

## PENGARUH PENAMBAHAN ETHYLENE GLYCOL TERHADAP FASA KRISTAL PRECIPITATED CALCIUM CARBONATE (PCC) DARI LIMBAH ASPAL BUTON DENGAN METODE SOLVOTHERMAL

\*Rian Indra Raharjanto<sup>1</sup>, Athanasius Priharyoto Bayuseno<sup>2</sup>, Rifky Ismail<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Mahasiswa Jurusan Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Diponegoro

<sup>2</sup>Dosen Jurusan Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Diponegoro

Jl. Prof. Sudharto, SH., Tembalang-Semarang 50275, Telp. +62247460059

\*E-mail: rian.indra.r@gmail.com

### Abstrak

Penggunaan limbah industri sebagai bahan baku alternatif kini semakin diperhatikan sebagai solusi untuk pengembangan material yang lebih berkelanjutan. Salah satu jenis limbah yang memiliki potensi adalah residu aspal Buton (Asbuton), yang mengandung banyak mineral karbonat, namun sampai saat ini masih belum digunakan secara maksimal. Studi ini bertujuan untuk mensintesis Precipitated Calcium Carbonate (PCC) dari limbah Asbuton melalui metode solvothermal, dengan menggunakan ethylene glycol (EG) sebagai bahan tambahan. PCC merupakan bahan anorganik yang sangat multifungsi dan banyak dimanfaatkan di berbagai sektor, seperti industri kertas, plastik, farmasi, kosmetik, serta konstruksi, karena karakteristik fisik dan kimianya yang dapat diatur. PCC terdiri dari tiga bentuk kristal utama, yaitu kalsit, aragonit, dan vaterit, di mana vaterit memiliki area permukaan yang luas tetapi bersifat tidak stabil. Prosedur penelitian meliputi kalsinasi limbah Asbuton pada suhu 900 °C selama 5 jam, pelarutan menggunakan HNO<sub>3</sub>, presipitasi dengan NH<sub>4</sub>OH, dan tahap solvothermal dalam autoclaf dengan variasi penambahan EG. Analisis karakterisasi utama dengan menggunakan X-Ray Diffraction (XRD) dilakukan untuk mengidentifikasi jenis fasa kristal yang terbentuk. Temuan riset menunjukkan bahwa PCC yang diperoleh terdiri dari fase kalsit, aragonit, dan vaterit, dengan dominasi fase yang berbeda-beda tergantung pada jumlah EG yang ditambahkan. Penambahan EG terbukti mampu meningkatkan stabilitas vaterit dan menghambat konversinya menjadi kalsit. Keunggulan ini membuat vaterit sangat menarik untuk digunakan dalam industri seperti pengisi kertas dan aditif farmasi. Secara keseluruhan, studi ini mengindikasikan bahwa limbah Asbuton dapat dimanfaatkan dengan nilai tambah yang tinggi melalui sintesis PCC yang kualitasnya dapat dikendalikan.

**Kata kunci:** aspal buton; ethylene glycol; precipitated calcium carbonate (pcc); solvothermal; x-ray diffraction (xrd)

### Abstract

The use of industrial waste as an alternative raw material is now increasingly being considered as a solution for the development of more sustainable materials. One type of waste that has potential is Buton asphalt residue (Asbuton), which contains many carbonate minerals, but until now it has not been used optimally. This study aims to synthesize Precipitated Calcium Carbonate (PCC) from Asbuton waste through a solvothermal method, using ethylene glycol (EG) as an additional material. PCC is a highly multifunctional inorganic material and is widely used in various sectors, such as the paper, plastics, pharmaceuticals, cosmetics, and construction industries, due to its tunable physical and chemical characteristics. PCC consists of three main crystal forms, namely calcite, aragonite, and vaterite, where vaterite has a large surface area but is unstable. The research procedure includes calcining Asbuton waste at a temperature of 900 °C for 5 hours. Dissolution using HNO<sub>3</sub>, precipitation with NH<sub>4</sub>OH, and solvothermal steps in an autoclave with varying EG additions. Primary characterization analysis using X-Ray Diffraction (XRD) was performed to identify the types of crystal phases formed. Research findings indicate that the obtained PCC consists of calcite, aragonite, and vaterite phases, with varying phase dominance depending on the amount of EG added. The addition of EG has been shown to increase the stability of vaterite and inhibit its conversion to calcite. These advantages make vaterite very attractive for use in industries such as paper fillers and pharmaceutical additives. Overall, this study indicates that Asbuton waste can be utilized with high added value through the synthesis of quality-controlled PCC.

