

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI SILIKA TERMODIFIKASI  
DENGAN TEMPLAT ANDROGRAFOLID**

**SKRIPSI**

Sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar Sarjana Farmasi

**RAYAN AYYESHA AULIA  
A183033**



**SEKOLAH TINGGI FARMASI INDONESIA  
YAYASAN HAZANAH  
BANDUNG  
2020**

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI SILIKA TERMODIFIKASI DENGAN  
TEMPLAT ANDROGRAFOLID**

**RAYAN AYYESHA AULIA  
A183033**

September 2020

Disetujui oleh:

Pembimbing

Pembimbing



apt. Wiwin Winingsih, M.Si.



Dr. apt. Adang Firmansyah, M.Si.

Kutipan atau saduran baik sebagian ataupun seluruh naskah, harus menyebut nama pengarang dan sumber aslinya, yaitu Sekolah Tinggi Farmasi Indonesia

*Skripsi ini saya persembahkan kepada Allah SWT sebagai rasa syukur atas rahmat dan hidayahNya. Skripsi ini saya persembahkan kepada papa, mama, Dirham selaku adik saya, dosen pembimbing, dan teman-teman Konversi 2018, khususnya Geng Hijau (Videla, Melina, Dian, Aisyah, Maskuni, Vinny, Kak Rina, Taufiq, Sandy, Teh Santi, dan Teh Maemuna) yang sudah menjadi inspirasi saya dalam menyelesaikan skripsi ini serta selalu membantu, mendoakan, dan menyemangati saya.*

## ABSTRAK

Andrografolid adalah senyawa bioaktif terbesar yang terkandung dalam berbagai bagian herba sambiloto, yang memiliki aktivitas biologis sangat luas. Akan tetapi, metode konvensional yang dilakukan untuk mengisolasi andrografolid tidak spesifik dan menghasilkan persentase perolehan kembali yang rendah. Oleh karena itu, berbagai penelitian telah dilakukan untuk mengisolasi andrografolid secara spesifik dan selektif. Silika termodifikasi merupakan salah satu bahan yang dapat digunakan dengan prinsip isolasi berdasarkan gugus fungsi senyawa target secara langsung. Silika termodifikasi adalah silika gel yang telah dilapisi dengan *Molecularly Imprinted Polymer* (MIP) pada permukaannya, yang merupakan polimer dengan rongga spesifik dan selektif untuk mencetak molekul target atau templat, baik dalam bentuk, ukuran, maupun gugus fungsionalnya. Penelitian ini dilakukan untuk menentukan metode penghilangan templat paling tepat dan mengetahui karakteristik silika termodifikasi yang terbentuk. Silika termodifikasi disintesis menggunakan variasi jumlah monomer fungsional dalam komposisinya dan variasi metode penghilangan templat yaitu kalsinasi, refluks, dan sonikasi. Karakterisasi yang dilakukan terhadap hasil sintesis yaitu dengan analisis konsentrasi menggunakan spektrofotometer UV-Visibel dan penentuan gugus fungsi menggunakan FTIR. Berdasarkan hasil penelitian yang dilakukan, metode penghilangan templat yang lebih baik yaitu sonikasi, yang menunjukkan sudah tidak ada serapan senyawa andrografolid. Hasil penelitian menunjukkan karakteristik silika termodifikasi memiliki gugus fungsi pengikatan Andrografolid yang tercetak.

**Kata kunci :** Silika termodifikasi, *Molecularly Imprinted Polymer* (MIP), Andrografolid, monomer fungsional, penghilangan templat, gugus fungsi

## **ABSTRACT**

*Andrographolide is a major bioactive compound in various parts of Sambiloto herb that has extensive biological activity. However, the existing conventional method to isolate andrographolide is unspecific and results a low recovery percentage. Therefore, many studies have been conducted to isolate andrographolide. Modified silica is a material that can be used with principle of isolation based on the functional groups of target compound directly. Modified silica is silica gel that has been coated with Molecularly Imprinted Polymer (MIP) on its surface. MIP is a polymer compound that has specific and selective cavity for printing target molecules, both in shape, size and functional groups. This research aims to determine the most appropriate template removal method as well as characteristic of modified silica formed. Modified silica was synthesized using various number of functional monomer in composition and various template removal methods, namely calcination, reflux, and sonication. Characterizations of synthesis product carried out by analyzing the concentration using UV-Visible spectrophotometer and determining the functional groups using FTIR. Based on the research data obtained, the appropriate method of template removal was sonication, which indicates that there was no more absorbance of andrographolide. The characteristic of modified silica had printed andrographolid binding functional groups.*

**Keywords :** *Modified silica, Molecularly Imprinted Polymer (MIP), Andrographolide, functional monomer, template removal, functional groups*

## KATA PENGANTAR

Puji dan syukur penulis panjatkan ke hadirat Allah SWT karena segala rahmat dan hidayah-Nya, penulis dapat menyelesaikan penelitian dan penulisan skripsi yang berjudul **Sintesis dan Karakterisasi Silika Termodifikasi Dengan Templat Andrografolid**. Penulisan skripsi ini dilakukan untuk memenuhi salah satu syarat untuk memperoleh gelar Sarjana Farmasi di Sekolah Tinggi Farmasi Indonesia.

