

**Tema penelitian: Material Maju**

**LAPORAN AKHIR  
PENELITIAN TESIS MAGISTER**



**SINTESIS, MODIFIKASI DAN ENKAPSULASI MCM-48 DENGAN  
GRAFENA OKSIDA SEBAGAI ADSORBEN LIMBAH ANTIBIOTIK  
RUMAH SAKIT**

**TIM PENGUSUL :**

**Dr. Paulina Taba, M.Phil 0015115701 (Ketua)**

**Dr. Yusafir Hala, M.Si 0010055805 (Anggota I)**

**Mutmainnah H012171005 (Anggota II)**

**FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM  
UNIVERSITAS HASANUDDIN**

**2020**

FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM UNIVERSITAS

HASANUDDIN 2020

PENELITIAN

Halaman Pengesahan

---

Judul penelitian : Sintesis, Modifikasi dan Enkapsulasi MCM-48 dengan Grafena Oksida sebagai Adsorben Limbah Antibiotik Rumah Sakit  
Tema Penelitian : Material Maju  
Output Penelitian : Artikel Ilmiah dimuat di Jurnal Nasional  
Artikel ilmiah di muat di Jurnal Internasional Bereputasi

Ketua Peneliti

a. Nama Lengkap : Dr. Paulina Taba, M.Phil  
b. Jenis Kelamin : Perempuan  
c. NIDN : 0015115701  
d. Jabatan Fungsional : Lektor Kepala  
e. Jabatan Struktural :  
f. Fakultas/Jurusan : MIPA/Kimia  
g. Telp/Fax/E-mail : 0411-586498/-/081241648588

Anggota Peneliti 1

a. Nama Lengkap : Dr. Yusafir Hala, M.Si  
b. NIDN/Telp. : 0010055805/0411-371539

Anggota Peneliti 2

a. Nama Lengkap : Mutmainnah  
b. Nim/Telp. : H012171005

Waktu Penelitian : 1 tahun

Biaya diusulkan : Rp. 39.183.000,-

Biaya disetujui : Rp. 38.560.000,-

Makassar, 22 Desember 2020  
Ketua Peneliti,

Mengetahui  
Dekan FMIPA, Unhas,



Dr. Eng. Amiruddin, S.Si, M.Si  
NIP. 19720515 199702 1 002



Dr. Paulina Taba, M.Phil  
NIP. 19571115 198810 2 001

Menyetujui,



Ketua,  
Prof. Dr. Andi Alimuddin, M.Si  
NIP 196201181987021001

### PROTEKSI ISI LAPORAN AKHIR PENELITIAN

Dilarang menyalin, menyimpan, memperbanyak sebagian atau seluruh isi laporan ini dalam bentuk apapun kecuali oleh peneliti dan pengelola administrasi penelitian

## LAPORAN AKHIR PENELITIAN TAHUN TUNGGAL

ID Proposal: c1060bdf-a48c-41c7-bebe-0436305c8eae  
Laporan Akhir Penelitian: tahun ke-1 dari 1 tahun

### 1. IDENTITAS PENELITIAN

#### A. JUDUL PENELITIAN

Sintesis, Modifikasi dan Enkapsulasi MCM-48 dengan Grafena Oksida Sebagai Adsorben Limbah Antibiotik Rumah Sakit

#### B. BIDANG, TEMA, TOPIK, DAN RUMPUN BIDANG ILMU

Bidang Fokus RIRN / Bidang Unggulan Perguruan Tinggi	Tema	Topik (jika ada)	Rumpun Bidang Ilmu
Material Maju	Teknologi karakterisasi material dan dukungan industri	Pengembangan material paduan	Kimia

#### C. KATEGORI, SKEMA, SBK, TARGET TKT DAN LAMA PENELITIAN

Kategori (Kompetitif Nasional/ Desentralisasi/ Penugasan)	Skema Penelitian	Strata (Dasar/ Terapan/ Pengembangan)	SBK (Dasar, Terapan, Pengembangan)	Target Akhir TKT	Lama Penelitian (Tahun)
Penelitian Kompetitif Nasional	Penelitian Tesis Magister	SBK Riset Dasar	SBK Riset Dasar	3	1

### 2. IDENTITAS PENGUSUL

Nama, Peran	Perguruan Tinggi/ Institusi	Program Studi/ Bagian	Bidang Tugas	ID Sinta	H-Index
PAULINA TABA Ketua Pengusul	Universitas Hasanuddin	Kimia		5979914	5
Miftahul Jannah Mahasiswa Bimbingan 1	Universitas Hasanuddin Makassar	-	1. Melaksanakan proses penelitian 2. Menuliskan laporan hasil penelitian	0	0
Dr. Drs YUSAFIR HALA M.Si Dosen Pembimbing Anggota 1	Universitas Hasanuddin	Kimia	1. Mengawasi dan mengontol proses penelitian 2. Melakukan analisis data hasil adsorpsi 3. Menuliskan artikel	6024238	0

			hasil penelitian		
--	--	--	------------------	--	--

### 3. MITRA KERJASAMA PENELITIAN (JIKA ADA)

Pelaksanaan penelitian dapat melibatkan mitra kerjasama, yaitu mitra kerjasama dalam melaksanakan penelitian, mitra sebagai calon pengguna hasil penelitian, atau mitra investor

Mitra	Nama Mitra
-------	------------

### 4. LUARAN DAN TARGET CAPAIAN

#### Luaran Wajib

Tahun Luaran	Jenis Luaran	Status target capaian ( <i>accepted, published, terdaftar atau granted, atau status lainnya</i> )	Keterangan ( <i>url dan nama jurnal, penerbit, url paten, keterangan sejenis lainnya</i> )
1	Artikel di Jurnal Nasional terakreditasi peringkat 1-3	Accepted	Indonesian Journal of Chemical Research

#### Luaran Tambahan

Tahun Luaran	Jenis Luaran	Status target capaian ( <i>accepted, published, terdaftar atau granted, atau status lainnya</i> )	Keterangan ( <i>url dan nama jurnal, penerbit, url paten, keterangan sejenis lainnya</i> )
1	Artikel di Jurnal Internasional Terindeks di Pengindeks Bereputasi	Accepted	International Journal of Environmental Science and Technology

### 5. ANGGARAN

Rencana anggaran biaya penelitian mengacu pada PMK yang berlaku dengan besaran minimum dan maksimum sebagaimana diatur pada buku Panduan Penelitian dan Pengabdian kepada Masyarakat Edisi 12.

**Total RAB 1 Tahun Rp. 38,560,000**

**Tahun 1 Total Rp. 38,560,000**

Jenis Pembelanjaan	Item	Satuan	Vol.	Biaya Satuan	Total
Analisis Data	Biaya analisis sampel	Unit	1	13,950,000	13,950,000
Bahan	ATK	Paket	1	600,000	600,000
Bahan	Bahan Penelitian (Habis Pakai)	Unit	1	11,810,000	11,810,000
Pelaporan, Luaran Wajib, dan Luaran Tambahan	Biaya Publikasi artikel di Jurnal Nasional	Paket	1	1,000,000	1,000,000
Pelaporan, Luaran Wajib, dan Luaran Tambahan	Publikasi artikel di Jurnal Internasional	Paket	1	5,000,000	5,000,000
Pengumpulan Data	Tiket	OK (kali)	1	2,800,000	2,800,000
Pengumpulan Data	Penginapan	OH	1	800,000	800,000
Pengumpulan Data	HR Pembantu Lapangan	OH	1	1,000,000	1,000,000
Pengumpulan Data	Transport	OK (kali)	5	20,000	100,000
Sewa Peralatan	Peralatan penelitian	Unit	1	500,000	500,000

Jenis Pembelanjaan	Item	Satuan	Vol.	Biaya Satuan	Total
Sewa Peralatan	Ruang penunjang penelitian	Unit	1	1,000,000	1,000,000

## 6. HASIL PENELITIAN

**A. RINGKASAN:** Tuliskan secara ringkas latar belakang penelitian, tujuan dan tahapan metode penelitian, luaran yang ditargetkan, serta uraian TKT penelitian.

Resistensi yang ditimbulkan oleh antibiotik merupakan tantangan global. WHO memperkirakan bahwa pada hingga tahun 2017 terdapat 700.000 kematian akibat resistensi antibiotik di seluruh dunia dan diramalkan pada 2050 akan menimbulkan kematian 10 juta orang/per tahun atau Gross Domestic Bruto yang hilang sebanyak \$ 100 triliun. Hal ini terjadi karena antibiotik terdistribusi secara terus menerus ke lingkungan serta jenis antibiotik baru berkurang jumlahnya. Makin berkurang jenis antibiotik baru maka resistensi akan meningkat. Oleh karena itu upaya perlu dilakukan untuk menanggulangi residu antibiotik di lingkungan, salah satunya menggunakan metode adsorpsi dengan adsorben seperti silika mesopori. Material ini memiliki luas permukaan yang tinggi, pori yang teratur dengan distribusi ukuran pori yang sempit, volume pori yang tinggi, dan memiliki biokompatibilitas yang tinggi.

Dalam penelitian ini, silika mesopori MCM-48 yang dimodifikasi dengan APTMS akan digunakan sebagai adsorben untuk residu antibiotik (sulfametazol dan ampicilin). Selanjutnya untuk meningkatkan kemampuan adsorpsi silika mesopori termodifikasi dienkapsulasi dengan menggunakan Grafena oksida (GO) dan Grafena oksida tereduksi (GOT). Kehadiran grafena oksida (GO) diharapkan dapat mengurangi sifat hidrofilitas silika termodifikasi sehingga dapat meningkatkan kemampuan untuk mengadsorpsi limbah antibiotik yang sifatnya kurang polar. GO juga memiliki luas permukaan yang besar sehingga efektif untuk mengadsorpsi kontaminan lingkungan.

Proses adsorpsi limbah antibiotik akan dilakukan dengan menggunakan dua metode yakni batch dan kolom. Pada metode batch, adsorpsi dilakukan pada berbagai waktu kontak, pH dan konsentrasi untuk mendapatkan kapasitas adsorpsi yang efektif. Pada metode kolom, waktu alir optimum akan ditentukan. Uji adsorpsi senyawa antibiotik yang berasal dari limbah rumah sakit juga akan dilaksanakan dengan menggunakan kedua metode. Hasil penelitian dapat dikembangkan untuk mendesain reaktor yang dapat digunakan untuk mengadsorpsi limbah antibiotik. Luaran yang ditargetkan berupa publikasi ilmiah di jurnal nasional dan internasional yang bereputasi.

**B. KATA KUNCI:** Tuliskan maksimal 5 kata kunci.

MCM-48, grafena oksida, antibiotik, tetrasiklin, dan sulfametazol

Pengisian poin C sampai dengan poin H mengikuti template berikut dan tidak dibatasi jumlah kata atau halaman namun disarankan sesingkat mungkin. Dilarang menghapus/memodifikasi template ataupun menghapus penjelasan di setiap poin.

**C. HASIL PELAKSANAAN PENELITIAN:** Tuliskan secara ringkas hasil pelaksanaan penelitian yang telah dicapai sesuai tahun pelaksanaan penelitian. Penyajian dapat berupa data, hasil analisis, dan capaian luaran (wajib dan atau tambahan). Seluruh hasil atau capaian yang dilaporkan harus berkaitan dengan tahapan pelaksanaan penelitian sebagaimana direncanakan pada proposal. Penyajian data dapat berupa gambar, tabel, grafik, dan

sejenisnya, serta analisis didukung dengan sumber pustaka primer yang relevan dan terkini.

Pengisian poin C sampai dengan poin H mengikuti template berikut dan tidak dibatasi jumlah kata atau halaman namun disarankan ringkas mungkin. Dilarang menghapus/modifikasi template ataupun menghapus penjelasan di setiap poin.

C. **HASIL PELAKSANAAN PENELITIAN:** Tuliskan secara ringkas hasil pelaksanaan penelitian yang telah dicapai sesuai tahun pelaksanaan penelitian. Penyajian meliputi data, hasil analisis, dan capaian luaran (wajib dan atau tambahan). Seluruh hasil atau capaian yang dilaporkan harus berkaitan dengan tahapan pelaksanaan penelitian sebagaimana direncanakan pada proposal. Penyajian data dapat berupa gambar, tabel, grafik, dan sejenisnya, serta analisis didukung dengan sumber pustaka primer yang relevan dan terkini.

Data-data hasil penelitian yang telah dicapai adalah sintesis MCM-48 dan karakterisasi dengan menggunakan spektrofotometer Fourier Transform Infra Red (FTIR), Difraktometer Sinar X (XRD) dan Penentuan luas permukaan dengan metode BET

### Sintesis MCM-48

Silika mesopori, MCM-48 yang disintesis berwarna putih (Gambar 1) sebanyak 42,3 g. Material yang masih mengandung surfaktang diambil 10 gram dan dicuci dengan etanol-HCl untuk menghilangkan template dan MCM-48 dimana sebagian besar surfaktannya telah hilang yang diperoleh adalah 5,38 g.



(a)



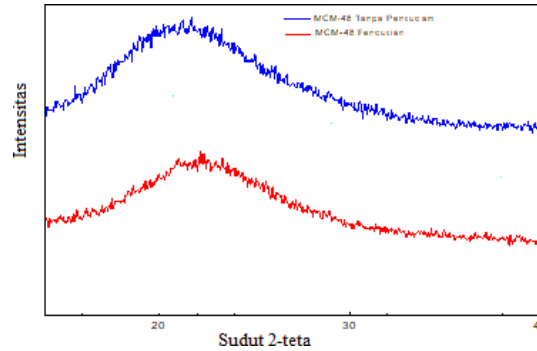
(b)

Gambar 1. MCM-48 a) sebelum dicuci dan b) setelah dicuci

### Karakterisasi

#### Difraktogram Sinar X (XRD)

Untuk mengetahui apakah hasil sintesis adalah MCM-48, data difraktogram diperlukan. Peneliti sebelumnya (Taba, 2018) menggunakan XRD yang memiliki fasilitas untuk pengukuran pada sudut 2-teta di bawah  $10^{\circ}$ . Dalam penelitian ini, silika mesopori (MCM-48) tanpa pencucian dan setelah pencucian dengan etanol-HCl dikarakterisasi dengan menggunakan alat XRD tanpa fasilitas untuk sudut 2-teta yang rendah. Pola difraksi MCM-48 sebelum pencucian dan setelah pencucian dapat dilihat pada Gambar 2.

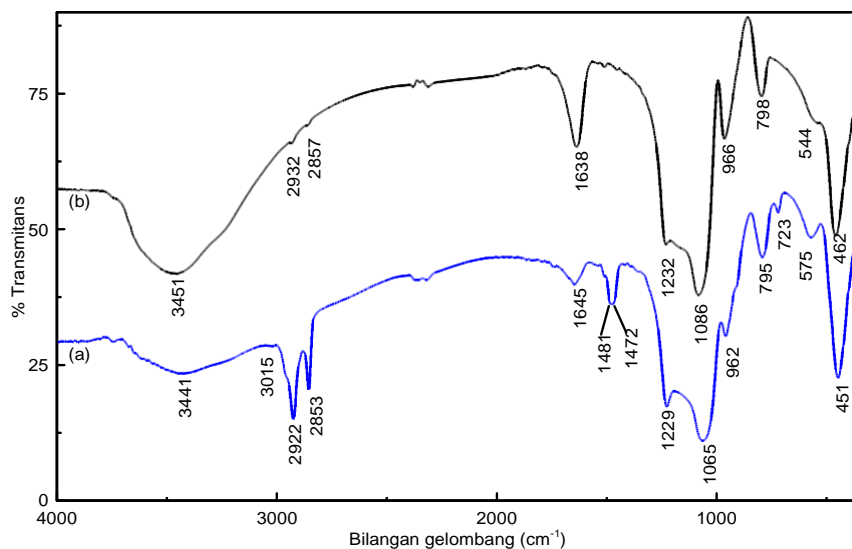


Gambar 2. Pola difraksi Sinar X dari MCM-48 sebelum dan setelah dicuci

Pola difraksi sinar X menunjukkan adanya puncak yang kuat pada sudut 2-teta antara  $20^{\circ}$  sampai  $24^{\circ}$  serta beberapa puncak dengan intensitas rendah yang identik dengan penelitian yang dilakukan dan menunjukkan puncak untuk MCM-48 (Fei dkk., 2014). Berdasarkan hasil yang diperoleh, material yang disintesis dalam penelitian ini adalah MCM-48.

*Spektrometer Fourier Transform Infra Red*

Gambar 3 menunjukkan spektra MCM-48 sebelum dan setelah dicuci



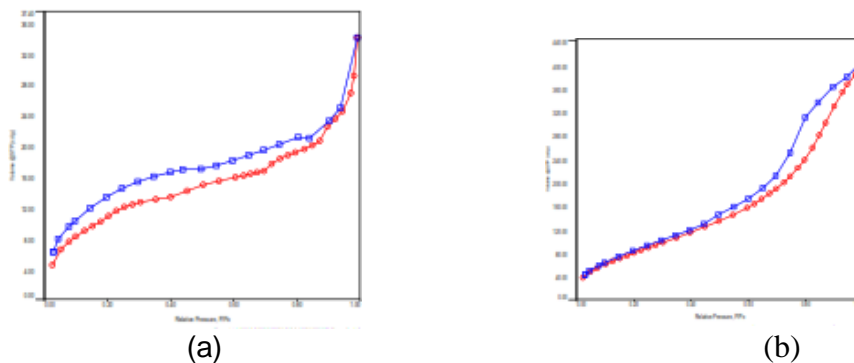
Gambar 3. Spektra FTIR dari MCM-48 (a) sebelum dicuci dan (b) setelah dicuci dengan Etanol-HCl 3 kali

Spektrum inframerah MCM-48 sebelum dicuci, Gambar 3 a menunjukkan vibrasi ulur simetris Si-O-Si pada pita serapan dengan bilangan gelombang  $795\text{ cm}^{-1}$  dan didukung oleh vibrasi tekuk Si-O-Si pada pita serapan  $451\text{ cm}^{-1}$ . Pita serapan lemah yang diberikan pada bilangan gelombang  $962\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi ulur Si-O dan Si-OH. Pita serapan kuat  $1065$  dan  $1229\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi ulur asimetri dari Si-O-Si. Vibrasi C-H renggang terlihat pada pita serapan  $1481$  dan  $1472\text{ cm}^{-1}$ . Vibrasi C-H ulur yang terlihat pada bilangan gelombang  $2853\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan gugus fungsi  $-\text{CH}_2$  simetri dan  $-\text{CH}_2$  antisimetri pada  $2922\text{ cm}^{-1}$  yang merupakan spektrum dari surfaktan. Puncak yang lebar pada daerah bilangan gelombang  $3441\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi ulur  $-\text{OH}$  dan didukung oleh vibrasi tekuk  $-\text{OH}$  pada pita serapan  $1645\text{ cm}^{-1}$ . Puncak-puncak ini merupakan kontribusi dari gugus hidroksil dan air yang teradsorpsi secara fisika oleh MCM-48.

Setelah pencucian dengan etanol-HCl 3 kali (Gambar 3 b), vibrasi ulur dan tekuk –CH sebagian besar telah hilang. Pita serapan yang kuat pada  $1086$  dan  $1232\text{ cm}^{-1}$  serta pita serapan yang lemah  $798$  dan  $966\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan vibrasi ulur Si-O dari kisi silikat. Setelah pencucian HCl-etanol 3 kali puncak yang kuat pada bilangan gelombang  $1065$  dan  $1229\text{ cm}^{-1}$  bergeser sebesar  $21$  dan  $3\text{ cm}^{-1}$  karena adanya kontraksi kisi dengan hilangnya surfaktan seperti yang telah dilaporkan pada penelitian sebelumnya (Chen dkk, 1997, Taba dkk, 2017, Taba dkk, 2018).

