

**STUDI ADSORPSI *BOVINE SERUM ALBUMIN*
PADA BESI NANOPARTIKEL Fe₃O₄
TERMODIFIKASI ASAM TANNIN**

Laporan Penelitian

Disusun untuk memenuhi tugas akhir guna mencapai gelar
sarjana di bidang Ilmu Teknik Kimia

Oleh:

Joshua (6217073)

Pembimbing:

Hans Kristianto, S.T., M.T.

Susiana Prasetyo S., S.T., M.T.



**JURUSAN TEKNIK KIMIA
FAKULTAS TEKNOLOGI INDUSTRI
UNIVERSITAS KATOLIK PARAHYANGAN
BANDUNG
2021**

LEMBAR PENGESAHAN

JUDUL: STUDI ADSORPSI *BOVINE SERUM ALBUMIN* PADA BESI NANOPARTIKEL
 Fe_3O_4 TERMODIFIKASI ASAM TANNIN

Catatan

Telah diperiksa dan disetujui,
Bandung, 20 Januari 2021

Pembimbing 1



Hans Kristianto, S.T., M.T.

Pembimbing 2



Susiana Prasetyo S., S.T., M.T.



**PROGRAM STUDI SARJANA TEKNIK KIMIA
FAKULTAS TEKNOLOGI INDUSTRI
UNIVERSITAS KATOLIK PARAHYANGAN**

SURAT PERNYATAAN

Saya yang bertanda tangan di bawah ini:

Nama : Joshua

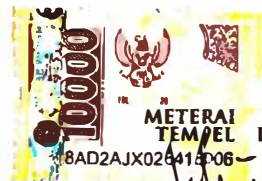
NRP : 6217073

dengan ini menyatakan bahwa laporan penelitian dengan judul:

**Studi Adsorpsi *Bovine Serum Albumin* Pada Besi Nanopartikel Fe_3O_4 Termodifikasi
Asam Tannin**

adalah hasil pekerjaan saya dan seluruh ide, pendapat atau materi dari sumber lain telah dikutip dengan cara penulisan referensi yang sesuai. Pernyataan ini saya buat dengan sebenar-benarnya dan jika pernyataan ini tidak sesuai dengan kenyataan, maka saya bersedia menanggung sanksi sesuai dengan peraturan yang berlaku.

Bandung, 20 Januari 2021



Joshua
(6217073)

ABSTRAK

Besi nanopartikel merupakan salah satu adsorben nanopartikel yang banyak dikembangkan karena keunggulannya, antara lain memiliki luas permukaan yang besar dan *biocompatible* pada tubuh manusia. Selain itu juga memiliki afinitas yang tinggi terhadap protein sehingga dapat diaplikasikan untuk adsorpsi protein sebagai salah satu alternatif pengembangannya. Namun; besi nanopartikel cenderung tidak stabil, sehingga dapat dilakukan suatu modifikasi pada permukaannya agar kapasitas adsorpsi protein dapat ditingkatkan. Kapasitas adsorpsi protein tidak hanya dipengaruhi oleh sifat permukaan besi nanopartikel, tetapi juga oleh pH. Pada penelitian ini dilakukan penentuan kapasitas adsorpsi, pH optimum, model isoterm serta data termodinamika pada proses adsorpsi *Bovine Serum Albumin (BSA)* dengan dan tanpa modifikasi permukaan besi nanopartikel Fe_3O_4 menggunakan asam tannin.

Modifikasi besi Fe_3O_4 dilakukan dengan mencampurkan Fe_3O_4 dengan asam tanin pada kondisi atmosfer N_2 selama 2 jam pada temperatur 40°C . Besi nanopartikel yang telah dimodifikasi digunakan sebagai adsorbent, kinerjanya dibandingkan dengan besi tanpa modifikasi. Pengaruh pH terhadap kapasitas adsorpsi *BSA* ditentukan dengan menvariasikan pH dari 3,6 – 5,6 menggunakan larutan buffer asetat 0,1 M; pH terbaik yang didapatkan, digunakan sebagai kondisi percobaan selanjutnya. Studi isoterm adsorpsi dilakukan dengan memvariasikan konsentrasi awal *BSA* sebanyak 5 titik, dalam rentang $50 - 250 \text{ mg L}^{-1}$ dan temperatur adsorpsi sebanyak 3 titik pada rentang $30-50^\circ\text{C}$. Data yang diperoleh kemudian di-fit ke model Langmuir, Freundlich, Temkin, dan Hunkin Jura untuk isotherm adsorpsi serta persamaan van't Hoff untuk termodinamika adsorpsi. Konsentrasi *BSA* yang teradsorpsi dianalisis menggunakan uji Bradford. Karakterisasi besi nanopartikel sebelum dan setelah modifikasi asam tannin serta setelah adsorpsi protein dilakukan menggunakan *Fourier Transform Infra-red Spectroscopy (FTIR)* dan banyaknya asam tanin yang teradsorpsi diidentifikasi dengan uji Folin-Ciocalteu.

