

IMMOBILISASI *EUGENOL* PADA MATRIKS *TMPT* DENGAN INDUKSI RADIASI

Erizal

Pusat Aplikasi Teknologi Isotop dan Radiasi (PATIR) - BATAN
Jl. Cinere Ps. Jumat PO BOX 7002, JKSKL, Jakarta 12070

ABSTRAK

IMMOBILISASI *EUGENOL* PADA MATRIKS *TMPT* DENGAN INDUKSI RADIASI. Dalam kerangka pengembangan aplikasi iradiasi khususnya dalam teknik imobilisasi zat bioaktif pada matriks polimer, telah dilakukan imobilisasi *eugenol* pada matriks hidrofobik Trimetilol Propan Trimetakrilat (*TMPT*) dengan metode iradiasi. Campuran *eugenol* /*TMPT* (Trimetilol Propan Trimetakrilat) dengan komposisi 100/0; 75/25; 50/50; 25/5; 0/100 (v/v) diiradiasi dengan sinar gamma pada dosis 0 kGy, 10 kGy, 20 kGy dan 30 kGy dengan laju dosis 7,5 kGy/j. Hasil penelitian menunjukkan bahwa iradiasi hingga 30 kGy dapat menaikkan fraksi gel *TMPT* hingga 100%. Komposisi optimum yang baik untuk imobilisasi *eugenol* pada matriks *TMPT* adalah pada komposisi 50/50 v/v%. Kumulatif *eugenol* yang lepas hingga pengujian 10 jam adalah 95%. *Eugenol* dapat diimobilisasi pada matriks *TMPT* dengan metode iradiasi, karena struktur molekulnya tidak mengalami degradasi yang ditunjukkan dengan tidak berubahnya viskositasnya pada iradiasi hingga 30 kGy.

Kata kunci: Imobilisasi, *eugenol*, *TMPT*, iradiasi, sinar gamma

ABSTRACT

IMMOBILIZATION OF *EUGENOL* IN THE *TMPT* MATRIX INDUCED BY IRRADIATION. In the propose to develop the application of irradiation for immobilization of bioactive material using polymer matrices, the immobilization of *eugenol* in hydrophobic polymer of Trimethyl Propane Trimetharylate (*TMPT*) induced by irradiation has been carried out. The mixture of *eugenol* and *TMPT* with the compositions of 100/0; 75/25; 50/50; 25/5; 0/100 v/v% have been irradiated at the doses of 0,10,20, and 30 kGy (dose rate 7.5 kGy/h). After evaluated, it was found that gel fraction of *TMPT* by increasing irradiation up to 30 kGy approximately increased up to 100%, and did not degradation of *eugenol*. The optima composition for immobilization of *eugenol* in the matrix *TMPT* was 50/50 v/v%. The cumulative released of *eugenol* from *TMPT* at 10 hrs measurement was 95%. *Eugenol* can be immobilized in the *TMPT* matrix by radiation induced, caused irradiation up 30 kGy did not change viscosity of *eugenol*.

Key words: Immobilization, *eugenol*, *TMPT*, irradiation, gamma ray

PENDAHULUAN

Indonesia merupakan salah satu negara penghasil cengkeh yang besar, *Eugenol* merupakan salah satu bahan bioaktif yang bersifat non polar dan diperoleh melalui ekstraksi minyak cengkeh. Pemakaian *eugenol* pada umumnya terbatas digunakan dalam industri makanan sebagai pengawet dan pemberi aroma sabun, daging, dan kue. Dibidang farmasi digunakan sebagai obat luar (pegal linu) dan obat sakit gigi [1-3].

Ditinjau dari struktur molekulnya, *eugenol* bersifat sebagai antioksidan dan juga dapat diklasifikasikan sebagai monomer, maka *eugenol* dipakai sebagai bahan dasar untuk sintesis senyawa baru misalnya isoeugenol dan dimer-isoeugenol yang berfungsi juga sebagai antioksidan [4].

