

Sintesis dan Karakterisasi Biokeramik Hidroksiapatit Bahan Tulang Sapi pada Suhu 800-1100°C

Ketut Adi Puspa dan Dwi Asmi

Jurusan Fisika FMIPA Universitas Lampung

Jl. Sumantri Brojonegoro No. 1 Bandar Lampung

Email: astungkara_swaha@yahoo.com dan dwiasmi82@yahoo.com

Diterima (20 Februari 2014), direvisi (20 Mei 2014)

Abstract. Hydroxyapatite bioceramics of cow bone was synthesised and characterized by ashing method. Cow bone powder was calcined by variation temperature of 800°C, 900°C, 1000°C, and 1100°C. To evaluate formed HA during synthesis process so characterization of some parameters was done like thermal properties by DTA/TG, measurement of functional groups used FTIR, crystal structure through XRD, and microstructures analysis by SEM. The TG analysis showed the mass decrease 32,765% of the entire mass. Measurement of functional group using FTIR shows absorption namely at wave number values of 1029, 602, dan 571 cm⁻¹ which indicate phosphate group (PO_4^{3-}); at 1437 dan 1415 cm⁻¹ which indicates carbonat group carbonate (CO_3^{2-}); and at 3698 dan 3572 cm⁻¹ which indicates hydroxyl group (OH^-). These results imply that the ashing method produce hydroxyapatite with excellent purity level and it formed better granules and smaller pores based on SEM result. The XRD result showed that the phases form at all variation temperatures was hydroxyapatite.

Keywords: *hydroxyapatite, bovine bone, DTA, FTIR, XRD, and SEM.*

Abstrak. Telah disintesis dan karakterisasi biokeramik hidroksiapatit dari bahan tulang sapi dengan metode pengabuan. Bubuk tulang sapi dikalsinasi dengan variasi suhu 800°C, 900°C, 1000°C, dan 1100°C. Untuk mengevaluasi HA yang terbentuk selama proses sintesis maka dilakukan karakterisasi beberapa parameter seperti sifat termal dengan DTA/TG, pengukuran gugus fungsi menggunakan FTIR, struktur kristal melalui XRD, dan analisis mikrostruktur dengan SEM. Analisis TG menunjukkan penurunan massa sebesar 32,765% dari massa total. Hasil pengukuran gugus fungsi dengan FTIR menunjukkan serapan pada bilangan gelombang (*wave number*) 1029, 602, dan 571 cm⁻¹ yang merupakan gugus fosfat (PO_4^{3-}); bilangan gelombang 1437 dan 1415 cm⁻¹ yang merupakan gugus karbonat (CO_3^{2-}); dan bilangan gelombang 3698 dan 3572 cm⁻¹ yang merupakan gugus hidroksil (OH^-). Berdasarkan hasil analisis uji SEM menunjukkan bahwa sintesis dengan metode pengabuan menghasilkan senyawa hidroksiapatit dengan tingkat kemurnian yang sangat baik dan membentuk butiran yang semakin baik serta pori-pori semakin kecil. Hasil XRD menunjukkan bahwa struktur kristal hidroksiapatit sudah terbentuk pada suhu 800°C dan sempurna pada suhu 1100°C. Hasil analisis XRD menunjukkan bahwa fasa yang terbentuk adalah hidroksiapatit.

Kata kunci: *hidroksiapatit, tulang sapi, DTA, FTIR, XRD, dan SEM.*

PENDAHULUAN

Biokeramik hidroksiapatit adalah keramik berbasis kalsium fosfat dengan rumus kimia $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$, merupakan paduan dua senyawa garam trikalsium fosfat (Ca_3PO_4) dan kalsium hidroksida ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) (Narasaraju and Phebe, 1996) dan disingkat HA. HA digunakan sebagai pembentukan jaringan keras (misalnya tulang atau gigi) karena dapat mempercepat pertumbuhan tulang di sekitar tulang/sendai (Chiu *et al.*, 2007) serta sifatnya yang tidak beracun dan biokompatibel (Nemirkol *et al.*, 2012).

