



## Optimasi Kondisi Operasi Ekstraksi Zat Warna Alami dari Daun Ketepeng (*Terminalia Catappa*) Menggunakan *Response Surface Method*

Zakiah Awalia JS Dahlan<sup>1\*</sup>, Edia Rahayuningsih<sup>2</sup>, Ahmad Tawfiequrrahman Y<sup>3</sup>

<sup>1,2,3</sup>Departemen Teknik Kimia, Fakultas Teknik, Universitas Gadjah Mada  
Jl. Grafika 2, Kampus UGM, Yogyakarta, 55281, Indonesia

\*E-mail : [edia\\_rahayu@ugm.ac.id](mailto:edia_rahayu@ugm.ac.id)

### Abstract

The textil industry are widely using dyes. Most of them use synthetic which can be damage the environment. Therefore it is necessary to do research which related to natural dye production. This research aimed to obtain the optimum condition of natural dye extraction from *Terminalia catappa*. There were three operating variables observed in this research; temperature, time, and the weight ratio of *Terminalia catappa* to the solvent volume. The extraction was conducted on a third-necked round-bottomed flask fitted with a stirrer, reflux condenser, heating mantle, and with eco-friendly solvents. Natural dye content on the extract was analyzed by gravimetric. The extraction was done 27 times for combination of 3 operating variables and 3 interval values of these variables. The optimization of operating variables extraction conditions had done by using *Response Surface Method (RSM)*. The results obtained were the optimum temperature was 100°C, the optimum extraction time was 90 minutes, and the ratio of the weight of *Terminalia catappa* to the solvent volume was 0.2 g/mL. In this optimum conditions, the natural dye concentration in the extracts was 102 mg/100g of leaves.

**Keywords** : Extraction, Optimization, Response Surface Method, *Terminalia catappa*, Natural dye

### Pendahuluan

Penggunaan pewarna alami merupakan budaya warisan leluhur di Indonesia sejak zaman dahulu, tetapi pada saat ini pewarna buatan lebih banyak digunakan daripada pewarna alami karena pewarna buatan lebih praktis dalam penggunaan, tidak mudah luntur, dan dipasaran mudah diperoleh. Namun pewarna buatan sangat berbahaya bagi lingkungan terutama bagi manusia karena sifatnya karsinogenik (Chen dan Li, 2006). Maraknya pencemaran lingkungan mengakibatkan zat pewarna buatan perlu dibatasi penggunaannya. Untuk itu diperlukan strategi untuk mengurangi penggunaan pewarna buatan di Indonesia, salah satunya dengan mulai menggunakan pewarna alami yang lebih ramah lingkungan. Hal ini dilakukan karena Indonesia memiliki banyak sumber daya alam sebagai bahan baku pewarna alami yang belum dieksplorasi secara optimal.

Tanaman ketepeng (*Terminalia Catappa*) tumbuh dengan mudah di seluruh daerah tropis, memiliki pohon besar dengan cabang yang tumbuh mendatar dan bertingkat, tingginya dapat mencapai 35 meter. Pada musim kemarau, daunnya berubah menjadi warna merah, tembaga. Pohon ketepeng biasanya menggugurkan daunnya dua kali dalam setahun, yaitu pada bulan Januari - Februari dan Juli - Agustus. Pohon pertama kali menggugurkan daunnya saat berumur 3-4 tahun. Daunnya besar dengan berukuran panjang 15-25 cm dan lebar 10-14 cm, berbentuk bulat dengan warna hijau tua, glossy dan kasar. Sebelum gugur, daun berubah warna menjadi warna merah muda, merah atau kuning kecoklatan. Hal ini disebabkan karena daun ketepeng mengandung pigmen violaxanthin, lutein, dan zeaxanthin, selain itu juga mengandung beberapa flavonoid (seperti kaempferol atau kuersetin), saponines, phytosterols, beberapa tanin (seperti punicalin, punicalagin atau tercatin) (Thomson, 2006).

Berdasarkan hasil identifikasi fitokimia kualitatif senyawa kimia yang terkandung dalam daun ketepeng antara lain tanin, saponin, dan flavonoid, senyawa-senyawa tersebut termasuk senyawa obat (Akharaiyil (2011) dan (Lin., 2000)). Kandungan kimia tersebut lebih banyak ditemukan pada daun yang masih hijau. Pigmen pewarna alami yang paling banyak terdapat dalam daun ketepeng adalah tanin dengan komponen utamanya ialah punicalagin (Tanaka, 1986).

