

## Studi Karakterisasi dan Aktivitas Antibakteri Senyawa Kompleks dari Zink(II) Klorida, Kalium Tiosianat dan 2-Aminopiridina

Dewi Mariyam, Nani Farida, Husni Wahyu Wijaya, I Wayan Dasna\*

Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Negeri Malang, Jawa Timur, Indonesia

Corresponding Author:  
I Wayan Dasna  
idasna@um.ac.id

Received: September 2021  
Accepted: February 2022  
Published: March 2022

©I Wayan Dasna et al. This is an open-access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution License, which permits unrestricted use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original author and source are credited.

### Abstract

The development of complex compounds as antibacterial continues to be carried out to overcome cases of microbial resistance. One of them is the development of complex compounds with thiocyanate and aminopyridine ligands which show good potential as antibacterial. Complex compound of zinc(II) chloride with thiocyanate and 2-aminopyridine ligands was successfully synthesized. The synthesis was carried out by mixing the reactants with ratio of  $Zn^{2+}$ : 2-aminopyridine: SCN 1:2:2 under heating and stirring continuously for 6 hours. The Obtained beam-shaped colorless crystals were characterized using melting point, electrical conductivity, thiocyanate ion qualitative, FTIR, SEM-EDX, XRD powder and antibacterial activity against *Salmonella typhi* and *Staphylococcus aureus* test. The crystals melt at 160-165°C. The results of the electrical conductivity test, qualitative test of thiocyanate ion, FTIR and SEM-EDX analysis indicate the presence of  $Zn^{2+}$ , thiocyanate and 2-aminopyridine with ratio 1: 2: 2. Based on XRD powder spectral data and theoretical analysis, the complex synthesized compounds had high crystallinity and predicted has tetrahedral structure. Antibacterial test showed that against *S.aureus*, the compound had higher antibacterial activity than free ligands, but lower than chloramphenicol. Therefore, the antibacterial activity of the complex compound was classified as moderate.

**Keywords:** *complex compound; ZnCl<sub>2</sub>; KSCN; 2-aminopyridine; antibacterial properties*

### Pendahuluan

Pengembangan senyawa koordinasi ligan N-heterosiklik saat ini semakin pesat seiring dengan banyaknya hasil yang menunjukkan keberagaman struktur, karakteristik, sifat dan potensi aplikasinya yang luas dalam bidang fotografi, industri zat warna, bidang medis, mikrobiologi, pelapisan logam, pemisahan molekul, katalis, magnetik dan lain sebagainya<sup>[1]-[4]</sup>. Ligan 2-aminopiridina

merupakan salah satu senyawa heterosiklik turunan piridina yang penggunaannya cukup luas dalam bidang industri seperti obat-obatan<sup>[5]-[7]</sup> pewarnaan, antimikroba dan pestisida<sup>[1],[8]</sup>. Penelitian senyawa kompleks dengan ligan 2-aminopiridina seperti  $[Co(dca)_2(2-NH_2py)_2]$ <sup>[1]</sup> dan anion tiosianat pada kompleks  $[Cu(py)_2(SCN)_2]_x$ <sup>[9]</sup> menunjukkan potensi yang baik sebagai antibakteri dan antifungi. Ligan tiosianat sebagai ligan ambidentat mampu membentuk

struktur molekul yang berbeda melalui 2 mode ikatan yaitu metode terminal dan metode jembatan<sup>[4],[10],[11]</sup>. Ligan ini sering digunakan untuk pembentukan senyawa polimer dan *Metal Organic Framework* (MOF). Penggunaan ligan 2-aminopiridina dan tiosianat memungkinkan terbentuknya senyawa kompleks polimer dengan aktivitas antibakteri yang baik.

Beberapa senyawa kompleks lain yang menggunakan ligan tiosianat dan aminopiridina yang berhasil disintesis yakni senyawa  $\text{Ni}(\text{NCS})_2(2\text{-NH}_2\text{py})_2 \cdot \text{C}_4\text{H}_{10}\text{O}^{[12]}$ ,  $\text{Cd}(\mu\text{-SCN})_2(4\text{-NH}_2\text{py})_2^{[13]}$  dan  $\text{Cu}(\text{SCN})_2(x\text{-NH}_2\text{py})_2$  ( $x=2,3$  dan  $4$ )<sup>[4]</sup> yang memiliki geometri pseudooktahedral, dimana tiosianat berikatan dengan mode jembatan membentuk struktur rantai polimer. Senyawa  $\text{Co}(\text{NCS})_2(4\text{-NH}_2\text{py})_2^{[11]}$  dan  $[\text{Zn}(\text{NCS})_2(3\text{-NH}_2\text{py})_2]^{[7],[14]}$  membentuk geometri tetrahedral dan menunjukkan adanya interaksi lemah antar molekul tiosianat dengan ligan 2-aminopiridina. Senyawa-senyawa tersebut memiliki potensi yang menarik terutama dalam kajian MOF. Penelitian- penelitian tersebut berfokus pada sintesis dan penentuan karakteristik senyawa kompleksnya, sehingga menarik untuk dikaji aplikasinya dalam berbagai bidang, salah satunya antibakteri.