HA sebagai material pengganti tulang yang umum digunakan adalah autograf (penggantian satu bagian tubuh dengan bagian tubuh lainnya dalam satu individu), allograf (penggantian tulang manusia dengan tulang yang berasal dari manusia lain), xenograf (penggantian tulang manusia dengan tulang yang berasal dari hewan) (Ratih dkk., 2003). Sehingga pemilihan biomaterial yang tepat sebagai bahan dasar HA sangat diperlukan dalam proses pengganti tulang, antara lain mudah diperoleh, efektif, dan tidak toksik (Riyani, 2005), maka peneliti menggunakan tulang sapi sebagai salah satu bahan dasar HA.

METODE PENELITIAN

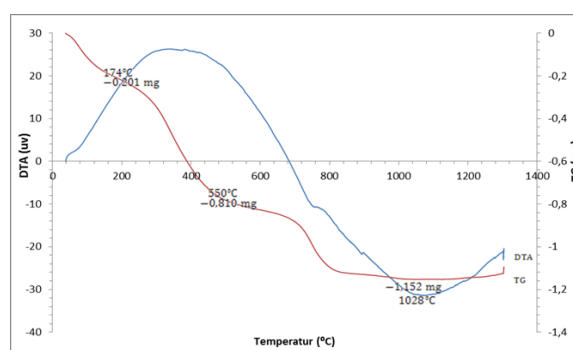
Penelitian ini dilakukan beberapa tahap diantaranya yaitu preparasi bahan dasar dengan menyiapkan dan mencuci bersih tulang sapi. Mengeringkan dengan oven pada suhu 120°C selama 3 jam dan merebus tulang sapi dalam *pressure cooker* selama 8 jam. Mengeringkan dengan oven pada suhu 150°C selama 2 jam dan merendam tulang sapi yang telah dikeringkan menggunakan larutan HCl 1 N selama 24 jam. Mengeringkan dengan oven pada suhu 100°C selama 12 jam dan merendam menggunakan larutan NaOH 1 N selama 24

jam. Mengeringkan kembali tulang sapi dengan oven pada suhu 100°C selama 12 jam kemudian menggerus selama ± 3 jam dan mengkarakterisasi DTA merk Seiko Seri Exstar TGA/DTA 7000. Memanaskan sampel pada suhu pembakaran 800°C, 900°C, 1000°C, dan 1100°C menggunakan furnace pada masing-masing sampel selama 5 jam yang sebelumnya penahanan suhu selama 30 menit pada suhu 300°C. Menggerus kembali sampel untuk uji karakterisasi FTIR merk Perkin Elmer Spectrum One, XRD merk Shimadzu X-Ray Diffractometer 7000, dan SEM merk Philips XL20.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada **Gambar 1** menunjukkan bahwa sampel terjadi kehilangan massa sebesar 3,045% pada rentang suhu 37°-174°C. Kehilangan massa yang terjadi pada suhu 174°C mengindikasikan adanya proses dehidrasi air pada pengotor dari tulang sapi ketika dipanaskan (Mondal *et al.*, 2012).

Kemudian pada temperatur 174°-550°C sampel mengalami kehilangan massa sebesar 12,27%. Hasil ini menunjukkan adanya puncak eksotermik pada suhu 350°C dan mengindikasikan bahwa terjadi proses dehidrasi air dan juga zat organik lain yang ada pada tulang sapi ketika mengalami kenaikan suhu pemanasan. Kemudian pada temperatur 550°-1028°C sampel mengalami kehilangan massa sebesar 17,45% dan menunjukkan terbentuknya puncak endotermik pada suhu 1060°C.

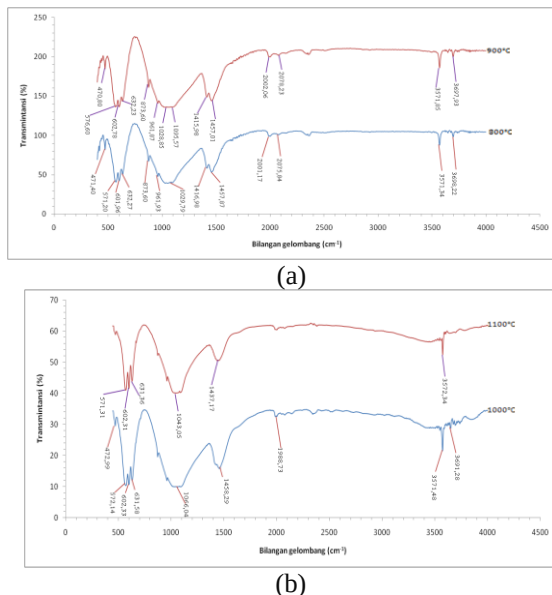


Gambar 1. Hasil analisis DTA/TG.

