SINTESIS β -TCP DENGAN METODE PRESIPITASI BASAH DARI BAHAN KAPUR ALAM

Synthesis of β -TCP by Wet Precipitation Method from Natural Lime

Ayu Ratnasari^{*)}, Naili Sofiyarningsih^{*)}, Muhammad Syaifun Nizar^{*)}, dan
Hernawan^{*)}

^{*)} Kontributor Utama

Balai Besar Keramik

Jl. Jend Ahmad Yani No 392 Bandung 40272

Naskah masuk: 23 Desember 2020, Revisi: 6 Januari 2021, Diterima: 15 Januari 2021

ABSTRAK

*B*eta-trikalsium fosfat (β -TCP) merupakan salah satu biomaterial yang banyak digunakan sebagai penyusun *scaffold* tulang dan bahan pembentuk semen kalsium fosfat. β -TCP memiliki karakteristik unggul seperti biokompatibel, memiliki kelarutan tinggi dan lebih mudah terdegradasi dibanding dengan kalsium fosfat jenis lain. Pada penelitian ini dilakukan sintesis bahan β -TCP dengan bahan baku kapur alam dan asam fosfat. Metode sintesis yang digunakan adalah presipitasi basah. Penambahan asam fosfat dilakukan secara titrasi dengan kecepatan 0,5 mL per detik. Reaksi dilakukan pada suhu 60°C dan kalsinasi pada suhu 800°C dan 1000°C. Hasil karakterisasi mineralogi dengan *X-Ray Diffractometer* (XRD) menunjukkan fasa mineral utama β -trikalsium fosfat telah terbentuk pada suhu 800°C sedangkan karakterisasi kandungan kimia dengan *X-Ray Fluoresence* (XRF) β -TCP memiliki rasio molar Ca/P sebesar 1,35-1,37.

Kata Kunci: β -trikalsium fosfat, presipitasi basah, kapur alam, asam fosfat

ABSTRACT

*B*eta-tricalcium phosphate (β -TCP) is a biomaterial that is widely used as bone scaffold and calcium phosphate cement. β -TCP has excellent characteristic such as biocompatible, highly solubility, and faster degradation rate than other types of calcium phosphate. In this research, β -TCP was synthesized from natural limestone and phosphoric acid. The synthesis method used is wet precipitation method. Phosphoric acid solution was added by titration at rate of 0,5 mL per second. Temperature reaction controlled at 60°C meanwhile calcination process at 800°C and 1000°C. The mineralogy characteristic by *X-Ray Diffractometer* (XRD) showed that β -tricalcium phosphate main phase was formed at 800°C and while characterization of

chemical content with X-Ray Fluorescence (XRF) β -TCP has a Ca/P molar ratio of 1,35-1,37.

Keywords: *β -tricalcium phosphate, wet precipitation, natural limestone, phosphoric acid*

I. PENDAHULUAN

Beta-trikalsium fosfat atau β -TCP adalah biomaterial yang sering digunakan dalam teknologi perbaikan tulang, semen, dan gigi karena memiliki sifat biokompatibel, bioaktif, dan osteokonduktif [1-3]. Selain itu, β -TCP memiliki keunggulan resorpsi yang membuatnya cocok sebagai bahan substitusi tulang. Substitusi ini melibatkan bahan keramik karena memberikan penyangga yang permanen namun seiring berjalannya waktu dapat terdegradasi dan tergantikan oleh jaringan alami [1]. β -TCP adalah fasa trikalsium fosfat (TCP) suhu rendah yang stabil pada suhu ruang sampai dengan suhu 1120-1125°C, dengan densitas pada suhu ruang adalah 3,07 g/cm³ [4–7]. Salah satu cara untuk mensintesis β -TCP adalah dengan metode presipitasi basah [8, 9]. Metode sol-gel, pembakaran, presipitasi kimia, dan hidrolisis juga dikenal untuk mensintesis β -TCP [10], namun tidak dibahas lebih lanjut pada tulisan ini.