$\text{Zn}^{2+}$  sebagai salah satu ion yang berada dalam satu golongan dengan  $\text{Cd}^{2+}$  dalam tabel periodik unsur memiliki sifat yang unik dimana  $\text{Zn}^{2+}$  memiliki bilangan koordinasi yang cukup fleksibel. Ketika  $\text{Zn}^{2+}$  berikatan kovalen koordinasi dengan ligan kecil seperti molekul air,  $\text{Zn}^{2+}$  dapat membentuk kompleks dengan bilangan koordinasi 4, 5 dan 6. Namun ketika  $\text{Zn}^{2+}$  berikatan kovalen koordinasi dengan molekul yang cukup besar seperti protein,  $\text{Zn}^{2+}$  cenderung membentuk kompleks dengan bilangan koordinasi 4<sup>[15]</sup>. Hal ini membuat kompleks  $\text{Zn}^{2+}$  dengan ligan tiosianat dan 2-aminopiridina menarik untuk dikaji dalam segi kemampuannya dalam membentuk polimer seperti pada penelitian-penelitian sebelumnya. Selain itu, ion  $\text{Zn}^{2+}$  merupakan salah satu

bakteriostatik<sup>[16]</sup> yang jumlahnya cukup banyak dibutuhkan dalam tubuh<sup>[17]</sup>, sehingga senyawa kompleks dengan ion pusat  $\text{Zn}^{2+}$  memiliki potensi sebagai antibakteri.

Berdasarkan pemaparan latar belakang tersebut, penelitian ini bertujuan untuk mengetahui mensintesis senyawa kompleks  $[\text{Zn}(\text{NCS})_2(2\text{-NH}_2\text{py})_2]$  dari reaktan  $\text{ZnCl}_2$ , KSCN dan 2-aminopiridina dengan metode reaksi langsung dalam pelarut metanol, mengkarakterisasi senyawa  $[\text{Zn}(\text{NCS})_2(2\text{-NH}_2\text{py})_2]$  melalui analisis FTIR, SEM-EDX dan XRD *powder* untuk mengetahui keberhasilan sintesis dan prediksi awal mengenai struktur senyawa yang dihasilkan, serta mengetahui potensi antibakteri senyawa melalui uji aktivitas antibakteri dengan metode difusi cakram *Kirby-bauer*. Dari hasil penelitian ini diharapkan senyawa kompleks  $[\text{Zn}(\text{NCS})_2(2\text{-NH}_2\text{py})_2]$  yang memiliki struktur tetrahedral seperti senyawa kompleks  $[\text{Zn}(\text{NCS})_2(3\text{-NH}_2\text{py})_2]^{[7],[14]}$ , dan hasil uji aktivitas antibakteri menunjukkan hasil yang lebih baik dibandingkan dengan ligan bebas dan menunjukkan potensi yang baik sebagai antibakteri.

## Metodologi Penelitian

### Bahan kimia

Bahan-bahan yang digunakan pada penelitian ini. meliputi  $\text{ZnCl}_2$  Merck, p.a 98%, KSCN Emsure, p.a 99%, 2-aminopiridina Merck Millipore 98%,  $\text{FeCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  Emsure, p.a 99%, metanol Emsure p.a 99%, aquades, *aluminium foil*, plastik *wrap*, dan kertas saring. Semua reaktan yang digunakan tanpa melalui proses pemurnian lebih lanjut.

### Peralatan

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini meliputi alat ukur titik lebur (*Fisher-John Melting Point Apparatus*), konduktometer *Cyberscan* CON 11/110, SEM-EDX FEI tipe *Inspect-50*, XRD *Miniflex 300/600* dan FTIR *Shimadzu Tipe: IRPrestige21*.

### Prosedur penelitian

Metode penelitian ini mengacu pada Dan *et al.* tahun 2010<sup>[8]</sup> dengan prosedur sebagai berikut: sejumlah larutan 1 mmol (0,1363 g)  $ZnCl_2$  dalam metanol dicampurkan ke dalam larutan 2 mmol (0,1882 g) 2-aminopiridina. Campuran diaduk dengan bantuan *magnetic stirrer* secara kontinyu sambil dipanaskan dalam refluks pada suhu 64°C selama 2 jam. Kemudian, 2 mmol (0,1944 g) KSCN ditambahkan secara perlahan-lahan. Pemanasan dengan refluks dan pengadukan dilanjutkan hingga 4 jam. Setelah dibiarkan 2 minggu, kristal berbentuk jarum tidak berwarna diperoleh seberat 0,2821 g.

### Karakterisasi dan uji aktivitas antibakteri

Karakterisasi dilakukan dengan uji titik lebur menggunakan instrumen *Fisher-John Melting Point Apparatus* pada suhu 30-300°C dengan kecepatan kenaikan suhu 10°C/menit. Pengukuran daya hantar listrik dilakukan dalam pelarut metanol menggunakan alat *Cyberscan CON 11/110* pada suhu ruang. Penentuan kandungan anion tiosianat dilakukan secara kualitatif dengan menambahkan larutan  $FeCl_3$  dalam metanol ke dalam larutan senyawa kompleks. Spektrum IR senyawa diperoleh menggunakan alat FTIR *Shimadzu Tipe: IRPrestige21* dengan metode preparasi sampel pelet KBr. Analisis unsur (Zn, N dan S) dan morfologi kristal dilakukan dengan menggunakan instrumen SEM-EDX FEI tipe *Inspect-50*. Analisis kristalinitas dan struktur dilakukan menggunakan alat XRD *Miniflex 300/600*, dengan *counter D/tex Ultra2* dengan radiasi Cu- $Ka_1$  ( $\lambda = 1,54059 \text{ \AA}$ ) dan Cu- $Ka_2$  ( $\lambda = 1,54441 \text{ \AA}$ ).