Penulis mengucapkan terima kasih kepada dosen pembimbing apt. Wiwin Winingsih, M.Si. dan Dr. apt. Adang Firmansyah, M.Si. atas bimbingan, nasihat, dukungan serta pengorbanan yang diberikan. Pada kesempatan ini, tidak lupa penulis mengucapkan terima kasih yang sebesar-besarnya kepada:

1. Dr. apt. Adang Firmansyah, M.Si. selaku Ketua Sekolah Tinggi Farmasi Indonesia.
2. apt. Dewi Astriany, M.Si. selaku Wakil Ketua I Sekolah Tinggi Farmasi Indonesia.
3. apt. Revika Rachmaniar, M.Farm. selaku Ketua Program Studi Sekolah Tinggi Farmasi Indonesia.
4. apt. Deby Tristiyanti, M.Farm. selaku Dosen Wali yang telah memberikan bimbingan, arahan dan semangat kepada penulis.
5. Asisten laboratorium, laboran, dosen, bapak-bapak satpam serta seluruh karyawan Sekolah Tinggi Farmasi Indonesia.
6. Kedua orangtua dan Dirham, adik saya, yang selalu mendukung, membantu, menyemangati serta mendoakan sepanjang hidup penulis dalam suka maupun duka, serta selama perkuliahan maupun penulisan skripsi.
7. Rekan-rekan seperjuangan mahasiswa konversi 2018, yang telah memberikan banyak inspirasi, bantuan, semangat dan kegembiraan selama penulis kuliah di Sekolah Tinggi Farmasi Indonesia.
8. Annisa Furqoni Zahra dan rekan-rekan seperjuangan lab basah (*wet lab*) KK Farmakokimia dan lainnya yang telah banyak membantu, menyemangati dan bahu-membahu menyelesaikan penelitian

Dalam penyusunan skripsi ini masih banyak kesalahan dan kekurangan karena pengetahuan yang masih sangat terbatas. Oleh karena itu, dengan segala kerendahan hati diharapkan kritik dan saran yang bersifat membangun untuk perbaikan di masa mendatang. Akhir kata, semoga skripsi ini bermanfaat bagi masyarakat luas, institusi pendidikan dan khususnya penulis sendiri.

Bandung, September 2020

Penulis



## DAFTAR ISI

<b>LEMBAR PENGESAHAN</b> .....	<b>i</b>
<b>KUTIPAN</b> .....	<b>ii</b>
<b>PERSEMBAHAN</b> .....	<b>iii</b>
<b>ABSTRAK</b> .....	<b>iv</b>
<b>ABSTRACT</b> .....	<b>v</b>
<b>KATA PENGANTAR</b> .....	<b>vi</b>
<b>DAFTAR ISI</b> .....	<b>viii</b>
<b>DAFTAR TABEL</b> .....	<b>x</b>
<b>DAFTAR GAMBAR</b> .....	<b>xi</b>
<b>DAFTAR LAMPIRAN</b> .....	<b>xii</b>
<b>BAB I PENDAHULUAN</b> .....	<b>1</b>
1.1 Latar Belakang .....	1
1.2 Identifikasi Masalah .....	3
1.3 Tujuan Penelitian .....	3
1.4 Kegunaan penelitian .....	3
1.5 Waktu dan Tempat Penelitian .....	3
<b>BAB II TINJAUAN PUSTAKA</b> .....	<b>4</b>
2.1 Andrografolid .....	4
2.1.1 Sifat Fisikokimia.....	4
2.1.2 Aktivitas Farmakologi .....	4
2.1.3 Isolasi Andrografolid .....	5
2.2 Silika .....	5
2.3 <i>Molecularly Imprinted Polymer</i> (MIP) .....	6
2.3.1 Definisi .....	6
2.3.2 Komponen Penyusun .....	6
2.3.3 Kelemahan MIP .....	8
2.4 Sintesis Silika Termodifikasi .....	8
2.4.1 Metode Sol Gel .....	8
2.4.2 Bahan Penyusun.....	10
2.4.3 Metode Penghilangan Molekul Templat .....	11
2.4.4 Aplikasi Silika Termodifikasi.....	12

