

## **SINTESIS SENYAWA TURUNAN 1,4-DIHIIDROPIRIDIN MELALUI REAKSI MULTIKOMPONEN MENGGUNAKAN METODE SONOKIMIA TERKATALISIS ZEOLIT TEREMBAN LOGAM**

**Yayan Dwi Sutarni  
20/466503/PPA/06069**

### **INTISARI**

Sintesis turunan 1,4-dihidropiridin dilakukan melalui reaksi multikomponen antara 3 jenis reaktan yaitu etil asetoasetat, aldehid dan amonium asetat menggunakan bantuan gelombang ultrasonik terkatalisis zeolit teremban logam. Penelitian ini diawali dengan proses impregnasi logam (Fe, Ni dan Cu) ke dalam zeolit ZSM-5. Optimasi kondisi reaksi meliputi pemilihan jenis katalis zeolit teremban logam, pemilihan jenis pelarut, suhu reaksi dan massa katalis yang digunakan. Kondisi optimum digunakan untuk menyintesis senyawa 1,4-dihidropiridin dari delapan jenis aldehid yang berbeda meliputi aldehid aromatik dengan gugus pendorong dan gugus penarik elektron, aldehid alifatik dan aldehid heterosiklik. Adanya perbedaan jenis aldehid yang digunakan bertujuan untuk mengetahui pengaruh perbedaan struktur aldehid terhadap produk yang dihasilkan dalam sintesis turunan 1,4-dihidropiridin. Uji pemakaian ulang katalis dalam sintesis senyawa turunan 1,4-dihidropiridin juga dilakukan menggunakan jenis aldehid benzaldehid pada kondisi optimum.

Hasil analisis SEM-EDX menunjukkan bahwa proses impregnasi telah berhasil menambahkan logam Fe, Cu, dan Ni ke dalam ZSM-5. Difraktogram XRD menunjukkan bahwa adanya penambahan logam tidak merusak struktur ZSM-5. Katalis zeolit teremban logam terbaik adalah Fe/ZSM-5 yang menghasilkan produk dengan persen hasil paling tinggi dibandingkan Ni/ZSM-5 dan Cu/ZSM-5. Oleh karena itu, kondisi optimum sintesis turunan 1,4-dihidropiridin dengan bantuan gelombang ultrasonik adalah reaksi dengan menggunakan 30 mg katalis Fe/ZSM-5 dalam pelarut etanol pada suhu 50 °C. Elusidasi struktur menggunakan <sup>1</sup>H-NMR, <sup>13</sup>C-NMR, FTIR dan GC-MS menunjukkan bahwa 8 jenis produk turunan senyawa 1,4-dihidropiridin dari berbagai jenis aldehid baik alifatik dan aromatik telah terbentuk dengan persen hasil 63-86%. Adanya gugus penarik dan gugus pendorong pada aldehid aromatik tidak memberikan perbedaan persen hasil produk yang signifikan begitu pula aldehid alifatik dan heterosiklik. Hal ini menunjukkan bahwa perbedaan struktur aldehid tidak mempengaruhi mekanisme reaksi yang terjadi dalam sintesis turunan 1,4-dihidropiridin secara sonokimia yang terkatalisis zeolit teremban logam. Uji pemakaian ulang katalis menunjukkan bahwa katalis Fe/ZSM-5 dapat digunakan hingga 4 kali pengulangan dalam sintesis turunan senyawa 1,4-dihidropiridin menggunakan bantuan gelombang ultrasonik.

**Kata kunci:** 1,4-dihidropiridin, katalis heterogen, sonokimia, ZSM-5

***SYNTHESIS OF 1,4-DIHYDROPYRIDINES VIA MULTICOMPONENT REACTION  
UNDER ULTRASONIC IRRADIATION IN THE PRESENCE OF METAL-  
IMPREGNATED-ZEOLITE CATALYSTS***

**Yayan Dwi Sutarni**  
**20/466503/PPA/06069**

**ABSTRACT**

The synthesis of 1,4-dihydropyridines was carried out using ultrasonic waves catalyzed by metal-impregnated zeolite in a multicomponent reaction involving three types of reactants namely ethyl acetoacetate, aldehyde, and ammonium acetate. This research begins with the impregnation of metals (Fe, Ni, and Cu) into ZSM-5 zeolite. Furthermore, optimization of the reaction conditions includes selecting the type of metal impregnated zeolites catalyst, the type of solvent, the reaction temperature, and the mass of the catalyst used. From eight different types of aldehydes, including aromatic aldehydes with electron-donating groups and electron-withdrawing groups, aliphatic aldehydes, and heterocyclic aldehydes. Optimal condition was used to synthesize 1,4-dihydropyridine compounds. The use of various types of aldehydes is aimed to determine the effects of differences in aldehyde structure on the synthesis of 1,4-dihydropyridine derivatives. The reusability test of catalyst was also carried out using benzaldehyde under optimum conditions.

According to SEM-EDX analysis, the impregnation process found success in adding Fe, Ni, and Cu metals to ZSM-5. XRD diffractogram showed that the addition of metal did not damage the structure of ZSM-5. Fe/ZSM-5 is the best metal impregnated zeolite catalyst, producing the highest yield compared to Ni/ZSM-5 and Cu/ZSM-5. As a result, the reaction using 30 mg Fe/ZSM-5 catalyst in ethanol at 50 °C was the best condition for the synthesis of 1,4-dihydropyridines using ultrasonic waves. Structural elucidation using <sup>1</sup>H-NMR, <sup>13</sup>C-NMR, FTIR, and GC-MS revealed that 8 products from various aldehydes were formed with 63-86% yield. The presence of an electron-donating and electron-withdrawing group in aromatic aldehydes, as well as aliphatic and heterocyclic aldehydes, did not result in a significant difference in yield. This indicates that the reaction mechanism in the sonochemical synthesis of 1,4-dihydropyridines catalyzed by metal-impregnated zeolites is unaffected by differences in aldehyde structure. According to the catalyst reusability test, the Fe/ZSM-5 catalyst could be reused up to four times in the synthesis of 1,4-dihydropyridines using ultrasonic waves.

**Keywords:** 1,4-dihydropyridine, heterogeneous catalyst, sonochemistry, ZSM-5