Uji aktivitas antibakteri dilakukan oleh Laboratorium Jurusan Biologi FMIPA UM dengan menggunakan metode difusi cakram *Kirby bauer* dengan mengacu pada prosedur *Chimaine, et al., 2016*<sup>[9]</sup> yakni media agar Muller-Hinton disiapkan dengan prosedur yang sesuai pada petunjuk komersial pabrik. Kemudian koloni bakteri spesifik disuspensi dalam larutan 0,9% NaCl. Uji kekeruhan bakteri sesuai standar 0.5 Mc Farland yang setara dengan konsentrasi bakteri  $1,5 \times 10^8$  CFU/mL. Senyawa yang akan diuji yakni  $[Zn(2-NH_2py)_2(NCS)_2]$ , ligan bebas (2-aminopiridina dan KSCN,  $ZnCl_2$  dan antibiotik kloramfenikol ditimbang dan dilarutkan ke dalam pelarut metanol hingga diperoleh konsentrasi 1 mg/mL. Kertas cakram yang telah disterilisasi dengan autoklaf dicelupkan ke dalam larutan yang telah dibuat. Kemudian kertas cakram diletakkan diatas media agar dan didiamkan selama 20 menit. Setelah itu, kertas saring diangkat dan media agar diinkubasi pada suhu 37°C selama 24 jam. Diameter zona hambat diukur dan diameter disk diukur.

### Hasil dan Diskusi

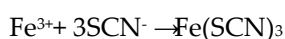
Kristal kompleks  $[Zn(2-NH_2py)_2(SCN)_2]$  yang diperoleh diperlihatkan seperti pada Gambar 1. Hasil penentuan titik lebur senyawa kompleks diperoleh nilai rentang titik lebur sebesar 160-165 °C. Sebagai pembanding, reaktan juga ditentukan titik leburnya dengan nilai rentang sebesar 289-290 °C untuk  $ZnCl_2$ , 54-58 °C untuk 2-aminopiridina dan 173-175 °C untuk KSCN.



Gambar 1. Kristal hasil sintesis.

Hasil ini memperlihatkan bahwa senyawa hasil sintesis memiliki titik lebur yang berbeda dengan nilai titik lebur reaktannya. Dengan demikian, dapat disimpulkan bahwa senyawa hasil reaksi sudah berbeda dengan reaktannya.

Adanya ion tiosianat dalam senyawa hasil sintesis dianalisis dengan menambahkan larutan  $\text{FeCl}_3$  ke dalam larutan senyawa hasil sintesis. Hasil uji menunjukkan hasil positif dimana terjadi perubahan warna larutan  $\text{FeCl}_3$  dari kuning menjadi merah darah. Warna merah yang dihasilkan berasal dari reaksi ion besi(III) dengan ion tiosianat membentuk besi(III) tiosianat sesuai dengan reaksi:



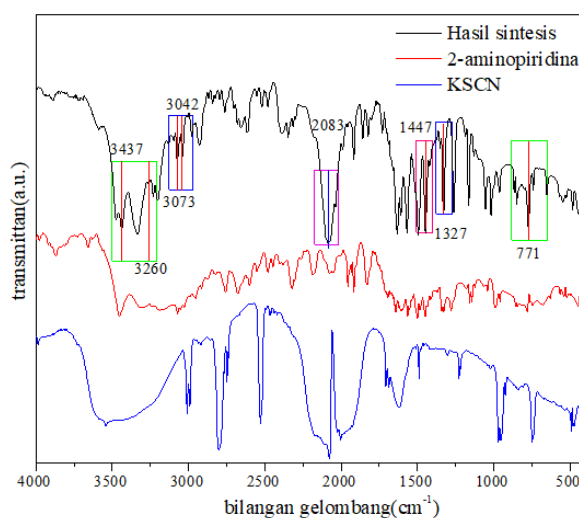
Berdasarkan uji kualitatif anion tiosianat, diketahui senyawa hasil sintesis merupakan senyawa ionik, dimana ion tiosianat berikatan ionik dengan  $\text{Zn}^{2+}$  sebagai ion pengimbang. Ketika dilarutkan dalam air, senyawa kompleks mengalami disosiasi membentuk ion tiosianat bebas, sehingga dapat bereaksi dengan ion besi(III).

Hasil uji kualitatif anion tiosianat juga didukung dengan hasil pengukuran daya

hantar listrik larutan senyawa hasil sintesis dalam metanol. Hasil uji menunjukkan bahwa nilai daya hantar listrik senyawa kompleks dalam metanol meningkat signifikan ( $31,0 \mu\text{S}$ ) bila dibandingkan dengan daya hantar listrik metanol murni ( $5,29 \mu\text{S}$ ). Berdasarkan data ini, disimpulkan bahwa senyawa ionik berada dalam larutan yang merupakan penguraian anion tiosianat dalam metanol.

Keberadaan ligan tiosianat dan 2-aminopiridina dalam kristal senyawa kompleks hasil sintesis diselidiki dari spektrum FT-IR seperti ditunjukkan pada Gambar 2. Beberapa serapan khas dari vibrasi gugus fungsi 2-aminopiridina dan tiosianat ditunjukkan pada Tabel 1.