<b>BAB III</b>	<b>TATA KERJA .....</b>	<b>14</b>
	3.1 Alat.....	14
	3.2 Bahan.....	14
	3.3 Metode Penelitian.....	14
	3.3.1 Sintesis Silika Termodifikasi.....	14
	3.3.2 Karakterisasi Silika Termodifikasi .....	17
<b>BAB IV</b>	<b>HASIL DAN PEMBAHASAN .....</b>	<b>18</b>
	4.1 Sintesis Silika Termodifikasi .....	18
	4.1.1 Aktivasi Silika Gel.....	18
	4.1.2 Proses Sintesis .....	18
	4.1.3 Uji Variasi Metode Penghilangan Templat .....	22
	4.2 Karakterisasi Silika Termodifikasi.....	25
	4.2.1 Analisis FTIR .....	25
	4.2.2 Analisis Morfologis SEM.....	30
<b>BAB V</b>	<b>SIMPULAN DAN ALUR PENELITIAN SELANJUTNYA.....</b>	<b>32</b>
	5.1 Simpulan .....	32
	5.2 Alur Penelitian Selanjutnya.....	32
	<b>DAFTAR PUSTAKA .....</b>	<b>33</b>

## DAFTAR TABEL

Tabel	Halaman
3.1 Perbandingan Mol Andrografolid : APTES : TEOS.....	15
4.1 Hasil Pengukuran Absorbansi dan Konsentrasi dengan Metode Penghilangan Templat Berbeda.....	23
4.2 Hasil Pengukuran Absorbansi dan Konsentrasi Seluruh Varian Silika Termodifikasi Setelah Penghilangan Templat.....	24
4.3 Hasil Sintesis Silika Termodifikasi.....	25
4.4 Bilangan Gelombang Inframerah Gugus Fungsi .....	25

## DAFTAR GAMBAR

Gambar	Halaman
2.1 Struktur Andrografolid .....	4
2.2 Mekanisme Reaksi Hidrolisis pada Kondisi Asam .....	9
2.3 Mekanisme Reaksi Kondensasi pada Kondisi Asam .....	10
4.1 Mekanisme Reaksi APTES dengan Andrografolid .....	19
4.2 Mekanisme Reaksi Hidrolisis TEOS .....	20
4.3 Mekanisme Reaksi Hidrolisis APTES.....	20
4.4 Mekanisme Reaksi Polimerisasi Silika Termodifikasi .....	21
4.5 Perkiraan Struktur Hasil Sintesis Silika Termodifikasi .....	22
4.6 Hasil Spektrum Inframerah sample SA dan Perbandingan dengan Komponen-komponen Penyusun.....	26
4.7 Hasil Spektrum Inframerah sample SB dan Perbandingan dengan Komponen-komponen Penyusun.....	27
4.8 Hasil Spektrum Inframerah sample SC dan Perbandingan dengan Komponen-komponen Penyusun.....	28
4.9 Hasil Spektrum Inframerah sample SD dan Perbandingan dengan Komponen-komponen Penyusun.....	29
4.10 Hasil Spektrum Inframerah sample SE dan Perbandingan dengan Komponen-komponen Penyusun.....	30
4.11 Penampakan Partikel Silika dan Hasil Sintesis pada SEM.....	31

## DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran	Halaman
1. Komposisi Silika Termodifikasi .....	37
2. Proses Sintesis Silika Termodifikasi.....	39
3. Hasil Sintesis Silika Termodifikasi.....	40
4. Kurva Standar Andrografolid Spektrofotometri UV-Visibel.....	41
5. Data Spektrum FTIR Komponen Silika Termodifikasi .....	42
6. Data Perbandingan Spektrum FTIR Hasil Sintesis dengan Blanko.....	44