Metode presipitasi basah memiliki keunggulan biaya operasional yang

rendah dan mendapatkan produk dengan komposisi serta sifat fisik yang dapat diatur sesuai dengan kebutuhan [10]. Beberapa penelitian yang sudah menggunakan metode presipitasi basah antara lain dengan mencampurkan kalsium nitrat tetrahidrat dengan diamonium hidrogen fosfat di mana rasio Ca/P dibuat tetap 1,5 [10] dan pengolahan cangkang kerang simping untuk material biokeramik dengan kontrol pH pada saat titrasi.

Penggunaan kapur alam sebagai bahan baku juga dapat dilakukan untuk mensintesis β -TCP. Reaksi kimia untuk sintesis β -TCP dari kapur alam adalah sebagai berikut:

Secara teori, hasil pencampuran kapur alam dan asam fosfat ini akan menghasilkan senyawa yang masih mengikat air. Kemudian senyawa ini dibakar untuk menghilangkan air dan terbentuk produk β -TCP. Metode presipitasi basah dengan menggunakan kapur alam dan asam fosfat merupakan metode yang cukup

sederhana serta cukup melimpah ketersediaan bahannya. Oleh karena itu, tujuan dari penelitian ini adalah mendapatkan serbuk β -TCP dari kapur alam dengan metode presipitasi basah.

II. METODOLOGI PENELITIAN

Penelitian dilakukan di laboratorium Balai Besar Keramik. Bahan yang digunakan adalah kapur alam yang telah diolah menjadi kalsium hidroksida [$\text{Ca}(\text{OH})_2$] dengan kadar air tertentu sebagai sumber kalsium. Asam fosfat teknis 85% yang telah diencerkan menjadi empat kali volume digunakan sebagai sumber fosfat. Sintesis β -TCP dilakukan melalui metode presipitasi basah. $\text{Ca}(\text{OH})_2$ direaksikan dengan asam fosfat dalam suatu wadah dengan perbandingan molar Ca/P 1,5. Proses penambahan asam fosfat dilakukan secara titrasi perlahan dengan kecepatan 0,5 ml per detik. Reaksi pencampuran ini merupakan reaksi eksoterm di mana terjadi pelepasan panas sehingga menghasilkan suhu sekitar 60°C dan pengadukan selama 6 jam. Hasil reaksi selanjutnya diendapkan selama 24 jam dan didekantasi untuk memisahkan endapan dan pelarut. Endapan

kemudian dikeringkan pada suhu 100°C dan dikalsinasi pada suhu 800°C dan 1000°C. Sampel yang dihasilkan berupa serbuk dan selanjutnya dikarakterisasi menggunakan *X-Ray Diffractrometer* (XRD), *X-Ray Fluoresence* (XRF), dan *Fourier-Transform Infrared Spectroscopy* (FTIR).

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

Pola difraktogram sampel mentah (sebelum dikalsinasi) ditunjukkan pada Gambar 1. Dari gambar tersebut, terlihat bahwa sampel sebelum dikalsinasi belum terbentuk fasa mineral β -TCP tetapi memperlihatkan terbentuknya fasa amorf dari dikalsium fosfat dihidrat (DCPD) dan dikalsium fosfat anhidrat (DCPA). Puncak-puncak utama fasa mineral DCPD ditunjukkan pada sudut difraksi 2θ 20,9867; 30,2549; dan 31,8302 sedangkan DCPA pada sudut difraksi 2θ 13,1712; 40,1368; dan 49,5481.