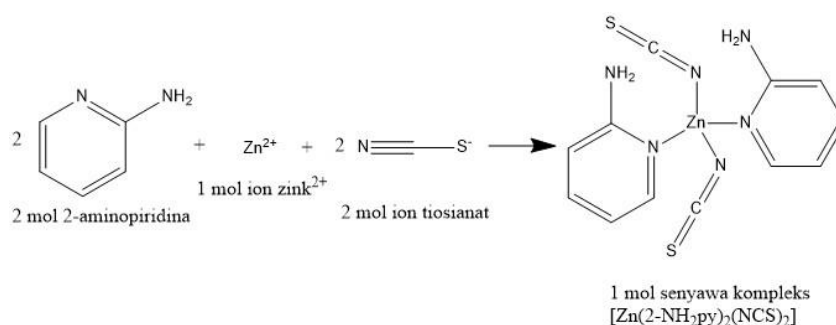
Pergeseran bilangan gelombang serapan ke arah yang lebih kecil menunjukkan gugus terlibat langsung dalam proses pembentukan ikatan<sup>[4]</sup>. Puncak di daerah bilangan gelombang 3400 dan 3300 yang menunjukkan vibrasi ulur asimetrik dan simetrik gugus  $-\text{NH}_2$  mengalami sedikit pergeseran. Daerah 3028-3073  $\text{cm}^{-1}$  yang menunjukkan serapan khas untuk vibrasi ulur C-H pada cincin piridina tidak mengalami pergeseran bilangan gelombang yang signifikan.



**Gambar 2.** Spektrum FTIR senyawa hasil sintesis dan ligan bebas.

**Tabel 1.** Interpretasi hasil spektrum IR

Vibrasi	Bilangan gelombang (cm <sup>-1</sup> )			Δ
	Ligan bebas 2-aminopiridina	Anion tiosianat (dalam KSCN)	Senyawa Kompleks	
<i>v<sub>as</sub></i> (NH <sub>2</sub> )	3453s	-	3437s	16
<i>v<sub>s</sub></i> (NH <sub>2</sub> )	3306s	-	3260	46
<i>v</i> (C-H)	3073s, 3053s, dan 3028s	-	3073m dan 3042m	-
<i>v</i> (C=N) ring	1483s	-	1447s	36
<i>v</i> (C-NH <sub>2</sub> ) stretching	1327s	-	1327s	-
Ring breathing	779s	-	771s	8
<i>v</i> (C-N)	-	2077s	2037s	40
<i>v</i> (S-C)	-	742	741s	1

**Gambar 3.** Persamaan reaksi pembentukan senyawa kompleks [Zn(2-NH<sub>2</sub>py)<sub>2</sub>(NCS)<sub>2</sub>].

Hal ini menunjukkan tidak ada pembentukan ikatan yang melibatkan C-H cincin piridina. Pada daerah 1447 cm<sup>-1</sup>, menunjukkan adanya serapan khas untuk vibrasi ulur C=N pada cincin piridina. Adanya pergeseran bilangan gelombang yang cukup besar menunjukkan molekul terlibat dalam proses pembentukan ikatan<sup>[7],[9],[18]</sup>, sehingga dimungkinkan ligan 2-aminopiridina berikatan dengan ion pusat kompleks melalui atom N piridina.

Sifat anion tiosianat yang mampu membentuk ikatan melalui atom S atau atom N dapat diamati melalui spektrum IR. Jika anion tiosianat berikatan melalui atom N, maka vibrasi C-N akan mengalami pergeseran bilangan gelombang ke arah yang lebih kecil

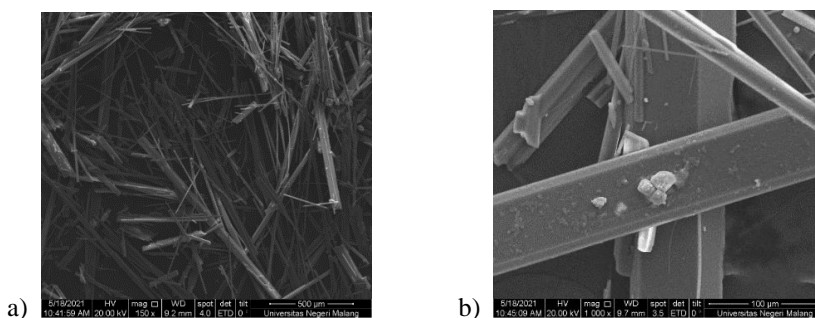
dan puncak vibrasi ulur S-C akan bergeser pada bilangan gelombang yang lebih besar dan sebaliknya<sup>[4],[7],[19]</sup>. Spektrum IR kristal kompleks menunjukkan adanya pergeseran puncak serapan vibrasi ulur C-N dari 2077 cm<sup>-1</sup> ke 2037 cm<sup>-1</sup>. Pita serapan vibrasi ulur S-C tidak terjadi pergeseran yang cukup signifikan yakni dari 742 cm<sup>-1</sup> ke 741 cm<sup>-1</sup>. Hasil ini menunjukkan ikatan antara ion pusat Zn<sup>2+</sup> dan anion tiosianat melalui atom donor N. Ikatan antara logam dengan ligan tidak dapat diidentifikasi karena hanya dapat ditemukan pada bilangan gelombang 400-200 cm<sup>-1</sup><sup>[20]</sup>. Berdasarkan data dari spektrum IR dan stoikiometri reaktan yang digunakan, persamaan reaksi yang diajukan untuk proses sintesis senyawa kompleks [Zn(2-NH<sub>2</sub>py)<sub>2</sub>(NCS)<sub>2</sub>] diperlihatkan pada Gambar 3.