Imobilisasi zat bioaktif dengan teknik radiasi merupakan salah satu kegunaan dari teknik aplikasi dan telah banyak digunakan untuk imobilisasi

zat bioaktif [5-12]. Salah satu keunggulan dari teknik iradiasi untuk imobilisasi zat bioaktif adalah pengerjaannya dapat dilakukan secara simultan dan produk yang dihasilkannya steril.

Untuk memanfaatkan *eugenol* ini akan dilakukan imobilisasi *eugenol* pada matriks *TMPT* dan dilakukan karakterisasi sifat fisiko-kimia yang meliputi fraksi gel, viskositas dan uji pelepasannya. Tujuan akhirnya adalah mendapatkan *eugenol* yang terimobilisasi dengan pelepasannya dapat dikontrol, dan dapat dipakai sebagai sistem obat terkekang.

METODE PERCOBAAN

Bahan

Eugenol diperoleh dari hasil destilasi minyak cengkeh dengan kandungan 98,3%, *TMPT* buatan

Immobilisasi Eugenol pada Matriks TMPT dengan Induksi Radiasi (Erizal)

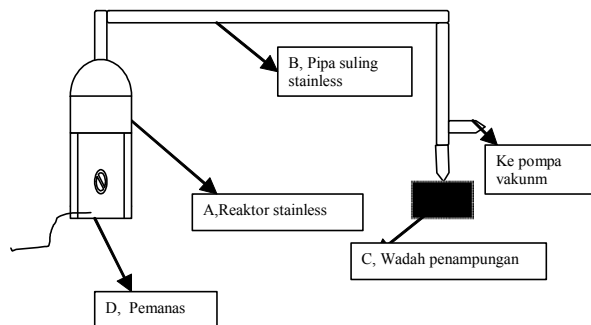
SHINAKAMURA, Jepang dan pereaksi lainnya yang dipakai adalah kualitas pro analisis.

Peralatan

Alat yang dipakai dalam penelitian ini untuk analisis perubahan struktur kimia senyawa digunakan Spektrometer Infra Merah Shimadzu, buatan Jepang ; Sebelum digunakan untuk analisis bahan hasil iradiasi, dilakukan kalibrasi spektrum IR menggunakan plastik polistirena. Viscometer Coolmate-105 IR, buatan Jepang, untuk menguji viskositas larutan telah dikalibrasi menggunakan pelarut (air). Untuk iradiasi bahan digunakan sumber iradiasi gamma IRKA dan pengujian dosis iradiasi digunakan dosimeter *frieke*.

Destilasi Minyak Cengkeh

Minyak cengkeh diperoleh dari hasil penyulingan daun cengkeh dari petani dengan kandungan rendemen berkisar 60 %. Selanjutnya minyak cengkeh diproses dengan metode reaksi asam-basa [10]. Kemudian bahan didestilasi dengan alat destilasi disajikan pada Gambar 1 hasil rancangan kerjasama dengan salah satu pengusaha di Yogyakarta. Kandungan *eugenol* hasil destilasi dianalisis dengan *Gas Chromatography* (GC). Presentase *eugenol* yang diperoleh dari hasil destilasi minyak cengkeh berkisar ± 98 %,



Gambar 1. Skema Alat destilasi minyak cengkeh

Imobilisasi Eugenol

6 ml campuran *eugenol*-*TMPT* dengan komposisi komposisi 100 / 0 ; 75/ 25 ; 50 / 50 ; 25/5 ; 0/100 (v/v) diiradiasi dengan sinar gamma pada dosis 0 kGy, 10 kGy 20 kGy dan 30 kGy dengan laju dosis 7,5 kGy/j. Selanjutnya dilakukan pengamatan komposisi matriks yang baik dan dapat mengimobilisasi *eugenol*, pengujian fraksi gel dan uji pelepasan *eugenol* dari matriks.

Pengujian Fraksi Gel

Matriks *TMPT* hasil iradiasi (berat awal, W_0) direndam dalam etanol pada suhu kamar selama 48 jam untuk menghilangkan zat-zat yang tidak bereaksi.

