



Pemanfaatan *Precipitated Calcium Carbonat* dari Batu Kapur dalam Pembuatan β -TCP sebagai Bahan Dasar Implan Tulang

Noor Isnaini Azkiya^{1,*}, Fanny Prasetya², Rosita Dwi Chrisnandari¹, Wianthi Septia Witasari¹

¹Jurusan Teknik Kimia, Politeknik Negeri Malang, Jl. Soekarno Hatta No. 9, Malang 65141, Indonesia

²Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Brawijaya, Jl. Veteran, Malang 65145, Indonesia

*E-mail: noorisna@polinema.ac.id

ABSTRAK

Salah satu material yang bersifat biokompatibel serta sering digunakan sebagai bahan dasar implan tulang dan gigi adalah trikalsium fosfat. Material ini dapat dihasilkan dari *precipitated calcium carbonate* (PCC) batu kapur karena memiliki kandungan kalsium yang sangat tinggi. Metode yang digunakan untuk mensintesis trikalsium fosfat yaitu melalui pengendapan prekursor CaO dan H₃PO₄ dalam media etanol. Hasil sintesis dikarakterisasi menggunakan instrumen FT-IR, AAS, spektroskopi UV-Vis, dan XRD. Dari hasil analisis spektroskopi UV-Vis, rasio Ca/P dari hasil sintesis diperoleh sebesar 1,64. Uji FT-IR menunjukkan adanya gugus Ca-O pada bilangan gelombang sekitar 1400 cm⁻¹ dan gugus PO₄³⁻ pada bilangan gelombang 561 cm⁻¹ dan 1041 cm⁻¹. Uji XRD menunjukkan 3 puncak tertinggi dari β -TCP (trikalsium fosfat) yang sesuai dengan JCPDS no. 09-0169.

Kata kunci: Batu kapur, PCC, trikalsium fosfat, implan tulang.

ABSTRACT

One of the biocompatible materials that are often used as a basic materials for bone and dental implants is tricalcium phosphate. This material can be produced from precipitated calcium carbonate (PCC) limestone because it has a very high calcium content. The method used to synthesize tricalcium phosphate was deposition of CaO and H₃PO₄ precursors in ethanol media. The results of the synthesis was characterized using FT-IR instruments, AAS, UV-Vis spectroscopy, and XRD. Based on the results of the UV-Vis spectroscopic analysis, the Ca/P ratio of the synthesis results obtained was 1.87. FT-IR test showed the presence of a Ca-O group at wave number 1400 cm⁻¹ and PO₄³⁻ group at wave numbers 561 cm⁻¹ and 1041 cm⁻¹. XRD test showed highest peaks of β -TCP (tricalcium phosphate) according to JCPDS no. 09-0169.

Keywords: limestone, PCC, tricalcium phosphate, bone implants.

1. PENDAHULUAN

Precipitated Calcium Carbonate (PCC) merupakan kalsium karbonat halus yang merupakan hasil pemurnian dan hasil sintesis [1]. PCC merupakan produk turunan batu kapur yang memiliki daya guna tinggi dan telah mengalami proses rekarbonisasi dengan rumus kimia CaCO₃ [2]. Kristal PCC memiliki tiga polimorfi yang berbeda yaitu kalsit, vaterit dan aragonit. Perbedaan bentuk kristal tersebut bergantung pada kondisi lingkungan dan energi pembentukan

[1]. Secara termodinamika, kalsit merupakan kristal yang paling stabil sedangkan vaterit paling tidak stabil. Aragonit terbentuk pada tekanan dan temperatur yang tinggi serta bersifat metastabil dan secara lambat akan berubah menjadi kalsit [3]. PCC biasanya dimanfaatkan dalam industri pembuatan kertas, cat dan industri plastik [4]. Selain itu, PCC juga biasa digunakan sebagai aditif dalam lem, karet, tinta, kertas, farmasi, suplemen gizi dan aplikasi lainnya [1].