## DAFTAR PUSTAKA

- Barczak, M. 2018. "Template Removal from Mesoporous Silicas Using Different Methods As A Tool For Adjusting Their Properties". *New Journal of Chemistry* 42(6): 4182-4191.
- Barczak, M., Dabrowski, A., Pikus, S., Ryczkowski, J., Borowski, P., Kozak, M. 2010. "Adsorption". *New Journal of Chemistry* 16: 457-463.
- Boulanouar, S., Combès, A., Mezzacheb, S., Pichon, V. 2018. "Synthesis and Application Of Molecularly Imprinted Polymers For The Selective Extraction Of Organophosphorous Pesticides From Vegetable Oils". *Journal of Chromatography A*. 1513: 59-68.
- Buhani dan Suharso. 2010. "Modifikasi Silika Dengan 3-Aminopropiltrimetoksisilan Melalui Proses Sol Gel Untuk Adsorpsi Ion Cd (II) Dari Larutan". *Jurnal Sains MIPA* 16(3): 177-183.
- Chen, L., Wang, X., Lu, W., Wu, X., Li, J. 2016. "Molecular Imprinting: Perspectives and Applications". *The Royal Society of Chemistry* 45: 2137-2211.
- Delmifiana, B., dan Astuti. 2013. "Pengaruh Sonikasi Terhadap Struktur dan Morfologi Nanopartikel Magnetik yang Disintesis Dengan Metode Kopresipitasi". *Jurnal Fisika Unand*. 2(3): 186-189.
- Ding, L., Luo, X.B., Tang, F., Yuan, J.B., Guo, M., Yao, S.Z. 2008. "Quality Control Of Medicinal Herbs Fructus gardenia, Comon Andrographis Herb and Their Preparation for Their Active Constituents by High Performance Liquid Chromatography-Photodiodearraydetection-Electrospray Mass Spectrometry". *Talanta* 74: 1344-1349.
- El-Sawy, N.M., and Sagheer, F. A. 2001. Radiation-induced Graft Polymerization Of Acrylic Acid Onto Polytetrafluoroethylene-perfluorovinyl Ether) Copolymer Films: Complexation With Some Transition Metals And Biological Activity. *European Polymer Journal* 37: 161-166.
- Ellwanger, A., Bayouhd, S., Karlsson, L., Owens, P. K., Berggren, C., Crecenzi, C., Ensing, K., Cormack, P., Sherrington, D., Sellergren, B. 2001. "Evaluation Of Methods Aimed At Complete Removal Of Template From Molecularly Imprinted Polymers". *The Analyst*. 126(6), 784-792.
- Gabrielli, L., Russo, L., Poveda, A., Jones, J.R., Nicotra, F., et al. 2013. "Epoxide Opening Versus Silica Condensation during Sol-Gel Hybrid Biomaterial Synthesis". *Chemistry* 19: 7856-64.

- García, J. L., & Castro, L.M. 2003. "Ultrasound: a powerful tool for leaching". *TrAC Trends in Analytical Chemistry* 22(1): 41–47
- Herrera, G., Montoya, N., Domenech-Carbo, A., Alarcon, J. 2013. "Synthesis, Characterization And Electrochemical Properties Of Iron-Zirconia Solid Solution Nanoparticles Prepared Using A Sol-Gel Technique". *Physical Chemistry Chemical Physics Journal* 15: 19312-21.
- Jayakumar, T., Hsieh, C.Y., Lee, J.J., Sheu, J.R. 2013. "Experimental and Clinical Pharmacology of *Andrographis paniculata* and Its Major Bioactive Phytoconstituent Andrographolide". *Evidence Based Complementary and Alternative Medicine*. Taipei: Hindawi Publishing Corporation. P. 116-132.
- Jiang, X., Tian W., Zhao, C., Zhang, H., and Liu, M. 2007. "A Novel Sol-Gel Material Prepared By A Surface Imprinting Technique For The Selective Solid-Phase Extraction of Bisphenol A". *Talanta* 72: 119-125.
- Kardono, L.B.S., Artanti, N., Dewiyanti, I.D., Basuki, T., Padmawinata, K. 2003. *Selected Indonesian Medicinal Plants: Monographs and Descriptions*. Vol. 1. Jakarta: PT. Grasindo.
- Krishnan, H., Islam, A.K.M.S., Hamzah, Z., Nadaraja, P., Ahmad, M.N. 2019. "A Novel Molecular Imprint Polymer Synthesis for Solid Phase Extraction of Andrographolide". *Indonesia Journal of Chemistry* 19(1): 219 – 230.
- Margareta, W. 2017. "Sintesis Aerogel Silika Dengan Metode Freeze Drying". *Skripsi*. Jurusan Teknik Kimia Fakultas Teknologi Industri. Surabaya: Institut Teknologi Sepuluh November. Hal. 8; 10-11.
- Nakamura, Y., Matsunaga, H., Haginaka, J. 2016. "Preparation Of Molecularly Imprinted Polymers For Strychnine By Precipitation Polymerization And Multistep Swelling And Polymerization And Their Application For The Selective Extraction Of Strychnine From *Nux-vomica* Extract Powder". *Journal of Separation Science* 39(8): 1542-1550.
- Portaccio, M., Ventura, B.D., Mita, D.G., Manolova N., Stoilova, O., Rashkov, I., Lepore, M. 2010. "FT-IR Microscopy Characterization Of Sol–Gel Layers Prior And After Glucose Oxidase Immobilization For Biosensing Applications". *Journal of Sol-Gel Science and Technology* 57(2): 204-211.
- Prastiyanto, A. 2012. "Pengaruh Penambahan Merkaptobenzotiazol (MBT) terhadap Kemampuan Adsorpsi Gel Silika dari Kaca pada Ion Logam Kadmium". *Jurnal Saintifik Universitas Islam Negeri Alauddin Makassar* 4(2): 1-12.
- Rahmani, M.E., Ansari, M., Nateghi, M., Kazemipour, M. 2017. "Computation-Assisted Molecularly Imprinted Polymer Synthesis for Extraction of