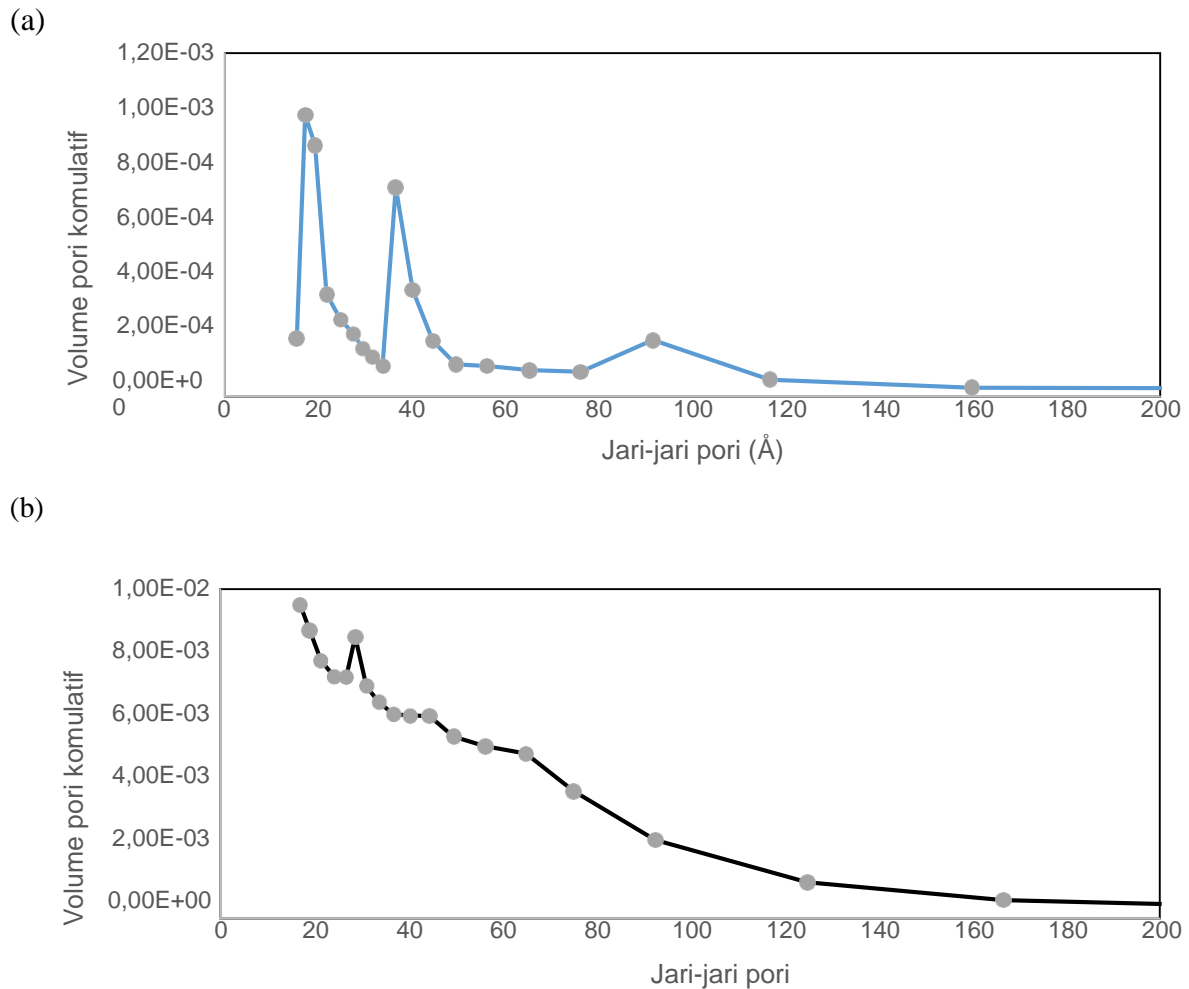
#### *Luas permukaan dengan Metode BET*

Gambar 4 menunjukkan adsorpsi dan desorpsi gas  $\text{N}_2$  pada MCM-48 sebelum dicuci dan setelah dicuci 1 kali.



Gambar 4. Isothermal adsorpsi  $\text{N}_2$  dari (a) MCM-48 sebelum dicuci dan (b) setelah dicuci 1 kali

Isothermal adsorpsi MCM-48 sebelum dan setelah dicuci satu kali merupakan isothermal tipe IV. Untuk isothermal adsorpsi oleh MCM-48 menyerupai tipe II karena adanya partikel yang memiliki pori makro. Kedua kurva mempunyai histeresis yang menunjukkan bahwa terjadi kondensasi kapiler karena adanya partikel dengan ukuran meso. Luar permukaan (BET) sebelum dan setelah pencucian berturut-turut adalah  $41,9$  dan  $219,2\text{ m}^2/\text{g}$ . Hal ini menunjukkan bahwa sebagian surfaktan telah hilang sehingga terbentuk permukaan dalam sehingga setelah pencucian luas permukaan meningkat. Distribusi pori dari MCM-48 sebelum dan sesudah pencucian dapat dilihat pada Gambar 4. Jari-jari pori berdasarkan BJH metode untuk MCM-48 setelah pencucian adalah  $1,70\text{ nm}$  dan sebelum pencucian adalah  $1,71\text{ nm}$ . Jadi jari-jari pori dan sebelum pencucian Meskipun jari-jari pori setelah pencucian hampir sama dengan sebelum pencucian, rata-rata jari-jari pori untuk MCM-48 setelah pencucian ( $3,9\text{ nm}$ ) lebih besar daripada sebelum pencucian ( $2,5\text{ nm}$ ). Data ini menunjukkan bahwa memiliki partikel dengan ukuran mesopori. Volume pori total untuk pori-pori dengan jari-jari lebih kecil daripada  $126,5\text{ nm}$  pada  $P/P^0 = 0,99$  adalah  $0,62\text{ cc/g}$  untuk MCM-48 setelah pencucian, sedangkan volume pori total untuk pori-pori dengan jari-jari lebih kecil daripada  $124,5\text{ nm}$  pada  $P/P^0 = 0,99$  adalah  $0,52\text{ cc/g}$ .

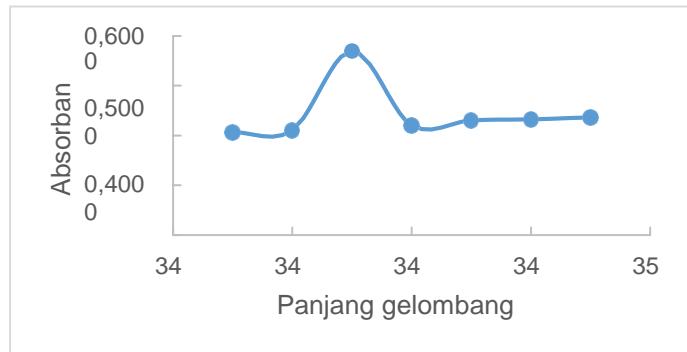


Gambar 4. Distribusi pori dari MCM-48 (a) sebelum pencucian dan (b) setelah pencucian satu kali

Pengukuran luas permukaan untuk MCM-48 yang dicuci 3 kali belum dilakukan karena saat ini pengukuran dengan alat tersebut masih antri.

*Panjang gelombang maksimum antibiotika (tetrasielin HCl)*

Larutan tetrasielin 15 ppm ditentukan panjang gelombang maksimum dengan spektrofotometer visibel dan hasil yang diperoleh diberikan pada Gambar 5. Berdasarkan spektrum yang diperoleh, panjang gelombang maksimum dari larutan tetrasielin HCl adalah 345 nm.

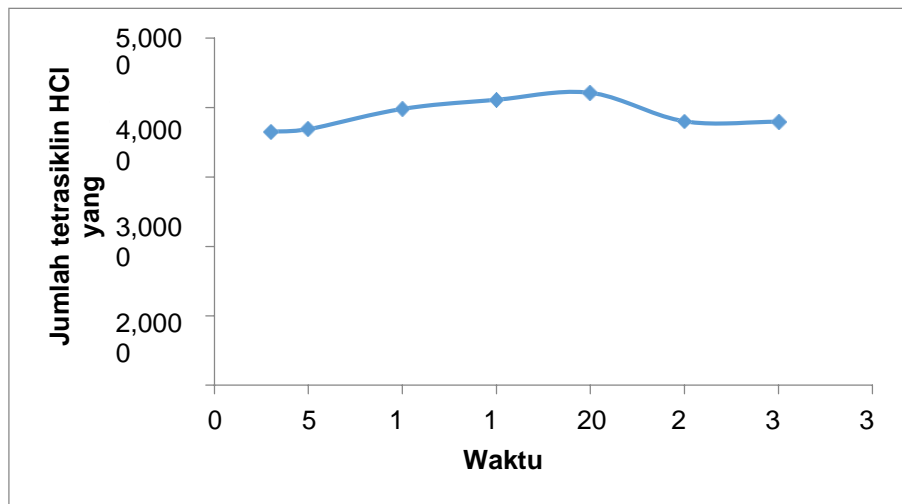


Gambar 5. Spektrum serapan tetrasiklin HCl

### Adsorpsi tetrasiklin HCL oleh MCM-48

*Waktu optimum adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48*

Gambar 6 menunjukkan jumlah tetrasiklin HCl yang diadsorpsi oleh MCM-48 sebagai fungsi waktu kontak.



Gambar 6. Jumlah tetrasiklin HCl yang diadsorpsi sebagai fungsi waktu kontak

Adsorpsi tetrasiklin HCl meningkat dengan meningkatnya waktu adsorpsi hingga menit ke 20, setelah itu jumlah yang diadsorpsi cenderung menurun. Hal ini menunjukkan bahwa adsorpsi telah mencapai kesetimbangan pada waktu 20 menit. Jadi waktu optimum adsorpsi adalah 20 menit. Waktu ini akan digunakan untuk percobaan variasi pH dan konsentrasi.

### *Studi kinetika adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48*

Kinetika adsorpsi dapat dipelajari dengan menggunakan persamaan orde satu semu. Persamaan diferensial dapat dilihat pada persamaan (1),

$$\frac{dq_t}{dt} = k_1 (q_e - q_t) \quad (1)$$

dimana  $q_e$  dan  $q_t$  berturut-turut adalah jumlah tetrasiklin HCl yang diadsorpsi (mg/g) pada kesetimbangan dan pada waktu tertentu,  $t$  (menit),  $k_1$  merupakan tetapan laju orde satu semu ( $\text{menit}^{-1}$ ). Hasil interaksi menghasilkan persamaan (2):

$$\log \frac{q_e - q_t}{q_e} = \log - \frac{k_1}{2,303} t \quad (2)$$

yang merupakan laju orde satu semu. Persamaan (2) dapat ditulis sebagai,

$$\frac{dq_t}{dt} = k_1 (q_e - q_t) \quad (3)$$

Nilai tetapan laju ( $k_1$ ), kapasitas adsorpsi dalam keadaan setimbang ( $q_e$ ), koefisien korelasi ( $R^2$ ) diperoleh dari kurva  $\log (q_e - q_t)$  versus  $t$ .

Data kinetika juga dapat diolah dengan model kinetika orde dua semu. Persamaan diferensial diberikan oleh persamaan (4),

$$\frac{d}{dt} \frac{1}{q_t - q_e} = \frac{1}{k_1 (q_e - q_t)^2} \quad (4)$$

dimana  $k_2$  adalah tetapan laju orde satu semu ( $g/mg.min$ ). Integrasi persamaan menghasilkan:

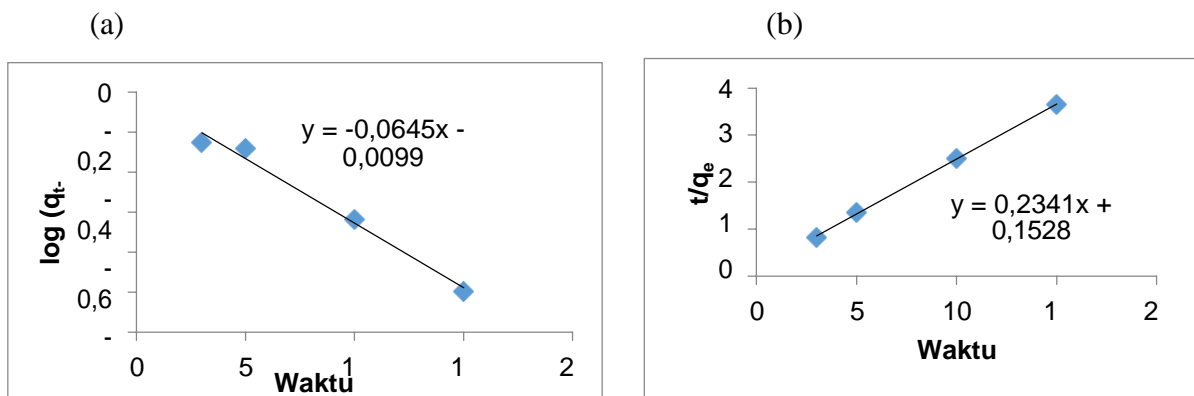
$$\frac{1}{q_t - q_e} = \frac{1}{k_2 q_e^2} t \quad (5)$$

Persamaan (5) dapat ditulis dalam bentuk linear sebagai berikut:

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} t + \frac{t}{q_e} \quad (6)$$

Jika kinetika orde dua semu dipenuhi, plot  $t/q_t$  versus  $t$  akan menghasilkan garis lurus.

Kurva kinetika adsorpsi untuk orde satu semu dan orde dua semu dapat dilihat pada Gambar 7.



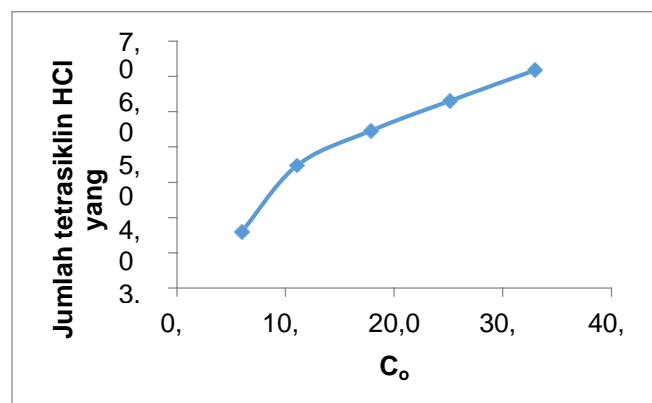
Gambar 7. Model kinetika (a) orde satu semu dan (b) orde dua semu untuk adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48

Nilai  $R^2$  yang diperoleh dengan menggunakan model kinetika orde satu semu untuk adsorpsi tetrasiklin HCL oleh MCM-48 setelah dicuci 3 kali oleh MCM-48-C1 nilai  $R^2$  yang diperoleh adalah 0,9839. Nilai  $R^2$  untuk model kinetika orde dua semu adalah 0,999. Nilai  $q_e$  yang diperoleh dari model kinetika orde satu semu adalah 0,98 mg/g dan dari model kinetika orde dua semu adalah 4,27 mg/g. Nilai yang diperoleh dari eksperimen adalah 4,21 mg/g. Meskipun nilai  $R^2$  yang diperoleh dari kedua model mendekati satu tetapi nilai  $q_e$  yang diperoleh dari model kinetika orde dua semu mendekati nilai  $q_e$  yang diperoleh dari eksperimen. Nilai  $q_e$  yang diperoleh dari model kinetika orde satu semu jauh lebih kecil daripada yang diperoleh dari eksperimen. Hal ini menunjukkan bahwa adsorpsi tetrasiklin HCL oleh MCM-48 setelah dicuci 3 kali mengikuti model kinetika orde dua semu dengan nilai tetapan  $k_2$   $0,36 \text{ g.mg}^{-1}.\text{menit}^{-1}$ .

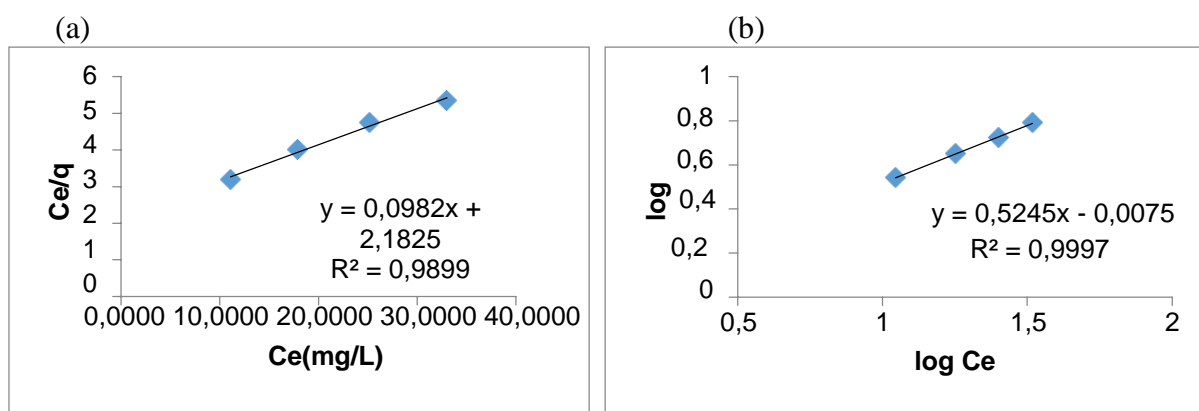
Debnath dkk (2020) juga mendapatkan kinetika orde dua semu untuk adsorpsi tetrasiklin pada nanopartikel zirkonia. Hasil yang sama dilaporkan oleh beberapa peneliti dengan menggunakan adsorben yang lain (Yu dkk, 2018, Li dkk, 2020, Zhang dkk, 2020)

*Kapasitas Adsorpsi Metilen Biru oleh Silika Mesopori (MCM-48)p*

Gambar 8 menunjukkan jumlah tetrasiklin yang diadsorpsi sebagai fungsi konsentrasi awal tetrasiklin HCl. Jumlah yang diadsorpsi meningkat dengan meningkatnya konsentrasi awal dan belum menunjukkan jumlah yang tetap pada batas konsentrasi tertinggi yang digunakan. Jadi untuk menentukan kapasitas adsorpsi, isoterm Langmuir dan Freundlich digunakan. Gambar 9 menunjukkan isoterm Langmuir dan Freundlich pada adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 setelah pencucian 3 kali. Berdasarkan nilai garis kuadrat terkecil ( $R^2$ ), adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 setelah pencucian 3 kali lebih sesuai dengan isotermal Freundlich ( $R^2 = 0,9475$ ). Berdasarkan isoterm Freundlich, kapasitas adsorpsi yang diperoleh adalah 0,98 mg/g dan nilai  $1/n = 0,52$ . Beberapa peneliti juga melaporkan isoterm Freundlich lebih sesuai untuk adsorpsi tetrasiklin dengan menggunakan adsorben yang berbeda (Li, 2018, Kong dkk, 2020. Prarat, 2020). Umumnya, nilai  $1/n$  adalah antara 0 dan 1, nilai ini menunjukkan pengaruh konsentrasi pada kapasitas adsorpsi. Makin kecil nilai  $1/n$  makin baik kinerja adsorpsi: umumnya untuk  $1/n$  antara 0,1 dan 0,5, zat mudah diadsorpsi; untuk  $1/n > 2$ , zat sulit diadsorpsi. Nilai  $1/n$  yang diperoleh pada penelitian ini adalah 0,52 yang menunjukkan bahwa adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 cukup mudah (Benkaddour dkk, 2019).



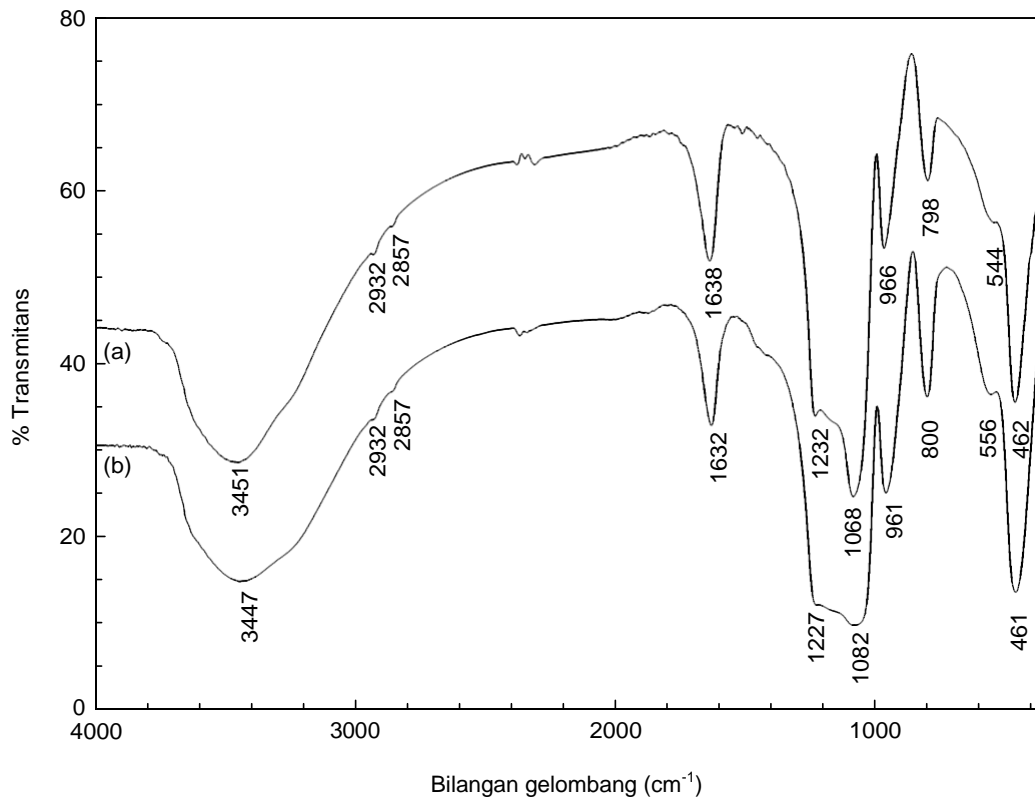
Gambar 8. Jumlah tetrasiklin HCl yang diadsorpsi sebagai fungsi konsentrasi awal larutan tetrasiklin HCl



Gambar 9. Isoterm (a) Langmuir dan (b) Freundlich dari adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 setelah pencucian 3 kali

Jumlah tetrasiklin yang diadsorpsi oleh MCM-48 setelah pencucian 3 kali lebih rendah dibandingkan yang diperoleh peneliti lain (Li, 2018, Kong dkk, 2020, Prarat, 2020). Hal ini disebabkan permukaan MCM-48 lebih polar dibandingkan adsorben yang digunakan oleh peneliti tersebut. Jadi, permukaan MCM-48 perlu dimodifikasi sehingga dapat lebih efektif dalam mengadsorpsi tetrasiklin HCl.

Gambar 10 menunjukkan spektra FTIR sebelum dan setelah adsorpsi tetrasiklin HCl.



Gambar 10. Spektra FTIR MCM-48 setelah pencucian 3 kali (a) sebelum adsorpsi dan (b) setelah adsorpsi tetrasiklin HCl.