Tubuh manusia memiliki bagian terpenting yaitu tulang dan gigi. Kerusakan jaringan pada bagian tersebut dapat menyebabkan kecacatan struktur dan menimbulkan gangguan fungsi tubuh. Untuk memperbaiki struktur jaringan tulang dan gigi dapat dilakukan dengan penambahan dan penggantian jaringan [5,6]. Penambahan atau penggantian jaringan yang biasa disebut implan tulang dan gigi berfungsi untuk memperbaiki keadaan bentuk dan fungsi yang normal dari suatu jaringan. Pada prinsipnya, implan tulang dan gigi memerlukan bahan yang dapat diterima oleh jaringan tubuh, cukup kuat dan dapat berfungsi bersama-sama dengan jaringan tubuh di atasnya.

Terdapat banyak jenis senyawa kalsium ortofosfat yang menjadi konstituen utama yang menyusun tulang dan gigi manusia. Senyawa ini memiliki komponen utama kalsium, fosfor dan oksigen [7]. Senyawa ini merupakan biomaterial yang besar peranannya dalam dunia medis. Material tersebut banyak digunakan pada proses penyembuhan jaringan keras seperti kerusakan pada tulang dan sebagai pelapis implan yang dimasukkan ke dalam tubuh manusia. Bersifat tidak beracun serta mampu berintegrasi dengan jaringan hidup melalui proses aktif dalam pembentukan kembali tulang yang sehat [8].

Kalsium ortofosfat mulai diaplikasikan dalam dunia dental dan operasi sejak tahun 1980-an, diantaranya adalah hidroksiapatit, trikalsium fosfat, dikalsium fosfat, kalsium sulfat atau *bioactive glass*. Senyawa kalsium ortofosfat tidak banyak digunakan untuk aplikasi yang melibatkan beban kompresif karena memiliki kekuatan mekanik yang rendah sehingga senyawa tersebut lebih banyak digunakan sebagai pelapis implan atau sebagai pengisi tulang [9].

Pembuatan trikalsium fosfat membutuhkan sumber kalsium yang cukup tinggi. Salah satu bahan tersebut adalah batu kapur karena memiliki fraksi kalsium dengan kemurnian mencapai 98% [10]. Pada penelitian ini, PCC dari batu kapur alam digunakan

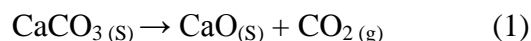
sebagai sumber pembuatan trikalsium fosfat karena bahan tersebut mudah diperoleh dan melimpah di alam. Sintesis trikalsium fosfat dapat dilakukan dalam metode basah-pengendapan pada suhu 60°C pada media etanol dan H₃PO₄ sebagai sumber fosfat.

2. METODE PENELITIAN

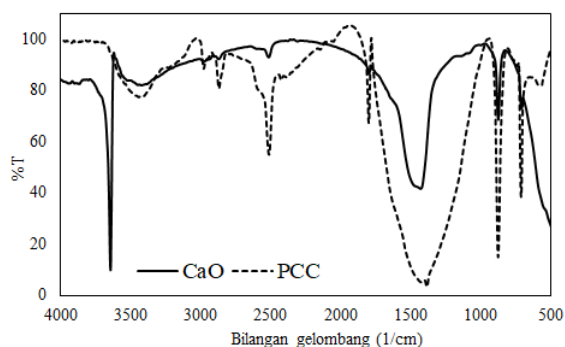
Precipitated calcium carbonat (PCC) dari batu kapur dikalsinasi pada suhu 900°C selama 20 menit. Hasil kalsinasi berupa CaO yang diperoleh kemudian digerus dengan mortar. Selanjutnya, CaO sebanyak 10 gram dan asam fosfat sebanyak 14 gram ditimbang dengan neraca analitik dan dimasukkan dalam 2 gelas kimia 250 mL. Masing-masing gelas kimia yang berisi CaO dan asam fosfat ditambahkan etanol sebanyak 50 mL kemudian diaduk. Selanjutnya, campuran fosfat dalam etanol dialirkan pada campuran CaO + etanol disertai pengadukan dan pemanasan pada 60°C. Setelah campuran fosfat dalam etanol habis, proses dilanjutkan dengan pemanasan pada 60°C selama 1 jam. Campuran kemudian didiamkan pada suhu kamar selama 12 jam. Selanjutnya, campuran diaduk dan dipanaskan pada suhu 60°C selama 30 menit. Selanjutnya, campuran disaring dan endapan yang diperoleh dikeringkan dalam oven pada suhu 100°C dan dilanjutkan pemanasan menggunakan tanur pada suhu 800°C selama 5 jam [11]. Sampel yang dihasilkan kemudian ditimbang dengan neraca analitik dan dianalisis menggunakan AAS, Spektroskopi UV-Vis, FT-IR dan XRD.