*Corresponding author:
E-mail: astungkara_swaha@yahoo.com

Puncak endotermik pada suhu tersebut mulai mengalami perubahan fasa, yaitu terbentuk $(\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2)$. Penurunan massa tercatat dari sampel berbahan tulang sapi dengan proses kalsinasi menjadi 67,235% karena kehilangan massa total sebesar 32,765%. Fenomena ini dijumpai juga pada penelitian Ooi *et al.*, (2007) yang menunjukkan penurunan massa sebesar 33% yang disebabkan hilangnya air dan dan zat organik dari tulang sapi.

Hasil analisis karakterisasi spektrum FTIR sampel biokeramik hidroksiapatit setelah dikalsinasiditunjukkan pada **Gambar 2** yang menghasilkan beberapa gugus fungsi yaitu hidroksil (OH^-), karbonat (CO_3^{2-}), dan posfat (PO_4^{3-}). Rentang gelombang gugus fungsi (OH^-) berkisar antara $3700\text{--}3600\text{ cm}^{-1}$, $3550\text{--}3500\text{ cm}^{-1}$, dan $3000\text{--}1700\text{ cm}^{-1}$ (Stuart, 2004), serta 3572 cm^{-1} (Luna-Zaragosa *et al.*, 2009). Gugus CO_3^{2-} berkisar antara $1400\text{--}1550\text{ cm}^{-1}$, 1459 cm^{-1} , 1458 cm^{-1} (Pudjiastuti, 2012), dan $880\text{--}800\text{ cm}^{-1}$, serta 634 cm^{-1} (Luna-Zaragosa *et al.*, 2009).



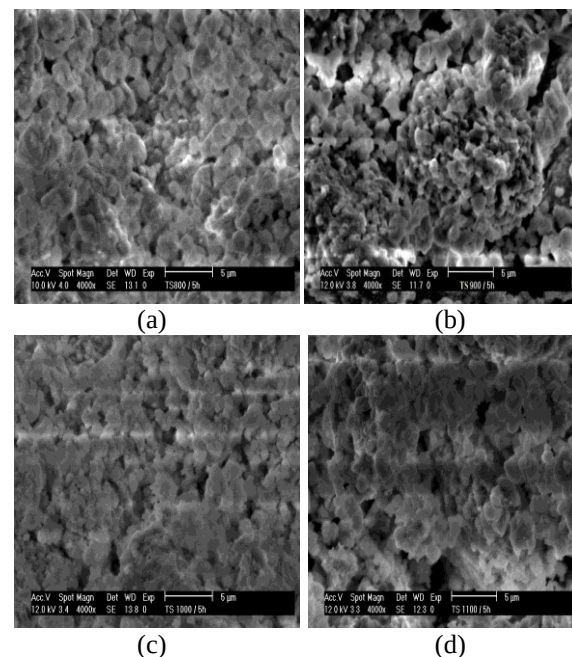
Gambar 2. Hasil penggabungan pola spektrum FTIR sampel Ts₈₀₀ dengan TS₉₀₀ (a), dan hasil penggabungan pola spektrum FTIR sampel Ts₁₀₀₀ dengan TS₁₁₀₀ (b) .

Sedangkan gugus PO_4^{3-} ini memiliki rentang panjang gelombang $1100\text{--}950\text{ cm}^{-1}$ (Stuart, 2004), 599 cm^{-1} , 472 cm^{-1} , 476 cm^{-1} , 479 cm^{-1} , 559 cm^{-1} , 564 cm^{-1} , 565 cm^{-1} , 573 cm^{-1} , 599 cm^{-1} , 600 cm^{-1} , dan 603 cm^{-1} (Pudjiastuti, 2012). Hasil ini ditunjukkan pada **Tabel 1**.

Tabel 1. Puncak spektra gugus fungsi $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_{10}(\text{OH})_2$ dari variasi suhu kalsinasi.