Ekstraksi zat pewarna alami dari limbah daun ketepeng telah dilakukan oleh Vadwala dan Kola (2017), ekstrak yang dihasilkan selanjutnya diaplikasikan pada kain nilon dan kain sutera dengan menggunakan mordant yang



ramah lingkungan. Dari hasil penelitian diperoleh sifat tahan luntur, pada kain nilon dan kain sutera, sangat baik serta sisa cairan pewarna dapat digunakan sebagai pupuk. Selain itu ekstraksi pigmen zat pewarna alami dari daun ketepeng juga telah dilakukan oleh Lopez dkk. (2001) dengan menggunakan pelarut petroleum eter, aseton, dan heksana. Hasil ekstraksi maksimum yang dicapai adalah 24 mg / 100 g daun dengan perbandingan pelarut petroleum eter : aseton. = 70% : 30%.

*Response Surface Method (RSM)* merupakan metode penyelesaian dengan menggunakan matematika dan statistik yang efisien untuk mengevaluasi interaksi dan respon antara variabel - variabel proses. Metode ini digunakan untuk meminimalkan jumlah percobaan-percobaan yang diperlukan (Montgomery, 1991). Dalam penelitian ekstraksi zat warna alami pada ekstrak daun ketepeng, RSM digunakan untuk mempelajari pengaruh variabel proses suhu, waktu, dan rasio berat daun ketepeng dan volume pelarut. Penyusunan eksperimen dalam penelitian ini didasarkan pada desain Box-Behnken dengan tiga variabel dan tiga interval. Masing-masing variabel proses dikodekan pada tiga tingkat (-1, 0 dan +1) yaitu nilai terendah, tengah, dan tertinggi seperti disajikan pada Tabel 1. Model umum persamaan RSM sebagai berikut:

$$Y = \beta_0 + \sum_{i=1}^n \beta_i X_i + \sum_{i=1}^n \beta_{ii} X_i^2 + \sum_{i < j} \sum X_{ij} X_j + \epsilon \quad (1)$$

Dimana :  $i = 1, 2, 3$   
 $n = 3$

**Tabel 1.** Faktor dan Kode Interval Box-Behnken

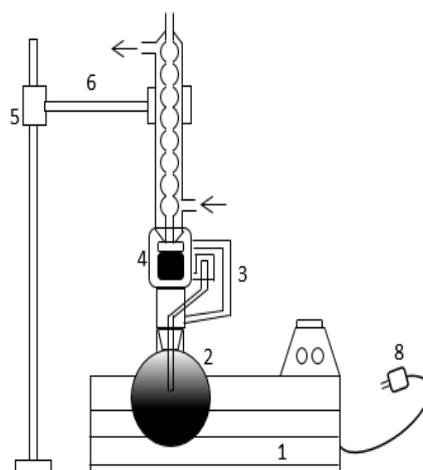
Variabel Independen	Faktor	Kode interval		
		-1	0	+1
Suhu	X <sub>1</sub>	40	70	100
Ratio daun dan pelarut	X <sub>2</sub>	0,02	0,07	0,2
Waktu	X <sub>3</sub>	15	50	90

## Metode Penelitian

### Bahan

Bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah daun ketepeng diambil dari lingkungan Fakultas Teknik UGM, Yogyakarta. Etanol dengan kemurnian 96% dan Akuades sebagai pelarut ramah lingkungan diperoleh dari CV. Genera Labora, Yogyakarta.

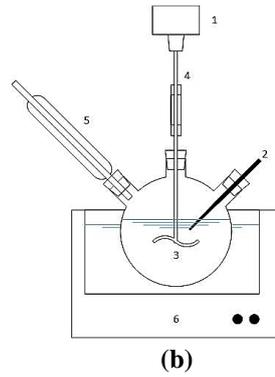
### Alat



Keterangan:

1. Pemanas mentel
2. Labu reaksi
3. Soxhlet
4. Bahan dalam kertas saring
5. Statif
6. Klem
7. Pendingin bola
8. steker

(a)



Keterangan :

1. Motor pengaduk
2. Termometer
3. Labu leher 3
4. Batang Pengaduk
5. Pendingin balik
6. Pemanas air

**Gambar 1.** Rangkaian Alat Percobaan (a) Alat Ekstraksi Soxhlet (b) Alat Ekstraksi Labu Leher Tiga

### Cara Kerja

Pelaksanaan penelitian ini dibagi menjadi dua bagian yang pertama adalah mencari kandungan zat warna alami daun ketepeng dan bagian kedua adalah untuk menentukan kondisi operasi optimum ekstraksi zat warna alami dari daun ketepeng.