3. HASIL DAN PEMBAHASAN

Pembuatan trikalsium fosfat diawali dengan preparasi sampel, yaitu PCC batu kapur dikalsinasi pada suhu 900°C selama 20 menit untuk menghasilkan kalsium oksida (CaO) dan karbondioksida (CO₂) [12] seperti pada persamaan (1).

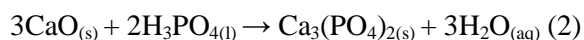


Setelah proses kalsinasi PCC mengalami penyusutan massa sebanyak 35-40% dan diperoleh serbuk CaO berwarna putih. Penyusutan massa yang terjadi menunjukkan adanya pelepasan gas CO₂ sebagai unsur penyusun yang terdapat dalam PCC. Salah satu bukti adanya pelepasan unsur dalam proses kalsinasi ini adalah berkurangnya intensitas puncak gugus karbonat (CO₃²⁻) pada bilangan gelombang sekitar 1400 cm⁻¹ dari spektra FT-IR hasil kalsinasi PCC. Selain itu, terdapat juga puncak lebar pada bilangan gelombang sekitar 400 cm⁻¹ yang menunjukkan gugus Ca-O [13]. Spektra FT-IR PCC dan hasil kalsinasi PCC tersaji pada Gambar 1.



Gambar 1. Spektra FT-IR PCC dan CaO

Sintesis trikalsium fosfat dilakukan dengan menimbang CaO sebanyak 10 gram dengan neraca analitik. Sumber fosfat yang digunakan dalam sintesis hidroksiapatit adalah H₃PO₄ 85% sebanyak 14 gram. Masing-masing padatan CaO dan H₃PO₄ ditambahkan etanol 96% sebanyak 50 mL sebagai media untuk mempermudah pencampuran CaO dan H₃PO₄. Larutan H₃PO₄ dialirkan ke dalam campuran CaO dan etanol disertai pengadukan dan pemanasan pada suhu 60°C. Reaksi yang terjadi pada proses pencampuran H₃PO₄ dan CaO ditunjukkan pada persamaan (2).

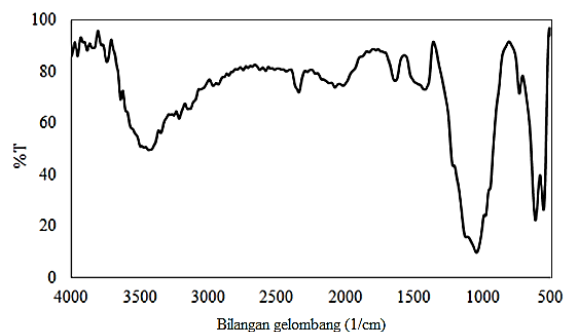


Dari proses pencampuran CaO dan H₃PO₄ kemudian dilakukan proses lanjutan untuk menghilangkan pelarut dan mendapatkan hasil yang maksimal, yaitu dengan

pendiaman selama 12 jam dan pemanasan kembali pada suhu 60°C. Endapan yang diperoleh kemudian dipanaskan menggunakan tanur pada suhu 800°C [11]. Sampel hasil sintesis yang diperoleh berbentuk serbuk dan berwarna putih dengan rendemen sebesar 76%.

Penentuan kadar Ca dilakukan menggunakan spektroskopi serapan atom sedangkan penentuan kadar P menggunakan spektrofotometer UV-Vis pada panjang gelombang 400 nm dengan pereaksi molibdovanadat. Penentuan kadar Ca dan P dilakukan untuk mengetahui rasio Ca/P hasil sintesis. Vlad, Dkk. menjelaskan bahwa trikalsium fosfat memiliki rasio Ca/P sebesar 1,5 [14]. Berdasarkan hasil analisis sampel menggunakan AAS dan spektroskopi UV-Vis, kadar Ca dan P diperoleh masing-masing sebesar 41% dan 25% sehingga dapat disimpulkan bahwa rasio Ca/P dari hasil sintesis adalah 1,64.