Setelah melalui proses kalsinasi, terlihat bahwa fasa kristalin β -TCP telah terbentuk pada suhu 800°C. Hal ini ditunjukkan adanya puncak-puncak difraksi pada sudut 2θ 31,0937; 41,2211; 53,0058; dan 59,6755. Puncak-puncak difraktogram terlihat

lancip menunjukkan tingkat kristalinitas yang baik. Setelah dikalsinasi pada suhu 1000°C pola difraktogram terlihat sama dengan yang dikalsinasi pada suhu 800°C

dan stabil. β -TCP merupakan bentuk polimorf stabil dari trikalsium fosfat pada suhu di bawah 1125°C dan akan berubah fasa pada suhu yang lebih tinggi [2]

Gambar 1. Difraktogram hasil XRD sampel β -TCP

Analisis kimia sampel β -TCP dengan XRF ditunjukkan pada Tabel 1. Hasil tersebut menunjukkan bahwa sampel β -TCP pada suhu 800°C dan 1000°C memiliki rasio molar Ca/P sebesar 1,35-1,37. Hal ini sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Wiendarti, dkk (2019) yang melakukan sintesis β -TCP dengan metode sol-gel dan menghasilkan rasio molar β -TCP Ca/P 1,3 [2].

Tabel 1. Analisis XRF β -TCP

Senyawa	Kandungan (%)	
	800°C	1000°C
CaO	49,45	50,80
P ₂ O ₅	46,91	47,06
MgO	0,569	0,571
SiO ₂	0,437	0,434
SO ₃	0,179	0,289
Al ₂ O ₃	0,167	0,129
Fe ₂ O ₃	0,106	0,108
LOI	1,55	0,41

Hasil analisis FTIR sampel sebelum dikalsinasi ditunjukkan pada Gambar 2. Dari gambar tersebut memperlihatkan spektrum pita serapan tajam pada $1049,28 \text{ cm}^{-1}$ yang menunjukkan vibrasi dari ikatan O-P. Vibrasi lenturan dari ikatan O-P-O ditunjukkan oleh pita serapan pada $570,93 \text{ cm}^{-1}$. Pita serapan khas gugus karbonat terdeteksi pada bilangan gelombang $871,82$ dan $1427,32 \text{ cm}^{-1}$. Pita serapan yang lebar dan intensitas tinggi gugus hidroksil dari molekul H_2O terdeteksi pada bilangan gelombang $1635,64 \text{ cm}^{-1}$ dan $3448,72 \text{ cm}^{-1}$ [11], [12].

Hasil analisis FTIR sampel β -TCP yang telah dikalsinasi pada 1000°C

ditunjukkan pada Gambar 3. Dari gambar tersebut memperlihatkan spektrum pita serapan tajam pada $1041,56 \text{ cm}^{-1}$ yang menunjukkan vibrasi dari ikatan O-P sedangkan pita serapan pada $941,26 \text{ cm}^{-1}$ menunjukkan vibrasi regangan simetris dari ikatan P-O. Vibrasi lenturan dari ikatan O-P-O ditunjukkan oleh pita serapan kembar pada $555,50 \text{ cm}^{-1}$ dan $609,52 \text{ cm}^{-1}$.

Pita serapan khas gugus karbonat $871,82$ dan $1427,32 \text{ cm}^{-1}$ sudah tidak tampak pada spektrum. Hal ini menunjukkan bahwa reaksi pembentukan β -TCP telah terjadi dengan sempurna.

Gambar 2. Hasil analisis FTIR sampel sebelum kalsinasi

Gambar 3. Hasil analisis FTIR β -TCP suhu 1000°C

Pita serapan gugus hidroksil pada bilangan gelombang 1635 cm^{-1} dan 3433 cm^{-1} dengan intensitas yang rendah menunjukkan sampel β -TCP pada suhu 1000°C diketahui masih mengandung molekul air dengan kadar lebih rendah dibandingkan dengan sampel mentah [13], [14].