Kemudian matriks dikeringkan pada suhu 60 °C hingga berat konstan (W_1) . Fraksi gel dihitung berdasarkan persamaan berikut :

$$\text{Fraksi Gel (\%)} = W_1/W_0 \times 100 \dots\dots\dots (1)$$

W_0 = Berat awal matriks (g)

W_1 = Berat matriks setelah pengeringan (g)

Pengujian Viskositas Eugenol

5 mL *eugenol* yang dikemas dalam botol vial ukuran 6 mL, diiradiasi dengan sinar gamma pada dosis 0 kGy; 10 kGy; 20 kGy; 30 kGy (laju dosis 7,5 kGy/j) dalam iradiator IRKA. Kemudian, produk hasil iradiasi dilakukan analisis viskositasnya menggunakan viscometer. Selanjutnya larutan diputar dengan kecepatan 100 rpm selama 5 menit pada suhu 25 °C. Volume larutan untuk pengukuran viskositas setiap dosis adalah 5 ml dan pengujian dilakukan sebanyak 5 kali setiap dosis iradiasi.

Pengujian Pelepasan Eugenol

Matriks *TMPT* yang telah mengandung *eugenol* hasil iradiasi direndam dalam 25 mL etanol dalam botol erlenmeyer yang diletakkan dalam *shaker incubator*, dengan laju goyangan 120 rpm pada suhu kamar. Setelah selang waktu 1 jam , 5 mL larutan dikeluarkan dari medium pengujian dan dimasukkan pelarut yang baru dengan volume yang sama agar jumlah volumenya tetap, kemudian dilakukan analisis konsentrasi *eugenol* yang lepas dalam etanol menggunakan spektrofotometer *UV-Vis* pada panjang gelombang 283 nm. Pengujian dilakukan dengan cara 3 kali ulangan.

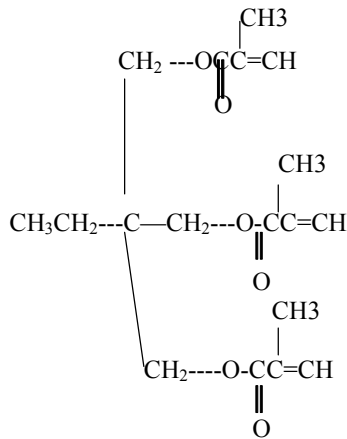
Pengukuran Infra Merah

Pengukuran ini bertujuan untuk menganalisis gugus fungsi *TMPT* maupun *eugenol* baik kontrol maupun hasil iradiasi. Monomer *TMPT*, *eugenol* dan *eugenol* yang telah terimobilisasi pada matriks *TMPT* diukur serapan infra merahnya menggunakan *FT-IR* , Biorad, pada daerah rentang bilangan gelombang 400 cm^{-1} sampai dengan 4000 cm^{-1} .

HASIL DAN PEMBAHASAN

Fraksi Gel

TMPT dengan struktur molekul disajikan pada Gambar 2, merupakan salah satu jenis monomer yang berfungsi sebagai sentisizer yang relatif peka terhadap pengaruh katalis , panas, dan iradiasi khususnya pada reaksi radikal-radikal. Hal ini disebabkan karena adanya gugus-gugus karbonil dalam struktur molekulnya yang berfungsi sebagai penarik elektron yang akan menyebabkan mudah terbentuknya radikal pada ikatan rangkapnya.



Gambar 2. Struktur molekul trimetil propanoate triakrilat (TMPT).