**Keywords:** asphalt buton; ethylene glycol; precipitated calcium carbonate (pcc); solvothermal; x-ray diffraction (xrd)

### 1. Pendahuluan

Di Indonesia saat ini memiliki suatu permasalahan salah satunya pada limbah. Pada beberapa waktu terakhir ini limbah yang ada di Indonesia masih banyak yang tidak teratas. Maka pemanfaatan limbah yang dihasilkan suatu produk memiliki nilai yang sangat bagus jika limbah tersebut masih bisa dimanfaatkan atau diolah kembali. [1]. Dalam beberapa

waktu terakhir pemerintah Indonesia sedang berupaya untuk mengatasi limbah yang ada di Indonesia. Salah satu limbah industry yang cukup banyak di Indonesia yaitu merupakan limbah aspal yang berpotensi membahayakan lingkungan jika tidak diolah dengan baik [2]. Kepentingan dalam ketersediaan aspal di negeri sangat penting karena salah satu contohnya permintaan aspal di Indonesia sendiri masih sangat tinggi. [3,4]. Salah satu limbah yang menarik untuk diteliti adalah residu aspal Buton. Aspal Buton, atau yang lebih dikenal dengan sebutan Asbuton, adalah jenis aspal alam yang berasal dari Pulau Buton, Sulawesi Tenggara. Meskipun telah lama digunakan sebagai bahan untuk perkerasan jalan, residu yang dihasilkan dari proses pengolahannya sering kali hanya dibuang atau ditimbun tanpa ada pemanfaatan lebih lanjut. [5,6].

Ketersediaan aspal di Indonesia sangat penting, mengingat permintaan yang masih tinggi. Kebutuhan aspal minyak nasional belum tercukupi, sehingga Indonesia terpaksa mengimpor. [7]. Agar masalah ini dapat diatasi pemerintah Indonesia menggunakan Aspal Buton. Aspal Buton atau Asbuton merupakan aspal alam yang terkandung dalam suatu deposit batuan yang berasal dari Sulawesi. [8,9]. Padahal, residu Asbuton mengandung kalsium karbonat dalam jumlah besar yang berpotensi dijadikan bahan baku alternatif pembuatan *Precipitated Calcium Carbonate* (PCC)[10].

*Precipitated Calcium Carbonate* (PCC) merupakan sebuah bentuk kalsium karbonat yang diproduksi secara sintesis melalui beberapa metode secara kimia. PCC ini berasal dari sebuah batuan karbonat, yang sebagian besarnya merupakan partikel karbonat. [11]. PCC mempunyai nilai manfaat yang cukup tinggi karena dapat digunakan untuk berbagai kegunaan contohnya dalam bidang industri, yaitu tekstil, pembuatan kertas, pasta gigi, cat, sealant, kosmetik, dan plastik[12] Kalsium karbonat mengkristal dalam tiga bentuk polimorf anhidrat yang berbeda, yaitu vaterite, aragonite, dan kalsit [13].

*Solvothermal* merupakan sebuah metode yang dapat dilakukan untuk mensintesis kalsium karbonat atau metode yang digunakan untuk menghasilkan PCC dengan adanya tekanan dan suhu. Penambahan senyawa tertentu, seperti *ethylene glycol*, dapat memodifikasi pembentukan kristal PCC. *Ethylene glycol* diketahui berperan dalam menstabilkan vaterit dan mencegah transformasi cepat menjadi kalsit. Dengan demikian, penelitian terkait efek EG pada PCC dari limbah Asbuton menjadi sangat relevan [14].