Puncak serapan setelah adsorpsi tetrasiklin HCl relatif sama dengan puncak serapan sebelum adsorpsi. Hal ini menunjukkan bahwa adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 merupakan adsorpsi fisika.

### Kesimpulan

Data XRD menunjukkan bahwa material yang disintesis adalah MCM-48. Setelah pencucian sebanyak 3 kali, hampir semua surfaktan hilang yang ditunjukkan oleh hilangnya vibrasi C-H setelah pencucian. Waktu optimum adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 adalah 20 menit dan adsorpsi mengikuti kinetika orde dua semu dengan tetapan laju adsorpsi  $0,36 \text{ g.mg}^{-1}.\text{menit}^{-1}$ . Adsorpsi antibiotik tersebut lebih memenuhi isoterm Freundlich dibandingkan isoterm Langmuir dengan kapasitas adsorpsi  $0,98 \text{ mg.g}^{-1}$  dan nilai  $1/n = 0,52$  yang menunjukkan bahwa adsorpsi tetrasiklin HCl cukup mudah terjadi.

D. **STATUS LUARAN:** Tuliskan jenis, identitas dan status ketercapaian setiap luaran wajib dan luaran tambahan (jika ada) yang dijanjikan pada tahun pelaksanaan penelitian. Jenis luaran dapat berupa publikasi, perolehan kekayaan intelektual, hasil pengujian atau luaran lainnya yang telah dijanjikan pada proposal. Uraian status luaran harus didukung dengan bukti kemajuan

dijanjiikan serta mengunggah bukti dokumen ketercapaian luaran wajib dan luaran tambahan melalui Simlitabmas mengikuti format sebagaimana terlihat pada bagian isian luaran

Manuskrip luaran wajib dengan judul Adsorpsi tetrasiklin hidroklorida dari larutan dengan menggunakan silika mesopori, MCM-48 telah dimasukkan ke Indonesian Journal of Chemical Research terakreditasi Sinta 3 dan telah diterima untuk dipublikasikan pada Volume 9, Nomor (2021).



Manuskrip untuk publikasi internasional dengan judul “Adsorption of Sulfamethoxazole from Solution by Mesoporous Silica MCM-48” telah dimasukkan ke *Journal of Physics: Conference Series*.



#### Letter of Acceptance

Ambon, December 5, 2020

**Dear** : Mutmainnah, Paulina Taba, Yusafir Hala

This letter is to confirm that your paper entitled:

**Adsorption of Sulfamethoxazole from Solution by Mesoporous Silica MCM-48**

**ACCEPTED**

by the committee of the 6<sup>th</sup> ICBS 2020, and will be considered to be published in the

***Journal of Physics: Conference Series (Indexed by Scopus Q3)***

Best regard,

On behalf of the Organizing Committee

The 6<sup>th</sup> ICBS 2020



Dr. I Wayan Sutapa, M.Sc  
Chair of the 6<sup>th</sup> ICBS 2020

**E. PERAN MITRA:** Tuliskan realisasi kerjasama dan kontribusi Mitra baik *in-kind* maupun *in-cash* (untuk Penelitian Terapan, Penelitian Pengembangan, PTUPT, PPUPT serta KRUPPT). Bukti pendukung realisasi kerjasama dan realisasi kontribusi mitra dilaporkan sesuai dengan kondisi yang sebenarnya. Bukti dokumen realisasi kerjasama dengan Mitra diunggah melalui Simlitabmas.

Tidak ada mitra

**F. KENDALA PELAKSANAAN PENELITIAN:** Tuliskan kesulitan atau hambatan yang dihadapi selama melakukan penelitian dan mencapai luaran yang dijanjikan, termasuk penjelasan jika pelaksanaan penelitian dan luaran penelitian tidak sesuai dengan yang direncanakan atau dijanjikan.

Kendala yang dialami adalah proses pengadaan bahan yang memerlukan waktu yang lebih lama karena adanya pandemi Covid-19. Kendala ini juga mempengaruhi proses karakterisasi yang waktu tungguannya menjadi lebih lama. Selain itu, untuk mendapatkan antibiotika saat ini terdapat kesulitan sehingga ampisilin digantikan dengan tetrasiklin.

**G.RENCANA TAHAPAN SELANJUTNYA:** Tuliskan dan uraikan rencana penelitian di tahun berikutnya berdasarkan indikator luaran yang telah dicapai, rencana realisasi luaran wajib yang dijanjikan dan tambahan (jika ada) di tahun berikutnya serta *roadmap* penelitian keseluruhan. Pada bagian ini diperbolehkan untuk melengkapi penjelasan dari setiap tahapan dalam metoda yang akan direncanakan termasuk jadwal berkaitan dengan strategi untuk mencapai luaran seperti yang telah dijanjikan dalam proposal. Jika diperlukan, penjelasan dapat juga dilengkapi dengan gambar, tabel, diagram, serta pustaka yang relevan. Jika laporan kemajuan merupakan laporan pelaksanaan tahun terakhir, pada bagian ini dapat dituliskan rencana penyelesaian target yang belum tercapai.

Penelitian ini diusulkan hanya satu tahun. Tetapi tidak tertutup kemungkinan akan diusulkan dengan menggunakan antibiotika lainnya

**H.DAFTAR PUSTAKA:** Penyusunan Daftar Pustaka berdasarkan sistem nomor sesuai dengan urutan pengutipan. Hanya pustaka yang disitasi pada laporan kemajuan yang dicantumkan dalam Daftar Pustaka.

1. Benkaddour, S., Slimani, R., Hiyane, H., Ouahabi, I.E., Hachoumi, I. 2018), Removal of reactive yellow 145 by adsorption onto treated watermelon seeds: kinetic and thermodynamic studies, *Sustain. Chem. Pharm.* 10, 6–21.
2. Chen, F., Huang, L., and Li, Q., 1997, Synthesis of MCM-48 Using Mixed Cationic–Anionic Surfactants as Templates, *Chem. Mater.* 9, 2685-2686.
3. Debnath, B., Majumdar, M., Bhowmik, M., Bhowmik, K. L., Debnath, A., and Roy, D. N., 2020, The effective adsorption of tetracycline onto zirconia nanoparticles synthesized by novel microbial green technology, *J. Environ. Manag.* 261, 110235.
4. Fei, Z., Ai, S., Zhou, Z., Chen, X., Tang, J., Cui, M., Qiao, X., 2014, Enhanced activity of MCM-48 based tin catalyst for synthesis of 3-methylbut-3-en-1-ol by adjusting the mesochannel environment, *Journal of Ind. Eng. Chem.*, 20(6), 4146-4151.
5. Kong, Y., Zhuanga, Y., Hana, K., and Shi, B., 2020, Enhanced tetracycline adsorption using alginate-graphene-ZIF67 aerogel, *Colloids Surf. A*, 588, 124360.
6. Li, M.F., Liu, Y.G., Liu, S.B., Zeng, G.M., Hu, X.J., Tan, X.F., Jiang, L.H., Liu N., Wen, J., Liu, X.H., 2018, Performance of magnetic graphene oxide/diethylenetriaminepentaacetic acid nanocomposite for the tetracycline and ciprofloxacin adsorption in single and binary systems. *J. Colloid Interface Sci.* 521, 150–159
7. Li, K., Li, J., Zhao, N., Ma, Y., and Di, B., 2020, Removal of Tetracycline in Sewage and Dairy Products with High-Stable MOF, *Molecules*, 25, 1312
8. Prarat, P., Hongsawat, P., Punyapalakul, P., 2020. Amino-functionalized mesoporous silica-magnetic graphene oxide nanocomposites as water-dispersible adsorbents for the removal of the oxytetracycline antibiotic from aqueous solutions: adsorption performance, effects of coexisting ions, and natural organic matter. *Environ. Sci. Pollut. Res. Int.* 27, 6560–6576.
9. Taba, P., Budi, P., Sari, A.Y.P., 2017, Adsorption of Heavy Metals on Amine-Functionalized MCM-48, *Proceeding International Symposium on Current Progress in Functional Materials, July 26-27, Denpasar Bali*
10. Taba, P., Mustafa, R.D.P., Ramang, L.M., Kasim, A.H., 2018, Adsorption of Pb<sup>2+</sup> on Thiol-functionalized Mesoporous Silica, SH-MCM48, *Journal of Physics, Conference*

*Series*, 979, 012058, doi :10.1088/1742-6596/979/1/012058

11. Yu, L.L., Cao, W., Wu, S.C., Yang, C., Cheng, J.H., 2018. Removal of tetracycline from aqueous solution by MOF/graphite oxide pellets: preparation, characteristic, adsorption performance and mechanism. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 164, 289–296.
12. Zhang, Z., Ding, C., Li, Y., Ke, H., and Cheng, G., 2020, Efficient removal of tetracycline hydrochloride from aqueous solution by mesoporous cage MOF-818, *SN Appl. Sci.*, 2, 669.

Dokumen pendukung luaran Wajib #1

Luaran dijanjikan: Artikel di Jurnal Nasional terakreditasi peringkat 1-3

Target: Accepted

Dicapai: Accepted

Dokumen wajib diunggah:

1. Naskah artikel
2. Surat keterangan accepted dari editor

Dokumen sudah diunggah:

1. Naskah artikel
2. Surat keterangan accepted dari editor

Dokumen belum diunggah:

-

**ADSORPTION OF TETRACYCLINE HYDROCHLORIDE FROM SOLUTIONS USING MESOPOROUS SILICA, MCM-48****ADSORPSI TETRASIKLIN HIDROKLORIDA DARI LARUTAN MENGGUNAKAN SILIKA MESOPORI MCM-48**Paulina Taba<sup>1\*</sup>, Mutmainnah<sup>1</sup>, Yusafir Hala<sup>1</sup><sup>1</sup>Departemen Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Hasanuddin, Jl. Perintis Kemerdekaan Km 10, Tamalanrea, Makassar, Indonesia

\*Corresponding Author: paulinataba@unhas.ac.id

Received:  
Received in revised:  
Accepted:  
Available online:**Abstract**

Mesoporous silica with cubic structure, MCM-48 was synthesized using Ludox HS40 and cetyltrimethylammonium bromide (CTAB) as silica source and template, respectively. MCM-48 obtained was used to adsorb antibiotic of tetracycline hydrochloride. X-ray diffraction pattern of MCM-48 was observed by an X-ray diffractometer and functional groups were observed by a Fourier Transformed Infrared (FTIR) spectromete. Parameters used to study adsorption were contact time and concentration, The pseudo-second-order was the kinetic order that fitted well with the adsorption of tetracycline HCl. The adsorption of tetracycline HCl on MCM-48 followed the Freundlich isotherm with the adsorption capacity of 0.98 mg/g.

Keywords: MCM-48, antibiotic, tetracycline HCl, adsorption capacity

**Abstrak**

Silika mesopori yang tersusun dengan struktur kubik, MCM-48 disintesis dengan menggunakan Ludox HS40 dan setil trimetilamonium bromida (CTAB) berturut-turut sebagai sumber silika dan templet. MCM-48 yang diperoleh digunakan untuk mengadsorpsi antibiotik tetrasiklin HCl. Pola difraksi sinar-X dari MCM-48 diamati dengan menggunakan XRD dan gugus fungsi dari-MCM-48 diamati menggunakan FTIR. Parameter yang digunakan untuk mempelajari proses adsorpsi adalah waktu kontak dan konsentrasi. Kinetika orde dua ditemukan sebagai orde kinetika yang sesuai dengan adsorpsi tetrasiklin HCl. Isotermal Freundlich lebih baik dibandingkan dengan isoterma Langmuir dengan kapasitas adsorpsi sebesar 0,98 mg/g.

Kata Kunci: MCM-48, antibiotika, tetrasiklin HCl, kapasitas adsorpsi

**PENDAHULUAN**

Antibiotik banyak digunakan pada manusia dan hewan untuk mengatasi infeksi, menjaga kesehatan dan meningkatkan laju pertumbuhan hewan (Sapkota dkk, 2008, Zhang dkk, 2009, Aminov, 2017, Barton, 2000). Hal ini menyebabkan antibiotik mendapatkan perhatian khusus. Selain itu, yang menjadi perhatian khusus adalah keberadaan residu antibiotoik di lingkungan yang terus berkembang beberapa tahun terakhir (Yang dan Carlson, 2017). Residu antibiotik yang masuk ke lingkungan secara terus menerus dapat menyebabkan resistensi antibiotik (Yang dan Carlson, 2017, Mispagel dan Gray, 2005, Fair dan Tor, 2014). Pada tahun 2014 dan 2016 ditemukan beberapa antibiotik yang resisten terhadap tuberkulosis dan malaria (WHO, 2020). Selain itu, resistensi antibiotik

tetrasiklin juga ditemukan pada E. Coli (Karami dkk, 2006).

Tetrasiklin adalah antibiotik yang memiliki struktur planar dengan empat cincin aromatik dan beberapa kelompok gugus fungsi, seperti gugus trikarbonilamida, gugus dimetil amino, dan gugus fenolik diketon (Gao dkk, 2012, Ghadim dkk, 2013, Mohammed dan Kareem, 2019). Tetrasiklin termasuk dalam antibiotik oral yang diperoleh dari *Streptomyces aureofaciens* (Aminof, 2017, Macsai dan Mojico, 2013). Keberadaan tetrasiklin di lingkungan perairan ditemukan sebesar  $0,11 \mu\text{g L}^{-1}$  (Boxall, 2004). Selain itu, tetrasiklin juga ditemukan di saluran pembuangan air di Jepang Shimizu dkk, 2013).

Keberadaan residu antibiotik sendiri terjadi karena rendahnya metabolisme antibiotik dalam saluran pencernaan manusia dan hewan, sekitar 30 hingga 90% antibiotik yang dikonsumsi diekskresikan melalui urin dan feses sebagai metabolit atau senyawa yang tidak berubah (Kim dkk, 2011, Santos dkk, 2013, Wang dkk, 2019). Oleh karena itu, sangat penting untuk mengembangkan teknik yang efektif untuk menghilangkan tetrasiklin dari limbah yang terkontaminasi sebelum dibuang ke lingkungan perairan. Berbagai teknik seperti fotodegradasi (Khanmohammadi dkk, 2020), Fenton katalis untuk degradasi (K), elektrokoagulasi (Quaissa dkk, 2014), oksidasi elektrokimia (Miyata dkk, 2011) dan adsorpsi (Felix dkk, 2019, Rizzi dkk, 2019, Wang dkk, 2020) telah dilakukan dalam mengatasi masalah ini. Diantara teknik-teknik tersebut, adsorpsi dianggap sebagai teknik yang efektif, murah dan mudah dalam menghilangkan kontaminan (Dehghan dkk, 2019).

Adsorpsi merupakan suatu metode yang efektif digunakan untuk menghilangkan kontaminan dalam air dan limbah (Gao dkk, 2012, Mohammed dan Kareem, 2019). Beberapa tahun terakhir, adsorpsi banyak diaplikasikan dalam penghilangan antibiotik karena dianggap lebih unggul dari teknik lain dalam hal fleksibilitas, kesederhanaan desain, biaya, dan kemudahan pengoperasian (Ghadim dkk, 2013, Hao dkk, 2012, Marzbali dkk, 2016, Nairi dkk, 2017, Junyu dkk, 2019). Salah satu jenis adsorben yang banyak digunakan yaitu, silika mesopori, grafena oksida, gliserol, karbon aktif, karbon nanotube dan kitosan (Ghadim dkk, 2013, Zhang dkk, Torrellas dkk, Wang dkk, 2019).

Silika mesopori kelompok M4IS yang dilaporkan pada tahun 1992 dinamai sebagai MCM-X (*Mobil Crystalline of Materials*) (36). Silika mesopori merupakan material yang memiliki luas permukaan yang tinggi, volume pori yang tinggi, pori yang teratur dengan distribusi ukuran pori yang sempit, dan memiliki biokompatibilitas yang tinggi. Silika mesopori yang memiliki ukuran pori 2-30 nm dengan struktur kubik-3D dan merupakan salah satu jenis silika mesopori adalah MCM-48 (37). Sintesis MCM-48 menggunakan *Cetyltrimethyl*

*ammonium bromide* (CTAB) dan Ludox HS40 sebagai surfaktan dan sumber silika. Karakterisasi MCM-48 yang diperoleh menggunakan *X-ray Diffraction* (XRD) dan *Fourier Transform Infrared* (FTIR). Pengaruh parameter pada adsorpsi Tetrasiklin, seperti waktu kontak dan konsentrasi diselidiki. Model isotermal adsorpsi Langmuir dan Freundlich, model kinetik pseudo orde satu dan pseudo orde dua juga pelajari.

## METODOLOGI

### Alat dan Bahan

Alat yang digunakan adalah oven (Tipe Spini SOSFD), neraca analitik (Ohaus), magnetik stirrer (Fisher Tipe 115), hotplate stirrer (Ikari Basic 1), pompa vakum (Tipe ME4C), spektrofotometer UV-Vis (Spektronik 20 D+), spektrofotometer FT-IR Prestige-21, difraktometer sinar-X (Bruker D2 Phaser2ndGen). Bahan yang digunakan dalam penelitian ini diperoleh dari merk dan sigma aldrich dengan kemurnian yang tinggi. Setiltrimetilamonium Bromida (CTAB), Ludox HS40, Triton X-100, tetrasiklin ( $C_{22}H_{24}N_2O_8$ ), asam asetat ( $CH_3COOH$ ), asam klorida (HCl), natrium hidroksida (NaOH), etanol ( $C_2H_5OH$ ).

### Sintesis MCM-48

Sintesis MCM-48 mengikuti prosedur Ryoo (1999) dengan modifikasi Taba (38). Surfaktan dihilangkan dari produk yang berwarna putih melalui pencucian HCl-etanol 3 kali. Sebanyak 1 gram MCM-48 dicuci dengan 25 HCl 0,1 M dalam larutan etanol 50% sambil diaduk selama 30 menit pada suhu kamar, kemudian disaring. Pencucian diulangi sekali lagi kemudian campuran disaring, endapan dicuci dengan akuades dan dikeringkan pada suhu 100°C.

### Karakterisasi MCM-48

Gugus fungsi dari MCM-48 dianalisis menggunakan Fourier Transform Infrared Spectrofotometer (FTIR). Spektrum transmisi diukur dalam kisaran tersebut dari 4000–250  $cm^{-1}$ . Pola difraksi sinar-X serbuk MCM-48 diukur dengan XRD pada sudut lebar ( $2\theta$  kisaran 15-65), tegangan percepatan dan arus yang diterapkan masing-masing adalah 40 kV dan 30 mA.

### Adsorpsi Tetrasiklin HCl

Tetrasiklin HCl digunakan untuk mengevaluasi kinerja adsorpsi antibiotik dari air oleh MCM-48. Waktu kontak diselidiki dengan menimbang 0,1 g MCM-48 ditambahkan dalam 50 mL larutan tetrasiklin 30 ppm dengan rentang waktu antara 3-30 menit. Untuk konsentrasi, 0,1 g MCM-48 ditambahkan dalam 50 mL larutan tetrasiklin dengan konsentrasi antara 10-

50 ppm. Seluruh proses dilakukan dalam kondisi pengadukan. Kemudian absorbansi tetrasiklin HCl yang diukur dengan menggunakan spektrofotometer UV-Vis (Simadzu-1800 Series) pada panjang gelombang 276 nm.

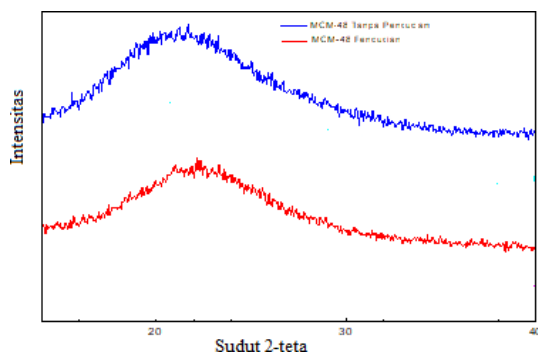
Kapasitas adsorpsi dapat ditentukan menggunakan isothermal adsorpsi. Model isothermal adsorpsi yang digunakan adalah model Langmuir dan Freundlich. Untuk model Freundlich,  $\log q_e$  diplotkan terhadap  $\log c_e$  dan  $c_e/q_e$  terhadap  $c_e$  untuk persamaan langmuir. Intercept persamaan Langmuir diperoleh nilai  $k$  dan slope persamaan Langmuir dapat diperoleh nilai  $Q_0$  yang berhubungan dengan kapasitas adsorpsi

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Karakterisasi

#### Difraktogram Sinar X (XRD)

Untuk mengetahui apakah hasil sintesis adalah MCM-48, data difraktogram diperlukan. Peneliti sebelumnya (Taba, 2018) menggunakan XRD yang memiliki fasilitas untuk pengukuran pada sudut 2-teta di bawah 100. Dalam penelitian ini, silika mesopori (MCM-48) tanpa pencucian dan setelah pencucian dengan etanol-HCl dikarakterisasi dengan menggunakan alat XRD tanpa fasilitas untuk sudut 2-teta yang rendah. Pola difraksi MCM-48 sebelum pencucian dan setelah pencucian dapat dilihat pada Gambar 1.