Analisis SEM dilakukan dengan perbesaran 150 dan 1000 kali yang ditunjukkan pada Gambar 4. Hasil SEM menunjukkan kristal hasil sintesis berbentuk balok. Gambar 4b) menunjukkan adanya pengotor pada bagian permukaan kristal yang dianalisis. Pengotor ini diduga berasal dari sisa reaktan yang tidak ikut bereaksi atau produk ikutan/byproduct reaksi.

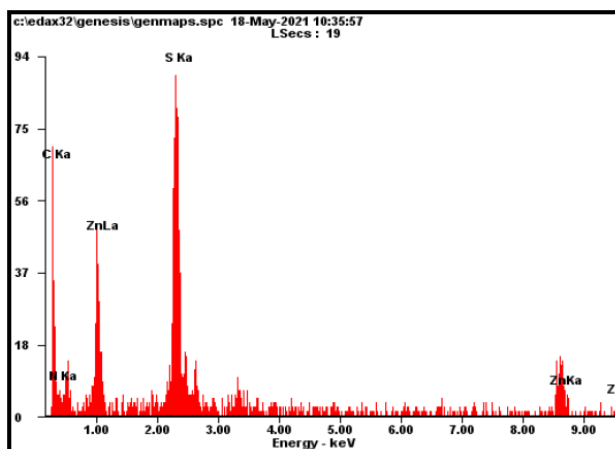
Analisis EDX digunakan untuk mengetahui persentase massa dan persentase atom dari senyawa. Gambar spektrum EDX ditunjukkan pada Gambar 5 dan hasil interpretasi spektrum EDX ditunjukkan pada Tabel 2.

Spektrum EDX memberikan informasi mengenai persen massa dan persen atom unsur

Zn, S, dan N. Berdasarkan Tabel 2, persentase massa(%Wt) dan persen atom(%At) hasil analisis menunjukkan kemiripan dengan persentase massa(%Wt) dan atom(%At) teoretis. Pada hasil EDX, perbandingan antara Zn: S yaitu 1:2 sesuai dengan perhitungan teoretis. Hal ini menunjukkan terdapat 2 ligan tiosianat dalam senyawa kompleks. Namun, untuk hasil EDX perbandingan antara Zn: N menunjukkan perbandingan 1: 4, sedangkan hasil teoretis menunjukkan perbandingan Zn: N yaitu 1:6. Sehingga berdasarkan hasil EDX, jika 2 atom N berasal dari 2 tiosianat yang terikat, maka 2 atom N lainnya berasal dari 1 molekul 2-aminopiridina. Hal ini menunjukkan hanya 1 ligan 2-aminopiridina yang terikat pada senyawa kompleks.



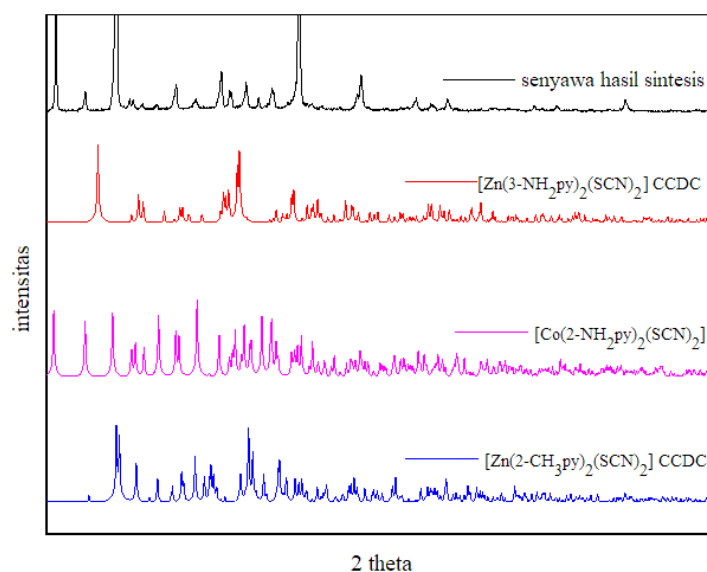
**Gambar 4.** Hasil SEM senyawa hasil sintesis perbesaran a) 150 kali dan b) 1000 kali.



**Gambar 5.** Spektrum EDX senyawa kompleks  $[Zn(2-NH_2py)_2(NCS)_2]$ .

**Tabel 2.** Komposisi presentasi massa atom-atom senyawa secara teoretis dan eksperimen  $[\text{Zn}(\text{2-NH}_2\text{py})_2(\text{NCS})_2]$ 

No	Atom	Eksperimen		Teoretis	
		%Wt	%At	%Wt	%At
1	Zn	18,74	4,65	18,28	4,76
2	S	13,70	6,92	17,93	9,52
3	N	14,18	16,41	23,71	28,57

**Gambar 6.** Difraktogram senyawa kompleks hasil sintesis dan senyawa referensi.

Namun, data EDX juga kurang akurat untuk analisis unsur atom N. Hal ini dapat disebabkan karena adanya pengotor pada permukaan kristal dan instrumen EDX yang kurang sensitif untuk menganalisis atom yang memiliki nomor atom kecil<sup>[20]</sup>. Selain itu, hasil EDX hanya memberikan informasi mengenai komposisi dari lokasi permukaan sampel sampai sekitar 20  $\mu\text{m}$  dari permukaan kristal sehingga kurang bisa menjangkau untuk senyawa yang memiliki ukuran yang lebih besar.

