran *controlled release*. Preparasi katalis dilakukan dengan metode pertukaran ion. H-zeolit beta dimodifikasi dengan cara direndam dalam larutan ZrCl_4 0,1N dan diaduk menggunakan *magnetic stirrer* selama 24 jam pada temperatur kamar. Pada proses ini terjadi pertukaran ion H^+ dengan Zr^{4+} sehingga katalis akan menjadi Zr^{4+} -zeolit beta yang dikarakterisasi dengan SEM-EDS. Hasil mikrograf SEM untuk H-zeolit beta dan Zr^{4+} -zeolit beta disajikan pada Gambar 1.



Gambar 1. Mikrograf SEM perbesaran 15.000x (a) H-zeolit beta (b) Zr^{4+} -zeolit beta

Gambar 1 (a) merupakan mikrograf SEM dari H-zeolit beta. Mikrograf SEM dari H-zeolit beta menunjukkan morfologi khas dari H-zeolit beta, yaitu kristal berbentuk kubus dengan bipiramidal terpotong (Yongzhong *et al.* 2005). Gambar 1 (b) merupakan mikrograf SEM untuk Zr^{4+} -zeolit beta. Morfologi dari Zr^{4+} -zeolit beta adalah kristal berbentuk kubus bipiramida yang terpotong, hanya saja tampak berwarna lebih putih

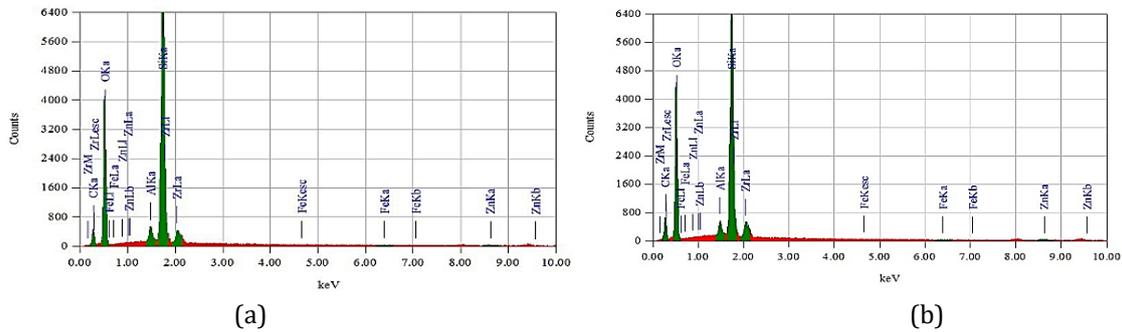
dibandingkan dengan kristal dari H-zeolit beta. Perbedaan ini dikarenakan adanya logam zirkonium yang telah teremban pada zeolit beta melalui metode pertukaran ion.

Gambar 2 adalah spektra EDS (*Energy Dispersive Spectroscopy*) yang menunjukkan kandungan unsur dalam H-zeolit beta dan Zr^{4+} -zeolit beta. Kandungan unsur yang ada dalam H-zeolit beta dan Zr^{4+} -zeolit beta adalah unsur C

(karbon), O (oksigen), Si (silika), Al (aluminium), Fe (besi), Zn (seng) dan Zr (zirkonium).

Konsentrasi unsur-unsur yang ada di dalam zeolit beta mengalami perubahan setelah

dilakukan modifikasi, hasilnya disajikan pada Tabel 1.



Gambar 2. Spektra EDS (*Energy Dispersive Spectroscopy*) (a) H-zeolit beta dan (b) Zr⁴⁺-zeolit beta

Tabel 1. Komposisi unsur dalam H-zeolit beta dan Zr⁴⁺-zeolit beta

| Sampel | KonsentrasiUnsur (%) | | | | | |
|-------------------------------|----------------------|-------|------|-------|------|------|
| | C | O | Al | Si | Fe | Zn |
| H-zeolit beta | 34,80 | 32,78 | 1,27 | 26,35 | - | 0,46 |
| Zr ⁴⁺ -zeolit beta | 42,59 | 28,42 | 1,14 | 22,44 | 0,02 | 0,57 |