Peningkatan kapasitas adsorpsi terjadi pada rentang pH 3,6 – 4,8; sebaliknya pada rentang pH 4,8 – 5,6 kapasitas adsorpsi menurun akibat adanya gaya tolak menolak antara adsorben-adsorbat. Kapasitas adsorpsi mencapai titik maksimum pada pH 4,8 untuk besi Fe_3O_4 serta $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-AT}$ berturut-turut sebesar 12,61 mg BSA/mg besi dan 31,34 mg BSA/mg besi. Besi $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-AT}$ telah berhasil dilakukan berdasarkan uji folin dan analisa FTIR, dengan peningkatan kapasitas maksimum hampir 5 kali lipat. Hasil percobaan menunjukkan bahwa adsorpsi yang terjadi pada besi Fe_3O_4 serta $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-AT}$ mengikuti isotherm Langmuir. Pada besi Fe_3O_4 , terjadi ikatan elektrostatik, sedangkan pada $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-AT}$, terjadi ikatan hidrogen selama proses adsorpsi. Termodinamika adsorpsi pada besi Fe_3O_4 serta $\text{Fe}_3\text{O}_4\text{-AT}$ menunjukkan kespontanan reaksi ke arah depan (ΔG° negatif), endotermis (ΔH° positif), dan kespontanan proses adsorpsi secara keseluruhan (ΔS° positif)

Kata kunci: adsorpsi, asam tannin, besi oksida nanopartikel (Fe_3O_4), *Bovine Serum Albumin (BSA)*

ABSTRACT

Iron nanoparticles are one of the nanoparticle adsorbents that are widely developed because they have various advantages such as a large surface area and biocompatible for the human body. Iron nanoparticles also have many pores so that one of them can be developed for protein adsorption. However, iron nanoparticles tend to be unstable, so a modification can be made to the surface so that the protein adsorption capacity can be increased. The adsorption capacity of protein is not only affected by the surface properties of the iron nanoparticles, but also by pH. This study aims to determine the adsorption capacity, optimum pH, isotherm model and thermodynamic data during the bovine serum albumin (BSA) adsorption process with and without surface modification of Fe₃O₄ iron nanoparticles using tannic acid.

Modification of iron Fe₃O₄ was carried out by mixing Fe₃O₄ with tannic acid in atmospheric conditions for 2 hours at a temperature of 40 °C. Modified iron nanoparticles was then used as adsorbent, and the performance was compared with iron without modification. The effect of pH on the adsorption capacity of BSA was determined by varying the pH from 3.6- 5.6 using a 0.1 M acetate buffer solution, where the best pH was used in further studies. The adsorption isotherm study was carried out by varying the initial concentration of BSA by 5 points from 50 - 250 mg L⁻¹ and the adsorption temperature by 3 points in the 30-50 °C range. The data obtained were then fit into the Langmuir, Freundlich, Temkin, and Hunkin Jura models for the adsorption isotherm, as well as the van't Hoff equation for adsorption thermodynamics. The adsorbed BSA concentration was analyzed using the Bradford test. Characterization of iron nanoparticles before and after tannin acid modification as well as after protein adsorption was carried out using Fourier Transform Infra-red Spectroscopy (FTIR) and the amount of tannin acid adsorbed was identified by the Folin-Ciocalteu test.

In the pH range from 3.6 to 4.8, there was an increase in adsorption capacity, while at pH 4.8 to 5.6 the adsorption capacity decreased. The adsorption capacity reached a maximum point at pH 4.8 for iron Fe₃O₄ and Fe₃O₄-AT of 12.61 mg BSA / mg iron and 31,34 mg BSA / mg iron, respectively Fe₃O₄-AT was carried out by Folin-Ciocalteu test and FTIR analysis, with maximum capacity increased almost 5 times. The experimental results showed the adsorption that occurs in iron Fe₃O₄ and Fe₃O₄-AT followed the Langmuir isotherm. In Fe₃O₄ iron, electrostatic bonds occurred, while in Fe₃O₄-AT, hydrogen bonds occurred during the adsorption process. Thermodynamic adsorption on iron Fe₃O₄ and Fe₃O₄-AT showed a forward reaction spontaneity (ΔG° negative), endothermic (ΔH° positive), and the overall spontaneity of the adsorption process (ΔS° positive)

Keywords: *adsorption, tannic acid, iron oxide nanoparticles (Fe₃O₄), Bovine Serum Albumin (BSA)*

KATA PENGANTAR

Puji syukur kepada Tuhan Yang Maha Esa, karena atas berkat dan rahmat-Nya; penulis dapat menyelesaikan laporan penelitian dengan judul “Studi Adsorpsi *Bovine Serum Albumin* Pada Besi Nanopartikel Fe_3O_4 Termodifikasi Asam Tannin” tepat pada waktunya. Laporan ini disusun untuk memenuhi kriteria kelulusan mata kuliah CHE-184650 yaitu “Penelitian”. Selain itu, laporan ini digunakan sebagai syarat utama bagi penulis untuk mendapatkan gelar sarjana pada jurusan Teknik Kimia Universitas Katolik Parahyangan.

