

KARAKTERISASI XRD DAN FTIR BIOMATERIAL HIDROKSIAPATIT DARI GIPSUM ALAM KULON PROGO SEBELUM DAN SESUDAH DISINTER PADA TEMPERATUR 1400°C

Joko Sedyono¹, A.E Tontowi², A. Hariyanto¹, K. Wijaya³, dan S. Huda³

¹ Teknik Mesin UMS dan Alumni Prodi Teknik Mesin, Sekolah PS UGM

² Jurusan Teknik Mesin dan Industri UGM

³ Alumni Teknik Mesin UMS

Korespondensi: Teknik Mesin UMS Jl. A. Yani Tromol Pos 1 Pabelan Kartasura Surakarta, 57102,

e-mail: mas.joko@ymail.com

Abstrak

Tujuan dari penelitian ini adalah mengetahui pola XRD dan FTIR (Fourier Transform Infrared) hidroksiapatit, setelah mengalami proses sintering. Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah serbuk hidroksiapatit dari gipsum alam Kulon Progo (KPHAp/Kulon Progo Hydroxyapatite) dengan kemurnian 85%. Metode penelitiannya adalah bahwa serbuk KPHAp disinter pada temperatur 1400°C selama 3 jam dengan menggunakan furnace, kemudian dilakukan karakterisasi dengan pengujian XRD dan FTIR. Hasil penelitian menunjukkan bahwa pola XRD dan FTIR hidroksiapatit setelah sintering mengalami perubahan, yakni menjadi calcium iron phosphate [Ca₁₉Fe₂(PO₄)₁₄]. Hal ini terjadi karena hidroksiapatit mengalami perubahan fase ditambah lagi adanya unsur Fe yang ikut bereaksi pada saat sintering, yang berasal dari alas spesimen (campuran alumina dan biji besi).

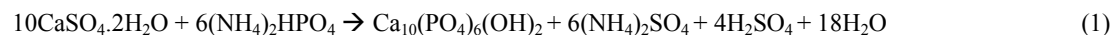
Kata kunci: gipsum alam kulon progo, hidroksiapatit, sintering, FTIR

Pendahuluan

Kerusakan jaringan tubuh oleh berbagai kelainan, maupun penyakit, dapat menyebabkan kecacatan struktur yang akan menimbulkan gangguan fungsi tubuh. Keadaan ini memerlukan restorasi untuk mengembalikan fungsi organ tubuh dengan sempurna.

Hidroksiapatit (HAp) [Ca₁₀(PO₄)₆(OH)₂] telah dipergunakan secara luas dalam bidang kedokteran umum dan gigi sebagai bahan substitusi tulang, hal ini karena kandungan mayoritas tulang / gigi adalah HAp.

Furuta dkk. (1998) mensintesa hidroksiapatit dari reaksi antara gipsum *mold waste* 5x10x20 mm dengan 40 ml 0,5 M larutan diamonium hidrogen fosfat dengan cara *hydrothermal treatment (conventional-hydrothermal)* pada suhu 50 – 100°C dan dipelajari sifat-sifatnya. Di sini dia mengembangkan novel proses untuk mempersiapkan HAp monolith langsung dari gipsum *waste* dengan kristalisasi *in situ* dengan menggunakan reaksi kimia berikut:



Diperoleh konversi gipsum ke HAp (100%) pada suhu 50°C dalam waktu 15 hari dan 100°C dalam 2 hari.

Katsuki dkk. (1999) mensintesa HAp dengan *microwave*. Sintesa HAp diperoleh dari reaksi antara serbuk gipsum (0,5 gr) dan 40 ml 0,5 M larutan diamonium hidrogen fosfat pada suhu 100°C selama 0,5 – 120 menit dalam Teflon menggunakan sebuah *microwave digestion system*. Kemudian hasilnya dicuci dengan air murni, lalu dikeringkan pada suhu di bawah 50°C. Untuk mengetahui pengaruh *microwave*, juga dilakukan reaksi yang sama dengan cara *conventional-hydrothermal*. Dengan cara *microwave* diperoleh konversi gipsum ke HAp (100%) dalam waktu 5 menit, sedangkan dengan *conventional-hydrothermal* membutuhkan waktu 8 hari. Jadi lebih cepat menggunakan system *microwave* daripada *conventional-hydrothermal*.

Nasution (2006) mereaksikan serbuk kalsit [kalsium karbonat (CaCO₃)] Gunung Kidul dengan larutan 0,5 M trisodium fosfat (Na₃PO₄·12H₂O) Wako Chemical Co., Japan untuk membuat hidroksiapatit (HAp). Prosesnya dengan perlakuan hidrotermal *microwave* pada suhu 100°C. Setelah itu HAp hasil reaksi dikalsinasi pada suhu 800°C lalu dilakukan serangkaian pengujian. Dihasilkan hidroksiapatit yang pola XRD-nya cukup mendekati hidroksiapatit komersial HAp 200 Jepang, tetapi masih mengandung kalsit.