Gugus fungsi	800°C (cm^{-1})	900°C (cm^{-1})	1000°C (cm^{-1})	1100°C (cm^{-1})
OH	3698,22	3697,93	3691,28	3572,34
	3571,35	3571,85	3571,48	-
	2075,84	2078,23	1988,73	-
	2001,17	2002,06	-	-
	1457,87	1457,01	1458,29	631,36
CO_3^{2-}	1416,98	1415,98	631,48	1437,17
	873,69	873,39	-	-
	632,27	632,23	-	-
	1029,79	1095,57	1066,04	1043,05
PO_4^{3-}	961,93	1028,85	602,33	602,31
	601,96	961,87	572,14	571,31
	571,20	602,78	472,99	-
	471,40	576,60	-	-
	-	470,80	-	-

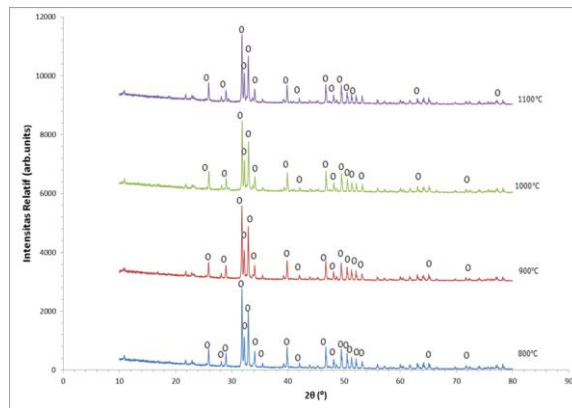
Hasil analisis SEM ditunjukkan pada **Gambar 3** berikut ini.



Gambar 3. Hasil karakterisasi SEM perbesaran 4000x (a) TS₈₀₀, (b) TS₉₀₀, (c) TS₁₀₀₀, dan (d) TS₁₁₀₀.

Gambar 3 (a) menunjukkan mikrostruktur yang dihasilkan sudah mulai menunjukkan butiran-butiran partikel namun belum jelas bentuk yang dihasilkan dan masih banyak terpisah oleh pori-pori yang cukup besar. Batas butir partikel yang terlihat juga belum terlalu jelas serta adanya proses *diaglomerasi* atau berbentuk gumpalan di beberapa bagian (Bahrololoom, *et al.*, 2009). **Gambar 3(b)** memperlihatkan mikrostruktur yang dihasilkan mulai menunjukkan butiran-butiran partikel yang lebih jelas namun masih dipisahkan oleh pori-pori yang cukup besar dengan batas butir yang sudah mulai terlihat lebih jelas. **Gambar 3(c)** mikrostruktur yang dihasilkan mulai membentuk butiran-butiran partikel bulat namun masih dipisahkan oleh pori-pori. **Gambar 3(d)** mikrostruktur yang dihasilkan sudah membentuk butiran-butiran bulat yang hanya sedikit dipisahkan oleh pori-pori. Butiran-butiran terdistribusi secara merata dan antara butiran yang satu dengan yang lainnya saling bersentuhan sehingga menghasilkan bentuk yang lebih homogen. Hal ini menyatakan bahwa HA memiliki kemampuan untuk mendukung jaringan tulang dipertumbuhan pada implantasi (Elkayar *et al.*, 2009).

Analisis dengan menggunakan metode difraksi sinar-X (XRD) sebagai tahap awal untuk mengidentifikasi pembentuk fasa pada sampel biokeramik hidroksiapatit dengan bahan dasar tulang sapi dengan menggunakan metode pencocokan (*search-match*) dengan data standard (data PDF atau *powder diffraction file data base*) menggunakan software PCPDFWIN. Hasil ini ditunjukkan pada **Gambar 4** yang menunjukkan fasa yang terbentuk hidroksiapatit dari rumus kimia kalsium fosfat hidroksida ($\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{OH}$) dengan nomor PDF File 9-0432



Gambar 4. Pola difaksi sinar-X sampel hasil penggabungan pola difaksi sinar-X sampel TS₈₀₀, TS₉₀₀, TS₁₀₀₀, dan TS₁₁₀₀ dengan O: hidroksiapatit/kalsium fosfat hidroksida ($\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{OH}$).