Penulis ingin menyampaikan terima kasih kepada pihak-pihak yang mendukung penulis dalam penyusunan laporan penelitian ini, yaitu:

1. Hans Kristianto S.T., M.T. selaku dosen pembimbing utama yang sudah berjasa untuk membimbing dan mengarahkan penulis dalam penyusunan laporan ini;
2. Susiana Prasetyo, S.T., M.T. selaku dosen pembimbing yang sudah berjasa memberikan masukan dan saran agar laporan ini menjadi lebih baik;
3. Orang tua serta keluarga penulis yang telah memberikan dukungan dan kekuatan selama penyusunan laporan ini berlangsung;
4. Felicia Lie yang telah memberikan dukungan, semangat serta motivasi bagi penulis;
5. Edwin Reynaldi dan Boas Siahaan yang telah membantu membimbing dan memberi saran bagi penulis selama penyusunan laporan;
6. Teman-teman jurusan Teknik Kimia Universitas Katolik Parahyangan angkatan 2017 yang sudah memberikan semangat dan saran; serta
7. Pihak-pihak lain yang sudah membantu secara langsung dan tidak langsung, yang tidak dapat disebutkan satu persatu.

Penulis menyadari bahwa masih banyak kekurangan di dalam penyusunan laporan ini. Oleh karena itu, penulis mengharapkan kritik dan saran dari pembaca untuk dapat menyempurnakan laporan ini. Akhir kata penulis mengucapkan terima kasih atas perhatian pembaca dan penulis berharap agar laporan penelitian ini dapat bermanfaat bagi pembaca.

Bandung, 20 Januari 2021

Penulis

DAFTAR ISI

LEMBAR PENGESAHAN	ii
SURAT PERNYATAAN	iii
LEMBAR REVISI.....	iv
KATA PENGANTAR	v
DAFTAR ISI.....	vi
DAFTAR GAMBAR	ix
DAFTAR TABEL	x
INTISARI	xi
ABSTRACT.....	xii
BAB I PENDAHULUAN	1
1.1 Latar Belakang.....	1
1.2 Tema Sentral Masalah	3
1.3 Identifikasi Masalah	3
1.4 Premis	4
1.5.Hipotesis	9
1.6 Tujuan Penelitian	9
1.7 Manfaat Penelitian	10
BAB II TINJAUAN PUSTAKA.....	11
2.1 <i>Bovine Serum Albumin (BSA)</i>	11
2.2 Besi Nanopartikel.....	13
2.3 Adsorpsi	16
2.4 Besi Nanopartikel Untuk Adsorpsi Protein.....	17
2.5 Isoterm Adsorpsi	21
2.5.1 Isoterm Langmuir	22
2.5.2 Isoterm Freundlich.....	23
2.5.3 Isoterm Temkin	24
2.5.4 Isoterm Harkin-Jura	24
2.6 Termodinamika Untuk Adsorpsi.....	25

BAB III METODOLOGI PENELITIAN	27
3.1. Rancangan Penelitian	27
3.2. Alat dan Bahan	29
3.3 Prosedur Penelitian	30
3.3.1 Modifikasi Menggunakan Asam Tannin	30
3.3.2 Adsorpsi <i>Bovine Serum Albumin (BSA)</i>	31
3.3.3 Isoterm Adsorpsi	32
3.4 Rancangan Percobaan	32
3.4.1 Pengolahan Data Isoterm Adsorpsi	34
3.4.2 Pengolahan Data Termodinamika Adsorpsi.....	35
3.5 Analisis.....	35
3.6. Lokasi dan Rencana Kerja Penelitian	36
 BAB IV PEMBAHASAN.....	 37
4.1 Modifikasi Besi Nanopartikel.....	37
4.2. Penentuan pH Optimum Adsorpsi	38
4.3 Pengaruh Konsentrasi Awal <i>BSA</i> dan Temperatur	40
4.4 Isoterm Adsorpsi.....	41
4.4.1 Isoterm Langmuir.....	43
4.4.2 Isoterm Freundlich	44
4.4.3 Isoterm Temkin	44
4.4.4 Isoterm Harkin-Jura	45
4.5 Termodinamika Adsorpsi	45
4.6 Karakterisasi Adsorpsi <i>BSA</i>	46
4.7 Perbandingan hasil penelitian dengan penelitian lain.....	47
 BAB V KESIMPULAN DAN SARAN	 49
5.1 Kesimpulan	49
5.2 Saran	49
 DAFTAR PUSTAKA.....	 51
 LAMPIRAN A METODE ANALISA	 64
A.1 Penentuan Kadar Protein dengan Metode Bradford.....	64
A.2 Penentuan Kapasitas Adsorpsi Protein.....	65
A.3 Analisis <i>Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FTIR)</i>	66
A.4 Uji pH <i>Zero Charge</i> (pH _{zpc})	68