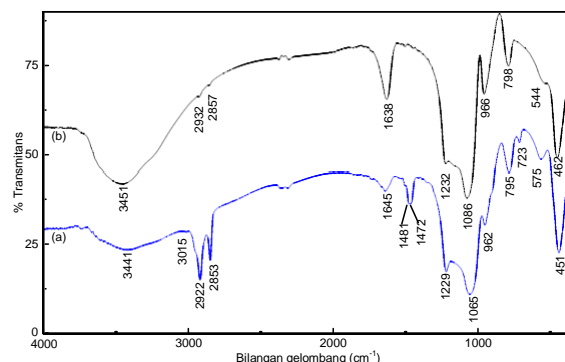
Gambar 1. Pola difraksi Sinar X dari MCM-48 sebelum dan setelah dicuci

Pola difraksi sinar X menunjukkan adanya puncak yang kuat pada sudut 2-teta antara  $20^\circ$  sampai  $24^\circ$  serta beberapa puncak dengan intensitas rendah yang identik dengan penelitian yang dilakukan dan menunjukkan puncak untuk MCM-48 (Fei dkk., 2014). Berdasarkan hasil yang diperoleh, material yang disintesis dalam penelitian ini adalah MCM-48.

#### Spektrometer Fourier Transform Infra Red

Gambar 2 menunjukkan spektra MCM-48 sebelum dan setelah dicuci. Spektrum inframerah MCM-48 sebelum dicuci, Gambar 2a

menunjukkan vibrasi ulur simetris Si-O-Si pada pita serapan dengan bilangan gelombang  $795\text{ cm}^{-1}$  dan didukung oleh vibrasi tekuk Si-O-Si pada pita serapan  $451\text{ cm}^{-1}$ . Pita serapan lemah yang diberikan pada bilangan gelombang  $962\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi ulur Si-O dan Si-OH. Pita serapan kuat  $1065$  dan  $1229\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi ulur asimetri dari Si-O-Si. Vibrasi C-H renggang terlihat pada pita serapan  $1481$  dan  $1472\text{ cm}^{-1}$ . Vibrasi C-H ulur yang terlihat pada bilangan gelombang  $2853\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan gugus fungsi  $-\text{CH}_2$  simetri dan  $-\text{CH}_2$  antisimetri pada  $2922\text{ cm}^{-1}$  yang merupakan spektrum dari surfaktan. Puncak yang lebar pada daerah bilangan gelombang  $3441\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi ulur  $-\text{OH}$  dan didukung oleh vibrasi tekuk  $-\text{OH}$  pada pita serapan  $1645\text{ cm}^{-1}$ . Puncak-puncak ini merupakan kontribusi dari gugus hidroksil dan air yang teradsorpsi secara fisika oleh MCM-48.



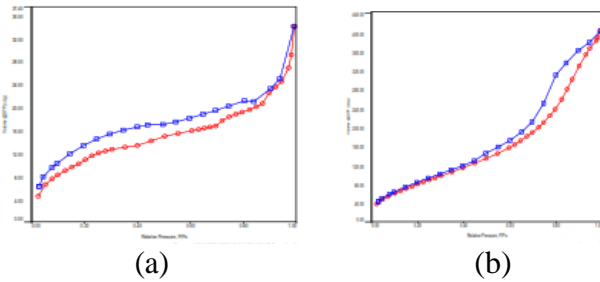
Gambar 2. Spektra FTIR dari MCM-48 (a) sebelum dicuci dan (b) setelah dicuci 3 kali dengan etanol-HCl

Setelah pencucian dengan etanol-HCl 3 kali (Gambar 2b), vibrasi ulur dan tekuk  $-\text{CH}$  sebagian besar telah hilang. Pita serapan yang kuat pada  $1086$  dan  $1232\text{ cm}^{-1}$  serta pita serapan yang lemah  $798$  dan  $966\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan vibrasi ulur Si-O dari kisi silikat. Setelah pencucian HCl-etanol 3 kali puncak yang kuat pada bilangan gelombang  $1065$  dan  $1229\text{ cm}^{-1}$  bergeser sebesar  $21$  dan  $3\text{ cm}^{-1}$  karena adanya kontraksi kisi dengan hilangnya surfaktan seperti yang telah dilaporkan pada penelitian sebelumnya (Chen dkk, 1997, Taba dkk, 2017, Taba dkk, 2018).

#### Luas permukaan dengan Metode BET

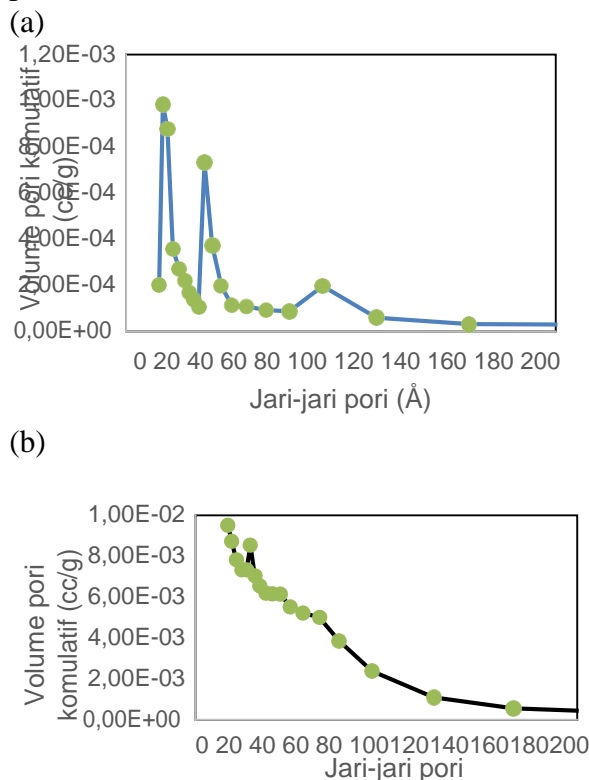
Gambar 3 menunjukkan adsorpsi dan desorpsi gas  $\text{N}_2$  pada MCM-48 sebelum dicuci dan setelah dicuci 1 kali. Isothermal adsorpsi MCM-48

sebelum dan setelah dicuci satu kali merupakan isotermaal tipe IV. Untuk isotermaal adsorpsi oleh MCM-48 menyerupai tipe II karena adanya partikel yang memiliki pori makro. Kedua kurva mempunyai histeresis yang menunjukkan bahwa terjadi kondensasi kapiler karena adanya partikel dengan ukuran meso.



Gambar 3. Isothermal adsorpsi N<sub>2</sub> dari (a) MCM-48 sebelum dicuci dan (b) setelah dicuci 1 kali

Luar permukaan (BET) sebelum dan setelah pencucian berturut-turut adalah 41,9 dan 219,2 m<sup>2</sup>/g. Hal ini menunjukkan bahwa sebagian surfaktan telah hilang sehingga terbentuk permukaan dalam sehingga setelah pencucian luas permukaan meningkat. Distribusi pori dari MCM-48 sebelum dan sesudah pencucian dapat dilihat pada Gambar 4.



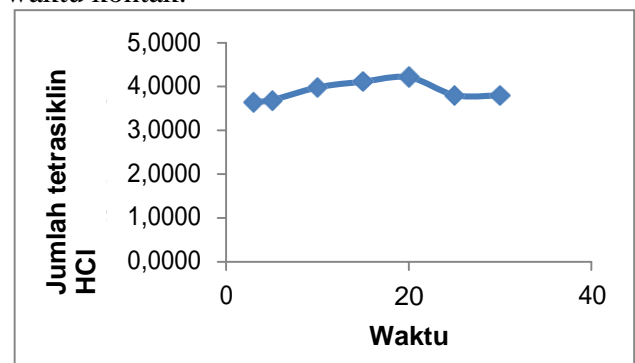
Gambar 4. Distribusi pori dari MCM-48 (a) sebelum pencucian dan (b) setelah pencucian satu kali

Jari-jari pori berdasarkan BJH metode untuk MCM-48 setelah pencucian adalah 1,70 nm dan sebelum pencucian adalah 1,71 nm. Jadi jari-jari pori dan sebelum pencucian Meskipun jari-jari pori setelah pencucian hampir sama dengan sebelum pencucian, rata-rata jari-jari pori untuk MCM-48 setelah pencucian (3,9 nm) lebih besar daripada sebelum pencucian (2,5 nm). Data ini menunjukkan bahwa memiliki partikel dengan ukuran mesopori. Volume pori total untuk pori-pori dengan jari-jari lebih kecil daripada 126,5 nm pada  $P/P^0 = 0,99$  adalah 0,62 cc/g untuk MCM-48 setelah pencucian, sedangkan volume pori total untuk pori-pori dengan jari-jari lebih kecil daripada 124,5 nm pada  $P/P^0 = 0,99$  adalah 0,52 cc/g.

**Adsorpsi tetrasiklin HCL oleh MCM-48**

*Waktu optimum adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48*

Gambar 5 menunjukkan jumlah tetrasiklin HCl yang diadsorpsi oleh MCM-48 sebagai fungsi waktu kontak.



Gambar 5. Jumlah tetrasiklin HCl yang diadsorpsi sebagai fungsi waktu kontak

Adsorpsi tetrasiklin HCl meningkat dengan meningkatnya waktu adsorpsi hingga menit ke 20, setelah itu jumlah yang diadsorpsi cenderung menurun. Hal ini menunjukkan bahwa adsorpsi telah mencapai kesetimbangan pada waktu 20 menit. Jadi waktu optimum adsorpsi adalah 20 menit. Waktu ini akan digunakan untuk percobaan variasi pH dan konsentrasi.

*Studi kinetika adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48*

Kinetika adsorpsi dapat dipelajari dengan menggunakan persamaan orde satu semu. Persamaan diferensial dapat dilihat pada persamaan (1),

$$\frac{dq_t}{dt} = k_1 (q_e - q_t) \tag{1}$$

dimana  $q_e$  dan  $q_t$  berturut-turut adalah jumlah tetrasiklin HCl yang diadsorpsi (mg/g) pada kesetimbangan dan pada waktu tertentu,  $t$  (menit),  $k_1$  merupakan tetapan laju orde satu semu (menit<sup>-1</sup>). Hasil interaksi menghasilkan persamaan (2):

$$\log \frac{q_e}{q_e - q_t} = \log q_e + \frac{k_1}{2,303} t \tag{2}$$

yang merupakan laju orde satu semu. Persamaan (2) dapat ditulis sebagai,

$$\frac{dq}{dt} = k_1 (q_e - q_t) \tag{3}$$

Nilai tetapan laju ( $k_1$ ), kapasitas adsorpsi dalam keadaan setimbang ( $q_e$ ), koefisien korelasi ( $R^2$ ) diperoleh dari kurva  $\log (q_e - q_t)$  versus  $t$ .

Data kinetika juga dapat diolah dengan model kinetika orde dua semu. Persamaan diferensial diberikan oleh persamaan (4),

$$\frac{dq_t}{dt} = k_2 (q_e - q_t)^2 \tag{4}$$

dimana  $k_2$  adalah tetapan laju orde dua semu (g/mg.min). Integrasi persamaan menghasilkan:

$$\frac{1}{q_e - q_t} = \frac{k_2}{q_e} t \tag{5}$$

Persamaan (5) dapat ditulis dalam bentuk linear sebagai berikut:

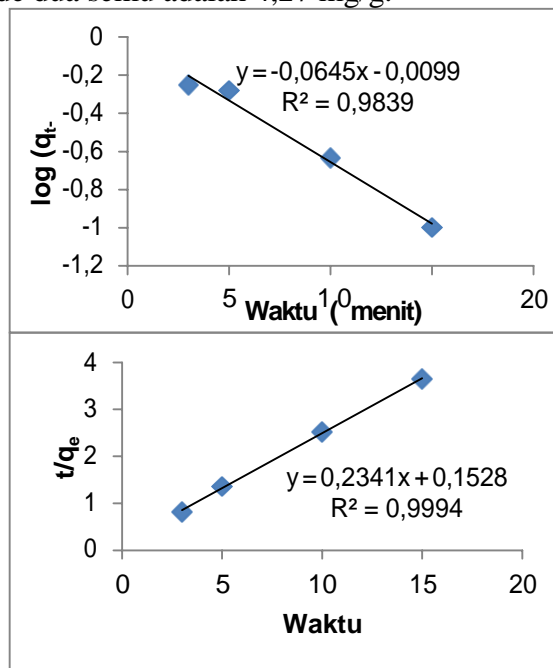
$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e} + \frac{t}{q_e} \tag{6}$$

Jika kinetika orde dua semu dipenuhi, plot  $t/q_t$  versus  $t$  akan menghasilkan garis lurus.

Kurva kinetika adsorpsi untuk orde satu semu dan orde dua semu dapat dilihat pada Gambar 6.

Nilai  $R^2$  yang diperoleh dengan menggunakan model kinetika orde satu semu untuk adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 setelah dicuci 3 kali oleh MCM-48-C1 nilai  $R^2$  yang diperoleh adalah 0,9839. Nilai  $R^2$  untuk

model kinetika orde dua semu adalah 0,999. Nilai  $q_e$  yang diperoleh dari model kinetika orde satu semu adalah 0,98 mg/g dan dari model kinetika orde dua semu adalah 4,27 mg/g.



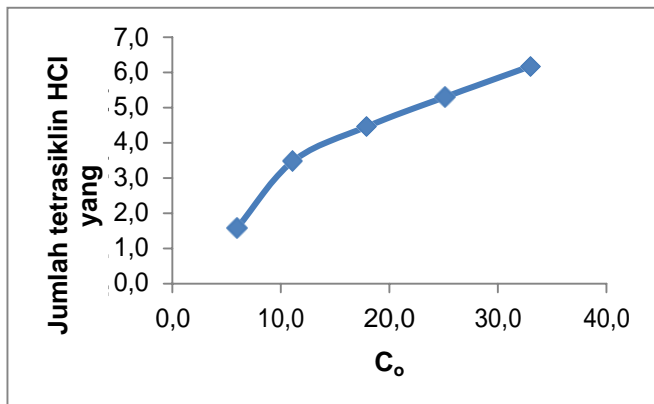
Gambar 6. Model kinetika (a) orde satu semu dan (b) orde dua semu untuk adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48

Nilai  $q_e$  yang diperoleh dari eksperimen adalah 4,21 mg/g. Meskipun nilai  $R^2$  yang diperoleh dari kedua model mendekati satu tetapi nilai  $q_e$  yang diperoleh dari model kinetika orde dua semu mendekati nilai  $q_e$  yang diperoleh dari eksperimen. Nilai  $q_e$  yang diperoleh dari model kinetika orde satu semu jauh lebih kecil daripada yang diperoleh dari eksperimen. Hal ini menunjukkan bahwa adsorpsi tetrasiklin HCL oleh MCM-48 setelah dicuci 3 kali mengikuti model kinetika orde dua semu dengan nilai tetapan  $k_2$  0,36 g.mg<sup>-1</sup>.menit<sup>-1</sup>. Debnath dkk (2020) juga mendapatkan kinetika orde dua semu untuk adsorpsi tetrasiklin pada nanopartikel zirkonia. Hasil yang sama dilaporkan oleh beberapa peneliti dengan menggunakan adsorben yang lain (Yu dkk, 2018, Li dkk, 2020, Zhang dkk, 2020)

*Kapasitas Adsorpsi Metilen Biru oleh Silika Mesopori (MCM-48)p*

Gambar 7 menunjukkan jumlah tetrasiklin yang diadsorpsi sebagai fungsi konsentrasi awal tetrasiklin HCl. Jumlah yang diadsorpsi

meningkat dengan meningkatnya konsentrasi awal dan belum menunjukkan jumlah yang tetap pada batas konsentrasi tertinggi yang digunakan.

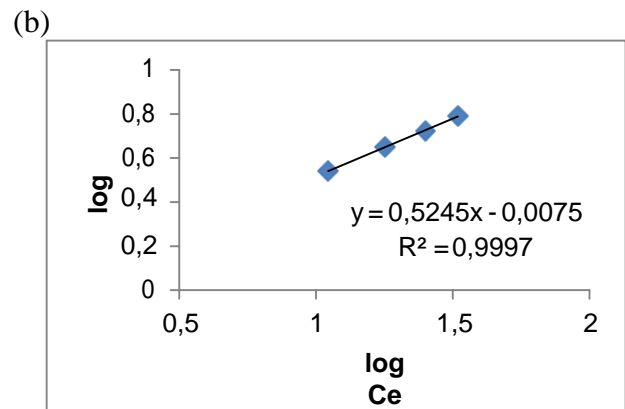
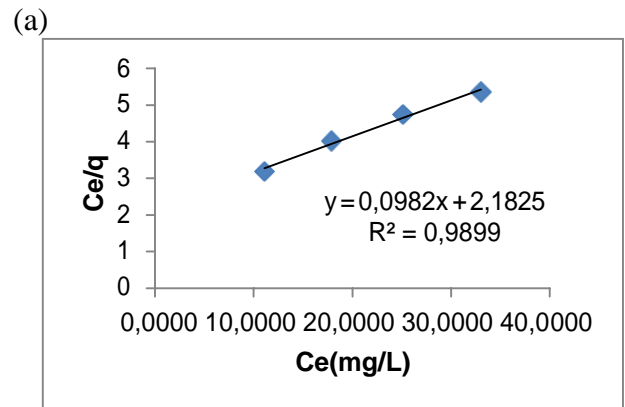


Gambar 7. Jumlah tetrasiklin HCl yang diadsorpsi sebagai fungsi konsentrasi awal larutan tetrasiklin HCl

Jadi untuk menentukan kapasitas adsorpsi, isoterm Langmuir dan Freundlich digunakan. Gambar 8 menunjukkan isoterm Langmuir dan Freundlich pada adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 setelah pencucian 3 kali. Berdasarkan nilai garis kuadrat terkecil ( $R^2$ ), adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 setelah pencucian 3 kali lebih sesuai dengan isotermal Freundlich ( $R^2 = 0,9475$ ). Berdasarkan isoterm Freundlich, kapasitas adsorpsi yang diperoleh adalah 0,98 mg/g dan nilai  $1/n = 0,52$ . Beberapa peneliti juga melaporkan isoterm Freundlich lebih sesuai untuk adsorpsi tetrasiklin dengan menggunakan adsorben yang berbeda (Li, 2018, Kong dkk, 2020. Prarat, 2020). Umumnya, nilai  $1/n$  adalah antara 0 dan 1, nilai ini menunjukkan pengaruh konsentrasi pada kapasitas adsorpsi. Makin kecil nilai  $1/n$  makin baik kinerja adsorpsi: umumnya untuk  $1/n$  antara 0,1 dan 0,5, zat mudah diadsorpsi; untuk  $1/n > 2$ , zat sulit diadsorpsi. Nilai  $1/n$  yang diperoleh pada penelitian ini adalah 0,52 yang menunjukkan bahwa adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 cukup mudah (Benkaddour dkk, 2019).

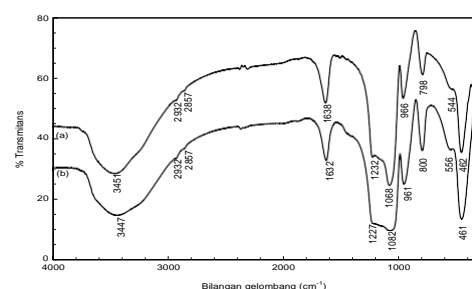
Jumlah tetrasiklin yang diadsorpsi oleh MCM-48 setelah pencucian 3 kali lebih rendah dibandingkan yang diperoleh peneliti lain (Li, 2018, Kong dkk, 2020. Prarat, 2020). Hal ini disebabkan permukaan MCM-48 lebih polar dibandingkan adsorben yang digunakan oleh peneliti tersebut. Jadi, permukaan MCM-48 perlu

dimodifikasi sehingga dapat lebih efektif dalam mengadsorpsi tetrasiklin HCl.



Gambar 8. Isoterm (a) Langmuir dan (b) Freundlich dari adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 setelah pencucian 3 kali

Gambar 9 menunjukkan spektra FTIR sebelum dan setelah adsorpsi tetrasiklin HCl.



Gambar 9. Spektra FTIR (a) sebelum adsorpsi dan (b) setelah adsorpsi. Puncak serapan setelah adsorpsi tetrasiklin HCl relatif sama dengan puncak serapan sebelum adsorpsi. Hal ini menunjukkan bahwa adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 merupakan adsorpsi fisika.

### Kesimpulan

Adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 mencapai kesetimbangan pada waktu 20 menit. Proses adsorpsi berjalan sesuai dengan kinetika orde dua semu dengan tetapan laju  $0,36 \text{ g.mg}^{-1}.\text{menit}^{-1}$ . Adsorpsi antibiotik tersebut lebih memenuhi isoterm Freundlich dibandingkan isoterm Langmuir dengan kapasitas adsorpsi  $0,98 \text{ mg.g}^{-1}$ .

### UCAPAN TERIMAKASIH

Ucapan terimakasih disampaikan kepada Menristek untuk hibah penelitian Magister yang diperoleh.