Pada umumnya jika TMPT diiradiasi dapat mengalami reaksi ikat silang, hal ini disebabkan karena adanya gugus-gugus karbonil dalam struktur molekulnya yang berfungsi sebagai penarik elektron yang akan menyebabkan mudah terbentuknya radikal pada ikatan rangkapnya. Selama proses reaksi ini berlangsung tidak semua molekul TMPT diubah menjadi bentuk padatan gel, karena faktor sterik molekul mempengaruhi tumbukan antar atau intra molekul, dan tergantung juga pada kepekaan dari molekul terhadap pengaruh iradiasi serta adanya oksigen dari udara yang menyebabkan produk membentuk senyawa peroksida yang larut. Untuk mengukur keadaan ini umumnya digunakan istilah fraksi gel yang menyatakan bagian dari bahan awal yang dapat diubah menjadi gel/hidrogel. Pada Tabel 1 disajikan pengaruh iradiasi hingga 30 kGy terhadap fraksi gel TMPT. Terlihat bahwa dengan naiknya dosis iradiasi hingga 30 kGy, fraksi gel TMPT naik mencapai nilai 100 % serta dosis 10 kGy merupakan dosis optimum.

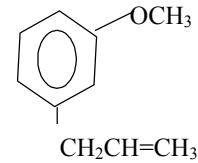
Tabel 1. Fraksi gel TMPT hasil iradiasi hingga dosis 30 kGy

Dosis (kGy)	Fraksi Gel (%)*
5	20,05
10	99,77
20	99,90
30	99,99

* fraksi gel dihitung dari nilai rata-rata 3 x ulangan

Uji Pelepasan Eugenol Dari Matriks

Eugenol yang merupakan salah satu senyawa kimia yang diperoleh dari destilasi minyak cengkeh struktur molekul disajikan pada Gambar 3. Ditinjau dari sifat fisika-kimianya, eugenol mempunyai kecepatan penguapan yang relatif besar dan bersifat hidrofobik (larut dalam pelarut organik). Berdasarkan sifat kelarutannya ini selayaknya eugenol hanya dapat diimobilisasi pada matriks yang bersifat nonpolar, serta dari hasil penelitian ini didapatkan komposisi yang cukup



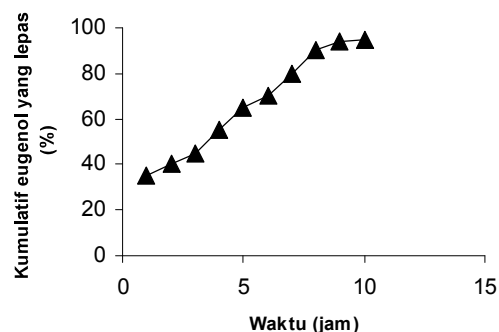
Gambar 3. Struktur molekul eugenol

baik untuk imobilisasi eugenol pada matriks TMPT yaitu 50/50 (v/v) dan iradiasi pada dosis 10 kGy (Tabel 2). Sedangkan pada komposisi lainnya (75/25 dan 25/75) campuran yang mengandung TMPT-eugenol tidak membentuk padatan (cairan keruh), hal ini mungkin disebabkan eugenol yang sebenarnya berfungsi sebagai antioksi dan juga berfungsi sebagai penangkap radikal dari TMPT akibat iradiasi sehingga kemungkinan radikal-radikal TMPT bereaksi satu dengan lainnya tidak terjadi atau sebab lain yang perlu diteliti lebih lanjut.

Tabel 2. Penampilan fisik larutan TMPT - eugenol hasil iradiasi hingga 10 kGy.

Dosis (kGy)	Komposisi TMPT/Eugenol % (V,V)	Penampilan fisik
	100/0	Padat (keras)
10	75/25	Cairan keruh
	50/50	Padat kuning
	25/75	Cairan keruh
	0/100	Cairan keruh

Hasil pengujian karakter pelepasan eugenol dari matriks TMPT sebagai fungsi waktu disajikan pada Gambar 4. Terlihat bahwa kumulatif jumlah eugenol lepas dari matriks TMPT hasil iradiasi yang diuji dalam pelarut etanol diuji hingga 10 jam adalah 95%. Hal ini mungkin disebabkan polaritas dari eugenol relatif sama dengan etanol, sehingga pelepasan eugenol dari matriks relatif sempurna.



Gambar 4. Hubungan waktu terhadap kumulatif eugenol yang lepas dari matriks TMPT hasil iradiasi 10 kGy dengan komposisi eugenol - TMPT 50/50 % (v/v).