LAMPIRAN B <i>MATERIAL SAFETY DATA SHEET</i>	71
B.1 Asam Tanin	71
B.2 Etanol 96 %	72
B.3 <i>Bovine Serum Albumin</i>	74
B.4 Magnetit	75
B.5 <i>Commisie Brilliant Blue</i>	76
B.6 Asam Asetat	78
B.7 Natrium Asetat	79
B.8 Asam Klorida	80
B.9 Natrium Klorida	82
B.10 Asam Sulfat	83
B.11 Asam Fosfat	84
B.12 Amonium Hidroksida.....	86
LAMPIRAN C HASIL ANTARA	88
LAMPIRAN D GRAFIK.....	94
LAMPIRAN E CONTOH PERHITUNGAN	134

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1	Spesiasi gugus aktif pada asam amino	10
Gambar 2.2	Stuktur molekul <i>BSA</i>	12
Gambar 2.3	Struktur molekul besi nanopartikel	13
Gambar 2.4	Struktur kristal besi nanopartikel yang mengandung magnetit dan megghemit	14
Gambar 2.5	Proses adsorpsi	16
Gambar 2.6	Proses adsorpsi protein pada permukaan adsorben	16
Gambar 2.7	Kapasitas adsorpsi dengan dan tanpa modifikasi asam.....	18
Gambar 2.8	Interaksi antara gugus karboksilat pada asam tanin dengan magnetit	18
Gambar 2.9	Hasil <i>FTIR</i> adsorpsi pada besi Fe_3O_4 dengan dan besi Fe_3O_4	19
Gambar 2.10	Grafik kapasitas adsorpsi <i>BSA</i> terhadap pH.....	20
Gambar 2.11	Adsorpsi <i>BSA</i> pada permukaan adsorben pada pH isoelektrik	20
Gambar 3.1	Bagan singkat metodologi penelitian.....	27
Gambar 3.2	Skema alat untuk modifikasi asam tannin.....	28
Gambar 3.3	Diagram alir modifikasi permukaan besi nanopartikel Fe_3O_4	29
Gambar 3.4	Diagram alir adsorpsi <i>BSA</i> pada permukaan besi nanopartikel Fe_3O_4	31
Gambar 4.1	Hasil <i>FTIR</i> sampel Fe_3O_4 dan $Fe_3O_4 - AT$	36
Gambar 4.2	Profil kapasitas adsorpsi <i>BSA</i> terhadap pH	37
Gambar 4.3	Ilustrasi terjadinya adsorpsi pada besi nanopartikel Fe_3O_4	38
Gambar 4.4	Ilustrasi interaksi hidrogen antara asam tannin dan protein	39
Gambar 4.5	Profil pengaruh konsentrasi awal <i>BSA</i> terhadap kapasitas kesetimbangan	40
Gambar 4.6	Adsorpsi <i>monolayer</i>	42
Gambar 4.7	Hasil <i>FTIR</i> besi $Fe_3O_4 - BSA$ dan besi $Fe_3O_4 - AT - BSA$	45

DAFTAR TABEL

Tabel 1.1	Premis penelitian terkait adsorpsi <i>BSA</i> pada besi nanopartikel Fe_3O_4	5
Tabel 1.2	Premis penelitian terkait isoterm dan termodinamika adsorpsi	8
Tabel 2.2	Kandungan asam amino pada <i>BSA</i>	12
Tabel 3.1	Bahan kimia untuk keperluan analisis.....	28
Tabel 3.2	Run percobaan variasi pH pada Fe_3O_4	32
Tabel 3.3	Rancangan percobaan isoterm adsorpsi.....	32
Tabel 3.4	Plot pada isoterm adsorpsi.....	33
Tabel 3.5	Nilai persamaan setelah membuat plot pada isoterm adsorpsi.....	33
Tabel 3.6	Rencana penelitian.....	35
Tabel 4.1	Hasil pemodelan isoterm adsorpsi besi Fe_3O_4 dan besi Fe_3O_4 -AT.....	41
Tabel 4.2	Termodinamika adsorpsi besi nanopartikel Fe_3O_4	44
Tabel 4.3	Perbandingan hasil isoterm adsorpsi besi nanopartikel Fe_3O_4 dengan literatur ...	46