Berdasarkan asas energetika, tingkat energi dari senyawa kompleks  $[\text{Zn}(\text{2-NH}_2\text{py})_2(\text{NCS})_2]$  adalah paling rendah apabila efek tolakan dan efek sterik dari empat ligan minimal. Hal

tersebut terjadi apabila empat ligan yang diikat posisinya sejauh mungkin, yakni terletak pada pojok-pojok tetrahedral<sup>[21]</sup>, sehingga kompleks  $[\text{Zn}(\text{2-NH}_2\text{py})_2(\text{NCS})_2]$  dimungkinkan memiliki struktur tetrahedral seperti kompleks  $[\text{Zn}(\text{3-NH}_2\text{py})_2(\text{NCS})_2]$ <sup>[7], [14]</sup>,  $[\text{Zn}(\text{NCS})_2(\text{L})_2]$  (L= 2-bromopiridina, 3-kloropiridina dan 2-metilpiridina)<sup>[10]</sup> dan  $[\text{Zn}(\text{Ibup})_2(\text{2-NH}_2\text{py})_2]$ <sup>[22]</sup>. Difraktogram hasil analisis data XRD *powder* senyawa kompleks menunjukkan puncak-puncak yang tajam mengindikasikan bahwa senyawa kompleks yang dihasilkan memiliki kristalinitas yang tinggi<sup>[20]</sup>. Difraktogram kristal selanjutnya dicocokkan dengan beberapa senyawa referensi yang telah disintesis dan diperoleh gambar spektra seperti pada gambar 6.

**Tabel 3.** Diameter zona hambat senyawa terhadap mikroorganisme

No	Sampel/Kode	Diameter zona hambat(mm)	
		<i>S.typhi</i> (gram negatif)	<i>S.aureus</i> (gram positif)
1	ZnCl <sub>2</sub>	6,35	6,10
2	KSCN	6,15	6,05
3	2-aminopiridina	5,10	6,05
4	Hasil sintesis	5,00	6,80
5	Kloramfenikol	24,9	8,80

Berdasarkan gambar 6, senyawa hasil sintesis tidak menunjukkan kemiripan fasa dengan senyawa referensi. Hasil analisis Rietica dengan membandingkan sistem kristal senyawa referensi terdekat menunjukkan persen  $\chi^2$  15,581% dengan referensi [Zn(NCS)<sub>2</sub>(2-CH<sub>3</sub>py)<sub>2</sub>] dan  $\chi^2$  16,967%, untuk referensi [Co(NCS)<sub>2</sub>(2-NH<sub>2</sub>py)<sub>2</sub>]. Pencocokan dikatakan selesai jika nilai  $\chi^2$  kurang dari 4<sup>[23]</sup>, sehingga hasil *refinement* dengan rietica menunjukkan senyawa kompleks tidak memiliki kemiripan fasa dan sistem kristal dengan senyawa referensi. Oleh karena itu, diperlukan analisis lebih lanjut menggunakan XRD *single crystal* untuk mengetahui struktur, sistem kristal dan parameter kisi kristal secara mendalam.

Selanjutnya, uji aktivitas antibakteri dilakukan terhadap senyawa hasil sintesis dengan pembanding reaktan dan pelarut yang digunakan serta kloramfenikol. Data uji aktivitas antibakteri ditunjukkan pada Tabel 3.

Berdasarkan hasil uji aktivitas antibakteri senyawa kompleks dan reaktan pada Tabel 3, senyawa kompleks lebih sensitif terhadap bakteri *S.aureus* yang merupakan bakteri gram positif. Hal ini berkebalikan dengan reaktan ZnCl<sub>2</sub> dan KSCN yang cenderung lebih aktif terhadap bakteri gram negatif *S.typhi*. Hal ini diduga berkaitan dengan struktur dan muatan dari senyawa antibakteri dengan membran sel yang melapisi bakteri. Senyawa kompleks dan ligan bebas 2-aminopiridina cenderung lebih aktif terhadap bakteri gram positif berkaitan dengan adanya interaksi antara membran sel dengan gugus fungsi senyawa.

Bakteri gram negatif memiliki membran berlapis dengan lapisan terluar lipopolisakarida. Antibakteri perlu melewati saluran protein porin untuk dapat masuk dalam sel bakteri<sup>[24]</sup>. Senyawa dengan ukuran yang lebih kecil seperti ZnCl<sub>2</sub> dan KSCN lebih mudah masuk dibandingkan senyawa dengan ukuran yang lebih besar seperti senyawa kompleks [Zn(2-NH<sub>2</sub>py)<sub>2</sub>(NCS)<sub>2</sub>]. Hal ini diduga menjadi penyebab reaktan memiliki aktivitas antibakteri terhadap *S.typhi* yang lebih baik dibandingkan senyawa kompleks. Senyawa kloramfenikol menunjukkan aktivitas antibakteri terhadap *S.typhi* diduga berkaitan dengan adanya gugus seperti -NH, -NO<sub>2</sub> yang memungkinkannya untuk berinteraksi dengan protein porin dan membuatnya lebih mudah masuk dan mengganggu proses metabolisme sel bakteri. Adapun ligan 2-aminopiridina dan senyawa kompleks [Zn(2-NH<sub>2</sub>py)<sub>2</sub>(NCS)<sub>2</sub>] menunjukkan potensi antibakteri yang lebih sensitif terhadap bakteri gram positif. Bakteri gram positif memiliki membran sel peptidoglikan yang tebal (30-100 nm) namun tidak memiliki lapisan luar lipopolisakarida<sup>[24]</sup>. Aktivitas antibakteri ini diduga akibat terbentuknya ikatan hidrogen antara membrane sel dengan senyawa kompleks dan ligan 2-aminopiridina melalui atom N 2-aminopiridina sehingga menutup jalan untuk nutrisi masuk ke dalam sel<sup>[25]</sup>. Peningkatan aktivitas antibakteri senyawa kompleks dibandingkan ligan bebas 2-aminopiridina juga berkaitan dengan penurunan polaritas ion logam akibat adanya pembagian sebagian muatan positif atom pusat dengan atom donor ligan sehingga terjadi delokalisasi elektron