### Penentuan Kadar Total Zat Warna Alami dalam Daun Ketepeng

Ekstraksi zat warna alami dari daun ketepeng merupakan salah satu ekstraksi padat - cair atau biasa disebut dengan *leaching*. Penentuan kadar total zat warna alami dalam daun dilakukan ekstraksi dengan *soxhlet* menggunakan pelarut etanol. Daun ketepeng sebanyak 2 g dibungkus kertas saring diekstraksi dengan pelarut etanol sebanyak 300mL. Ekstraksi dilakukan hingga zat warna alami dapat terekstrak habis dari daun ketepeng, dicirikan dengan pelarut yang menggenangi padatan tidak berwarna lagi. Analisis kadar total zat warna dalam ekstrak dilakukan secara gravimetri dengan cara berikut: volume ekstrak diukur dan ekstrak disentrifuge diambil 2 mL (sebanyak 5 ulangan), kemudian kandungan zat warna alaminya dianalisis dengan menggunakan metode gravimetri.

### Penentuan Kondisi Operasi Optimum dengan Menggunakan RSM

Pada penelitian ini alat ekstraksi disajikan pada Gambar 1(b). Ekstraksi dilakukan pada 3 variasi, yang pertama yaitu variasi suhu ( 100°C, 70°C, dan 40°C), variasi yang kedua yaitu rasio berat daun ketepeng terhadap pelarut air (0,2 g/mL; 0,07 g/mL; dan 0,02 g/mL), dan variasi ketiga yaitu waktu ekstraksi (90 menit, 50 menit, dan 15 menit) semua variasi dilakukan pada putaran pengaduk 400 rpm. Rancangan percobaan berdasarkan Box-Behnken disajikan pada Tabel 2. Berdasarkan rancangan percobaan tersebut selanjutnya ekstraksi dilakukan sebanyak 27 kali. Analisis kandungan pewarna dalam ekstrak dilakukan secara gravimetri dengan cara berikut: larutan hasil ekstraksi diambil 10 mL kemudian disentrifuge dan diambil 5 mL dianalisis menggunakan cara gravimetri.

**Tabel 2.** Rancangan Percobaan Berdasarkan Box-Behnken Untuk Optimasi Menggunakan RSM

No	Suhu (°C)	Rasio (g/mL)	Waktu (menit)	$Y_p$ (g warna/mL sampel)	No	Suhu (°C)	Rasio (g/mL)	Waktu (menit)	$Y_p$ (g warna/mL sampel)
1	100	0,2	90	$Y_{p1}$	15	70	0,07	15	$Y_{p15}$
2	100	0,2	50	$Y_{p2}$	16	70	0,02	90	$Y_{p16}$
3	100	0,2	15	$Y_{p3}$	17	70	0,02	50	$Y_{p17}$
4	100	0,07	90	$Y_{p4}$	18	70	0,02	15	$Y_{p18}$
5	100	0,07	50	$Y_{p5}$	19	40	0,2	90	$Y_{p19}$
6	100	0,07	15	$Y_{p6}$	20	40	0,2	50	$Y_{p20}$
7	100	0,02	90	$Y_{p7}$	21	40	0,2	15	$Y_{p21}$
8	100	0,02	50	$Y_{p8}$	22	40	0,07	90	$Y_{p22}$
9	100	0,02	15	$Y_{p9}$	23	40	0,07	50	$Y_{p23}$
10	70	0,2	90	$Y_{p10}$	24	40	0,07	15	$Y_{p24}$
11	70	0,2	50	$Y_{p11}$	25	40	0,02	90	$Y_{p25}$
12	70	0,2	15	$Y_{p12}$	26	40	0,02	50	$Y_{p26}$
13	70	0,07	90	$Y_{p13}$	27	40	0,02	15	$Y_{p27}$
14	70	0,07	50	$Y_{p14}$					



## Hasil dan Pembahasan

### Penentuan Kadar Zat Warna Alami Total dalam Daun Ketepeng

Berdasarkan ekstraksi menggunakan *soxhlet* diperoleh, kadar total zat warna alami pada daun ketepeng sebesar 69 mg /2 g daun atau 3450 mg /100 g daun. Dengan demikian dapat disimpulkan daun ketepeng sangat potensial digunakan sebagai bahan baku pewarna alami.