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Dalam beberapa tahun terakhir, adsorben nanopartikel terus dikembangkan (Long et al., 2011). Jika dibandingkan dengan adsorben konvensional, adsorben nanopartikel memiliki kinerja yang baik karena luas permukaan yang besar dan tidak adanya resistansi difusi internal (Liao and Chen, 2002). Salah satu pengembangan adsorben nanopartikel adalah besi nanopartikel. Besi nanopartikel memiliki beberapa keunggulan; antara lain: afinitasnya yang tinggi terhadap protein, *biocompatibility*, dapat dimodifikasi dengan kelompok fungsional reaktif, serta proses pemisahannya mudah sehingga dapat digunakan kembali (*reuse*) (Zhu et al., 2014). Namun, besi nanopartikel memiliki kekurangan, yaitu aktivitas kimianya tinggi dan mudah teroksidasi di udara yang dapat mengakibatkan hilangnya daya magnetisasi (Wu et al., 2008), serta cenderung membentuk agregat karena memiliki energi permukaan yang cukup tinggi (Tao et al., 2010). Proses adsorpsi pada permukaan besi nanopartikel tanpa modifikasi cenderung tidak efektif sehingga untuk mendapatkan kapasitas adsorpsi yang maksimal; perlu dilakukan suatu modifikasi permukaan besi nanopartikel, salah satunya dengan melapisi permukaannya menggunakan asam. Modifikasi pada permukaan besi nanopartikel menyebabkan besi nanopartikel cenderung stabil sehingga dapat digunakan dalam berbagai aplikasi antara lain ; penyimpan informasi dengan densitas tinggi, koagulan magnetic, pembentukan gambar dengan resonansi magnetic (MRI), *drug delivery* (Diaz et al., 2011), pewarna tinta, pelapis untuk mencegah korosi (Hamidi, 2013), adsorben untuk logam-logam berat, pemisahan, serta adsorpsi (Vlack, 1992).

Penelitian ini difokuskan pada proses adsorpsi protein pada permukaan besi nanopartikel. Dalam proses adsorpsi protein terdapat salah satu kendala; yaitu perbedaan sifat kepolaran antara permukaan adsorben dengan adsorbat. Pada penelitian ini digunakan protein berupa *Bovine Serum Albumin (BSA)* yang bersifat hidrofilik; sedangkan besi nanopartikel bersifat hidrofobik. Perbedaan sifat tersebut menyebabkan kapasitas adsorpsinya menjadi kecil (Luo et al., 2017). Salah satu cara untuk meningkatkan kapasitas adsorpsi adalah modifikasi asam. Asam yang dapat digunakan untuk memodifikasi permukaan adsorben adalah asam yang memiliki gugus fungsi karboksilat ($-COOH$) lebih dari satu pada ujung rantainya (Bigley, 1970). Semakin banyak gugus karboksilat ($-COOH$) pada permukaan besi nanopartikel akan meningkatkan interaksi hidrofilik antara besi nanopartikel dan *BSA*.

Beberapa penelitian terkait adsorpsi protein pada permukaan besi nanopartikel sudah banyak dilakukan; khususnya untuk keperluan medis karena sifat magnetiknya dan memiliki banyak pori pada permukaan sehingga sangat memungkinkan untuk diaplikasikan pada proses adsorpsi. Namun, studi kapasitas adsorpsi dengan modifikasi menggunakan asam masih dapat dieksplorasi. Atacan (2017) melakukan adsorpsi protein menggunakan tripsin dengan adsorben besi nanopartikel Fe_3O_4 termodifikasi asam tannin serta Kim et al. (2007) melakukan adsorpsi protein menggunakan *lysozyme* dengan adsorben besi nanopartikel Fe_3O_4 termodifikasi asam dimerkaptosuksinat. Hasil yang diperoleh menunjukkan bahwa modifikasi asam menyebabkan gugus protein di permukaan adsorben relatif lebih banyak bila dibandingkan tanpa modifikasi sehingga dapat disimpulkan bahwa modifikasi asam dapat meningkatkan kapasitas adsorpsi protein karena sifat hidrofobik pada permukaan adsorben dapat dimodifikasi. Kapasitas adsorpsi *BSA* tidak hanya dipengaruhi oleh interaksi hidrofilik dengan permukaan besi nanopartikel, tetapi juga interaksi elektrostatik yang dipengaruhi oleh pH. Oleh karena itu pada adsorpsi protein, pH juga menjadi bagian yang tidak terpisahkan pada penelitian ini.

Studi adsorpsi besi nanopartikel yang dimodifikasi dengan asam tannin sebagai adsorbent untuk *BSA* belum pernah dilakukan, terlebih pengamatan pada isoterm dan termodinamika adsorpsinya untuk memodifikasi besi nanopartikel. Oleh karena itu pada penelitian ini; efektivitas modifikasi besi nanopartikel menggunakan asam tannin akan dievaluasi dengan mempelajari isoterm dan termodinamika adsorpsinya. Isoterm adsorpsi penting untuk dilakukan karena berguna untuk memodelkan kapasitas maksimum adsorpsi, karakteristik adsorpsi dan konstanta kesetimbangan adsorpsi (Mahmoodi et al., 2010). Dari studi isoterm adsorpsi dapat diperoleh jumlah maksimum adsorbat yang dapat menempel ke permukaan adsorben pada berbagai kondisi. Selain itu; dari studi isoterm dapat ditentukan model karakteristik adsorpsi, yaitu sifat partikel adsorbat yang menempel pada permukaan adsorben bersifat *monolayer* atau *multilayer*; juga dapat ditentukan konstanta kesetimbangan adsorpsi untuk mengetahui perbandingan laju adsorpsi terhadap desorpsi pada kesetimbangan (Ayawei et al., 2017).