### Daftar Pustaka

- Aminov, R. 2017. History of Antimicrobial Drug Discovery: Major Classes and Health Impact. *Biochem. Pharmacol.* 133: 4-19.
- Barton, M.D. 2000. Antibiotic Use in Animal Feed and its Impact on Human Health. *Nutr. Res. Rev.* 13: 279-299.
- Benkaddour, S., Slimani, R., Hiyane, H., Ouahabi, I.E., Hachoumi, I. 2018), Removal of reactive yellow 145 by adsorption onto treated watermelon seeds: kinetic and sotherm studies, *Sustain. Chem. Pharm.* 10, 6–21.
- Boxall, A.B.A. 2004. The Environmental Side Effects of Medication. *EMBO Rep.* 5: 1112-1116.
- Chen, F., Huang, L., and Li, Q., 1997, Synthesis of MCM-48 Using Mixed Cationic–Anionic Surfactants as Templates, *Chem. Mater.* 9, 2685-2686.
- Debnath, B., Majumdar, M., Bhowmik, M., Bhowmik, K. L., Debnath, A., and Roy, D. N., 2020, The effective adsorption of tetracycline onto zirconia nanoparticles synthesized by novel microbial green technology, *J. Environ. Manag.* 261, 110235.
- Dehghan, A., Zarei, A., Jaafari, J., Shams, M. dan Khaneghah, A.M. 2019. Tetracycline Removal from Aqueous Solutions using Zeolit Imidazolate Frameworks with Different Morphologies: A Mathematical Modeling. *Chemosphere.* 217: 250-260.
- Fair, J.R. dan Tor, Y. 2014. Antibiotics and Bacterial Resistance in the 21st Century. *Perspect Medicinal Chem.* 6:25-64.
- Fei, Z., Ai, S., Zhou, Z., Chen, X., Tang, J., Cui, M., Qiao, X., 2014, Enhanced activity of MCM-48 based tin catalyst for synthesis of 3-methylbut-3-en-1-ol by adjusting the mesochannel environment, *Journal of Ind. Eng. Chem.*, 20(6), 4146-4151.
- Felix, A.M.H., Flores, C.A., Cruz, A.M., Barandiaran, J.M, Guzman, S.S. dan Silva, R.C. 2019. Removal of Tetracycline Pollutans by Adsorption and Magnetic Separation Using Redused Graphene Oxide Decorated with  $\alpha\text{-Fe-2O}_3$  Nanoparticles. *Nanomaterials.* 9: 1-14.
- Gao, Y., Li, Y., Zhang, L., Huang, H., Hu, J., Shah, S.M. dan Su, X. 2012. Adsorption and Removal of tetracycline Antibiotics from Aqueous Solution By Graphene Oxide. *J. Colloid and Interface Sci.* 368: 540-546.
- Ghadim, E.E., Manouchehri, F., Soleimani, G., Hosseini, H., Kimiagar, S. dan Nafisi, S. 2013. Adsorption Properties of Tetracycline onto Graphene Oxide: Equilibrium, Kinetic and Thermodynamic Studies. *PloS ONE.* 8: 1-9.
- Hao, R., Xiao, X., Zuo, X., Nan, J., Zhang, W. 2012. Efficient Adsorption and Visible-Light Photocatalytic Degradation of Tetracycline Hydrochloride Using Mesoporous Bio microspheres. *J. Hazard. Mater.* 209: 137–145.
- Junyu, Z., Zefeng, S. dan Yuesuo, Y. 2019. Prepaation of Low-Cost Sludge Based Mesoporous Carbon and Its Adsorption of Tetracycline Antibiotics. *Water Sci. Technol.* 79: 676-687.
- Karami, N., Nowrouzian, F., Adlerberth, I. Dan Wold, A.E. 2006. Tetracycline Resistance in Escherchia coli and Persistence in The Infantile Colonic Microbiota. *Antimicrob. Agents Chemother.* 50: 156-161.
- Khanmohammadi, M., Shahrouzi, J.R. dan Rahmani, F. 2020. Insight into Mesoporous MCM-41 Supported Titania Decorated with Cuo Nanoparticles for Enhanced Photodegradation of Tetracycline Antibiotic. *Environ. Sci. Pollut. Res. Int.*
- Kim, K.R., Owens, G., Kwon, S.I., So, K.H., Lee, D.B. dan Ok, Y.S. 2011. Occurence and Environmental Fate of Veterinary Antibiotic

- in The Terrestrial Environment. *Water Air Soil Pollut.* 214: 163-174.
- Kong, Y., Zhuanga, Y., Hana, K., and Shi, B., 2020, Enhanced tetracycline adsorption using alginate-graphene-ZIF67 aerogel, *Colloids Surf. A*, 588, 124360.
- Li, M.F., Liu, Y.G., Liu, S.B., Zeng, G.M., Hu, X.J., Tan, X.F., Jiang, L.H., Liu N., Wen, J., Liu, X.H., 2018, Performance of magnetic grapheneoxide/diethylenetriaminepenta-acetic acid nanocomposite for the tetracycline and ciprofloxacin adsorption in single and binary systems. *J. Colloid Interface Sci.* 521, 150–159
- Li, J., Han, J., Meng, F., Jiang, J., Li, J., Xu, C. dan Li, Y. 2019. Mesoporous Bimetallic Fe/Co as Highly Active Heterogeneous Fenton Catalyst for the Degradation of Tetracycline Hydrochlorides. *Sci, Rep.* 9: 1-11.
- Li, K., Li, J., Zhao, N., Ma, Y., and Di, B., 2020, Removal of Tetracycline in Sewage and Dairy Products with High-Stable MOF, *Molecules*, 25, 1312
- Macsai, M. dan Mojica, G. 2013. Medical Management of Ocular Surface Disease. *Ocular Surface Disease: Cornea, Conjunctiva and Tear Film* 1st Edition. 271-281.
- Marzbali, M.H., Esmaili, M., Abolghasemi, H. dan Marzbali, M.H. 2016. Tetracycline adsorption by H3PO4-Activated Carbon Produced from Apricot Nut Shells: A Batch Study. *Process Saf. Environ. Prot.* 102: 700-709.
- Mispagel, H. dan Gray, J.T. Antibiotic Resistance from Wastewater Oxidation Ponds. *Water Environ. Res.* 77: 2996-3002.
- Miyata, M., Ihara, I., Yosida, G., Toyod, K. dan Umetsu, K. 2011. Elektrochemical Oxidation of Tetracycline Antibiotics using a Ti/IrO2 Anode for Wastewater Treatment of Animal Husbandary. *Water Sci. Technol.* 63: 456-461.
- Mohammed, A.A. dan Kareem, S.L. 2019. Adsorption of Tetracycline from Wastewater by Using Pistachio Shell Coated with ZnO Nanoparticles: Equilibrium, Kinetic and Isotherm Studies. *Alex. Eng. J.* 58: 917-928.
- Nairi, V., Medda, L., Monduzzi, M. dan Salis, A. 2017, Adsorption and Release of Ampicillin Antibiotic from Ordered Mesoporous Silica, *J. Colloid Interface Sci.* 497: 217-225.
- Pachauri, P., Falwariya, R., Vyas, S., Maheswari, M., Vyas, R.K. dan Gupta, A.B. 2009. Removal of Amoxicillin in Wastewater using Adsorption by Powdered and Granular Activated Carbon and Oxidation with Hydrogen Peroxide. *Nat. Environ. Pollut. Technol.* 8: 481-488.
- Prarat, P., Hongsawat, P., Punyapalakul, P., 2020. Amino-functionalized mesoporous silica-magnetic graphene oxide nanocomposites as water-dispersible adsorbents for the removal of the oxytetracycline antibiotic from aqueous solutions: adsorption performance, effects of coexisting ions, and natural organic matter. *Environ. Sci. Pollut. Res. Int.* 27, 6560–6576.
- Ouaissa, Y.A., Chabani, M., Amrane, A. dan Bensmaili, A. 2014. Removal of Tetracycline by Electrocoagulation: Kinetic and Isotherm Modeling Through Adsorption. *J. Environ. Chem. Eng.* 2: 177-184.
- Rizzi, V., Lacalamita, D., Gubitosa, J., Fini, P., Patrella, A., Romita, R., Agostiano, A., Gabaldon, J.A., Gorbe, M.I.F., Morte, T.G. dan Cosma, P. 2019. Removal of Tetracycline from Polluted Water by Chitosan Olive Pomace Adsorbing Film. *Sci. Total Environ.* 63: 1-12.
- Santos, L.H.M.L.M., Gros, M., Mozaz, S.R., Matos, C.D., Pena, A., Barcelo, D. DAN Montenegro, M.C.B.S.M. Contribute of Hospital Effluent to The Load of Pharmaceuticals in Urban Wastewater; Identification of Ecologically Relevant Pharmaceuticals. *Sci. Total Environ.* 461-462: 302-3016.
- Sapkota, M., Sapkota, A.R., Kucharski, M., Burke, J., McKenzie, S., Walker, P. Dan Lawrence, R. 2008. Aquaculture Practice and Potential Human Health Risk: Current Knowledge and Future Priorities. *Environ. Int.* 34: 1215-1226.
- Shimizu, A., Takada, H., Koike, T., Takeshita, A., Saha, M., Rinawati., Nakada, N., Murata, A., Suzuki, T., Chiem, N.H., Tuyen, B.C., Viet, P.H., Siringan, M.A., Kwan. C., Zakarria., M.P. dan Reungang, A. 2013. Ubiquitous

- Occurrence of Sulfonamides in Tropical Asian Water. *Sci. Total Environ.* 452-453: 108-115.
- Taba, P., Budi, P., Sari, A.Y.P., 2017, Adsorption of Heavy Metals on Amine-Functionalized MCM-48, *Proceeding International Symposium on Current Progress in Functional Materials, July 26-27, Denpasar Bali*
- Taba, P., Mustafa, R.D.P., Ramang, L.M., Kasim, A.H., 2018, Adsorption of Pb<sup>2+</sup> on Thiol-functionalized Mesoporous Silica, SH-MCM48, *Journal of Physics, Conference Series*, 979, 012058, doi :10.1088/1742-6596/979/1/012058
- Torrellas, A.A., Ribeiro, R.S., Gomes, H.T. Ovejero, G. dan Garcia, J. 2016. Removal of Antibiotic Compound by Adsorption Using Glycerol Based Carbon Materials. *Chem. Eng. J.* 296: 277-288.
- Wang, N., Xiao, W., Niu, B., Duan, W., Zhou, L. dan Zheng, Y. 2019. Highly Efficient Adsorption of Flouoroquinone Antibitics using Chitosan Derived Granular Hydrogel with 3D Sturcture. *J. Mol. Liq.* 281: 307-314.
- Wang, R.Z., Huang, D.L., Liu, Y.G., Zhang, C., Lai, C., Wang, X., Zeng, G.M., Zhang, Q., Gong, M.X. dan Xu, P. 2020. Synergistic Removal of Copper and Tetracycline from Aqueous Solution by Steam Activated Bambo Biochar. *J. Hazard. Mater.* 384: 1-10
- WHO. 2020. Antimicrobial Resistance. World Health Organization.
- Yang, S. dan Carlson, K. 2003. Evolution of Antibiotic Occurrence in a River Through Pristine, Urban and Agricultural Landscape. *Water Res.* 37: 4645-4656.
- Yu, L.L., Cao, W., Wu, S.C., Yang, C., Cheng, J.H., 2018. Removal of tetracycline from aqueous solution by MOF/graphite oxide pellets: preparation, characteristic, adsorption performance and mechanism. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 164, 289–296.
- Zhang, X.X., Zhang, T. dan Fang, H.H.P. 2009. Antibiotic Resistance Genes in Environment. *Appl Micribiol Biotechnol.* 82: 397-414.
- Zhang, Z., Lan, H., Liu, H., Li, H. dan Qu, J. 2015. Iron-incorporated Mesoporous Silica for Enhanced Adsorption of Tetracycline in Aqueous Solution. *RSC Adv.* 1-8.
- Zhang, Z., Ding, C., Li, Y., Ke, H., and Cheng, G., 2020, Efficient removal of tetracycline hydrochloride from aqueous solution by mesoporous cage MOF-818, *SN Appl. Sci.*, 2, 669.
- Zhao, Y., Geng, J., Wang, X., Gu, X. Dan Gao, S. 2011. Adsorption of Tetracycline on to Geothite in The Presence of Metal Cations and Humic Substances. *J. Colloid Interface Sci.* 361: 247-251.



# Indonesian Journal of Chemical Research

Indo. J. Chem. Res.

<http://ojs3.unpatti.ac.id/ijcr>, email: [ijcr@fmipa.unpatti.ac.id](mailto:ijcr@fmipa.unpatti.ac.id)



## Surat Keterangan

Nomor: 28/ijcr/11.2/2020

Tim Editor **Indonesian Journal of Chemical Research** dengan ini menerangkan bahwa artikel yang berjudul: ***Adsorption of Tetracycline Hydrochloride from Solutions using Mesoporous Silica, MCM-48*** (Penulis: Mutmainnah, Yusafir Hala, Paulina Taba).

## Telah Siap Terbit

Pada terbitan **Indonesian Journal of Chemical Research** Volume 8 No 3, Januari 2021

Ambon, 11 November 2020



Indexing





## Letter of Acceptance

Ambon, December 5, 2020

**Dear** : Mutmainnah, Paulina Taba, Yusafir Hala

This letter is to confirm that your paper entitled:

**Adsorption of Sulfamethoxazole from Solution by Mesoporus Silica MCM-48**

**ACCEPTED**

by the committee of the 6<sup>th</sup> ICBS 2020, and will be considered to be published in the

***Journal of Physics: Conference Series (Indexed by Scopus Q3)***

Best regard,

On behalf of the Organizing Committee

The 6<sup>th</sup> ICBS 2020



A handwritten signature in black ink, appearing to read "I Wayan Sutapa".

Dr. I Wayan Sutapa, M.Sc  
Chair of the 6<sup>th</sup> ICBS 2020

Dokumen pendukung luaran Tambahan#1

Luaran dijanjikan: Artikel di Jurnal international terindeks Scopus, Q<sub>3</sub>

Target: Accepted

Dicapai: Accepted

Dokumen pendukung luaran Wajib #1

Luaran dijanjikan: Artikel di Jurnal Nasional terakreditasi peringkat 1-3

Target: Accepted

Dicapai: Accepted

Dokumen wajib diunggah:

1. Naskah artikel
2. Surat keterangan accepted dari editor

Dokumen sudah diunggah:

1. Naskah artikel
2. Surat keterangan accepted dari editor

Dokumen belum diunggah:

- Sudah lengkap

**ADSORPTION OF TETRACYCLINE HYDROCHLORIDE FROM SOLUTIONS USING MESOPOROUS SILICA, MCM-48**

**ADSORPSI TETRASIKLIN HIDROKLORIDA DARI LARUTAN MENGGUNAKAN SILIKA MESOPORI MCM-48**

Paulina Taba<sup>1\*</sup>, Mutmainnah<sup>1</sup>, Yusafir Hala<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Departemen Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Hasanuddin, Jl. Perintis Kemerdekaan Km 10, Tamalanrea, Makassar, Indonesia

\*Corresponding Author: paulinataba@unhas.ac.id

Received:  
Received in revised:  
Accepted:  
Available online:

**Abstract**

*Mesoporous silica with cubic structure, MCM-48 was synthesized using Ludox HS40 and cethyltrimethylammonium bromide (CTAB) as silica source and template, respectively. MCM-48 obtained was used to adsorb antibiotic of tetracycline hydrochloride. X-ray diffraction pattern of MCM-48 was observed by an X-ray diffractometer and functional groups were observed by a Fourier Transformed Infrared (FTIR) spectromete. Parameters used to study adsorption were contact time and concentration, The pseudo-second-order was the kinetic order that fitted well with the adsorption of tetracycline HCl. The adsorption of tetracycline HCl on MCM-48 followed the Freundlich isotherm with the adsorption capacity of 0.98 mg/g.*

*Keywords: MCM-48, antibiotic, tetracycline HCl, adsorption capacity*

**Abstrak**

Silika mesopori yang tersusun dengan struktur kubik, MCM-48 disintesis dengan menggunakan Ludox HS40 dan setil trimetilamonium bromida (CTAB) berturut-turut sebagai sumber silika dan templet. MCM-48 yang diperoleh digunakan untuk mengadsorpsi antibiotik tetrasiklin HCl. Pola difraksi sinar-X dari MCM-48 diamati dengan menggunakan XRD dan gugus fungsi dari-MCM-48 diamati menggunakan FTIR. Parameter yang digunakan untuk mempelajari proses adsorpsi adalah waktu kontak dan konsentrasi. Kinetika orde dua ditemukan sebagai orde kinetika yang sesuai dengan adsorpsi tetrasiklin HCl. Isoterma Freundlich lebih baik dibandingkan dengan isoterma Langmuir dengan kapasitas adsorpsi sebesar 0,98 mg/g.

*Kata Kunci: MCM-48, antibiotika, tetrasiklin HCl, kapasitas adsorpsi*

**PENDAHULUAN**

Antibiotik banyak digunakan pada manusia dan hewan untuk mengatasi infeksi, menjaga kesehatan dan meningkatkan laju pertumbuhan hewan (Sapkota dkk, 2008, Zhang dkk, 2009, Aminov, 2017, Barton, 2000). Hal ini menyebabkan antibiotik mendapatkan perhatian khusus. Selain itu, yang menjadi perhatian khusus adalah keberadaan residu antibiotoik di lingkungan yang terus berkembang beberapa tahun terakhir (Yang dan Carlson, 2017). Residu antibiotik yang masuk ke lingkungan secara terus menerus dapat menyebabkan resistensi antibiotik (Yang dan Carlson, 2017, Mispagel dan Gray, 2005, Fair dan Tor, 2014). Pada tahun 2014 dan 2016 ditemukan beberapa antibiotik yang resisten terhadap tuberkulosis dan malaria (WHO, 2020). Selain itu, resistensi antibiotik

tetrasiklin juga ditemukan pada E. Coli (Karami dkk, 2006).

Tetrasiklin adalah antibiotik yang memiliki struktur planar dengan empat cincin aromatik dan beberapa kelompok gugus fungsi, seperti gugus trikarbonilamida, gugus dimetil amino, dan gugus fenolik diketon (Gao dkk, 2012, Ghadim dkk, 2013, Mohammed dan Kareem, 2019). Tetrasiklin termasuk dalam antibiotik oral yang diperoleh dari Streptomyces aureofaciens (Aminof, 2017, Macsai dan Mojico, 2013). Keberadaan tetrasiklin di lingkungan perairan ditemukan sebesar 0,11 µg L<sup>-1</sup> (Boxall, 2004). Selain itu, tetrasiklin juga ditemukan di saluran pembuangan air di Jepang Shimizu dkk, 2013).

Keberadaan residu antibiotik sendiri terjadi karena rendahnya metabolisme antibiotik dalam saluran pencernaan manusia dan hewan, sekitar 30 hingga 90% antibiotik yang dikonsumsi diekskresikan melalui urin dan feses sebagai metabolit atau senyawa yang tidak berubah (Kim dkk, 2011, Santos dkk, 2013, Wang dkk, 2019). Oleh karena itu, sangat penting untuk mengembangkan teknik yang efektif untuk menghilangkan tetrasiklin dari limbah yang terkontaminasi sebelum dibuang ke lingkungan perairan. Berbagai teknik seperti fotodegradasi (Khanmohammadi dkk, 2020), Fenton katalis untuk degradasi (K), elektrokoagulasi (Quaissa dkk, 2014), oksidasi elektrokimia (Miyata dkk, 2011) dan adsorpsi (Felix dkk, 2019, Rizzi dkk, 2019, Wang dkk, 2020) telah dilakukan dalam mengatasi masalah ini. Diantara teknik-teknik tersebut, adsorpsi dianggap sebagai teknik yang efektif, murah dan mudah dalam menghilangkan kontaminan (Dehghan dkk, 2019).

Adsorpsi merupakan suatu metode yang efektif digunakan untuk menghilangkan kontaminan dalam air dan limbah (Gao dkk, 2012, Mohammed dan Kareem, 2019). Beberapa tahun terakhir, adsorpsi banyak diaplikasikan dalam penghilangan antibiotik karena dianggap lebih unggul dari teknik lain dalam hal fleksibilitas, kesederhanaan desain, biaya, dan kemudahan pengoperasian (Ghadim dkk, 2013, Hao dkk, 2012, Marzbali dkk, 2016, Nairi dkk, 2017, Junyu dkk, 2019). Salah satu jenis adsorben yang banyak digunakan yaitu, silika mesopori, grafena oksida, gliserol, karbon aktif, karbon nanotube dan kitosan (Ghadim dkk, 2013, Zhang dkk, Torrellas dkk, Wang dkk, 2019).

Silika mesopori kelompok M4IS yang dilaporkan pada tahun 1992 dinamai sebagai MCM-X (*Mobil Crystalline of Materials*) (36). Silika mesopori merupakan material yang memiliki luas permukaan yang tinggi, volume pori yang tinggi, pori yang teratur dengan distribusi ukuran pori yang sempit, dan memiliki biokompatibilitas yang tinggi. Silika mesopori yang memiliki ukuran pori 2-30 nm dengan struktur kubik-3D dan merupakan salah satu jenis silika mesopori adalah MCM-48 (37). Sintesis MCM-48 menggunakan *Cetyltrimethyl*

*ammonium bromide* (CTAB) dan Ludox HS40 sebagai surfaktan dan sumber silika. Karakterisasi MCM-48 yang diperoleh menggunakan *X-ray Diffraction* (XRD) dan *Fourier Transform Infrared* (FTIR). Pengaruh parameter pada adsorpsi Tetrasiklin, seperti waktu kontak dan konsentrasi diselidiki. Model isothermal adsorpsi Langmuir dan Freundlich, model kinetik pseudo orde satu dan pseudo orde dua juga pelajari.