- Naltrexone from Urine Using Experimental Design and Determination by UPLC–DA”. *Journal of AOAC International* 100(3): 700-711.
- Rajani, M., Shrivastava, N., dan Ravishankara, M.N. 2000. “A Rapid Method for Isolation of Andrographolide From *Andrographis paniculata* Nees (Kalmegh)”. *Pharmaceutical Biology* 38(3): 204-209.
- Ratnani, R.D., Hartati, I., dan Kurniasari, L. 2012. “Potensi Produksi Andrographolide Dari Sambiloto (*Andrographis paniculata* Nees) Melalui Proses Ekstraksi Hidrotropi”. *Momentum Fakultas Teknik Universitas Wahid Hasyim*8(1): 6-10.
- Renkecz, T., Lázló, K., Horváth, V. 2014. “Molecularly Imprinted Microspheres Prepared By Precipitation Polymerization at High Monomer Concentrations”. *De Gruyter Open* 2: 1-17.
- Scott, R.P.W. 1993. *Silica Gel and Bonded Phase, Their Production, Properties and Use in LC*. New York: John Wiley & Sons.
- Shimizu W, Sato T, Matsumoto T, Murakami Y. 2012. “Rapid Synthesis Of Low-Fractal Dimension Titanium Oxide Polymers By A Sol-Gel Technique Using Hydrazine Monohydrochloride”. *Journal of Nanoscience And Nanotechnology* 12: 3732-8.
- Shylesh, S., Sharma, S., Mirajkar, S., Singh, A. 2004. “Silica Functionalised Sulphonic Acid Groups: Synthesis, Characterization and Catalytic Activity in Acetalization and Acetylation Reactions”. *Journal of Molecular Catalysis A: Chemical*, 212(1): 219–228.
- Sigma-Aldrich. 2020. “IR Spectrum Table And Chart”. Tersedia di: <https://www.sigmaaldrich.com/technical-documents/articles/biology/ir-spectrum-table.html>. Diakses pada 18 September 2020.
- Skoog, D.A., Holler, F.J., Nieman, T.A. 1998. *Principles of Instrumental Analysis*. 3rd ed. New York: Saunders College Publishing. P. 181-187.
- Sirumapea, L., Zulfikar, M.A., Amran, M.B., dan Aini, A. 2018. “Studi Awal Sintesis Polimer Bercetakan Meropenem Sebagai Sorben Yang Selektif - Optimasi Monomer Fungsional”. *Jurnal Kimia dan Pendidikan Kimia Universitas Sebelas Maret* 3(2): 103-108.
- Spivak, D.A. 2005. “Optimization, Evaluation, and Characterization Of Molecularly Imprinted Polymers”. *Advance Drug Delivery Reviews*. 57: 1779-1794.
- Sudiarta, I.W., dan Suarya, P. 2018. “Modifikasi Silika Gel Melalui Reaksi Heterogen Dengan Difenilkarbazon”. *Cakra Kimia (Indonesian E-Journal of Applied Chemistry)* 6(2): 131-137.



- Warditiani, N.K., Widjaja, I.N.K., Noviyanti, N.W.R. 2014. "Isolasi Andrografolid dari *Andrographis paniculata* (Burm. f.) Ness menggunakan Metode Purifikasi dan Kristalisasi". *Jurnal Farmasi Udayana*. 3(1): 31-34.
- Yan, H., dan Row, K.H. 2006. "Characteristic and Synthetic Approach of Molecularly Imprinted Polymer". *International Journal Of Molecular Sciences* 7: 155-178.
- Zhang, B., Fan, X., Zhao, D. 2018. "Computer-Aided Design of Molecularly Imprinted Polymers for Simultaneous Detection of Clenbuterol and Its Metabolites". *Polymers Journal* 11(17): 105-126.