Berdasarkan latar belakang tersebut, penelitian ini berfokus pada sintesis PCC dari limbah Asbuton menggunakan metode *solvothermal* dengan penambahan *ethylene glycol*. Karakterisasi dilakukan dengan analisis XRD untuk mengidentifikasi polimorf yang terbentuk serta potensi pengendalian morfologi kristal. Hasil penelitian diharapkan dapat memberikan kontribusi terhadap pengembangan material berbasis limbah lokal yang bernilai tinggi dan mendukung teknologi yang ramah lingkungan.

## 2. Bahan dan Metode Penelitian

Penelitian ini diawali dengan mempersiapkan bahan dasar yang akan digunakan untuk penelitian yaitu limbah aspal Buton. Limbah asbuton tersebut dihasilkan dan disaring menggunakan saringan berukuran 100 mesh dengan tujuan untuk mereduksi ukuran butirannya menjadi seperti serbuk. Limbah asbuton dengan ukuran butiran 100 mesh ini kemudian dilakukan proses kalsinasi menggunakan *furnace tabletop* pada suhu 900°C dengan *holding time* selama 5 jam. Tujuan dari proses kalsinasi ini yaitu untuk menghilangkan zat organic dan zat pengotor yang terkandung didalam limbah. Bahan kimia yang digunakan dalam penelitian ini antara lain larutan asam nitrat ( $HNO_3$ ) 2M sebagai pelarut untuk melarutkan mineral kalsium, larutan amonium hidroksida ( $NH_4OH$ ) 2M untuk proses netralisasi dan pembentukan  $Ca(OH)_2$ , larutan amonium bikarbonat ( $NH_4HCO_3$ ) 2M sebagai sumber ion karbonat dalam presipitasi, serta *ethylene glycol* (EG) sebagai aditif untuk memodifikasi morfologi dan menstabilkan fasa PCC.

*Aquadest* digunakan sebagai pelarut sekaligus media untuk mencuci sampel. Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini meliputi magnetic stirrer untuk mengaduk larutan dengan kecepatan 1200 rpm, beaker glass berbagai ukuran (10–2000 mL), pH meter digital, pompa vakum dengan sistem *vacuum filtration* menggunakan kertas saring *Whatman* No.42, oven untuk mengeringkan endapan PCC pada suhu 110 °C, serta *autoclave* sebagai reaktor *solvothermal* dengan suhu operasi 100 °C selama 24 jam. Proses penelitian dimulai dengan pelarutan, di mana 17 gram serbuk Asbuton hasil kalsinasi dicampurkan dengan 300 mL larutan  $HNO_3$  2M, kemudian diaduk pada suhu 60 °C selama 30 menit menggunakan magnetic stirrer. Setelah itu, ditambahkan  $NH_4OH$  2M hingga volume larutan mencapai 2 liter untuk membentuk  $Ca(OH)_2$ .

Proses selanjutnya adalah penyaringan menggunakan *vacuum filtration* untuk memisahkan residu padat dari filtrat cair. Filtrat kemudian dicampurkan dengan ethylene glycol sesuai variasi yang telah ditentukan dan diaduk pada suhu 30 °C dengan kecepatan 1200 rpm selama 15 menit. Setelah itu, larutan dicampurkan dengan 300 mL larutan  $NH_4HCO_3$  2M secara bertahap (100 mL setiap 5 menit) untuk menghasilkan endapan PCC. Reaksi yang terbentuk kemudian dimasukkan ke dalam *autoclave* untuk proses *solvothermal* pada suhu 100 °C selama 24 jam. Setelah proses pendinginan, endapan PCC disaring kembali, dicuci dengan aquadest sebanyak 2 liter, dan dikeringkan dalam oven pada suhu 110 °C selama 2 jam. Hasil PCC yang diperoleh kemudian dianalisis menggunakan X-Ray Diffraction (XRD) untuk menentukan fasa kristal yang terbentuk.