Sedyono dkk (2007) berhasil mensintesa KPHAp (Kulon Progo Hydroxyapatite) dari gipsum alam Kulon Progo dengan diamonium hidrogen fosfat dengan metode hidrotermal *microwave*.

Tujuan dari penelitian ini adalah mengetahui pola XRD dan FTIR hidroksiapatit setelah mengalami proses sintering.

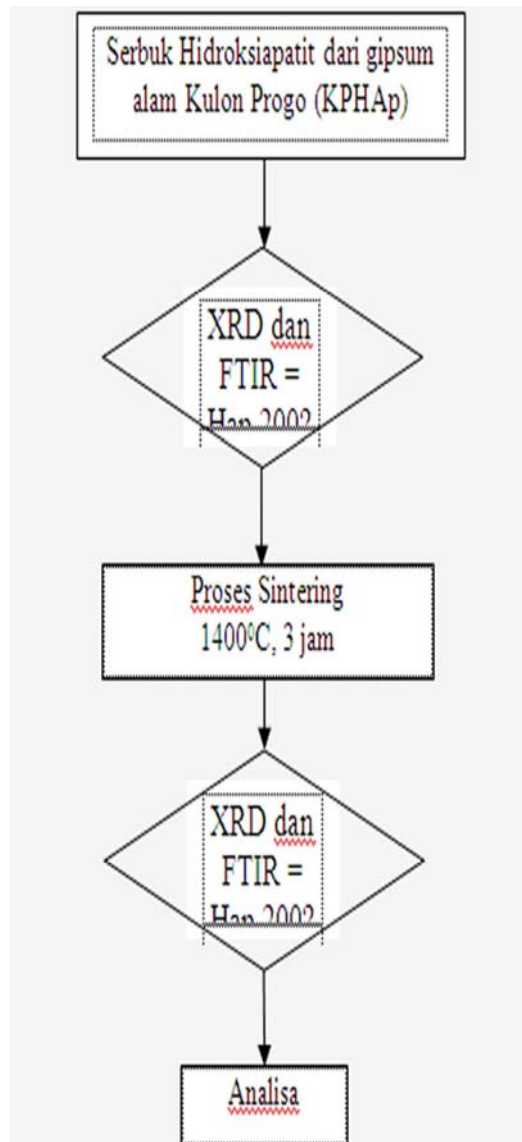
Metodologi Penelitian

Bahan Penelitian

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah serbuk hidroksiapatit hasil sintesa dari 5 g gipsum alam (CaSO₄·2H₂O) dengan ukuran partikel maksimum 53 µm yang diperoleh dari Kulon Progo Jogjakarta dengan 400 ml larutan 0,5 M diamonium hydrogen fosfat (Merck Jerman) pada suhu 100°C selama 30 menit kemudian dikeringkan dengan suhu di bawah 50°C dengan menggunakan *microwave* (Sedyono dkk., 2007). Kemudian sebagai bahan pembanding digunakan HAp 200 (Jepang) yang sudah diakui di dunia kedokteran.

Alur Penelitian

Alur penelitian diperlihatkan pada Gambar 1. Penelitian ini dijalankan secara eksperimental laboratoris.