Pengaruh Iradiasi Terhadap Viskositas Eugenol

Pada umumnya obat yang dikemas pada matriks polimer yang menggunakan proses iradiasi juga akan mengalami perubahan. Dalam penelitian dikaji pula

Immobilisasi Eugenol pada Matriks TMPT dengan Induksi Radiasi (Erizal)

pengaruh iradiasi pada kestabilan *eugenol* akibat iradiasi, hasil pengamatan viskositas disajikan pada Tabel 2. Besar-kecilnya viskositas suatu larutan polimer dalam pelarut tertentu dapat mewakili kondisi berat molekul (BM) rata-rata suatu polimer/monomer (13), hubungan matematisnya dinyatakan dalam bentuk persamaan *Mark-Houwink-Sakurada* sebagai berikut :

$$[\eta] = M_v^a \dots\dots\dots (2)$$

dimana :

- [η] = viskositas
- K = konstanta dari larutan polimer/monomer
- M_v^a = BM rata-rata polimer/monomer.

Dengan perkataan lain viskositas larutan berbanding lurus dengan berat molekul rata-ratanya, sehingga perubahan dari viskositas larutan berbanding lurus dengan perubahan berat molekul rata-rata. Viskositas larutan *eugenol* baik kontrol (0 kGy) maupun iradiasi hingga 30 kGy disajikan pada Tabel 3. Terlihat bahwa dengan menaiknya dosis iradiasi hingga dosis 30 kGy, viskositas larutan *eugenol* tidak mengalami perubahan yang signifikan. Tidak terjadinya perubahan viskositas larutan *eugenol*, hal ini disebabkan adanya inti aromatis yang dapat menyerap energi radiasi karena perputaran elektron dalam cincin aromatis [14]. Hal ini menunjukkan bahwa iradiasi tidak menyebabkan rusaknya struktur molekul *eugenol*. Dengan perkataan lain, *eugenol* diimmobilisasi dalam matriks *TMPT* diperkirakan juga tidak mengalami perubahan struktur molekul.

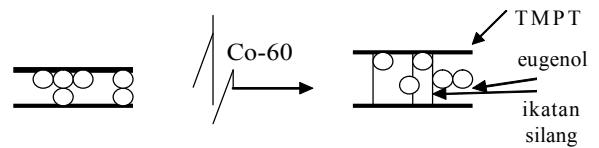
Tabel 3. Viskositas *eugenol* hasil iradiasi hingga 30 kGy.

Dosis iradiasi (kGy)	Viskositas rata-rata (cPs)
0	13,033
10	12,973
20	12,896
30	12,828

Spektrum Infra Merah

Spektrum infra merah *TMPT* dan matriks *TMPT* hasil iradiasi yang telah mengandung *eugenol* disajikan pada Gambar 5 dan hasil analisis menunjukkan bahwa gugus-gugus fungsi dari *eugenol* yang berturut-turut adalah gugus OH, C-H aromatis, -CH₂, -CH₃, C=C, cincin aromatis, C-O-C pada daerah puncak 3519,8 cm⁻¹, 3036 cm⁻¹, 2973,4 cm⁻¹, 2842,9 cm⁻¹, 1514 cm⁻¹, 1367,4 cm⁻¹, 1234,4 cm⁻¹ dan 914,2 cm⁻¹ dan gugus-gugus fungsi dari *TMPT* berturut-turut adalah -CH₂, -CH₃, C=O, C=C, C-O ester dan ikatan rangkap yang terdapat puncak 2966,3 cm⁻¹, 1712,7 cm⁻¹, 1637,5 cm⁻¹, 1456,2 cm⁻¹, 1149,5 cm⁻¹ dan 941,2 cm⁻¹. Pada Gambar 5, terlihat bahwa bentuk spektrum yang dihasilkan baik dari *TMPT*