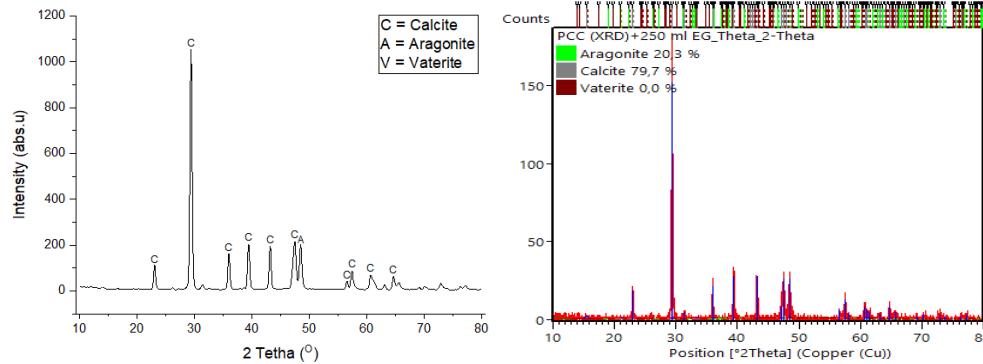
## 3. Hasil dan Pembahasan

Penelitian ini telah dilakukan yaitu merupakan sintesis dan melakukan pengujian karakterisasi *precipitated calcium carbonate* (PCC) menggunakan metode *solvothermal* dengan menggunakan tambahan larutan *ethylene glycol*. Bahan dasarnya sendiri berasal dari ekstraksi limbah aspal buton yang sudah melalui proses kalsinasi agar menghilangkan residu

yang ada. Penelitian ini akan membandingkan hasil dari konsentrasi penambahan larutan *ethylene glycol* dengan beberapa konsentrasi. Kemudian setelah mendapatkan hasil PCC dilakukan pengujian karakterisasi SEM, FTIR, dan XRD. Pengujian XRD dilakukan dengan sudut awal ( $2\theta$ ) mulai dari  $10^\circ$  dan diakhiri  $80^\circ$  dengan kecepatan pembacaan  $2^\circ$  per menit. Pengujian FTIR menggunakan alat spectrometer dengan daerah analisa pada wavenumber antara  $4000-400\text{ cm}^{-1}$ . Dan pengujian SEM dengan perbesaran  $100x$ ,  $500x$ ,  $1000x$ ,  $5000x$ .

### 3.1 Pengujian PCC dengan XRD

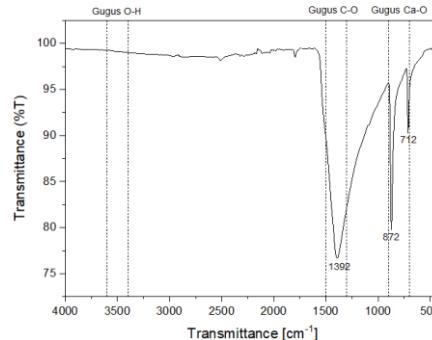
Pengujian XRD atau *X-Ray Diffraction* yang ditunjuk pada Gambar 1 yaitu untuk mencari komposisi fasa yang terkandung pada PCC limbah aspal buton dengan variasi konsentrasi 250 ml *ethylene glycol*. Data tersebut diperoleh dari pengujian XRD dengan meliputi sudut  $2\theta$  dan intensitas, yang kemudian dilakukan pengolahan data menggunakan *software HighScore Plus*. Gambar 1 menunjukkan bahwa analisis rietveld yang sudah dilakukan, diketahui presentase kristalinitas yang terkandung pada PCC limbah asbuton dengan penambahan EG 250 ml yaitu 20.3 % aragonit, 79.7 % kalsit, 0.0 % vaterite. Dan difraktogram menunjukkan *peaks* yang dominan terletak pada  $2\theta = 29.36^\circ$ ,  $39.41^\circ$ , dan  $43.28^\circ$