## METODOLOGI

### Alat dan Bahan

Alat yang digunakan adalah oven (Tipe Spini SOSFD), neraca analitik (Ohaus), magnetik stirrer (Fisher Tipe 115), hotplate stirrer (Ikari Basic 1), pompa vakum (Tipe ME4C), spektrofotometer UV-Vis (Spektronik 20 D+), spektrofotometer FT-IR Prestige-21, difraktometer sinar-X (Bruker D2 Phaser 2ndGen). Bahan yang digunakan dalam penelitian ini diperoleh dari merk dan sigma aldrich dengan kemurnian yang tinggi. Setiltrimetilamonium Bromida (CTAB), Ludox HS40, Triton X-100, tetrasiklin ( $C_{22}H_{24}N_2O_8$ ), asam asetat ( $CH_3COOH$ ), asam klorida (HCl), natrium hidroksida (NaOH), etanol ( $C_2H_5OH$ ).

### Sintesis MCM-48

Sintesis MCM-48 mengikuti prosedur Ryoo (1999) dengan modifikasi Taba (38). Surfaktan dihilangkan dari produk yang berwarna putih melalui pencucian HCl-etanol 3 kali. Sebanyak 1 gram MCM-48 dicuci dengan 25 HCl 0,1 M dalam larutan etanol 50% sambil diaduk selama 30 menit pada suhu kamar, kemudian disaring. Pencucian diulangi sekali lagi kemudian campuran disaring, endapan dicuci dengan akuades dan dikeringkan pada suhu 100°C.

### Karakterisasi MCM-48

Gugus fungsi dari MCM-48 dianalisis menggunakan Fourier Transform Infrared Spectrofotometer (FTIR). Spektrum transmisi diukur dalam kisaran tersebut dari 4000–250  $cm^{-1}$ . Pola difraksi sinar-X serbuk MCM-48 diukur dengan XRD pada sudut lebar ( $2\theta$  kisaran 15-65), tegangan percepatan dan arus yang diterapkan masing-masing adalah 40 kV dan 30 mA.

### Adsorpsi Tetrasiklin HCl

Tetrasiklin HCl digunakan untuk mengevaluasi kinerja adsorpsi antibiotik dari air oleh MCM-48. Waktu kontak diselidiki dengan menimbang 0,1 g MCM-48 ditambahkan dalam 50 mL larutan tetrasiklin 30 ppm dengan rentang waktu antara 3-30 menit. Untuk konsentrasi, 0,1 g MCM-48 ditambahkan dalam 50 mL larutan tetrasiklin dengan konsentrasi antara 10-

50 ppm. Seluruh proses dilakukan dalam kondisi pengadukan. Kemudian absorbansi tetrasiklin HCl yang diukur dengan menggunakan spektrofotometer UV-Vis (Simadzu-1800 Series) pada panjang gelombang 276 nm.

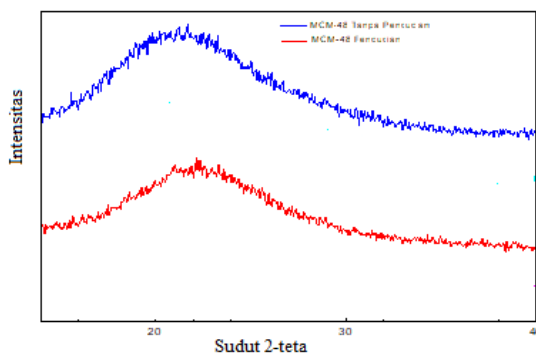
Kapasitas adsorpsi dapat ditentukan menggunakan isotermal adsorpsi. Model isotermal adsorpsi yang digunakan adalah model Langmuir dan Freundlich. Untuk model Freundlich,  $\log q_e$  diplotkan terhadap  $\log c_e$  dan  $c_e/q_e$  terhadap  $c_e$  untuk persamaan langmuir. Intercept persamaan Langmuir diperoleh nilai  $k$  dan slope persamaan Langmuir dapat diperoleh nilai  $Q_0$  yang berhubungan dengan kapasitas adsorpsi

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Karakterisasi

#### Difraktogram Sinar X (XRD)

Untuk mengetahui apakah hasil sintesis adalah MCM-48, data difraktogram diperlukan. Peneliti sebelumnya (Taba, 2018) menggunakan XRD yang memiliki fasilitas untuk pengukuran pada sudut 2-teta di bawah 100. Dalam penelitian ini, silika mesopori (MCM-48) tanpa pencucian dan setelah pencucian dengan etanol-HCl dikarakterisasi dengan menggunakan alat XRD tanpa fasilitas untuk sudut 2-teta yang rendah. Pola difraksi MCM-48 sebelum pencucian dan setelah pencucian dapat dilihat pada Gambar 1.



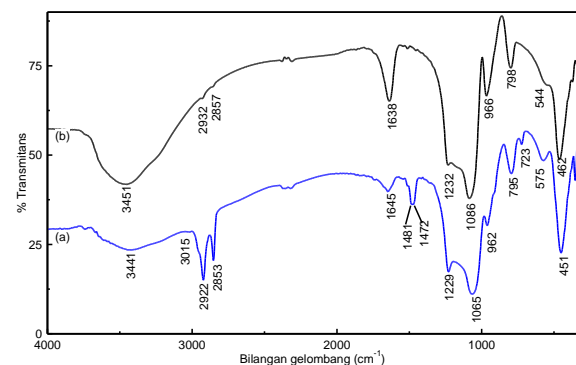
Gambar 1. Pola difraksi Sinar X dari MCM-48 sebelum dan setelah dicuci

Pola difraksi sinar X menunjukkan adanya puncak yang kuat pada sudut 2-teta antara  $20^\circ$  sampai  $24^\circ$  serta beberapa puncak dengan intensitas rendah yang identik dengan penelitian yang dilakukan dan menunjukkan puncak untuk MCM-48 (Fei dkk., 2014). Berdasarkan hasil yang diperoleh, material yang disintesis dalam penelitian ini adalah MCM-48.

#### Spektrometer Fourier Transform Infra Red

Gambar 2 menunjukkan spektra MCM-48 sebelum dan setelah dicuci. Spektrum inframerah MCM-48 sebelum dicuci, Gambar 2a

menunjukkan vibrasi ulur simetris Si-O-Si pada pita serapan dengan bilangan gelombang  $795\text{ cm}^{-1}$  dan didukung oleh vibrasi tekuk Si-O-Si pada pita serapan  $451\text{ cm}^{-1}$ . Pita serapan lemah yang diberikan pada bilangan gelombang  $962\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi ulur Si-O dan Si-OH. Pita serapan kuat  $1065$  dan  $1229\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi ulur asimetri dari Si-O-Si. Vibrasi C-H renggang terlihat pada pita serapan  $1481$  dan  $1472\text{ cm}^{-1}$ . Vibrasi C-H ulur yang terlihat pada bilangan gelombang  $2853\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan gugus fungsi  $-\text{CH}_2$  simetri dan  $-\text{CH}_2$  antisimetri pada  $2922\text{ cm}^{-1}$  yang merupakan spektrum dari surfaktan. Puncak yang lebar pada daerah bilangan gelombang  $3441\text{ cm}^{-1}$  merupakan vibrasi ulur  $-\text{OH}$  dan didukung oleh vibrasi tekuk  $-\text{OH}$  pada pita serapan  $1645\text{ cm}^{-1}$ . Puncak-puncak ini merupakan kontribusi dari gugus hidroksil dan air yang teradsorpsi secara fisika oleh MCM-48.



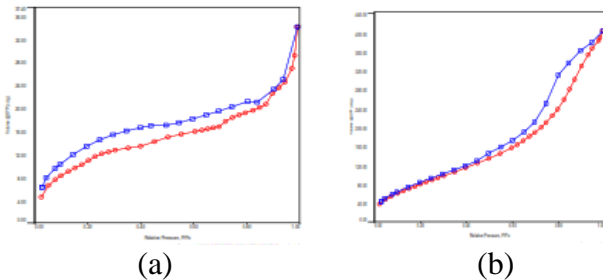
Gambar 2. Spektra FTIR dari MCM-48 (a) sebelum dicuci dan (b) setelah dicuci 3 kali dengan etanol-HCl

Setelah pencucian dengan etanol-HCl 3 kali (Gambar 2b), vibrasi ulur dan tekuk  $-\text{CH}$  sebagian besar telah hilang. Pita serapan yang kuat pada  $1086$  dan  $1232\text{ cm}^{-1}$  serta pita serapan yang lemah  $798$  dan  $966\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan vibrasi ulur Si-O dari kisi silikat. Setelah pencucian HCl-etanol 3 kali puncak yang kuat pada bilangan gelombang  $1065$  dan  $1229\text{ cm}^{-1}$  bergeser sebesar  $21$  dan  $3\text{ cm}^{-1}$  karena adanya kontraksi kisi dengan hilangnya surfaktan seperti yang telah dilaporkan pada penelitian sebelumnya (Chen dkk, 1997, Taba dkk, 2017, Taba dkk, 2018).

#### Luas permukaan dengan Metode BET

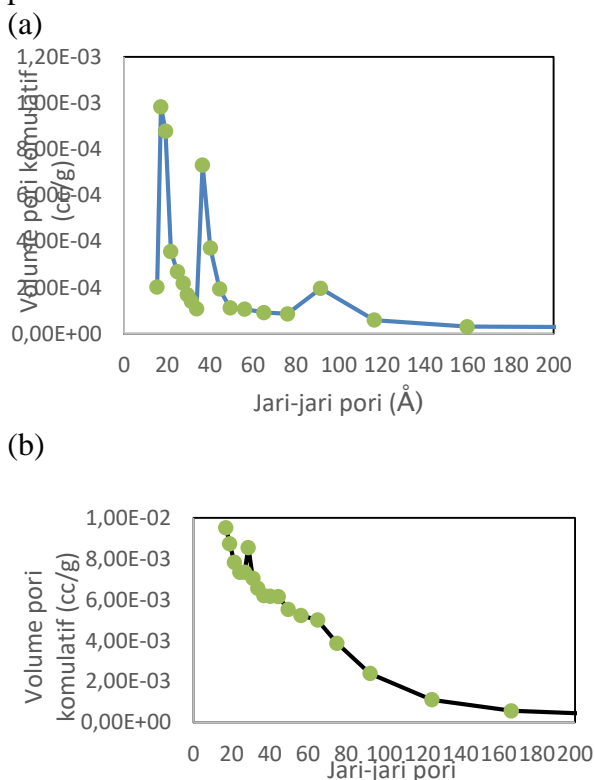
Gambar 3 menunjukkan adsorpsi dan desorpsi gas  $\text{N}_2$  pada MCM-48 sebelum dicuci dan setelah dicuci 1 kali. Isotermal adsorpsi MCM-48

sebelum dan setelah dicuci satu kali merupakan isothermal tipe IV. Untuk isothermal adsorpsi oleh MCM-48 menyerupai tipe II karena adanya partikel yang memiliki pori makro. Kedua kurva mempunyai histeresis yang menunjukkan bahwa terjadi kondensasi kapiler karena adanya partikel dengan ukuran meso.



Gambar 3. Isothermal adsorpsi N<sub>2</sub> dari (a) MCM-48 sebelum dicuci dan (b) setelah dicuci 1 kali

Luar permukaan (BET) sebelum dan setelah pencucian berturut-turut adalah 41,9 dan 219,2 m<sup>2</sup>/g. Hal ini menunjukkan bahwa sebagian surfaktan telah hilang sehingga terbentuk permukaan dalam sehingga setelah pencucian luas permukaan meningkat. Distribusi pori dari MCM-48 sebelum dan sesudah pencucian dapat dilihat pada Gambar 4.



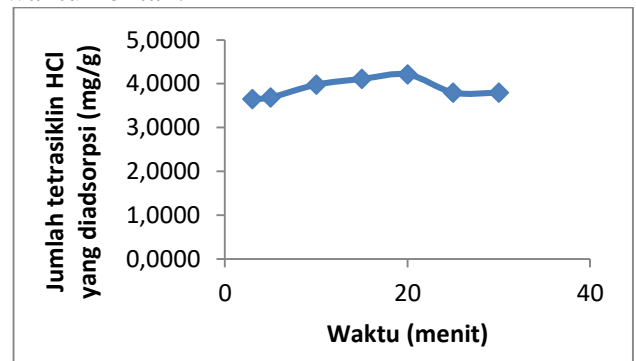
Gambar 4. Distribusi pori dari MCM-48 (a) sebelum pencucian dan (b) setelah pencucian satu kali

Jari-jari pori berdasarkan BJH metode untuk MCM-48 setelah pencucian adalah 1,70 nm dan sebelum pencucian adalah 1,71 nm. Jadi jari-jari pori dan sebelum pencucian Meskipun jari-jari pori setelah pencucian hampir sama dengan sebelum pencucian, rata-rata jari-jari pori untuk MCM-48 setelah pencucian (3,9 nm) lebih besar daripada sebelum pencucian (2,5 nm). Data ini menunjukkan bahwa memiliki partikel dengan ukuran mesopori. Volume pori total untuk pori-pori dengan jari-jari lebih kecil daripada 126,5 nm pada  $P/P^0 = 0,99$  adalah 0,62 cc/g untuk MCM-48 setelah pencucian, sedangkan volume pori total untuk pori-pori dengan jari-jari lebih kecil daripada 124,5 nm pada  $P/P^0 = 0,99$  adalah 0,52 cc/g.

**Adsorpsi tetrasiklin HCL oleh MCM-48**

*Waktu optimum adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48*

Gambar 5 menunjukkan jumlah tetrasiklin HCl yang diadsorpsi oleh MCM-48 sebagai fungsi waktu kontak.



Gambar 5. Jumlah tetrasiklin HCl yang diadsorpsi sebagai fungsi waktu kontak

Adsorpsi tetrasiklin HCl meningkat dengan meningkatnya waktu adsorpsi hingga menit ke 20, setelah itu jumlah yang diadsorpsi cenderung menurun. Hal ini menunjukkan bahwa adsorpsi telah mencapai kesetimbangan pada waktu 20 menit. Jadi waktu optimum adsorpsi adalah 20 menit. Waktu ini akan digunakan untuk percobaan variasi pH dan konsentrasi.

*Studi kinetika adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48*

Kinetika adsorpsi dapat dipelajari dengan menggunakan persamaan orde satu semu. Persamaan diferensial dapat dilihat pada persamaan (1),

$$\frac{dq_t}{dt} = k_1 (q_e - q_t) \tag{1}$$

dimana  $q_e$  dan  $q_t$  berturut-turut adalah jumlah tetrasiklin HCl yang diadsorpsi (mg/g) pada kesetimbangan dan pada waktu tertentu,  $t$  (menit),  $k_1$  merupakan tetapan laju orde satu semu (menit<sup>-1</sup>). Hasil interaksi menghasilkan persamaan (2):

$$\log \frac{q_e}{q_e - q_t} = \log q_e - \frac{k_1}{2,303} t \tag{2}$$

yang merupakan laju orde satu semu. Persamaan (2) dapat ditulis sebagai,

$$\frac{dq_t}{dt} = k_1 (q_e - q_t) \tag{3}$$

Nilai tetapan laju ( $k_1$ ), kapasitas adsorpsi dalam keadaan setimbang ( $q_e$ ), koefisien korelasi ( $R_1^2$ ) diperoleh dari kurva  $\log (q_e - q_t)$  versus  $t$ .

Data kinetika juga dapat diolah dengan model kinetika orde dua semu. Persamaan diferensial diberikan oleh persamaan (4),

$$\frac{dq_t}{dt} = k_1 (q_e - q_t)^2 \tag{4}$$

dimana  $k_2$  adalah tetapan laju orde satu semu (g/mg.min). Integrasi persamaan menghasilkan:

$$\frac{1}{q_e - q_t} = \frac{1}{q_e} k_2 t \tag{5}$$

Persamaan (5) dapat ditulis dalam bentuk linear sebagai berikut:

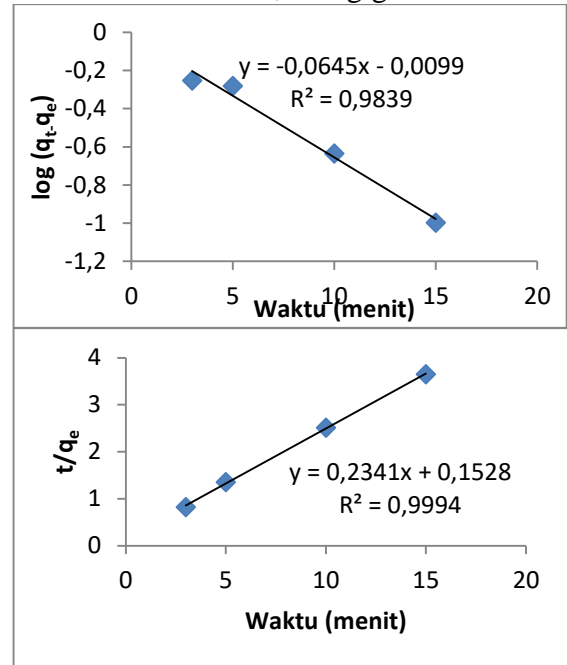
$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e} \tag{6}$$

Jika kinetika orde dua semu dipenuhi, plot  $t/q_t$  versus  $t$  akan menghasilkan garis lurus.

Kurva kinetika adsorpsi untuk orde satu semu dan orde dua semu dapat dilihat pada Gambar 6.

Nilai  $R^2$  yang diperoleh dengan menggunakan model kinetika orde satu semu untuk adsorpsi tetrasiklin HCL oleh MCM-48 setelah dicuci 3 kali oleh MCM-48-C1 nilai  $R^2$  yang diperoleh adalah 0,9839. Nilai  $R^2$  untuk

model kinetika orde dua semu adalah 0,999. Nilai  $q_e$  yang diperoleh dari model kinetika orde satu semu adalah 0,98 mg/g dan dari model kinetika orde dua semu adalah 4,27 mg/g.



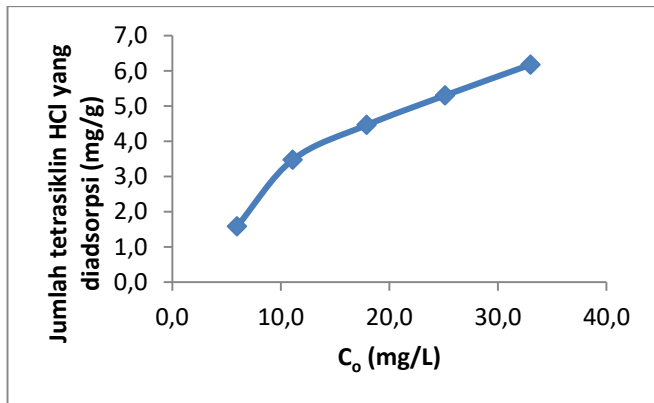
Gambar 6. Model kinetika (a) orde satu semu dan (b) orde dua semu untuk adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48

Nilai  $q_e$  yang diperoleh dari eksperimen adalah 4,21 mg/g. Meskipun nilai  $R^2$  yang diperoleh dari kedua model mendekati satu tetapi nilai  $q_e$  yang diperoleh dari model kinetika orde dua semu mendekati nilai  $q_e$  yang diperoleh dari eksperimen. Nilai  $q_e$  yang diperoleh dari model kinetika orde satu semu jauh lebih kecil daripada yang diperoleh dari eksperimen. Hal ini menunjukkan bahwa adsorpsi tetrasiklin HCL oleh MCM-48 setelah dicuci 3 kali mengikuti model kinetika orde dua semu dengan nilai tetapan  $k_2$  0,36 g.mg<sup>-1</sup>.menit<sup>-1</sup>. Debnath dkk (2020) juga mendapatkan kinetika orde dua semu untuk adsorpsi tetrasiklin pada nanopartikel zirkonia. Hasil yang sama dilaporkan oleh beberapa peneliti dengan menggunakan adsorben yang lain (Yu dkk, 2018, Li dkk, 2020, Zhang dkk, 2020)

*Kapasitas Adsorpsi Metilen Biru oleh Silika Mesopori (MCM-48)p*

Gambar 7 menunjukkan jumlah tetrasiklin yang diadsorpsi sebagai fungsi konsentrasi awal tetrasiklin HCl. Jumlah yang diadsorpsi

meningkat dengan meningkatnya konsentrasi awal dan belum menunjukkan jumlah yang tetap pada batas konsentrasi tertinggi yang digunakan.