KESIMPULAN

Hasil analisis DTA menunjukkan penurunan massa sebesar 32,765% dan mulai mengalami perubahan fasa menjadi hidroksiapatit pada puncak endotermik. Gugus fungsi yang terbentuk yaitu OH^- , CO_3^{2-} , dan PO_4^{3-} yang merupakan pembentuk hidroksiapatit. Analisis mikrostruktur dari karakterisasi SEM menunjukkan hidroksiapatit yang dihasilkan semakin jelas karena membentuk butiran yang semakin baik dan pori-pori semakin kecil sehingga homogen seiring dengan kenaikan suhu kalsinasi. Hasil analisis struktur XRD pada sampel hidroksiapatit menunjukkan fasa yang terbentuk adalah hidroksiapatit dari rumus kimia kalsium fosfat hidroksida ($\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{OH}$) dengan nomor PDF File 9-0432.

DAFTAR PUSTAKA

Bahrololoom, M. E., Javidi, M., Javadpour, S., and Ma, J. (2009). Characterisation of natural hydroxyapatite extracted from bovine cortical bone ash. *Journal of Ceramic Processing Research*. Vol. 10, No. 2, pp. 129-138.

- Chiu, C., Hsiu-Ching H., and Wei-Hsing T. (2007). Effect of zirconia addition on the microstructural evolution of porous hydroxyapatite. *Ceramics International*. Vol. 33, pp. 15-718.
- Elkayar, A., Yehia E., and Assaad M. (2009). Properties of Hydroxyapatite from Bovine Teeth. *Bone and Tissue Regeneration Insights*. Vol. 2, pp. 31-36.
- Luna-Zaragosa, D., Romero-Guzman, E.T., and Reyes-Gutierrez, L.R. (2009). Surface and Physicochemical Characterization of Phosphates Vivianite, $\text{Fe}_2(\text{PO}_4)_3$ and Hydroxyapatite, $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3\text{OH}$. *Journal of Minerals & Materials Characterization & Engineering*. Vol. 8, No. 8, pp. 591-609.
- Mondal, S., Biswanath, M., Apurba, D., and Sudit, S. M. (2012). Studies on Processing and Characterization of Hydroxyapatite Biomaterials from Different Bio Wastes. *Journal of Minerals & Materials Characterization & Engineering*. Vol. 11, No. 1, pp. 55-67.
- Narasaruju, T. S. B. and Phebe, D. E. (1996). Some physico-chemical aspect of hidroksiapatite, *Journal of material science*. Vol. 31, pp. 1-21.
- Nemirkol N., Oktar, F. N., and Kayali, E. S. (2012). Mechanical and Microstructural Properties of Sheep Hydroxyapatite (SHA)–Niobium Oxide Composites. *Acta Physica Polonica A*. Vol. 121, No. 1, pp. 274-276.
- Ooi, C. Y., Hamdi, M., and Ramesh S. (2007). Properties of hydroxyapatite produced by annealing of bovine bone. *Ceramic Internasional*. Vol. 33, pp. 1171-1177.
- Pudjiastuti, A. R. (2012). Preparasi Hidroksiapatit dari Tulang Sapi dengan Metode Kombinasi Ultrasonik dan Spray Drying. Tesis. Universitas Indonesia: Jakarta.
- Ratih N., Widjaksana, dan Latief A. B. (2003). Aplikasi hidroksiapatit di bidang medis. Yogyakarta: Proc.
- Riyani, E. (2005). Karakterisasi senyawa kalsium fosfat karbonat hasil presipitasi menggunakan XRD, SEM, dan EDXA pengaruh perubahan ion F dan Mg. Skripsi Departemen Fisika. Bogor: Institut Pertanian Bogor.
- Stuart, B. (2004). *Infrared Spectroscopy: Fundamentals and Application*. John Wiley & Sons, Ltd.
- Windarti, T. dan Astuti, Y. (2006). Pengaruh Konsentrasi Ca^{2+} Dan $(\text{PO}_4)^{3-}$ pada Pembentukan Hidroksiapatit di dalam Matriks Selulosa Bakterial. *Jurnal Kimia Sains dan Aplikasi*. Vol. 9, No. 3, pp. 1-4.