### Penentuan Kondisi Operasi Optimum dengan Menggunakan RSM

Berdasarkan pada percobaan yang telah dilakukan, diperoleh kadar zat warna ( $Y_p$ ) pada masing-masing percobaan seperti disajikan pada Tabel 3.

**Tabel 3.** Hasil Percobaan Optimasi Menggunakan RSM

No	Suhu (°C)	Rasio (g/mL)	Waktu (menit)	$Y_p$ (g warna/mL sampel)	No	Suhu (°C)	Rasio (g/mL)	Waktu (menit)	$Y_p$ (g warna/mL sampel)
1	100	0,2	90	0,02040	15	70	0,07	15	0,00234
2	100	0,2	50	0,01788	16	70	0,02	90	0,00194
3	100	0,2	15	0,01114	17	70	0,02	50	0,00188
4	100	0,07	90	0,00702	18	70	0,02	15	0,00148
5	100	0,07	50	0,00662	19	40	0,2	90	0,01834
6	100	0,07	15	0,00424	20	40	0,2	50	0,01750
7	100	0,02	90	0,00178	21	40	0,2	15	0,01308
8	100	0,02	50	0,00172	22	40	0,07	90	0,00516
9	100	0,02	15	0,00080	23	40	0,07	50	0,00506
10	70	0,2	90	0,01156	24	40	0,07	15	0,00272
11	70	0,2	50	0,01086	25	40	0,02	90	0,00196
12	70	0,2	15	0,00688	26	40	0,02	50	0,00186
13	70	0,07	90	0,00398	27	40	0,02	15	0,00124
14	70	0,07	50	0,00362					

Interaksi antara Variabel dan Respon dihitung berdasarkan hasil yang diperoleh dari eksperimen menggunakan program Minitab, dengan model matematika sebagai berikut:

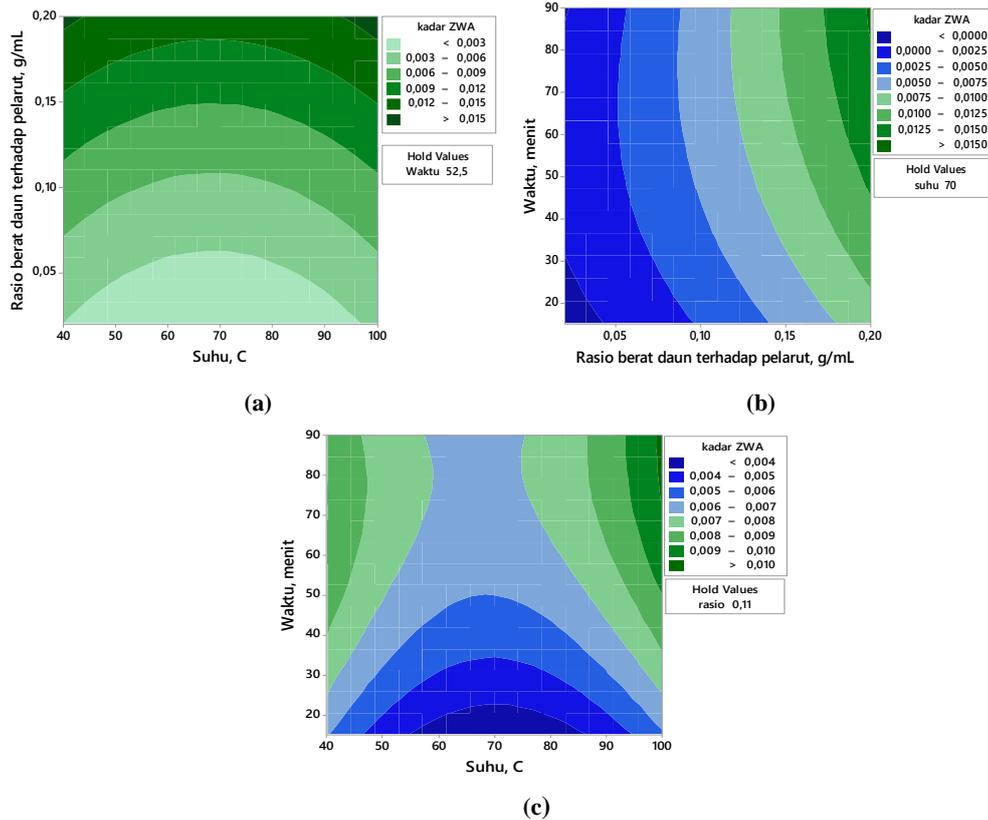
$$Y = 0,01278 - 0,000435 X_1 + 0,0289 X_2 + 0,000061 X_3 + 0,000003 X_1^2 + 0,090 X_2^2 - 0,000001 X_3^2 - 0,000007 X_1 X_2 + 0,000000 X_1 X_3 + 0,000415 X_2 X_3 \quad (2)$$