dalam kompleks logam. Penurunan polaritas kompleks tersebut meningkatkan karakter hidrofobik dan lipofilik dari kompleks logam sehingga memungkinkannya untuk masuk ke lapisan lipid membran bakteri<sup>[1],[9]</sup>.

Senyawa kompleks menunjukkan potensi antibakteri terhadap *S.aureus* (gram positif), namun tidak efektif untuk bakteri *S.typhi* (gram negatif). Aktivitas antibakteri senyawa kompleks yang dihasilkan kurang efektif dibandingkan antibiotik referensi kloramfenikol baik terhadap bakteri *S.typhi* maupun *S.aureus*. Senyawa referensi  $[Zn(Ibup)_2(2-NH_2py)_2]$  telah diuji aktivitas antibakterinya dengan metode difusi cakram dan pelarut DMSO terhadap *S.aureus* dan *E.coli* dan tidak menunjukkan aktivitas antibakteri terhadap keduanya<sup>[22]</sup>. Senyawa lain yang menggunakan 2-aminopiridina sebagai ligan seperti  $[Co(dca)_2(2-NH_2py)_2]$  menunjukkan aktivitas antibakteri terhadap *S.aureus* dengan diameter zona hambat 6 mm dan *S.typhi* 8.5 mm<sup>[1]</sup>. Hal ini menunjukkan aktivitas antibakteri hasil sintesis lebih aktif terhadap *S.aureus*, namun tidak seefektif kompleks referensi terhadap bakteri *S.typhi*.

## Kesimpulan

Senyawa kompleks dari  $ZnCl_2$ , KSCN dan 2-aminopiridina berhasil disintesis dengan mereaksikan reaktan dengan perbandingan mol 1:2:2 dalam pelarut metanol dan pemanasan menggunakan refluks suhu 64 °C selama 6 jam. Hasil sintesis yang diperoleh berupa kristal berbentuk balok dengan titik lebur 160-165 °C. Senyawa hasil sintesis merupakan senyawa ionik. Senyawa kompleks yang dihasilkan diduga memiliki geometri tetrahedral, namun diperlukan analisis kristalografi data XRD *single crystal* untuk memperoleh data struktur yang lebih akurat. Senyawa kompleks menunjukkan potensi antibakteri terhadap *S.aureus* (gram positif), namun tidak efektif untuk bakteri *S.typhi* (gram negatif). Aktivitas antibakteri senyawa kompleks yang dihasilkan kurang efektif dibandingkan antibiotik referensi

kloramfenikol baik terhadap bakteri *S.typhi* maupun *S.aureus*.

## Ucapan Terima Kasih

Peneliti mengucapkan terimakasih pada Universitas Negeri Malang (UM) yang telah memberikan dukungan terhadap penelitian ini melalui dana penelitian PNBPN dengan nomor kontrak 4.3.13/UN32/KP/2021.

## Daftar Pustaka

1. Yuoh, A. C. B., Agwara, M. O., Yufanyi, D. M., Conde, M. A., Jagan, R. & Oben Eyong, K., Synthesis, crystal structure, and antimicrobial properties of a novel 1-D cobalt coordination polymer with dicyanamide and 2-aminopyridine. *Int. J. Inorg. Chem.*, **2015**: 1–8 (2015).
2. Dong, D., Zheng, H., Zhao, L., Zhuang, P., Liu, T., He, C. & Duan, C., Synthesis, structure, and magnetic properties of a cyanidebridged Fe(III)-Cu(II) bimetallic double-zigzag chain with slow relaxation of the magnetization. *Sci. China Chem.*, **55(6)**: 1018–1021 (2012).
3. Chen, D. Y., Gao, H., Hu, X. F., Guo, X. Y., Yang, F. & Bai, Y., Synthesis, crystal structure, and luminescent properties of two ternary complexes with mixed thiocyanate and quinoline ligands. *Synth. React. Inorganic, Met. Nano-Metal Chem.*, **40(2)**: 112–115 (2010).
4. Handy, J. V., Ayala, G. & Pike, R. D., Structural comparison of copper(II) thiocyanate pyridine complexes. *Inorganica Chim. Acta*, **456**: 64–75 (2017).
5. Kumar Trivedi, M., Characterization of physical, thermal and spectral properties of biofield treated 2-aminopyridine. *Sci. J. Anal. Chem.*, **3(6)**: 127–134 (2015).
6. Forood, B., Flatt, B. T., Chassaing, C. & Katritzky, A. K., 2-aminopyridine derivatives and combinatorial libraries thereof. (1999).