Parameter termodinamika adsorpsi dapat ditentukan berdasarkan data yang diperoleh dari model isoterm; salah satunya konstanta kesetimbangan adsorpsi (Khan and Singh, 1987). Terdapat tiga parameter utama pada termodinamika; yaitu; 1) perubahan energi bebas Gibbs (ΔG°) untuk mengetahui spontanitas proses adsorpsi (Lyubchik et al., 2011); 2) entalpi (ΔH°) untuk mengetahui panas yang dihasilkan dari proses adsorpsi (Chang, 2005); dan 3) entropi

(ΔS°) untuk mengetahui struktur lapisan antarmuka permukaan adsorben saat proses adsorpsi (Lyubchik et al., 2011). Seperti yang telah diketahui pada proses adsorpsi *BSA* ini dipengaruhi juga oleh nilai pH, dimana dengan nilai pH ini juga dapat diketahui jenis interaksi (ikatan) yang terjadi sehingga kapasitas adsorpsi *BSA* dapat meningkat. Parameter entalpi (ΔH°) dan entropi (ΔS°) digunakan untuk memperkirakan interaksi yang terjadi selama proses adsorpsi (Sharifi et al., 2017) sehingga karakteristik ikatan yang memainkan peran penting dalam proses adsorpsi *BSA* dapat diketahui (ikatan ion, ikatan elektrostatik, atau ikatan kovalen yang terjadi).

1.2 Tema Sentral Masalah

Berdasarkan studi pustaka yang telah dilakukan, besi nanopartikel dapat dimanfaatkan sebagai adsorben untuk adsorpsi khususnya untuk adsorpsi protein (*BSA*). Namun, kinerja pada besi nanopartikel masih belum optimal karena kapasitas adsorpsi yang diperoleh rendah. Banyak faktor yang dapat mempengaruhi kapasitas adsorpsi, pada penelitian ini dibatasi pada studi adsorpsi *BSA* dengan modifikasi permukaan dan pH optimum adsorpsi. Penelitian terkait modifikasi permukaan besi nanopartikel menggunakan asam diprotik sudah banyak dilakukan; namun penelitian terkait studi adsorpsi, isoterm serta termodinamika pada modifikasi permukaan besi nanopartikel dengan asam poliprotik (memiliki banyak gugus hidroksil - OH) masih sangat minim. Modifikasi permukaan besi nanopartikel dengan asam tannin menjadi salah satu alternatif dalam meningkatkan kapasitas adsorpsi *BSA*. Peningkatan kapasitas adsorpsi *BSA* juga dipengaruhi oleh pH, kapasitas adsorpsi pada besi nanopartikel dengan dan tanpa modifikasi asam tannin diamati pada penelitian ini pada variasi pH 3,6 – 5,6.

Studi adsorpsi protein dibatasi pada isoterm dan termodinamika untuk besi nanopartikel dengan dan tanpa modifikasi asam tannin; menggunakan isoterm Langmuir, Freundlich, Temkin, dan Harkin-Jura untuk percobaan isoterm adsorpsi yang bertujuan mengetahui interaksi yang terjadi antara besi nanopartikel dengan *BSA*. Percobaan termodinamika adsorpsi juga dilakukan untuk mengetahui sifat dari proses adsorpsi *BSA* dengan menentukan nilai energi bebas Gibbs (ΔG°), entalpi (ΔH°) dan entropi (ΔS°).

1.3 Identifikasi Masalah

Beberapa permasalahan yang dapat diidentifikasi pada penelitian ini adalah:

1. Bagaimana kinerja adsorpsi *BSA* pada besi nanopartikel dengan dan tanpa modifikasi menggunakan asam tannin?

2. Bagaimana profil pengaruh pH terhadap kapasitas adsorpsi protein di permukaan besi nanopartikel dengan dan tanpa modifikasi menggunakan asam tannin?
3. Model isoterm adsorpsi apakah yang paling cocok untuk proses adsorpsi protein pada besi nanopartikel dengan dan tanpa modifikasi menggunakan asam tannin?
4. Bagaimana sifat termodinamika adsorpsi energi bebas Gibbs (ΔG°), entalpi (ΔH°) dan entropi (ΔS°) pada adsorpsi *BSA* pada besi nanopartikel dengan dan tanpa modifikasi menggunakan asam tannin?