Berdasarkan persamaan (2), urutan variabel yang berpengaruh ialah suhu ( $X_1$ ), rasio berat daun – volume pelarut ( $X_2$ ), dan waktu ( $X_3$ ). Output yang dihasilkan dari persamaan tersebut didapatkan nilai  $R^2$  sebesar 93,71%. Ini berarti keragaman data kadar zat warna alami yang mampu dijelaskan oleh faktor suhu, waktu, serta rasio berat daun ketepeng - volume pelarut sebesar 93,71% sedangkan 6,29% sisanya dijelaskan oleh faktor lain yang tidak masuk dalam model. Berdasarkan data ini dapat dinyatakan bahwa ketiga variabel bebas yang diambil pada proses ekstraksi ini dapat diterima.

### Pengaruh Variabel Proses dan Pemilihan Kondisi Operasi Optimum pada Ekstraksi Daun Ketepeng

Gambar 2 menyatakan plot respon permukaan pengaruh suhu, waktu, serta rasio berat daun – volume pelarut pada ekstraksi zat warna alami dari daun ketepeng. Plot dari respon permukaan menunjukkan hubungan dua variabel proses dengan variabel ketiga dibuat konstan (dibuat pasif). Plot dari respon permukaan ini digunakan untuk menganalisis pengaruh variabel bebas berdasarkan persamaan model (Elksibi dkk, 2014).





Gambar 2. Plot respon permukaan (a). suhu vs rasio, (b). rasio vs waktu dan (c). suhu vs waktu

Berdasarkan plot respon permukaan yang disajikan pada Gambar 2 (a) dapat dinyatakan bahwa kisaran hasil konsentrasi zat warna alami dalam ekstrak maksimum sebesar 0,012 - 0,015 g/mL berada pada kisaran suhu 92 - 100°C dan rasio berat daun - volume pelarut sebesar 0,18 - 0,20 g/mL. Berdasarkan plot respon permukaan pengaruh interaksi antara rasio dengan waktu (Gambar 2 (b)), dapat dinyatakan bahwa kisaran kadar zat warna alami dalam ekstrak maksimum sebesar 0,012 - 0,015 g/mL diperoleh pada kisaran rasio berat daun dan volume pelarut sebesar 0,18 - 0,20 g/mL dan waktu 45 - 90 menit. Adapun berdasarkan Gambar 2 (c), dapat dinyatakan pada kisaran suhu 92 - 100°C dan waktu 45 - 90 menit diperoleh kisaran kadar zat warna alami paling maksimum sebesar 0,009 - 0,010 g/mL. Selanjutnya dengan menggunakan analisis RSM diperoleh kondisi optimum sebagai berikut; suhu optimum = 100°C, rasio berat daun terhadap volume pelarut optimum = 0,2 g/mL, dan waktu optimum = 90 menit, menghasilkan kadar zat warna alami dalam ekstrak sebesar = 0,02040 g/mL atau dapat dinyatakan sebagai 102 mg / 100 g daun. Lopez dkk. (2001) meneliti ekstraksi daun ketepeng dengan pelarut campuran petroleum eter : aseton = 70% : 30%, konsentrasi pewarna alami dalam ekstrak maksimum yang dicapai adalah 24 mg / 100 g daun. Dengan demikian hasil penelitian ini memberikan informasi yang lebih komprehensif dan lebih baik.