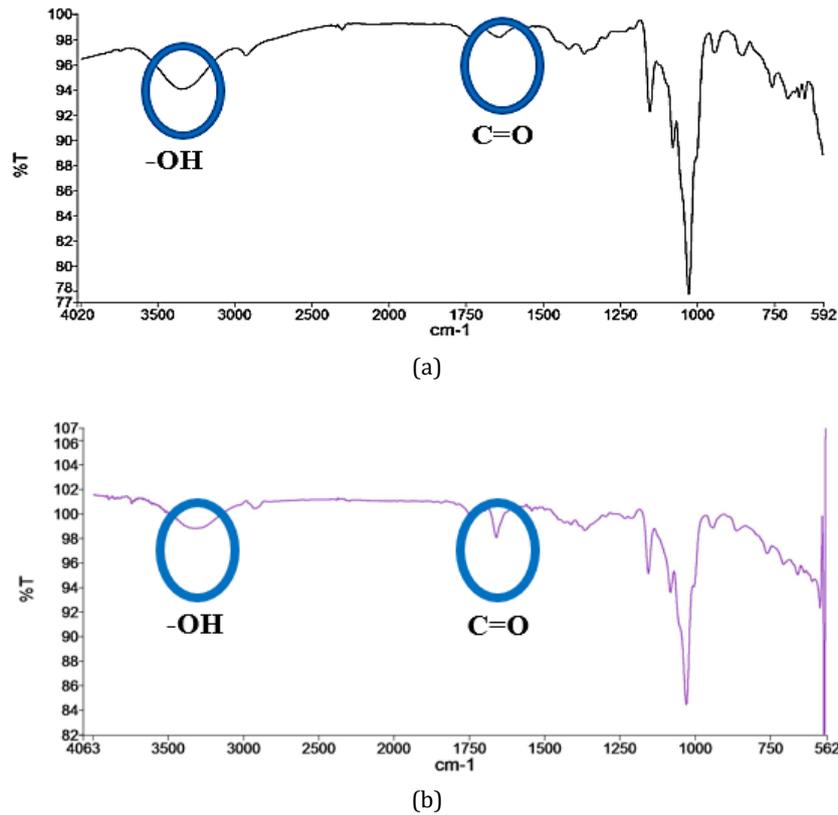
Keberadaan logam Zr sebagai tanda keberhasilan pengembanan logam dapat dilihat dari data analisis menggunakan XRF. H-zeolit beta semula tidak mengandung logam zirkonium. Setelah dilakukan pengembanan dan setelah dianalisis dengan XRF menunjukkan adanya kandungan logam Zr di dalam zeolit beta. Hasil analisis pengembanan logam Zr ke dalam zeolit beta disajikan pada Tabel 2.

Tabel 2. Data XRF logam Zr dalam H-zeolit beta dan Zr⁴⁺-zeolit beta

| Sampel | Konsentrasi logamZr (%) |
|-------------------------------|-------------------------|
| H-zeolit beta | - |
| Zr ⁴⁺ -zeolit beta | 6,4% |

Hasil reaksi asetilasi β-siklodekstrin adalah kristal β-siklodekstrin terasetilasi berwarna putih yang dianalisis dengan FTIR dan SEM. Penggunaan FTIR dilakukan dengan tujuan untuk mengidentifikasi gugus-gugus yang terkandung pada β-siklodekstrin pada bilangan gelombang 4000-570 cm⁻¹. Spektra FTIR β-siklodekstrin dan β-siklodekstrin terasetilasi disajikan pada Gambar 3.