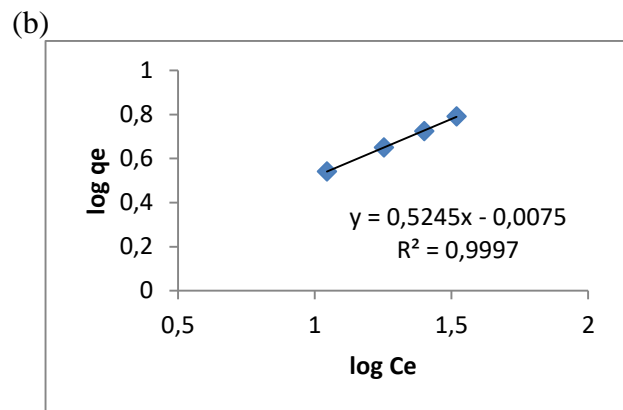
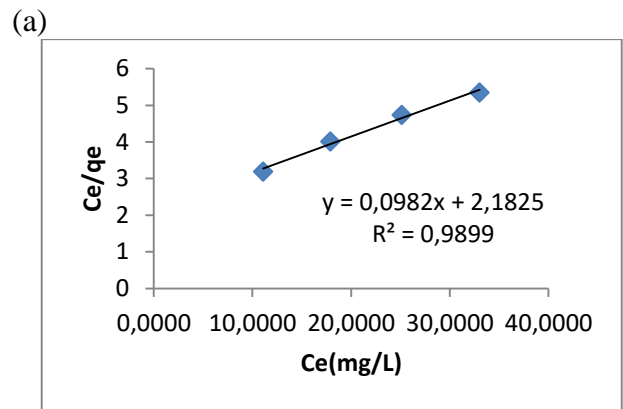


Gambar 7. Jumlah tetrasiklin HCl yang diadsorpsi sebagai fungsi konsentrasi awal larutan tetrasiklin HCl

Jadi untuk menentukan kapasitas adsorpsi, isoterm Langmuir dan Freundlich digunakan. Gambar 8 menunjukkan isoterm Langmuir dan Freundlich pada adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 setelah pencucian 3 kali. Berdasarkan nilai garis kuadrat terkecil ( $R^2$ ), adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 setelah pencucian 3 kali lebih sesuai dengan isotermal Freundlich ( $R^2 = 0,9475$ ). Berdasarkan isoterm Freundlich, kapasitas adsorpsi yang diperoleh adalah 0,98 mg/g dan nilai  $1/n = 0,52$ . Beberapa peneliti juga melaporkan isoterm Freundlich lebih sesuai untuk adsorpsi tetrasiklin dengan menggunakan adsorben yang berbeda (Li, 2018, Kong dkk, 2020. Prarat, 2020). Umumnya, nilai  $1/n$  adalah antara 0 dan 1, nilai ini menunjukkan pengaruh konsentrasi pada kapasitas adsorpsi. Makin kecil nilai  $1/n$  makin baik kinerja adsorpsi: umumnya untuk  $1/n$  antara 0,1 dan 0,5, zat mudah diadsorpsi; untuk  $1/n > 2$ , zat sulit diadsorpsi. Nilai  $1/n$  yang diperoleh pada penelitian ini adalah 0,52 yang menunjukkan bahwa adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 cukup mudah (Benkaddour dkk, 2019).

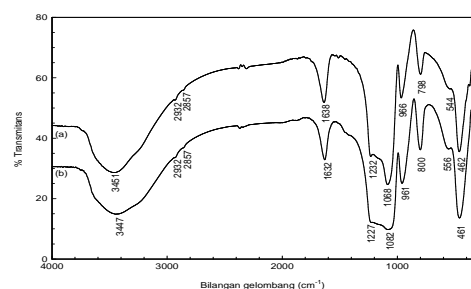
Jumlah tetrasiklin yang diadsorpsi oleh MCM-48 setelah pencucian 3 kali lebih rendah dibandingkan yang diperoleh peneliti lain (Li, 2018, Kong dkk, 2020. Prarat, 2020). Hal ini disebabkan permukaan MCM-48 lebih polar dibandingkan adsorben yang digunakan oleh peneliti tersebut. Jadi, permukaan MCM-48 perlu

dimodifikasi sehingga dapat lebih efektif dalam mengadsorpsi tetrasiklin HCl.



Gambar 8. Isoterm (a) Langmuir dan (b) Freundlich dari adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 setelah pencucian 3 kali

Gambar 9 menunjukkan spektra FTIR sebelum dan setelah adsorpsi tetrasiklin HCl.



Gambar 9. Spektra FTIR (a) sebelum adsorpsi dan (b) setelah adsorpsi. Puncak serapan setelah adsorpsi tetrasiklin HCl relatif sama dengan puncak serapan sebelum adsorpsi. Hal ini menunjukkan bahwa adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 merupakan adsorpsi fisika.

### Kesimpulan

Adsorpsi tetrasiklin HCl oleh MCM-48 mencapai kesetimbangan pada waktu 20 menit. Proses adsorpsi berjalan sesuai dengan kinetika orde dua semu dengan tetapan laju  $0,36 \text{ g.mg}^{-1}.\text{menit}^{-1}$ . Adsorpsi antibiotik tersebut lebih memenuhi isoterm Freundlich dibandingkan isoterm Langmuir dengan kapasitas adsorpsi  $0,98 \text{ mg.g}^{-1}$ .

### UCAPAN TERIMAKASIH

Ucapan terimakasih disampaikan kepada Menristek untuk hibah penelitian Magister yang diperoleh.

### Daftar Pustaka

- Aminov, R. 2017. History of Antimicrobial Drug Discovery: Major Classes and Health Impact. *Biochem. Pharmacol.* 133: 4-19.
- Barton, M.D. 2000. Antibiotic Use in Animal Feed and its Impact on Human Health. *Nutr. Res. Rev.* 13: 279-299.
- Benkaddour, S., Slimani, R., Hiyane, H., Ouahabi, I.E., Hachoumi, I. 2018), Removal of reactive yellow 145 by adsorption onto treated watermelon seeds: kinetic and isotherm studies, *Sustain. Chem. Pharm.* 10, 6–21.
- Boxall, A.B.A. 2004. The Environmental Side Effects of Medication. *EMBO Rep.* 5: 1112-1116.
- Chen, F., Huang, L., and Li, Q., 1997, Synthesis of MCM-48 Using Mixed Cationic–Anionic Surfactants as Templates, *Chem. Mater.* 9, 2685-2686.
- Debnath, B., Majumdar, M., Bhowmik, M., Bhowmik, K. L., Debnath, A., and Roy, D. N., 2020, The effective adsorption of tetracycline onto zirconia nanoparticles synthesized by novel microbial green technology, *J. Environ. Manag.* 261, 110235.
- Dehghan, A., Zarei, A., Jaafari, J., Shams, M. dan Khaneghah, A.M. 2019. Tetracycline Removal from Aqueous Solutions using Zeolit Imidazolate Frameworks with Different Morphologies: A Mathematical Modeling. *Chemosphere.* 217: 250-260.
- Fair, J.R. dan Tor, Y. 2014. Antibiotics and Bacterial Resistance in the 21st Century. *Perspect Medicinal Chem.* 6:25-64.
- Fei, Z., Ai, S., Zhou, Z., Chen, X., Tang, J., Cui, M., Qiao, X., 2014, Enhanced activity of MCM-48 based tin catalyst for synthesis of 3-methylbut-3-en-1-ol by adjusting the mesochannel environment, *Journal of Ind. Eng. Chem.*, 20(6), 4146-4151.
- Felix, A.M.H., Flores, C.A., Cruz, A.M., Barandiaran, J.M, Guzman, S.S. dan Silva, R.C. 2019. Removal of Tetracycline Pollutants by Adsorption and Magnetic Separation Using Reduced Graphene Oxide Decorated with  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  Nanoparticles. *Nanomaterials.* 9: 1-14.
- Gao, Y., Li, Y., Zhang, L., Huang, H., Hu, J., Shah, S.M. dan Su, X. 2012. Adsorption and Removal of tetracycline Antibiotics from Aqueous Solution By Graphene Oxide. *J. Colloid and Interface Sci.* 368: 540-546.
- Ghadim, E.E., Manouchehri, F., Soleimani, G., Hosseini, H., Kimiagar, S. dan Nafisi, S. 2013. Adsorption Properties of Tetracycline onto Graphene Oxide: Equilibrium, Kinetic and Thermodynamic Studies. *PLoS ONE.* 8: 1-9.
- Hao, R., Xiao, X., Zuo, X., Nan, J., Zhang, W. 2012. Efficient Adsorption and Visible-Light Photocatalytic Degradation of Tetracycline Hydrochloride Using Mesoporous Bio-microspheres. *J. Hazard. Mater.* 209: 137–145.
- Junyu, Z., Zefeng, S. dan Yuesuo, Y. 2019. Preparation of Low-Cost Sludge Based Mesoporous Carbon and Its Adsorption of Tetracycline Antibiotics. *Water Sci. Technol.* 79: 676-687.
- Karami, N., Nowrouzian, F., Adlerberth, I. dan Wold, A.E. 2006. Tetracycline Resistance in *Escherichia coli* and Persistence in The Infantile Colonic Microbiota. *Antimicrob. Agents Chemother.* 50: 156-161.
- Khanmohammadi, M., Shahrouzi, J.R. dan Rahmani, F. 2020. Insight into Mesoporous MCM-41 Supported Titania Decorated with CuO Nanoparticles for Enhanced Photodegradation of Tetracycline Antibiotic. *Environ. Sci. Pollut. Res. Int.*
- Kim, K.R., Owens, G., Kwon, S.I., So, K.H., Lee, D.B. dan Ok, Y.S. 2011. Occurrence and Environmental Fate of Veterinary Antibiotic

- in The Terrestrial Environment. *Water Air Soil Pollut.* 214: 163-174.
- Kong, Y., Zhuanga, Y., Hana, K., and Shi, B., 2020, Enhanced tetracycline adsorption using alginate-graphene-ZIF67 aerogel, *Colloids Surf. A*, 588, 124360.
- Li, M.F., Liu, Y.G., Liu, S.B., Zeng, G.M., Hu, X.J., Tan, X.F., Jiang, L.H., Liu N., Wen, J., Liu, X.H., 2018, Performance of magnetic grapheneoxide/diethylenetriaminepenta-acetic acid nanocomposite for the tetracycline and ciprofloxacin adsorption in single and binary systems. *J. Colloid Interface Sci.* 521, 150–159
- Li, J., Han, J., Meng, F., Jiang, J., Li, J., Xu, C. dan Li, Y. 2019. Mesoporous Bimetallic Fe/Co as Highly Active Heterogeneous Fenton Catalyst for the Degradation of Tetracycline Hydrochlorides. *Sci, Rep.* 9: 1-11.
- Li, K., Li, J., Zhao, N., Ma, Y., and Di, B., 2020, Removal of Tetracycline in Sewage and Dairy Products with High-Stable MOF, *Molecules*, 25, 1312
- Macasai, M. dan Mojica, G. 2013. Medical Management of Ocular Surface Disease. *Ocular Surface Disease: Cornea, Conjunctiva and Tear Film* 1st Edition. 271-281.
- Marzbali, M.H., Esmaili, M., Abolghasemi, H. dan Marzbali, M.H. 2016. Tetracycline adsorption by H3PO4-Activated Carbon Produced from Apricot Nut Shells: A Batch Study. *Process Saf. Environ. Prot.* 102: 700-709.
- Mispagel, H. dan Gray, J.T. Antibiotic Resistance from Wastewater Oxidation Ponds. *Water Environ. Res.* 77: 2996-3002.
- Miyata, M., Ihara, I., Yosida, G., Toyod, K. dan Umetsu, K. 2011. Elektrochemical Oxidation of Tetracycline Antibiotics using a Ti/IrO<sub>2</sub> Anode for Wastewater Treatment of Animal Husbandary. *Water Sci. Technol.* 63: 456-461.
- Mohammed, A.A. dan Kareem, S.L. 2019. Adsorption of Tetracycline from Wastewater by Using Pistachio Shell Coated with ZnO Nanoparticles: Equilibrium, Kinetic and Isotherm Studies. *Alex. Eng. J.* 58: 917-928.
- Nairi, V., Medda, L., Monduzzi, M. dan Salis, A. 2017, Adsorption and Release of Ampicillin Antibiotic from Ordered Mesoporous Silica, *J. Colloid Interface Sci.* 497: 217-225.
- Pachauri, P., Falwariya, R., Vyas, S., Maheswari, M., Vyas, R.K. dan Gupta, A.B. 2009. Removal of Amoxicillin in Wastewater using Adsorption by Powdered and Granular Activated Carbon and Oxidation with Hydrogen Peroxide. *Nat. Environ. Pollut. Technol.* 8: 481-488.
- Prarat, P., Hongswat, P., Punyapalakul, P., 2020. Amino-functionalized mesoporous silica-magnetic graphene oxide nanocomposites as water-dispersible adsorbents for the removal of the oxytetracycline antibiotic from aqueous solutions: adsorption performance, effects of coexisting ions, and natural organic matter. *Environ. Sci. Pollut. Res. Int.* 27, 6560–6576.
- Ouaissa, Y.A., Chabani, M., Amrane, A. dan Bensmaili, A. 2014. Removal of Tetracycline by Electrocoagulation: Kinetic and Isotherm Modeling Through Adsorption. *J. Environ. Chem. Eng.* 2: 177-184.
- Rizzi, V., Lacalamita, D., Gubitosa, J., Fini, P., Patrella, A., Romita, R., Agostiano, A., Gabaldon, J.A., Gorbe, M.I.F., Morte, T.G. dan Cosma, P. 2019. Removal of Tetracycline from Polluted Water by Chitosan Olive Pomace Adsorbing Film. *Sci. Total Environ.* 63: 1-12.
- Santos, L.H.M.L.M., Gros, M., Mozaz, S.R., Matos, C.D., Pena, A., Barcelo, D. DAN Montenegro, M.C.B.S.M. Contribute of Hospital Effluent to The Load of Pharmaceuticals in Urban Wastewater; Identification of Ecologically Relevant Pharmaceuticals. *Sci. Total Environ.* 461-462: 302-3016.
- Sapkota, M., Sapkota, A.R., Kucharski, M., Burke, J., McKenzie, S., Walker, P. Dan Lawrence, R. 2008. Aquaculture Practice and Potential Human Health Risk: Current Knowledge and Future Priorities. *Environ. Int.* 34: 1215-1226.
- Shimizu, A., Takada, H., Koike, T., Takeshita, A., Saha, M., Rinawati., Nakada, N., Murata, A., Suzuki, T., Chiem, N.H., Tuyen, B.C., Viet, P.H., Siringan, M.A., Kwan. C., Zakarria., M.P. dan Reungang, A. 2013. Ubiquitous

- Occurrence of Sulfonamides in Tropical Asian Water. *Sci. Total Environ.* 452-453: 108-115.
- Taba, P., Budi, P., Sari, A.Y.P., 2017, Adsorption of Heavy Metals on Amine-Functionalized MCM-48, *Proceeding International Symposium on Current Progress in Functional Materials, July 26-27, Denpasar Bali*
- Taba, P., Mustafa, R.D.P., Ramang, L.M., Kasim, A.H., 2018, Adsorption of Pb<sup>2+</sup> on Thiol-functionalized Mesoporous Silica, SH-MCM48, *Journal of Physics, Conference Series*, 979, 012058, doi :10.1088/1742-6596/979/1/012058
- Torrellas, A.A., Ribeiro, R.S., Gomes, H.T. Ovejero, G. dan Garcia, J. 2016. Removal of Antibiotic Compound by Adsorption Using Glycerol Based Carbon Materials. *Chem. Eng. J.* 296: 277-288.
- Wang, N., Xiao, W., Niu, B., Duan, W., Zhou, L. dan Zheng, Y. 2019. Highly Efficient Adsorption of Fluoroquinolone Antibiotics using Chitosan Derived Granular Hydrogel with 3D Structure. *J. Mol. Liq.* 281: 307-314.
- Wang, R.Z., Huang, D.L., Liu, Y.G., Zhang, C., Lai, C., Wang, X., Zeng, G.M., Zhang, Q., Gong, M.X. dan Xu, P. 2020. Synergistic Removal of Copper and Tetracycline from Aqueous Solution by Steam Activated Bamboo Biochar. *J. Hazard. Mater.* 384: 1-10
- WHO. 2020. Antimicrobial Resistance. World Health Organization.
- Yang, S. dan Carlson, K. 2003. Evolution of Antibiotic Occurrence in a River Through Pristine, Urban and Agricultural Landscape. *Water Res.* 37: 4645-4656.
- Yu, L.L., Cao, W., Wu, S.C., Yang, C., Cheng, J.H., 2018. Removal of tetracycline from aqueous solution by MOF/graphite oxide pellets: preparation, characteristic, adsorption performance and mechanism. *Ecotoxicol. Environ. Saf.* 164, 289-296.
- Zhang, X.X., Zhang, T. dan Fang, H.H.P. 2009. Antibiotic Resistance Genes in Environment. *Appl Microbiol Biotechnol.* 82: 397-414.
- Zhang, Z., Lan, H., Liu, H., Li, H. dan Qu, J. 2015. Iron-incorporated Mesoporous Silica for Enhanced Adsorption of Tetracycline in Aqueous Solution. *RSC Adv.* 1-8.
- Zhang, Z., Ding, C., Li, Y., Ke, H., and Cheng, G., 2020, Efficient removal of tetracycline hydrochloride from aqueous solution by mesoporous cage MOF-818, *SN Appl. Sci.*, 2, 669.
- Zhao, Y., Geng, J., Wang, X., Gu, X. dan Gao, S. 2011. Adsorption of Tetracycline on to Goethite in The Presence of Metal Cations and Humic Substances. *J. Colloid Interface Sci.* 361: 247-251.



# Indonesian Journal of Chemical Research

Indo. J. Chem. Res.

<http://ojs3.unpatti.ac.id/ijcr>, email: [ijcr@fmipa.unpatti.ac.id](mailto:ijcr@fmipa.unpatti.ac.id)



## Surat Keterangan

Nomor: 28/ijcr/11.2/2020

Tim Editor Indonesian Journal of Chemical Research dengan ini menerangkan bahwa artikel yang berjudul: *Adsorption of Tetracycline Hydrochloride from Solutions using Mesoporous Silica, MCM-48* (Penulis: Mutmainnah, Yusafir Hala, Paulina Taba).

## Telah Siap Terbit

Pada terbitan Indonesian Journal of Chemical Research Volume 8 No 3, Januari 2021

Ambon, 11 November 2020



Indexing



ASEAN  
CITATION  
INDEX



Dokumen pendukung luaran Tambahan #1

Luaran dijanjikan: Artikel di Jurnal Internasional Terindeks di Pengindeks Bereputasi

Target: Accepted

Dicapai: Accepted

Dokumen wajib diunggah:

1. Naskah artikel
2. Surat keterangan accepted dari editor

Dokumen sudah diunggah:

1. Naskah artikel
2. Surat keterangan accepted dari editor

Dokumen belum diunggah:

-

Nama jurnal: International Journal of Physics: Conference Series

Peran penulis: corresponding author | EISSN: 17426588, 17426596

Nama Lembaga Pengindek: Scopus

URL jurnal: <https://iopscience.iop.org/journal>

Judul artikel: Adsorption of Sulfamethoxazole from Solution by Mesoporous Silica MCM-48

# Adsorption of Sulfamethoxazole from Solution by Mesoporous Silica MCM-48

Mutmainnah<sup>1</sup> Yusafir Hala<sup>1</sup> and Paulina Taba<sup>1, a)</sup>

(Use Times New Roman Font: 14 pt, Centered) (Names should be written in First Name Surname order)

<sup>1</sup>*Department of Chemistry, Faculty of Mathematics and and Natural Sciences, Hasanuddin University, 90245, Makassar-Indonesia*

<sup>a)</sup> Corresponding author: *paulinataba@unhas.ac.id*

**Abstract.** Mesoporous silica with cubic structures, MCM-48 was synthesized using Ludox HS40 and cetyl trimethylammonium bromide (CTAB) as a source of silica and template, respectively. The MCM-48 obtained was used to adsorb the SMX antibiotic. The morphology of MCM-48 was observed using SEM-EDX and functional groups of MCM-48 were observed using FTIR. The parameters used to study the adsorption process are contact time and concentration. Second order kinetics were found to be the order kinetics corresponding to SMX adsorption. Freundlich isotherm was better than Langmuir isotherm with an adsorption capacity of 2.2223 mg g<sup>-1</sup>.

## INTRODUCTION

Sulfamethoxazole (SMX) is a synthetic antibiotic belonging to the sulfonamide group which is bacteriostatic [1-2]. The chemical name of SMX is known as 4-amino-N- (5-methyl-3-isoxazolyl) -benzenesulfonamide with the molecular formula being C<sub>10</sub>H<sub>11</sub>N<sub>3</sub>O<sub>3</sub>S (3-4). SMX is commonly used to prevent or treat infections such as urinary tract infections, bronchitis, and prostatitis in humans [3-4]. In addition, SMX is also widely used in the livestock and aquaculture industry because it is effective against gram-negative and gram-positive bacteria [5]. However, the widespread use of sulfamethoxazole leads to antibiotic resistance. Several studies have shown bacterial resistance to SMX, such as *E. coli* and *E. cloacae* which were resistant to SMX > 30%, *S. malthophilia* was also found to be resistant to SMX [6-7].

Antibiotic resistance occurs due to the low metabolism of antibiotics in humans and animals, so that some of the antibiotics consumed are excreted and eventually enter the environment [8-10]. SMX in water in Vietnam was found to be 0.04-2.39 ppm, SMX in Korea was found to be 0.95 µg / L and SMX was found in sewage at urban sewage treatment plants in Italy at 127.2 ng / L [11-13]. Therefore, it is very important to develop effective techniques to remove tetracyclines from contaminated waste before discharge to the aquatic environment. Various techniques such as electrochemical oxidation [14], fenton process [15], photodegradation [16], electrochemical degradation [17] and adsorption [18] have been carried out. Adsorption is considered an effective method because of its high efficiency, cheapness and simplicity in removing contaminants [19]. Several adsorbents have been used to remove SMX such as modified amines [20], cellulose [21], activated carbon [22] and mesoporous silica-mGO [23].

Mesoporous silica is a material that has a high surface area, high pore volume, narrow pore size distribution, and has high biocompatibility. Mesoporous silica which has a pore size of 2-30 nm with a cubic-3D structure and is one type of mesoporous silica is MCM-48 [4]. Synthesis of MCM-48 using Cetyltrimethyl ammonium bromide (CTAB) and Ludox HS40 as surfactants and a source of silica. Characterization of MCM-48 obtained using Fourier Transform Infrared (FTIR) and Scanning Electron Microscope (SEM). The effect of parameters on SMX adsorption, such as

contact time and concentration was investigated. Langmuir and Freundlich adsorption isothermal models, pseudo-first order and pseudo-second order kinetic models were also studied.