kontrol dibandingkan *TMPT* yang telah mengandung *eugenol* hasil iradiasi relatif sama. Hal yang sangat kontras adalah terlihatnya turunnya intensitas puncak gugus ikatan rangkap dua (=) pada daerah bilangan gelombang 1637,5 cm⁻¹ dari *TMPT* yang telah mengandung *eugenol* setelah iradiasi pada dosis 10 kGy, 20kGy dan 30 kGy dibandingkan spektrum *TMPT*. Terjadinya penurunan intensitas gugus ikatan rangkap dua dari *TMPT* mungkin disebabkan terjadinya pemutusan ikatan rangkap dua dari *TMPT* akibat iradiasi, dan selanjutnya membentuk ikatan silang satu dengan lainnya dan *eugenol* terimobil dalam matriks secara fisika. Proses immobilisasi ini dapat digambarkan sebagai berikut :



Gambar 6. Proses Immobilisasi *eugenol*

Terimobilnya *eugenol* secara fisika ini didasarkan pada laju pelepasan *eugenol* yang mempunyai pola yang relatif konstan selama pengujian dalam pelarut etanol, dan selain daripada hal tersebut pengaruh iradiasi pada *eugenol* hingga 30 kGy tidak menyebabkan *eugenol* terdegradasi .

KESIMPULAN

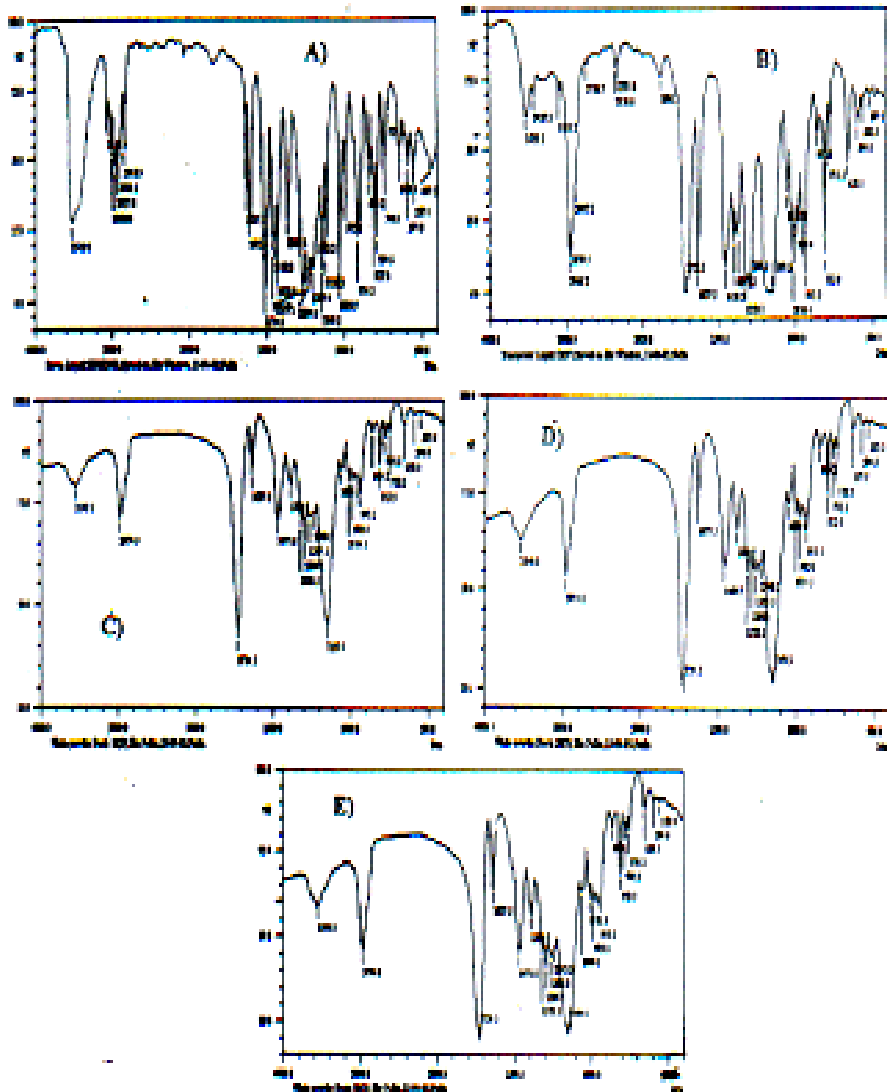
Eugenol dapat diimmobilisasi pada matriks *TMPT*. *TMPT* relatif sangat peka terhadap iradiasi, karena dapat diubah menjadi ± 100 % matriks pada dosis iradiasi yang relatif rendah (10 kGy) yang berarti bahwa matriks *TMPT* ini relatif aman jika dipakai sebagai bahan pengekang zat bioaktif khususnya untuk senyawa-senyawa nonpolar. Pada pengujian pelepasan *eugenol* dalam pelarut etanol hingga 10 jam , kumulatif *eugenol* lepas mencapai 95%. *Eugenol* relatif tahan terhadap iradiasi hingga 30 kGy.