Gambar 1. Hasil Analisis Rietveld PCC +250 ml EG

### 3.2 Pengujian PCC dengan FTIR

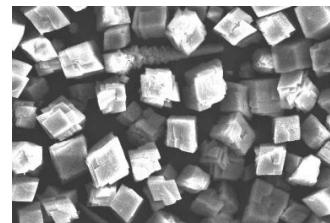
Pengujian FTIR ini dengan PCC limbah aspal buton dengan penambahan *ethylene glycol* sebanyak 250 ml menunjukkan puncak pada *wavenumber*  $712\text{ cm}^{-1}$  ( $v_4$ ),  $872\text{ cm}^{-1}$  ( $v_2$ ),  $1392\text{ cm}^{-1}$  ( $v_3$ ). Pita serapan pada  $1392\text{ cm}^{-1}$  mengindikasikan adanya vibrasi regangan asimetris dari gugus C–O dalam struktur  $\text{CaCO}_3$ . Puncak *wavenumber*  $710\text{ cm}^{-1}$  ( $v_4$ ) dan  $870\text{ cm}^{-1}$  ( $v_2$ ) mengindikasikan bahwa getaran gugus C–O terdeteksi pada  $\text{CaCO}_3$ . Tidak terdeteksinya pita serapan pada rentang  $3600-3400\text{ cm}^{-1}$  menunjukkan tidak adanya gugus O–H dalam sampel, yang menandakan bahwa proses pencucian dan pengeringan telah dilakukan dengan baik sehingga tidak terdapat kandungan air ( $\text{H}_2\text{O}$ ) maupun sisa senyawa  $\text{Ca(OH)}_2$ .



Gambar 2. Spektra PCC Limbah Asbuton +250 ml EG

### 3.3 Pengujian PCC dengan SEM

Morfologi PCC limbah ekstraksi asbuton dengan penambahan 250 ml *ethylene glycol* pada pengujian SEM dilakukan pada perbesaran  $100X$ ,  $500X$ ,  $1000X$ , dan  $5000X$  serta untuk hasil dari perbesaran  $1000x$  dapat dilihat pada Gambar 3.



Gambar 3. Hasil Pengujian SEM +250 ml EG

Hasil pengujian SEM pada sampel PCC limbah ekstraksi asbuton dengan penambahan konsentrasi *ethylene glycol* terlihat bentuk morfologi *rhombohedral*. Diketahui bahwa bentuk tersebut merupakan bentuk morfologi kalsit.

#### 4. Kesimpulan

Penelitian dari sintesis *precipitated calcium carbonate* (PCC) telah dilakukan dengan metode *solvothermal* dengan menambahkan larutan *ethylene glycol* dalam beberapa variasi yang kemudian dilakukan proses pengujian karakterisasi SEM, FTIR, XRD yang dapat menampilkan data yang ada pada PCC yang berbahan dasar limbah aspal buton. Penelitian ini juga dilakukan untuk membuktikan bahwa limbah aspal buton dapat digunakan sebagai bahan alternatif untuk melakukan sintesis *precipitated calcium carbonate* (PCC).

Variasi konsentrasi *ethylene glycol* berpengaruh terhadap karakteristik PCC yang dihasilkan. Hasil karakterisasi XRD menunjukkan jika konsentrasi penambahan *ethylene glycol* pada konsentrasi 0 ml cenderung menghasilkan kalsit, kemudian pada konsentrasi 50 ml dan 150 ml cenderung aragonite, dan pada konsentrasi 250 ml cenderung kalsit. hal ini dikarenakan aragonit didapatkan pada kondisi supersaturasi tertentu, sedangkan kalsit lebih banyak didapatkan akibat dari waktu inkubasi proses karbonasi yang tinggi.

Temuan ini menegaskan bahwa pengendalian rasio *ethylene glycol* dalam metode *solvothermal* menjadi kunci untuk menghasilkan PCC dengan morfologi dan sifat kristal yang diinginkan. Kehadiran vaterit yang lebih tinggi memberikan nilai tambah karena sifatnya yang reaktif dan luas permukaan besar, sehingga berpotensi diaplikasikan dalam industri farmasi, kosmetik, serta material pengisi berkinerja tinggi. Penelitian ini juga membuka peluang pemanfaatan limbah lokal secara berkelanjutan untuk menghasilkan produk bernilai tinggi dan ramah lingkungan.