Pada spektra FT-IR hasil sintesis (Gambar 2) terdapat puncak pada bilangan gelombang sekitar 3500 cm⁻¹ yang menunjukkan gugus hidroksil (OH). Pada bilangan gelombang sekitar 1400 cm⁻¹ terdapat puncak yang menunjukkan gugus Ca-O. Kemudian pada bilangan gelombang sekitar 1000-900 cm⁻¹ terdapat vibrasi *stretching* dari gugus PO₄³⁻. Vibrasi *bending* PO₄³⁻ terdeteksi pada bilangan gelombang sekitar 600-500 cm⁻¹ [13].



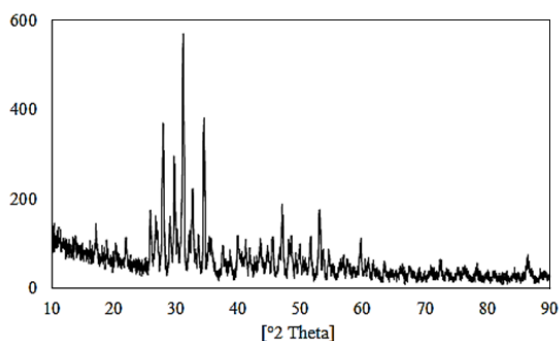
Gambar 2. Spektra FT-IR hasil sintesis β-TCP (tricalcium phosphate)

Karakterisasi XRD bertujuan untuk mengetahui kristalinitas hasil sintesis berdasarkan nilai 2θ dan intensitas spektra

yang diperoleh. Selanjutnya, hasil analisa XRD dibandingkan dengan data JCPDS untuk mengetahui tingkat kemiripan hasil sintesis dengan senyawa standar yang sudah diketahui. Difraktogram XRD hasil sintesis tersaji pada Gambar 3. Difraktogram hasil sintesis pada Gambar 3 menunjukkan karakteristik puncak yang mirip dengan JCPDS β -TCP (tricalcium phosphate) no. 09-0169 seperti tersaji pada Tabel 1.

Tabel 1. Perbandingan hasil sintesis dengan data JCPDS β -TCP

Hasil sintesis			JCPDS β -TCP		
2 θ	d	I (%)	2 θ	d	I (%)
21,98	4,04	9,9	21,87	4,06	16,0
27,82	3,20	57,7	27,76	3,21	55,0
31,10	2,87	100,0	31,02	2,88	100,0
34,35	2,61	58,3	34,37	2,60	65,0
41,73	2,16	8,6	41,68	2,16	12,0
48,02	1,89	11,8	47,96	1,89	16,0



Gambar 3. Difraktogram XRD hasil sintesis β -TCP (tricalcium phosphate)

Berdasarkan data pada Tabel 1, hasil sintesis memiliki kemiripan dengan data JCPDS β -TCP karena tiga puncak tertinggi yang dihasilkan sesuai dengan nilai 2θ β -TCP. Ketiga puncak dengan intensitas tertinggi tersebut adalah 27,82; 31,10 dan 34,35. Sehingga dapat disimpulkan bahwa hasil sintesis yang diperoleh menunjukkan adanya β -Trikalsium Fosfat (β -TCP). Namun demikian, berdasarkan difraktogram XRD juga menunjukkan adanya noise. Hal ini mungkin disebabkan karena masih adanya CaO atau H_3PO_4 yang belum bereaksi. Hal ini didukung pula oleh data IR (Gambar 2)

yang menunjukkan masih adanya puncak Ca-O pada bilangan gelombang sekitar 1400 cm^{-1} .