1.4 Premis

Berdasarkan studi pustaka yang telah dilakukan; dapat disusun beberapa premis yang mendasari penelitian ini. Premis penelitian terkait adsorpsi *BSA* pada besi nanopartikel Fe_3O_4 tersaji pada **Tabel 1.1** dan premis penelitian terkait termodinamika adsorpsi *BSA* pada besi nanopartikel Fe_3O_4 tersaji pada **Tabel 1.2**.

1.5 Hipotesis

Berdasarkan studi pustaka yang telah dilakukan, dirumuskan beberapa hipotesis berikut:

1. Kapasitas adsorpsi protein pada permukaan besi nanopartikel Fe_3O_4 yang telah dimodifikasi menggunakan asam meningkat karena permukaan besi nanopartikel Fe_3O_4 yang telah dimodifikasi cenderung lebih stabil serta terdapat lebih banyak gugus hidroksil ($-\text{OH}$) yang dapat berikatan dengan protein dibandingkan tanpa modifikasi (Chen et al., 2012).
2. Nilai pH optimum pada proses adsorpsi *BSA* menggunakan besi nanopartikel termodifikasi berada di sekitar rentang pH isoelektriknya (sekitar 4,7) (Liang et al., 2007) karena muatan positif dan negatif pada protein berada dalam kesetimbangan yang menyebabkan gaya tolak-menolak minimal antara besi nanopartikel dengan *BSA* sehingga kapasitas adsorpsi *BSA* mencapai titik optimalnya (Guo et al. 1996).
3. Model isoterm adsorpsi yang cocok untuk proses adsorpsi *BSA* pada permukaan adsorben Fe_3O_4 adalah isoterm adsorpsi Langmuir, karena adsorpsi *BSA* pada permukaan adsorben Fe_3O_4 cenderung membentuk lapisan monolayer (Liang et al., 2007).
4. Proses adsorpsi *BSA* nilai energi bebas Gibbs (Δn°) bernilai positif, menunjukkan adsorpsi terjadi secara spontan dan nilai energi entalpi (Δb°) bernilai negatif yang menunjukkan proses adsorpsi bersifat endotermis (Keshavarz & Ghasemi, 2011, Rahdar et al., 2019).

Tabel 1.1 Premis penelitian terkait adsorpsi bovine serum albumin pada besi nanopartikel Fe₃O₄

No.	Adsorben	Adsorbat	Jenis Asam	pH	Temperatur	Dosis Adsorben	Konsentrasi awal Adsorbat	Persamaan Isoterm	Hasil	Peneliti
1.	Fe ₃ O ₄	BSA	Asam sitrat	4,0	Temperatur ruang	0,5 g	0,99645 mg/mL	n.a	Adsorpsi <i>BSA</i> paling besar terjadi pada pH 4,6 kapasitas adsorpsi <i>BSA</i> adalah 83 mg/g	Ur Rahman, 2010
				4,6						
				7,4						
2.	Fe ₃ O ₄	BSA	<i>Carboxy methylated chitosan (CMC)</i>	3,8	Temperatur ruang	75 mg	1,017 mg/ mL	Isoterm Langmuir	<ul style="list-style-type: none"> – Kapasitas maksimum adsorpsi <i>BSA</i> terjadi pada pH isoelektriknya – Model isoterm adsorpsi Langmuir dengan kapasitas adsorpsi maksimum sebesar 94,45 mg/g 	Liang et al., 2007
				4,6						
				5,6						
				7,4						
				8,9						
3.	Fe ₃ O ₄	BSA	n.a	3,36	Temperatur Ruang	110 mg	0,413 mg/mL dan 1,202 mg/mL	Isoterm Langmuir	<ul style="list-style-type: none"> – Model isoterm Langmuir menunjukkan <i>error</i> yang kecil terhadap hasil percobaan – Kapasitas adsorpsi maksimum pada pH 4,64 yang mendekati isoelektrik 	Peng et al., 2004
				4,64						
				5,19						
				6,15						
				7,25						
				8,11						
				9,07						

Tabel 1.1 Premis penelitian terkait adsorpsi *bovine serum albumin* pada besi nanopartikel Fe₃O₄ (*lanjutan*)

No.	Adsorben	Adsorbat	Jenis Asam	pH	Temperatur	Dosis Adsorben	Konsentrasi awal Adsorbat	Persamaan Isoterm	Hasil	Peneliti
4.	SiO ₂ TiO ₂ ZrO ₂ Al ₂ O ₃	BSA	n.a	3,2	40 °C	0,3 g	5 mg/mL	Isoterm Langmuir	Kapasitas adsorpsi BSA maksimum berada dalam rentang pH isoelektriknya	Fukuzaki et al., 1996
				4,0						
				5,0						
				6,0						
				7,0						
				8,0						
				9,0						
5.	Al ₂ O ₃	BSA	n.a	3,5	25 ± 2 °C	13,53 g	0,1086 mg/mL, 0,5430 mg/mL, 1,0860 mg/mL, 2,1719 mg/mL, 4,3439 mg/mL, 6,5158 mg/mL, 8,6878 mg/mL, dan 10,8597 mg/mL	Isoterm Langmuir	Kapasitas maksimum adsorpsi berada pada rentang pH 4,9-5,2 yang mendekati pH isoelektrik BSA	Rezwan et al., 2004
				4,0						
				5,0						
				6,0						
				7,0						
				8,0						
				9,0						
				10,0						
11,5										