## METHODS

### Materials

The materials used in this study were Cetytrimethylammonium Bromide (CTAB, Sigma Aldrich), Ludox HS40 (Sigma Aldrich), Triton X-100 (Sigma Aldrich), sulfamethoxazole (C<sub>10</sub>H<sub>11</sub>N<sub>3</sub>O<sub>3</sub>S, Sigma Aldrich), acetic acid (CH<sub>3</sub>COOH, Merck), sodium hydroxide. (NaOH, Merck), ethanol (C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH, Merck).

### Synthesis of MCM-48

Synthesis of MCM-48 followed Ryoo's (1999) procedure with modification of Taba [25].

### Characterization of MCM-48

Characterization of functional groups of MCM-48 was analyzed using Fourier Transform Infrared Spectrophotometer (FTIR). The transmission spectrum is measured in the range 4000–250 cm<sup>-1</sup>. The morphology of the MCM-48 was analyzed using Scanning Electron Microscope-Energy Dispersive X-Ray (SEM-EDX).

### Adsorption of SMX

Antibiotic SMX was used to evaluate the adsorption performance of antibiotics in water by MCM-48. Contact time was investigated by weighing 0.1 g of MCM-48 added in 50 mL of 50 ppm SMX solution with a time range of 3-240 minutes. For concentration, 0.1 g MCM-48 is added to 50 mL of sulfamethoxazole solution with a concentration between 50-300 ppm. The whole process is carried out under stirring conditions. Then the absorbance of SMX was measured using a UV-Vis spectrophotometer (Shimadzu-1800 Series) at a wavelength of 260 nm.

### Kinetics Model

Pseudo first-order and pseudo-second order kinetic models were used to interpret experimental kinetics data. The pseudo-first and second-order kinetics models can be seen in equations (1) and (2) as follows:

$$\frac{dq}{dt} = k_1(q_e - q) \quad (1)$$

$$\frac{dq}{dt} = k_2(q_e - q)^2 \quad (2)$$

If equations (1) and (2) are integrated, the following equation will be obtained:

$$\ln\left(\frac{q_e - q}{q_e}\right) = -k_1 t \quad (3)$$

$$\frac{t}{q} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e} \quad (4)$$

Where  $q_e$  and  $q$  is the amount of antibiotic adsorbed (mg g<sup>-1</sup>) at equilibrium and at a certain time.  $k_2$  And  $k_1$  are rate constants of pseudo-first and pseudo-second order, respectively [26].

### Adsorption Equilibrium

The antibiotic adsorption capacity at equilibrium ( $q_e$ ) is determined as in equation (5). Where,  $C_0$  is initial concentrations and  $C_e$  is the concentrations at equilibrium in solution (mg L<sup>-1</sup>).

$$q_e = \frac{(C_0 - C_e)V}{w} \quad (5)$$

Langmuir and Freundlich isotherms were used to describe the interaction between antibiotics and MCM-48 as in equations (6) and (7).

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{q_m K_L} + \frac{C_e}{q_m} \quad (6)$$

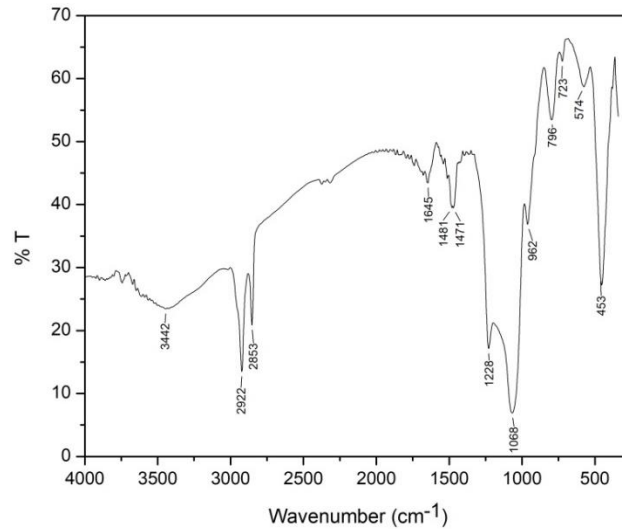
$$\log q_e = \log K_F + \frac{1}{n} \log C_e \quad (7)$$

Where  $q_m$  dan  $q_e$  are the adsorption capacities of the adsorption isotherms ( $\text{mg g}^{-1}$ ) of Langmuir and Freundlich.  $K_L$  is a dimensionless Langmuir constant. Whereas  $K_F$  and  $1/n$  are constants that show relative adsorption capacity and dimensionless capacity which indicates the intensity of the adsorption process [27].

## RESULT AND DISCUSSION

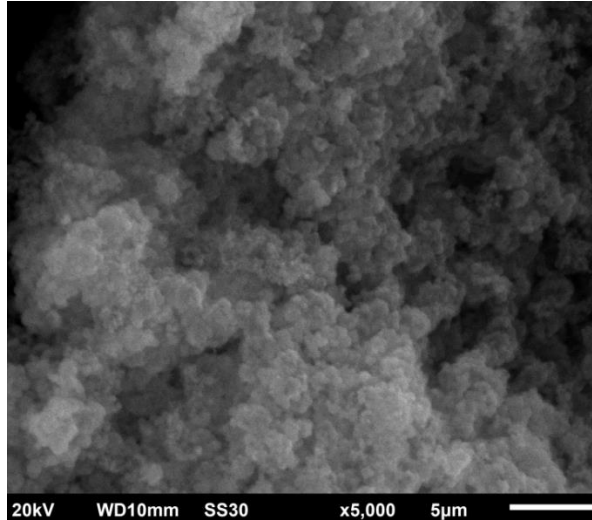
### Characterization of MCM-48

The FTIR spectrum of MCM-48 in Fig. 1 shows the presence of absorption bands at wavenumbers 453 and 796  $\text{cm}^{-1}$ , which are Si-O-Si symmetric stretching vibrations and Si-O-Si bending vibrations. The stretching vibrations of Si-O and Si-OH with a weak absorption band are seen at the wavenumber 962  $\text{cm}^{-1}$ . The strong absorption band at wavenumbers 1068 and 1228  $\text{cm}^{-1}$  is the Si-O-Si stretching vibration. The stretched C-H vibration was seen in the 1471 and 1481  $\text{cm}^{-1}$  absorption bands. The stretched C-H vibration was seen at wavenumbers 2853 and 2922  $\text{cm}^{-1}$ , respectively, -CH<sub>2</sub> symmetric and -CH<sub>2</sub> groups were antisymmetric. The wide peak at wave number 3442  $\text{cm}^{-1}$  is the stretching vibration -OH and the bending vibration -OH seen at wave number 1645  $\text{cm}^{-1}$ .



**FIGURE 1.** FTIR spectrum of MCM-48

The morphology of the MCM-48 was proven by observation using SEM. Fig. 2 shows that MCM-48 is a spherical particle. The particle size distribution of MCM-48 can also be seen in Fig. 2. In addition, the morphology of the MCM-48 obtained has a regular shape. This is consistent with several observational results that have been reported [28-29].

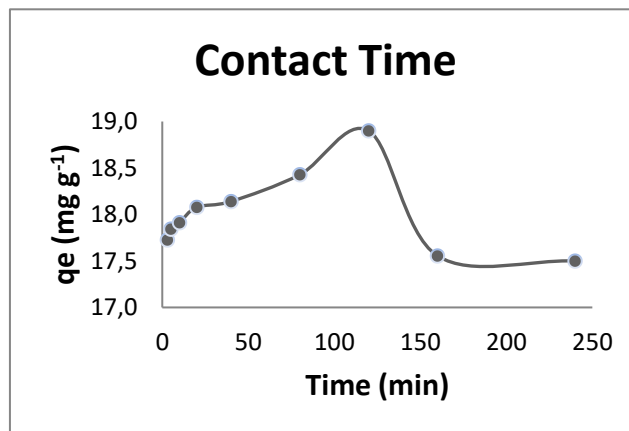


**FIGURE 2.** SEM image of MCM-48

## Study Adsorption of SMX

### Contact Time and Adsorption Kinetics of SMX

The adsorption of SMX increases with increasing adsorption time up to 120 minutes. After that, the adsorption of SMX has decreased as shown in Fig. 3. This indicates that the adsorption has reached equilibrium at 120 minutes. Thus, the optimum adsorption time of sulfamethoxazole is 120 minutes.

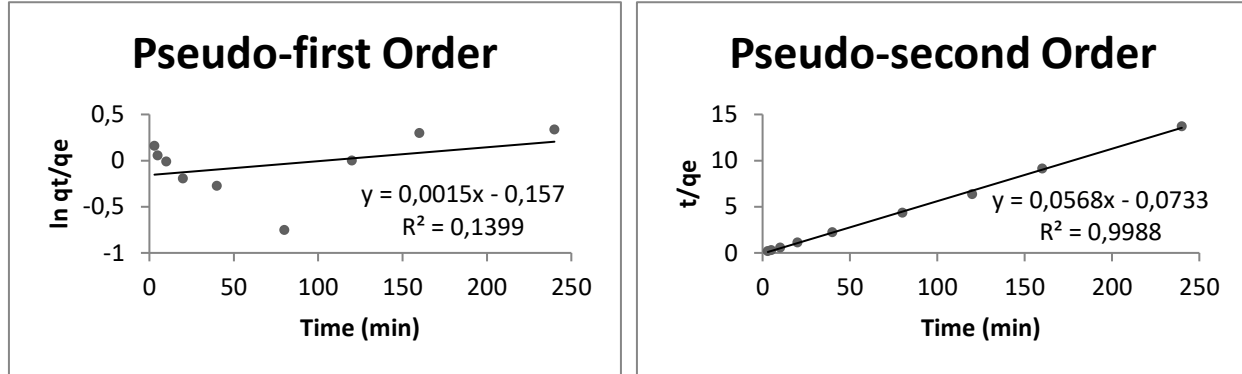


**FIGURE 3.** Contact Time of SMX

The adsorption kinetics of SMX were studied using pseudo-order and pseudo-second order equations. Tab. 1 presents the kinetic parameters obtained from the slope and intercept of pseudo-first order (Fig. 4) and pseudo-second order (Fig. 4). The pseudo-first order kinetic model shows a lower  $R^2$  value (0.1399) compared to the pseudo-second order (0.9988). The adsorption capacity obtained from pseudo-first order kinetics and pseudo-second order kinetics were  $0.8547 \text{ mg g}^{-1}$  and  $17.6056 \text{ mg g}^{-1}$ , respectively. Where, the adsorption capacity of the pseudo-second order kinetics model is greater and closer to the adsorption capacity of the experiment, which is  $18 \text{ mg g}^{-1}$ . This proves that the adsorption of SMX with MCM-48 follows a pseudo-second order kinetics model with a constant  $k_2$  value of  $0.042 \text{ g mg}^{-1} \text{ min}^{-1}$ .

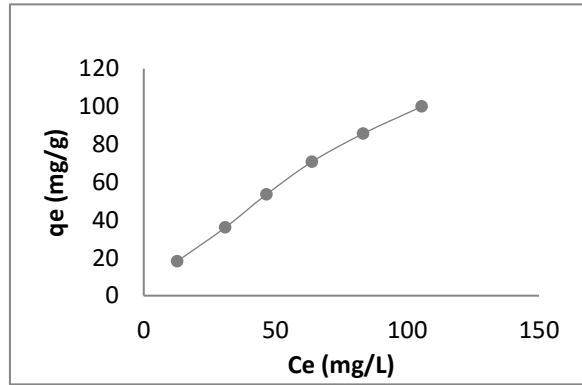
**TABLE 1.** Kinetics data of SMX

Studi Kinetika adsorpsi	Pseudo-first Order			Pseudo-Second Order		
	$q_e$ ( $\text{mg g}^{-1}$ )	$k_1$ ( $\text{min}^{-1}$ )	$R^2$	$q_e$ ( $\text{mg g}^{-1}$ )	$K_2$ ( $\text{g mg}^{-1} \text{min}^{-1}$ )	$R^2$
SMX-MCM-48	0,8547	0,0015	0,1399	17,6056	0,0442	0,9988

**FIGURE 4.** Pseudo-first and Pseudo-second order kinetics models

### Adsorption Capacity and Isotherm Adsorption

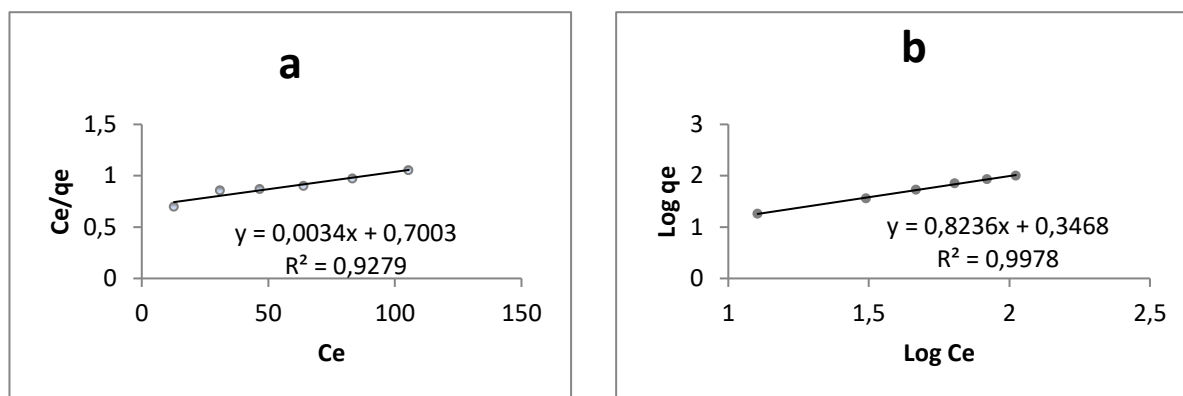
Concentration is one of the parameters that affects the adsorption capacity [30]. The effect of the initial SMX concentration on the adsorption process was studied and the results for the adsorption capacity are presented in Fig. 5. The adsorption capacity for SMX increased with the increase in the initial SMX concentration.

**FIGURE 5.** Initial Concentration of SMX

The SMX adsorption process on MCM-48 was evaluated using Langmuir and Freundlich isotherms (Fig. 6). Isotherm parameters are calculated using Equations (6) and (7) and are presented in Tab. 2. The SMX correlation coefficient (0.9978) in Tab. 2, shows that the Freundlich model is more suitable than the Langmuir model, with an adsorption constant ( $K_F$ ) of  $2.2223 \text{ mg g}^{-1}$  and  $1/n$  0.8236. The suitability of the Freundlich isotherm for SMX adsorption has been previously reported [31].

**TABLE 2.** Isotherm Modeling of SMX Adsorption

$Q_{\text{maks}}(\text{mg g}^{-1})$	Langmuir Model			Freundlich Model		
	$K_L(\text{L mg}^{-1})$	$R^2$	$K_F(\text{mg g}^{-1})$	$1/n$	$R^2$	
294,11	0,004	0,9279	2,2223	0,8236	0,9978	



**FIGURE 6.** Langmuir dan Freundlich Isotherm for SMX adsorption

The amount of SMX adsorbed on MCM-48 was higher than that obtained by other investigators [32]. This occurs because MCM-48 has a larger pore area than the adsorbent used by the researcher.

## CONCLUSION

Adsorption of SMX on MCM-48 reached equilibrium at 120 minutes. The adsorption process was following pseudo-second-order kinetics with a rate constant of  $0.0442 \text{ g mg}^{-1} \text{ min}^{-1}$ . The adsorption of SMX by MCM-48 fulfilled the Freundlich isotherm better than that of Langmuir with an adsorption capacity of  $2,223 \text{ mg g}^{-1}$ .

## ACKNOWLEDGMENTS

The author would like thanks to the Ministry of Research Technology and Higher Education of Indonesian on master's thesis program fund grand funding in 2020.

## REFERENCES

1. F Shamsa and L Amani, Iran. J. Pharm. Res. **1**, 31-36 (2006).
2. E Caliskan and S Goktur, Separation Sci. Tech. **45**, 244-5 (2010).
3. F E B Silva, W R Almeida, F R Paula, A L H Muller, E M M Flores and M F Ferrao, Drug Anal. Res. **01**, 15-23 (2017).
4. Z S Mehdi, J. Biol. Chem. **3**, 63-74 (2015).
5. H S Khalaf, A M A Al-Haidari, S B Dikran and A K Mohammed, Pure App. Chem. **25**, 515-524 (2017).
6. C R Kiffer, C Mendes, C P Oplustil and J L, City Int. Braz J Urol. **33**, 42-49 (2007).
7. A M Al-Jasser, Ann. Clin. Microbiol. Antimicrob. **5**, 1-3 (2006).
8. K.R Kim, G Owens, S I Kwon, D B Lee and Y S Ok, Water Air Soil Pollut. **214**, 163-74 (2011)
9. L H M L M Santos, M Gros, S R Mozaz, C D Matos, A D Barcelo and M C B S M Montenegro, Sci. Total Environ. **461-462**, 302-316.
10. N Wang, W Xiao, B Niu, W Duan, L Zhou and Y Zheng, J. Mol. Liq **281**, 307-314 (2019).
11. T X Le and Y Munekage, Mar Pollut. Bul. **49** 922-929 (2004).
12. Y Kim, K Choi, J Jung, S Park, P G Kim and J Park, Environ. Int. **33**, 370-375 (2007).
13. E Zuccato, S Castiglioni and R Fenelli, J. Hazard. Mater. **122**, 205-209 (2005).
14. H Hai, X Xing, S Li, Xia and J Xia, Sci. Total Environ. **738**, 1-11 (2020).
15. A P Sarmento, A C Borges, A T Matos and L L Romualdo, Water **12**, 1-13 (2020)
16. A G Trovo, R F P Nogueira, A Aguera, C Sirtori and A R Fernandes-Alba, Chemosphere **77** 1292-1298 (2009).
17. K P Amorim, L L Romualdo and L S Andrade, Sep. Purif. Technol. **120** 319-327 (2013).
18. X Zhang, B Pan, K Yang, D Zhang and J Hou, J. Environ. Sci. Health A **45**, 1-10 (2010).
19. M Bizi, Molecules **25**, 1-18 (2020).

20. C Ling, X Li, Z Zhang, F Liu, Y Deng, X Zhang, A Li, L He and B Xing *Environ. Sci. Technol.* **50** 1-32 (2016).
21. L Zheng, D Peng, S Zhang, Y Yang, L Zhang and P Meng, *Environ. Sci. Pollut. Res.* **27**, 43246-43261 (2020).
22. L Nielsen, M J Biggs, W Skinner and T J Bandosz, *Carbon* **80**, 419-432 (2014).
23. N Ninwiew, P Hongsawat, P Punyapalakul and P Prarat, *Colloids Surf. A Physicochem. Eng. Asp.* **580**, 1-12 (2019).
24. K Wang, Y Lin, M A Morris and J D Holmes, *J. Mater. Chem.* **16**, 4051-4057 (2006).
25. P Tab, *Mak. Journ. Sains.* **12**, 120-125 (2008).
26. J D M Diaz, G P Joya, J R Utrilla, R L Ramos, M S Polo, M A F Garcia and N A M Castillo, *J. Colloid Interface Sci.* **345**, 481-490 (2010).
27. M S Abesekara, K N R Kosvinna and Amarasinghe, *IOP Conf. Ser.: Earth Environ.* **427**, 1-8 (2020).
28. W Zolopa, I M Zaablocka, A Basa and K Winkler, *Chem. Heterocycl. Compnd.* **53**, 76-86 (2017).
29. K Zhang, E H Yuan, L L Xu, Q S Xue, C Luo, B Albela and L Bonneviot, *Eur. J. Inorg. Chem.* **2012**, 1-8 (2012).
30. V O Shikuku, R Zanella, C O Kowenje, F F Donato, N M G Bandeira and O D Prestes, *Appl. Water Sci.* **8**, 164-175 (2018).
31. X Liu, S Lu, Y Liu, W Meng and B Zheng, *RSC adv.* **7**, 50449-50458 (2017).
32. L Zheng, D Peng, S Zhang, Y Yang, L Zhang and P meng, *Environ. Sci. Pollut. Res.* **27**, 43246-43261 (2020).

November 4<sup>th</sup>-5<sup>th</sup>, 2020  
Virtual conference

<https://icbs2020.fmipa.unpatti.ac.id>



57<sup>th</sup> Pattimura University  
Anniversary

ICBS  
2020

**The 6<sup>th</sup> International Conference on Basic Sciences 2020**  
*Unpatti Cares for Sustainability in Human and Natural Resources*

## Letter of Acceptance

Ambon, December 5, 2020

**Dear** : Mutmainnah, Paulina Taba, Yusafir Hala

This letter is to confirm that your paper entitled:

**Adsorption of Sulfamethoxazole from Solution by Mesoporus Silica MCM-48**

**ACCEPTED**

by the committee of the 6<sup>th</sup> ICBS 2020, and will be considered to be published in the

***Journal of Physics: Conference Series (Indexed by Scopus Q3)***

Best regard,

On behalf of the Organizing Committee

The 6<sup>th</sup> ICBS 2020



Dr. I Wayan Sutapa, M.Sc  
Chair of the 6<sup>th</sup> ICBS 2020