## Kesimpulan

Dengan menggunakan desain eksperimen *response surface method* (RSM), dapat ditetapkan kondisi operasi optimum ekstraksi zat warna alami dari daun ketepeng dengan dengan pelarut air sebagai berikut: Suhu = 100°C, Waktu = 90 menit, Rasio berat daun dan volume pelarut = 0,2 g/mL, menghasilkan konsentrasi zat warna alami dalam ekstrak sebesar 102 mg / 100 g daun.

## Daftar Pustaka

- Akharaiyil F.C., IlorivR.M., Adesida J.A. Antibacterial effect of *Terminalia cattapa* on some selected Pathogenic Bacteria. *International Journal of Pharmaceutical and Biomedical Research*. 2011; 2(2): 54-67
- Chen PS., dan Li JH. "Chemopreventive effect of punicalagin, a novel tannin component isolated from *Terminalia catappa*, on H-ras-transformed NIH3T3 cells. *Toxicology Letters*. 2006; 163: 44-53



- Elksibi, I., Haddar, W., Ticha, M. B., Gharbi, R., Mhenni, M. F. Development and optimisation of a non conventional extraction process of natural dye from olive solid waste using response surface methodology (RSM), *Food Chemistry*. 2014; 161, 345-352.
- Lin, Y., Kuo, Y., Shiao, M., Chen, C., Dan Ou, J. Flavonoid Glycosides from *Terminalia catappa L* *Journal of the Chinese Chemical Society*. 2000; 47(1): 253-256.
- Lopez E Hernandez., Ponce E AlQuicira., Cruz E Sosa., dan Guerrero I Legarreta. "Characterization and Stability of Pigments Extracted from *Terminalia Catappa* Leaves". *Journal of Food Sciences*. 2001; 66(6): 832-836
- Montgomery, D. C. *Design and Analysis of Experiments*. John Wiley & Sons, New York. 1991
- Tanaka Takashi, Nonaka Gen-Ichiro, dan Nishioka Itsuo., "Tannins and Related Compounds. XLII. Isolation and Characterization of Four New Hydrolyzable Tannins, Terflavins A and B, Tergallagin and Tercatain from the Leaves of *Terminalia catappa L*"., *Chem. Pharm. Bull.*, 1986; 34(3):1039-1049.
- Thomson Lex A.J, dan Evans B. *Terminalia catappa* (tropical almond). *Species Profiles for Pacific Island Agroforestry*. 2006
- Vadwala Yogesh dan Kola Namrita. "Natural Dyes Extracted From Waste Leaves of *Terminalia Catappa* Locally Known as Tropical Almond and its Application on Silk Fabrics Pretreated with Eco Friendly and Noneco-Friendly Mordants". *International Journal of Home Science*. 2017; 3(2): 175-181





## Lembar Tanya Jawab

**Moderator : I Gusti S. Budiaman (UPN "Veteran" Yogyakarta)**  
**Notulen : Refsky Fitriono (UPN "Veteran" Yogyakarta)**

1. Penanya : Hadi Yudha P. (UPN "Veteran" Yogyakarta)  
Pertanyaan : Kenapa menggunakan metode soxhlet?  
Jawaban : Karena untuk mencari kadar zat warna alami total dalam daun ketapang.
2. Penanya : Apriyani Wulansari (UPN "Veteran" Yogyakarta)  
Pertanyaan : Kenapa memakai RSM? Apa pertimbangannya?  
Jawaban : RSM dipilih untuk mengoptimalkan prosesnya, karena jika tidak variable yang dibutuhkan terlalu banyak,
3. Penanya : Andriani Wulansari (UPN "Veteran" Yogyakarta)  
Pertanyaan : Apakah ada proses lanjutan setelah ekstraksi soxhlet?  
Jawaban : Ada, yaitu menguapkan ekstrak kemudian diukur menggunakan metode gravimetric.
4. Penanya : Amethyst Valerie Andrian (UPN "Veteran" Yogyakarta)  
Pertanyaan : Mengapa dipilih daun ketapang? Kriteria daun ketapang yang dipilih?  
Jawaban : Daun yang masih hijau karena senyawa yang dicari pada daun tersebut.
5. Penanya : Diyah Ayu Sari (UPN "Veteran" Yogyakarta)  
Pertanyaan : Kenapa dipilih soxhlet untuk optimasi?  
Jawaban : Ada dua tahap proses untuk mengoptimasi yaitu ekstraksi soxhlet kemudian digunakan labu leher tiga (untuk optimasi).