IV. KESIMPULAN

β -TCP telah berhasil disintesis dari bahan baku kapur alam dan asam fosfat dengan metode presipitasi basah pada suhu reaksi 60°C serta suhu kalsinasi 800°C dan 1000°C. Berdasarkan karakteristik mineralogi fasa mineral β -TCP belum terdeteksi pada sampel yang belum dikalsinasi. Fasa mineral β -TCP mulai terbentuk pada suhu 800°C dan stabil pada

suhu 1000°C. Analisis kimia menunjukkan bahwa β -TCP memiliki rasio molar Ca/P sebesar 1,35-1,37.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] S. Bose, S. Tarafder, S. S. Banerjee, N. M. Davies, and A. Bandyopadhyay, "Understanding in vivo response and mechanical property variation in MgO, SrO and SiO₂ doped β -TCP," *Bone*, 2011, doi: 10.1016/j.bone.2011.03.685.
- [2] T. Windarti, A. Darmawan, and A. Marlina, "Synthesis of β -TCP by sol-gel method: Variation of Ca/P molar ratio," *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, vol. 509, no. 1, 2019, doi: 10.1088/1757-899X/509/1/012147.

- [3] X. . Bui, "Synthesis and in vitro Experiment of Biomaterial Tricalcium Phosphate," *ASEAN J. Sci. Technol. Dev.*, vol. 33, no. 2, p. 78, 2016, doi: 10.29037/ajstd.32.
- [4] R. G. Carrodegua, A. H. De Aza, I. García-Páez, S. De Aza, and P. Pena, "Revisiting the phase-equilibrium diagram of the $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2\text{-CaMg}(\text{SiO}_3)_2$ system," *J. Am. Ceram. Soc.*, 2010, doi: 10.1111/j.1551-2916.2009.03425.x.
- [5] J. H. Welch and W. Gutt, "874. High-temperature studies of the system calcium oxide-phosphorus pentoxide," *J. Chem. Soc.*, 1961, doi: 10.1039/JR9610004442.
- [6] R. B. Heimann and H. D. Lehmann, *Bioceramic Coatings for Medical Implants: Trends and Techniques*. 2015.
- [7] R. Famery, N. Richard, and P. Boch, "Preparation of α - and β -tricalcium phosphate ceramics, with and without magnesium addition," *Ceram. Int.*, 1994, doi: 10.1016/0272-8842(94)90050-7.
- [8] N. Kivrak and A. C. Taş, "Synthesis of calcium hydroxyapatite-tricalcium phosphate (HA-TCP) composite bioceramic powders and their sintering behavior," *J. Am. Ceram. Soc.*, 1998, doi: 10.1111/j.1151-2916.1998.tb02618.x.
- [9] J. S. V. Albuquerque, R. E. F. Q. Nogueira, T. D. Pinheiro da Silva, D. O. Lima, and M. H. Prado da Silva, "Porous Triphasic Calcium Phosphate Bioceramics," *Key Eng. Mater.*, vol. 254–256, pp. 1021–1024, 2004, doi: 10.4028/www.scientific.net/kem.254-256.1021.
- [10] I. Grigoraviciute-Puroniene *et al.*, "A novel wet polymeric precipitation synthesis method for monophasic β -TCP," *Adv. Powder Technol.*, 2017, doi: 10.1016/j.appt.2017.06.014.
- [11] K. Mineralogi, M. Biokeramik, K. Fosfat, D. Cangkang, and K. Simpang, "KARAKTERISTIK MINERALOGI MATERIAL BOKERAMIK JENIS KALSIMUM FOSFAT DARI CANGKANG KERANG SIMPING," *J. Keramik*, vol. 27, no. 2, pp. 77–93, 2019.
- [12] Erizal, "Sintesis dan Karakterisasi Tricalcium Fosfat Untuk Graf Tulang," in *Prosiding Seminar Ilmiah Hasil Penelitian Aplikasi Isotop dan Radiasi*, 2008, pp. 163–169.

- [13] F. Abida *et al.*, "Tricalcium phosphate powder: Preparation, characterization and compaction abilities," *Mediterr. J. Chem.*, 2017, doi: 10.13171/mjc63/01702031740-abida.
- [14] M. Ebrahimi and M. Botelho, "Biphasic calcium phosphates (BCP) of hydroxyapatite (HA) and tricalcium phosphate (TCP) as bone substitutes: Importance of physicochemical characterizations in biomaterials studies," *Data Br.*, vol. 10, pp. 93–97, 2017, doi: 10.1016/j.dib.2016.11.080.