Tabel 1.1 Premis penelitian terkait adsorpsi *bovine serum albumin* pada besi nanopartikel Fe₃O₄ (*lanjutan*)

6.	TiO ₂	<i>BSA</i>	n.a	4,0	20 °C, 30 °C, dan 40 °C	8-14 g	0,5 mg/mL	-Isoterm Langmuir -Isoterm Freundlich	Kapasitas adsorpsi <i>BSA</i> maksimum pada pH 4	Kopac et al., 2008
				5,0						
				10,0						
7.	MnFe ₂ O ₄	<i>BSA</i>	Silika	1,0	Temperatur Ruang	1 g	0,3 mg/mL	Isoterm Langmuir	Kapasitas adsorpsi <i>BSA</i> maksimum terjadi pada pH 5.1 yang mendekati titik isoelektrik <i>BSA</i> .	Liang et al., 2010
				2,0						
				3,0						
				4,0						
				5,0						
				6,0						
				7,0						

Tabel 1.2 Premis penelitian terkait isoterm dan termodinamika adsorpsi *bovine serum albumin* pada besi nanopartikel Fe₃O₄

No.	Adsorben	Adsorbat	Persamaan Isoterm	Termodinamika Adsorpsi				Hasil	Peneliti
				T(K)	ΔH° (kJ/mol)	ΔG° (kJ/mol)	ΔS° (J/mol K)		
1.	Fe ₃ O ₄	BSA	n.a	293,15	17,041	-3,669	70,164	Proses adsorpsi BSA pada permukaan terjadi secara spontan (ΔG° negatif), endotermis (ΔH° positif)	Keshavarz & Ghasemi, 2011
				303,15		-3,853	68,919		
				313,15		-4,094	67,488		
2.	Fe ₃ O ₄	BSA	-Isoterm Langmuir I, II, III, IV -Isoterm Freundlich	298	18,73	-8,90	92,80	-Proses adsorpsi BSA pada permukaan terjadi secara spontan (ΔG° negatif), endotermis (ΔH° positif) -Model isoterm adsorpsi terbaik menggunakan Isoterm Langmuir tipe II	Rahdar et al., 2019
				308		-9,89			
				318		-10,75			
3.	Au ₃ O ₃	BSA	-Isoterm Langmuir -Isoterm Freundlich	298	-8110,4	-1196,8	-23,2	-Proses adsorpsi BSA pada permukaan terjadi secara spontan (ΔG° negatif), endotermis (ΔH° positif) -Model isoterm adsorpsi terbaik menggunakan Isoterm Freundlich	Maleki et al., 2017
				303		-1080,8			
				308		-964,8			

1.6 Tujuan Penelitian

Tujuan penelitian ini antara lain:

1. Mengetahui kinerja besi nanopartikel tanpa modifikasi asam dan dengan modifikasi asam untuk adsorpsi *BSA*.
2. Mengetahui pH optimum yang digunakan untuk mendapatkan kapasitas adsorpsi *BSA* dengan dan tanpa modifikasi menggunakan asam tannin.
3. Mengetahui model isoterm pada adsorpsi *BSA* dengan besi nanopartikel Fe_3O_4 dengan dan tanpa menggunakan asam tannin.
4. Mengetahui sifat termodinamika sistem adsorpsi *BSA* pada besi nanopartikel Fe_3O_4 dengan dan tanpa menggunakan asam tannin.

1.7 Manfaat Penelitian

Hasil dari penelitian ini diharapkan dapat memberikan manfaat antara lain:

1. Bagi mahasiswa; mengetahui bagaimana proses adsorpsi yang terjadi pada permukaan besi nanopartikel dengan dan tanpa modifikasi menggunakan asam. Mahasiswa mengetahui jenis asam dan pH optimum yang digunakan agar menghasilkan kapasitas adsorpsi yang maksimal. Mahasiswa juga dapat mengetahui kapasitas adsorpsi maksimum menggunakan isoterm adsorpsi serta dapat menentukan besaran termodinamika yang terjadi selama proses adsorpsi.
2. Bagi dunia kesehatan; dapat digunakan untuk *magnetic resonance imaging* (MRI), *drug delivery*, *biosensor* serta *food analysis* yang dapat dikembangkan lebih lanjut sebagai suatu strategi untuk penanganan / *treatment* untuk berbagai penyakit.