#### 5. Daftar Pustaka

- [1] Kholid, H. N., Bayuseno, A. P. & Ismail, R., 2021. SINTESIS DAN KARAKTERISASI PRECIPITATED CALCIUM CARBONATE (PCC). *Jurnal Teknik Mesin S-1*, 9(3)
- [2] Kafabih, A., Wedyantadji, B. & Imananto, . E. . I., 2020. PENGGUNAAN ASPAL BUTON PADA CAMPURAN AC-WC ( ASPHALT CONCRETE - WEARING COURSE ). *GELAGAR*, 2(2), pp. 36-44.
- [3] Yunus, I. & Annisa, H., 2023. Analisis Penggunaan Asbuton Butir B50/30 Terhadap Kinerja Campuran Ac-Wc Dengan Variasi Temperatur Pemadatan. *Jurnal Teknik Sipil Universitas Lamappapoleonro (JTEKSIL)*, 1 Desember.2(1).
- [4] Kurniawati, D., Kholidah, F., Negarawati, R. G. M., Febriyanti, V. D., & Radiano, D. O. (2024). Pengelolaan limbah sampah rumah tangga sebagai upaya pelestarian lingkungan hidup. *Jurnal Wilayah, Kota Dan Lingkungan Berkelanjutan*, 3(1), 72-83.
- [5] Trisunaryanti, W. (2018). *Konversi Fraksi Aspal Buton Menjadi Fraksi Bahan Bakar*. UGM PRESS.
- [6] Pradani, N. (2023). *Pengaruh Penggunaan Material Perkerasan Jalan Daur Ulang dan Asbuton Butir Terhadap Kinerja Campuran Beraspal= The Effect of Recycled Material and Buton Granular Asphalt (BGA) on Asphalt Concrete Mixture Performance* (Doctoral dissertation, Universitas Hasanuddin).
- [7] Setiowati, R., & Putra, M. F. (2023). Struktur Biaya Produksi Aspal Buton Untuk Kebutuhan Infrastruktur Sebagai Substitusi Impor. *Jurnal Teknologi Dan Manajemen*, 21(1), 35-42.
- [8] Wirahaji, I. B., Wardani, A. A. A. M. C. & Widyatmika, M. A., 2021. KENDALA PENGGUNAAN ASBUTON PADA PROYEK JALAN DI INDONESIA. *Widya Teknik*, 11(02), pp. 33-42.
- [9] Widarsono, . B. et al., 2023. Integrated Approach to Investigate the Potential of Asphalt/Tar Sand on Buton Island, Indonesia. *Scientific Contributions Oil & Gas*, 46(2), pp. 65-85.
- [10] Dinulloh, M. R. W., Bayuseno, A. P., & Ismail, R. (2024). Karakterisasi Polivinyl Chloride (Pvc) Dengan Filler *Precipitated Calcium Carbonate* (Pcc) Dari Limbah Aspal Buton Menggunakan Pelarut Asam Asetat (Ch<sub>3</sub>cooh) Dengan Metode Ph-Swing. *Jurnal Teknik Mesin*, 12(2), 77-82.
- [11] Bucher, K. & Grapes, R., 2011. Metamorphism of dolomites and limestones.. *Petrogenesis of Metamorphic Rocks*, pp. 225 - 255.
- [12] Farrag, N. M., Bayaoumi, R. A. & Mohamed, A. T., 2022. Factorial analysis of nano-precipitated calcium carbonate via a carbonation route using Solvay wastewater. *Case Studies in Chemical and Environmental Engineering*, Volume 6.
- [13] Flaten, E. M., Seiersten, . M. & Andreassen, . J.-P., 2010. Growth of the calcium carbonate polymorph vaterite in mixtures of water and ethylene glycol at conditions of gas processing. *Journal of Crystal Growth*, pp. 953 - 960.
- [14] Khan, S. . R. et al., 2019. Agar and egg shell derived calcium carbonate and calcium hydroxide nanoparticles: Synthesis, characterization and applications. *Chemical Physics Letters*.