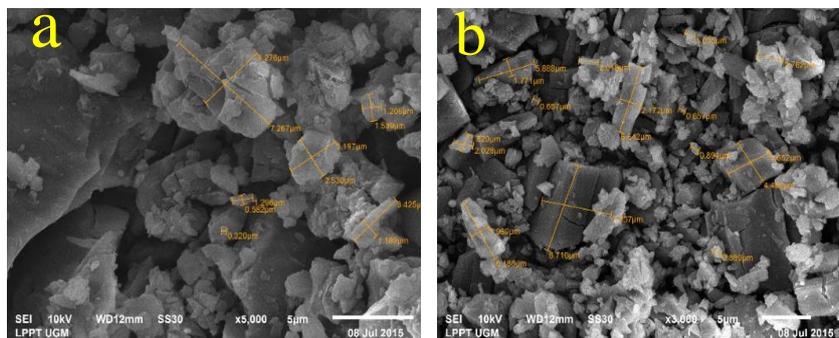
Spektra FTIR β-siklodekstrin pada Gambar 3 menunjukkan adanya serapan pada bilangan gelombang 3336,93 cm⁻¹ yang menunjukkan adanya gugus -OH dari ikatan hidrogen, sedangkan bilangan gelombang 1738,45 cm⁻¹ menunjukkan adanya gugus C=O karbonil. Analisis senyawa β-siklodekstrin terasetilasi 36 jam terkatalis Zr⁴⁺-zeolit beta dengan FTIR disajikan pada Gambar 3 (a) menunjukkan adanya serapan pada bilangan gelombang 3336,93 cm⁻¹ yang menunjukkan adanya gugus -OH dari ikatan hidrogen, sedangkan bilangan gelombang 1738,45 cm⁻¹ menunjukkan adanya gugus C=O karbonil. Berdasarkan Gambar 3 (b), gugus -OH pada β-siklodekstrin asetilasi telah berkurang, sedangkan gugus C=O bertambah. Hal ini menandakan gugus -OH telah digantikan oleh gugus asetil dengan bertambahnya gugus C=O. Namun dikarenakan pada spektra FTIR hasil asetilasi peak pada panjang gelombang sekitar 3000an yaitu gugus -OH masih ada berarti bahwa tidak semua gugus -OH pada β-siklodekstrin digantikan oleh gugus asetil dari anhidrida asam asetat.



Gambar 3. Spektra FTIR (a) β -siklodekstrin dan (b) β -siklodekstrin terasetilasi

Analisis morfologi β -siklodekstrin dan β -siklodekstrin terasetilasi menggunakan SEM (*Scanning Electron Microscopy*). Gambar 4 merupakan mikrograf SEM untuk β -siklodekstrin (a) dan β -siklodekstrin terasetilasi (b). Gambar 4 (a) adalah mikrograf SEM untuk β -siklodekstrin. Morfologi untuk β -siklodekstrin menunjukkan bentuk kristal tak beraturan dan tidak seragam dengan ukuran yang relative besar. Sedangkan

pada Gambar 4 (b) adalah mikrograf SEM untuk β -siklodekstrin terasetilasi. Morfologi untuk β -siklodekstrin terasetilasi menunjukkan perbedaan bila dibandingkan β -siklodekstrin. Morfologi β -siklodekstrin terasetilasi adalah kristal berbentuk balok, tidak seragam dengan ukuran yang relatif lebih kecil, nampak sebagian Kristal berwarna putih dan lebih terang pada bagian tertentu.

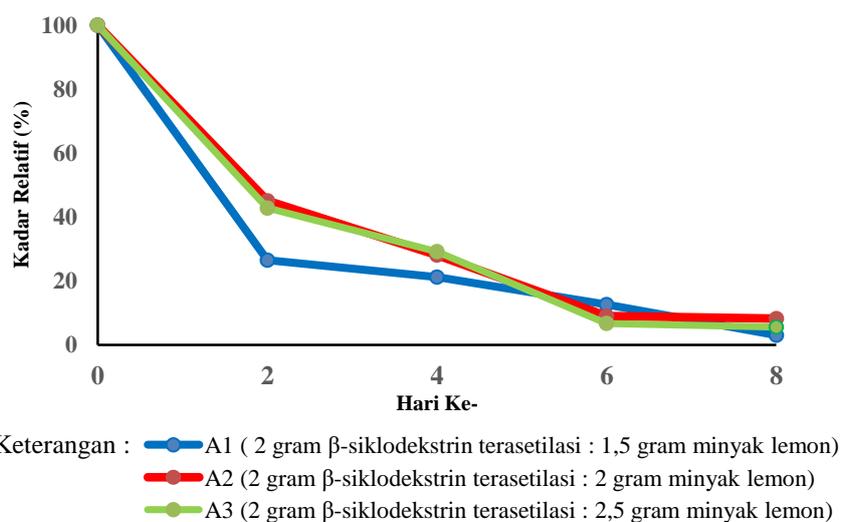


Gambar 4. Mikrograf SEM (*Scanning Electron Microscopy*) perbesaran 5000x. (a) β -siklodekstrin (b) β -siklodekstrin terasetilasi