UCAPAN TERIMAKASIH

Ucapan terimakasih disampaikan pada rekan-rekan di fasilitas Iradiasi P3TIR-BATAN yang telah banyak membantu iradiasi bahan sehingga penelitian ini selesai serta Bapak Gede yang telah memberikan sumbangan *eugenol*.

DAFTARACUAN

- [1]. KETAREN,S., Pengantar Teknologi Minyak Atsiri Balai Pustaka, Jakarta(1985), 239-253
- [2]. NANAN,N., Pengolahan dan Diversifikasi Hasil Cengkeh, Monograf Cengkeh, Balai Besar Penelitian dan Pengembangan Industri Hasil Pertanian, Bogor (1994) 125-127.



Gambar 5. Spektrum infra merah matriks *TMPT* yang mengandung *eugenol* hasil iradiasi pada dosis : A) *eugenol* (0 kGy), B) *TMPT* (0 kGy), C) *TMPT* 10 kGy, D) *TMPT* 20 kGy, E) *TMPT* 30 kGy.

- [3]. ANDRIA,A., Minyak Atsiri Tumbuhan Tropika Indonesia, ITB, Jakarta (2000) 17-77
- [4]. LATIFATUL,H., dan BAMBANG, P., Pembuatan antioksidan dari bahan dasar Bahan dasar eugenol, *Prosiding International Seminar on Organic Chemistry*, Yogyakarta (2001)
- [5]. RAMARAJ,B., and RADHAKRIHNNAN,G., **51**(1994)979
- [6]. KAETSU,I., et all, **14**(1979)595-602
- [7]. ERIZAL,TATY,E., LELY,H., DEWI,S.P., dan CHOSDU,R., Immobilization of ametryne in the cassava-wheat starch combinationm of heating and irradiation blends, *Proceeding of the Second International Workshop on Green Polymers*, Bandung (2000) 120-123
- [8]. KUMAKURA,M., and KAETSU,I., *Acta Chemica Hungaria*, **116**(1984)345-351
- [9]. [Http://N.W.W. Chem. Utoronto.Cd/Coursenote/CHM 414/notes/section.pdf](http://N.W.W. Chem. Utoronto.Cd/Coursenote/CHM 414/notes/section.pdf). The Basic immobilization strategies are : Surface adsorption, covalent attachment, and physical entrapment (2005)
- [10]. BAE,Y.H., OKANO,T., HSU,R., and KIM,S.W., *Makromol.Chem.Rapid Common*, **8**(1978)481
- [11]. HOFFMAN,A.S.,AFRASIABI,A., and DONG,L.L. *J. Controlled Release*, **4**(1986)213
- [12]. ERIZAL, HASAN,R., SILVIA,S., dan RAHAYU,C., Pengekangan obat dalam Matriks hidrogel PVA-ko-NIPAAm hasil iradiasi, *Risalah Pertemuan Ilmiah Penelitian dan Pengembangan Aplikasi Isotop dan Radiasi* (1997)121-128
- [13]. IIS SOFYAN, Kimia Polimer, Jakarta (2001) Pradnya Paramita, 63-5
- [14]. SWALLOW, *Radiation Organic Solution*, Pergamon Press (1965)