4. KESIMPULAN

Sintesis trikalsium fosfat berbahan dasar PCC dari batu kapur telah dilakukan dengan rasio Ca/P sampel hasil sintesis yang diperoleh sebesar 1,64 mendekati rasio Ca/P trikalsium fosfat sebesar 1,5. Karakterisasi menggunakan instrumen FT-IR terdeteksi adanya gugus PO_4^{3-} pada bilangan gelombang 500-600 cm^{-1} dan sekitar 1000 cm^{-1} , Ca-O pada bilangan gelombang 1400 cm^{-1} dan OH pada bilangan gelombang 3500 cm^{-1} dengan puncak yang cukup lebar. Karakterisasi menggunakan XRD diperoleh 3 puncak dengan intensitas tertinggi pada 2θ 27,82; 31,10 dan 34,35 yang identik dengan data JCPDS β -TCP no. 09-0169.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Direktorat Pendidikan Tinggi Indonesia yang telah mendanai penelitian ini.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] N. F. Apriliani, M. A. Baqiya, Darminto, Pengaruh Penambahan Larutan $MgCl_2$ pada Sintesis Kalsium Karbonat Presipitat Berbahan Dasar Batu Kapur dengan Metode Karbonasi, *Jurnal Sains dan Seni ITS*, vol. 1, no. 1, hal. B-30-B-34, 2012.
- [2] D. W. Nurhajati, S. Brotoningsih, Pengaruh Nano-Precipitated Calcium Carbonate Terhadap Kualitas Komposit Polivinil Klorida, *Jurnal Riset Industri*, vol. 6, no. 2, hal. 13-20, 2012.
- [3] P. Sabriye, D. O. OZgul, Effect of Process Conditions on Crystal Structure of Precipitated Calcium Carbonate ($CaCO_3$) from Fly Ash: Na_2CO_3 Preparation Conditions, *International Journal of Chemical, Environmental and Biological*

- Sciences, vol. 1, no. 6, hal. 192-195, 2012.
- [4] J.-A. Kim, G.-C. Han, M. Lim, K.-S. You, M. Ryu, J.-W. Ahn, T. Fujita, H. Kim, Effect of Hydraulic Activity on Crystallization of Precipitated Calcium Carbonate (PCC) for Eco-Friendly Paper, *International Journal of Molecular Sciences*, vol. 10, no. 11, hal. 4954-4962, 2009.
- [5] K. Dahlan, Y. W. Sari, E. Yuniarti, D.S. Soejoko, Karakterisasi Gugus Fosfat dan Karbonat dalam Tulang Tikus dengan Fourier Transform Infrared (FT-IR) Spectroscopy, *Jurnal Sains Material Indonesia*, hal. 221-224, 2006.
- [6] J. Sedyono, A. E. Tontowi, Proses Sintesis dan Karakterisasi FTIR Hidroksiapatit dari Gypsum Alam Kulon Progo, *Media Mesin: Majalah Teknik Mesin*, vol. 9, no. 1, hal. 6-12, 2008.
- [7] L. Wang, G. H. Nancollas, Calcium Orthophosphates: Crystallization and Dissolution, *Chemical Reviews*, vol. 108, no. 11, hal. 4628-4669, 2008.
- [8] S. V. Dorozhkin, Calcium Orthophosphates as Bioceramics: State of the Art, *Journal of Functional Biomaterials*, vol. 1, no.1, hal. 22-107, 2010.
- [9] J. Van der Stock, E. M. M. Van Lieshout, Y. El-Massoudi, G. H. Van Kralingen, P. Patka, Bone Subtitutes in the Netherlands – A Systematic literatur review, *Acta Biomaterialia*, vol. 7, no. 2, hal. 739-750, 2011.
- [10] Q. Lailiyah, M. A. Baqiya, Darminto, Pengaruh Temperatur dan Laju Aliran Gas CO₂ pada Sintesis Kalsium Karbonat Presipitat dengan Metode Bubbling, *Jurnal Sains dan Seni ITS*, vol. 1, no. 1, hal. B-6-B-10, 2012.
- [11] I. Wahdah, S. Wardhani, Darjito, Sintesis Hidroksiapatit dari Tulang Sapi dengan Metode Basah-Pengendapan, *Kimia Student Journal*, vol. 1, no. 1, hal. 92-97, 2014.
- [12] Z. R. Zhang, The Use of Precipitated Calcium Carbonate as TiO₂ Extender in Architectural Flat Wall Paint, Mississippi Lime Company, Ste. Genevieve, MO63670.
- [13] R. A. Nyquist, R. O. Kagel, Infrared Spectra of Inorganic Compound, Academic Press, Inc.: London, 1971.
- [14] M. D. Vlad, S. Gómez, M. Barracó, J. López, E. Fernández, Effect of the Calcium to Phosphorus Ratio on the Setting Properties of Calcium Phosphate Bone Cements, *Journal Materials Science: Materials in Medicine*, vol. 23, hal. 2081-2090, 2012.