Identifikasi banyaknya komponen senyawa yang terdapat dalam minyak lemon dilakukan dengan menggunakan GC-MS (*Gas*

Chromatography-Mass Spectroscopy) QP2010S SHIMADZU. Setelah dianalisis dengan GC-MS, komponen dalam minyak lemon adalah limonena

(93,29%), citral (2,64%), dan 2,6-oktadienal (4,07%). Kandungan terbesar adalah limonena, sehingga pengukuran laju penguapan dilakukan pada senyawa tersebut dalam mikrokapsul.



Gambar 5. Kadar relatif pengukuran penguapan limonena dalam mikrokapsul

Gambar 5 adalah hasil analisis menggunakan GC yang menunjukkan persentase sisa komponen minyak lemon dalam mikrokapsul selama 8 hari pengukuran selalu mengalami penurunan, tiap variasi mengalami penurunan secara signifikan dari hari ke-0 sampai hari ke-2. A1, A2 dan A3 menunjukkan variasi β -siklodekstrin terasetilasi : minyak lemon. Dari ketiga variasi tersebut, A2 menunjukkan laju penguapan limonene dalam mikrokapsul yang paling rendah bila dibandingkan dengan A1 dan A3. Laju penguapan limonena yang rendah dikarenakan jumlah β -siklodekstrin terasetilasi dan minyak lemon sama, sehingga β -siklodekstrin terasetilasi mampu menyalut dan mengikat dengan baik senyawa limonena yang masuk ke dalam β -siklodekstrin terasetilasi. Pada A1, laju penguapannya sedikit lebih cepat dikarenakan jumlah minyak lemon yang lebih sedikit dari pada β -siklodekstrin terasetilasi, dimungkinkan banyaknya ikatan antar β -siklodekstrin terasetilasi dengan minyak lemon menjadi sedikit, sedangkan untuk A3, dikarenakan jumlah β -siklodekstrin terasetilasi lebih sedikit dari minyak lemon, dimungkinkan ada limonena yang tidak berikatan dengan β -siklodekstrin terasetilasi, sehingga lebih cepat mudah menguap.

Kesesuaian sifat antara komponen yang akan disalut dan penyalut, akan membuat komponen tersebut terikat kuat secara kimia sehingga laju penguapannya lambat. Selain itu,

sifat komponen yang akan disalut juga harus disesuaikan oleh pelarut yang digunakan. Jika komponen yang akan disalut bersifat nonpolar, maka sebaiknya digunakan pelarut yang bersifat nonpolar atau semi polar, dan sebaliknya. Selain sifat komponen yang akan disalut, penyalut dan pelarut, ada faktor lain yang mempengaruhi laju penguapan yaitu pada kondisi penyimpanan meliputi temperatur dan kelembaban lingkungan (Abdelwahed *et al.* 2006). Dalam penelitian ini kajian proses penyimpanan tidak diteliti sehingga perlu dilakukan kajian penyimpanan untuk mendapatkan hasil mikrokapsul yang penguapannya dapat dikendalikan pada berbagai kondisi penyimpanan.

Gambar 6 merupakan mikrograf SEM untuk β -siklodekstrin terasetilasi dan mikrokapsul minyak lemon dengan variasi (2 gram β -siklodekstrin terasetilasi : 2 gram minyak lemon). Gambar 6 (a) adalah mikrograf SEM untuk β -siklodekstrin terasetilasi. Morfologi untuk β -siklodekstrin terasetilasi adalah kristal berbentuk balok, terdapat gumpalan-gumpalan, lebih beraturan, seragam dengan ukuran yang relatif lebih kecil, dan nampak sebagian kristal berwarna putih dan lebih terang pada bagian tertentu. Gambar 6 (b) adalah mikrograf SEM untuk mikrokapsul minyak lemon. Morfologi untuk mikrokapsul minyak lemon menunjukkan perbedaan yakni bahwa gumpalan-gumpalan tidak nampak, melainkan muncul partikel bulat yang