7. Yufanyi, D. M., Nono, H. J., Yuoh, A. C. B., Tabong, C. D., Judith, W. & Ondoh, A. M., Crystal packing studies, thermal properties and hirshfeld surface analysis in the Zn(II) complex of 3-aminopyridine with thiocyanate as Co-ligand. *Open J. Inorg. Chem.*, **11(3)**: 63–84 (2021).
8. Dan, W. Y., Di, Y. Y., Liu, Y. J., Kong, Y. X. & Tan, Z. C., Low-temperature heat capacities and standard molar enthalpy of formation of dichloro bis(2-aminopyridine) zinc (II),  $ZnCl_2(C_5H_6N_2)_2(s)$ . *Int. J. Thermophys.*, **31(11)**: 2103–2118 (2010).
9. Tsague Chimaine, F., Yufanyi, D. M., Colette Benedicta Yuoh, A., Eni, D. B. & Agwara, M. O., Synthesis, crystal structure, photoluminescent and antimicrobial properties of a thiocyanato-bridged copper(II) coordination polymer. *Cogent Chem.*, **2(1)**: 1–14 (2016).
10. Wöhlert, S., Jess, I., Englert, U. & Näther, C., Synthesis and crystal structures of Zn(II) and Co(II) coordination compounds with ortho substituted pyridine ligands: Two structure types and polymorphism in the region of their coexistence. *CrystEngComm*, **15(26)**: 5326–5336 (2013).
11. Sugiyama, H., Sekine, A. & Uekusa, H., Crystal structure of bis(4-aminopyridine)bis(isothiocyanato)cobalt(II). *X-ray Struct. Anal. Online*, **31**: 27–28 (2015).
12. Moore, M. H., Nassimbeni, L. R. & Niven, M. L., Studies in Werner Clathrates. Part 6. Structures of two novel polymeric inclusion compounds: poly (bis (isothiocyanato) di (2-aminopyridine) nickel (II))· diethylether and di (aqua bis (isothiocyanato) 3-aminopyridine  $\mu$ -3-aminopyridine nickel (II))· water. *Inorganica Chim. Acta*, **132(1)**: 61–66 (1987).
13. Banerjee, S., Wu, B., Lassahn, P. G., Janiak, C. & Ghosh, A., Synthesis, structure and bonding of cadmium(II) thiocyanate systems featuring nitrogen based ligands of different denticity. *Inorganica Chim. Acta*, **358(3)**: 535–544 (2005).
14. Pan, W. L., Niu, X. L., Tang, W. & Hu, C. W., Bis(3-aminopyridine- $\kappa$ N)diisothiocyanatozinc(II). *Acta Crystallogr. Sect. E Struct. Reports Online*, **63(2)**: 304–305 (2007).
15. Dudev, T. & Lim, C., Tetrahedral vs octahedral zinc complexes with ligands of biological interest: A DFT/CDM study. *J. Am. Chem. Soc.*, **122(45)**: 11146–11153 (2000).
16. Almoudi, M. M., Hussein, A. S., Abu Hassan, M. I. & Mohamad Zain, N., A systematic review on antibacterial activity of zinc against *Streptococcus mutans*. *Saudi Dent. J.*, **30(4)**: 283–291 (2018).
17. Daković, M., Popović, Z., Giester, G. & Rajić-Linarić, M., Synthesis, spectroscopic and structural investigation of  $Zn(NCS)_2(\text{nicotinamide})_2$  and  $[Hg(SCN)_2(\text{nicotinamide})]_n$ . *Polyhedron*, **27(1)**: 465–472 (2008).
18. Kartal, Z. & Sahir, O., The synthesis of heteroleptic cyanometallate aminopyridine complexes and an investigation into their structural properties with various spectroscopic methods. *J. Mol. Struct.*, **1227**: (2021).
19. Nakamoto, K., *Infrared and Raman spectra of inorganic and coordination compounds: Part B: applications in coordination, organometallic, and bioinorganic chemistry. Infrared and Raman Spectra of Inorganic and Coordination Compounds: Part B: Applications in Coordination, Organometallic, and Bioinorganic Chemistry*, John Wiley & Sons, Inc., (2008).
20. Azhar, Z., Fariati, Wijaya, H. W., Jayanti, W. D., Golhen, S. & Wayan Dasna, I., Synthesis and characterization of zinc-thiocyanato and chromium(III)-quinoline complex as K-ion battery material. in *AIP Conference Proceedings*, **2228(1)**: 030004 (2020).
21. Effendy., *Perspektif baru kimia koordinasi*. Bayumedia Publishing, (2007).

22. Abu Ali, H., Omar, S. N., Darawsheh, M. D. & Fares, H., Synthesis, characterization and antimicrobial activity of zinc(II) ibuprofen complexes with nitrogen-based ligands. *J. Coord. Chem.*, **69(6)**: 1110–1122 (2016).
23. Kisi, E. H., Rietveld analysis of powder diffraction patterns. *Met. forum*, **18**: 135–153 (1994).
24. Silhavy, T. J., Kahne, D. & Walker, S., The bacterial cell envelope. *Cold Spring Harb. Perspect. Biol.*, **2(5)**: a000414 (2010).
25. Setifi, Z., Geiger, D., Jelsch, C., Maris, T., Glidewell, C., Mirzaei, M., Arefian, M., *et al.*, The first Fe(II) complex bearing end-to-end dicyanamide as a double bridging ligand: Crystallography study and Hirshfeld surface analysis; completed with a CSD survey. *J. Mol. Struct.*, **1173**: 697–706 (2018).