Gambar 1. Diagram alur penelitian

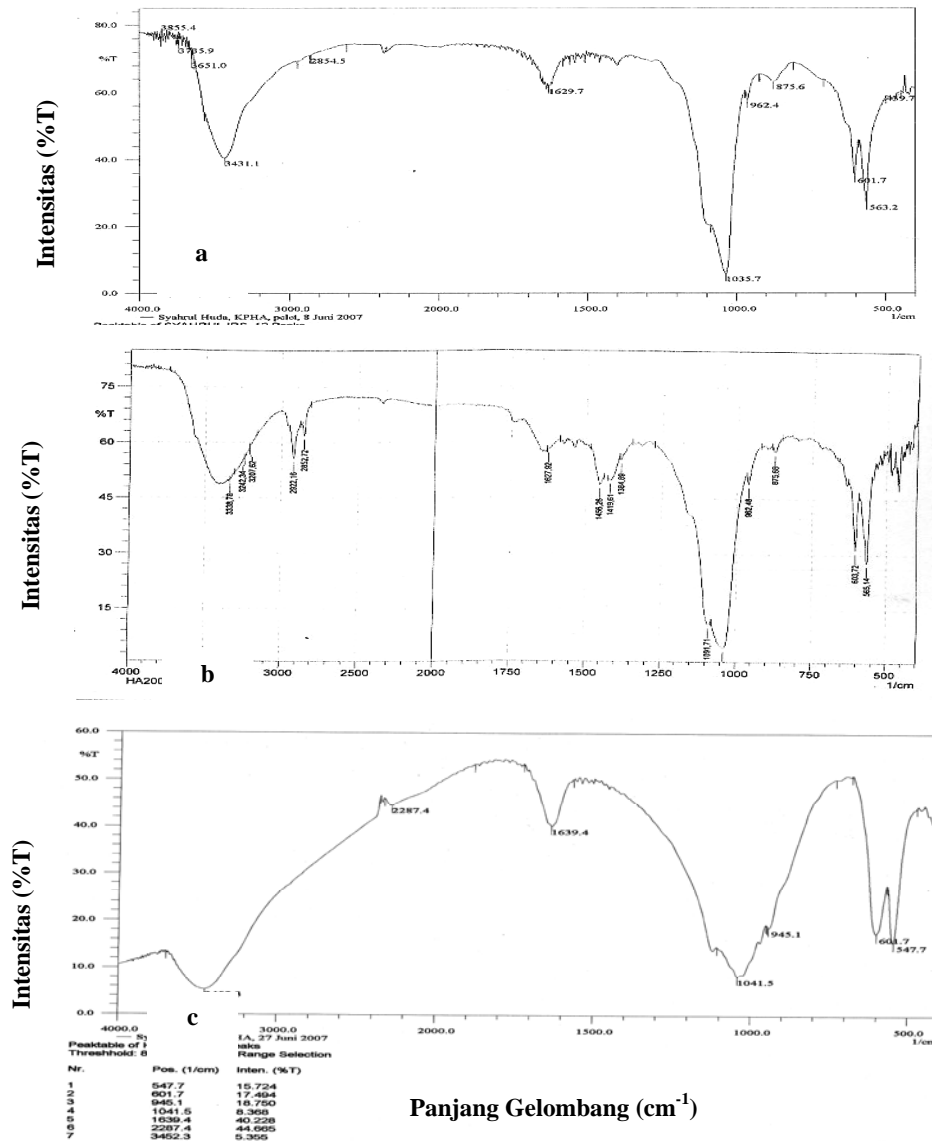
Jalannya Penelitian

KPHAp diuji dengan pengujian XRD dan FTIR sebelum sintering, lalu dibandingkan dengan sesudah sintering pada temperatur 1400°C selama 3 jam dengan menggunakan *furnace* Carbolite. Kemudian hasilnya dilakukan analisa dan dibandingkan dengan hidroksiapatit pembanding, HAp 200 Jepang.

menyebabkan lebih mudah dan semakin cepatnya ikatan yang terjadi antara unsur kalsium dan fosfat yang terbentuk menjadi hidroksiapatit dan energi pembentukan yang sangat efisien (Khrisna dkk., 2002).

Hidroksiapatit sesudah disinter pada temperatur 1400°C mengalami perubahan fasa dan tidak dapat dikatakan sebagai hidroksiapatit lagi, karena menjadi *calcium iron phosphate* $[Ca_{19}Fe_2(PO_4)_{14}]$ bukan HAp atau $Ca_5(PO_4)_3(OH)$. Dalam hal ini yang digunakan sebagai landasan spesimen berupa serbuk alumina, hal ini dimaksudkan supaya spesimen tidak lengket waktu sintering 1400°C. Akan tetapi, realitanya serbuk alumina tersebut telah bercampur dengan unsur-unsur lain (unsur Fe), sehingga hasil XRD dari KPHAp setelah sintering memunculkan *peak-peak* yang berbeda dengan hasil sebelum sintering. Hasil XRD gambar 2.c yang menunjukkan bidang-bidang kristal yang berbeda dengan pola *peak* pada Gambar 2.a. Pola XRD menunjukkan adanya pergeseran *peak-peak* dan kenaikan intensitas antara hidroksiapatit sebelum disinter (Gambar 2.a) dan sesudah disinter (Gambar 2.c). Pergeseran *peak-peak* dan kenaikan intensitas ini dapat disebabkan karena adanya pemanasan yang cukup tinggi pada proses sintering yang dapat mengakibatkan terjadinya pertumbuhan kristal dan meningkatnya derajat kekrystalan sehingga intensitas bidang-bidang kristal tersebut meningkat yang dapat menyebabkan meningkatnya ukuran butir (Nath dkk., 2006). Dapur pemanas yang tidak menggunakan gas inert sebagai pensteril dari kandungan unsur-unsur lain pada saat proses sintering (tidak vakum), sehingga kemungkinan dapat mengakibatkan terjadinya ikatan kimia antara bahan dengan unsur-unsur lain yang ada di dalam dapur pemanas dan juga kemungkinan dapat mengakibatkan perbaikan sifat mekanis kekerasan (Nasution, 2006).

Pola FTIR Hidroksiapatit Sebelum Sintering



Gambar 3. Pola FTIR (a) KPHAp sebelum sintering, (b) Hap 200 Jepang, dan (c) KPHAp sesudah sintering

Pola spektra inframerah FTIR pada Gambar 3 menunjukkan *peak-peak* yang sama antara hidroksiapatit dari hasil reaksi kalsium gipsum alam Kulon Progo dengan hidroksiapatit komersial (HAp 200 Wako Jepang). Serbuk gipsum yang cukup bersih, maka dalam hasil reaksi pembuatan hidroksiapatit didapatkan hasil yang mendekati dengan HAp 200 Jepang, hal ini ditunjukkan dalam pola Spektra inframerah yang ditandai dengan adanya ikatan molekul *Hidrogen* pada bilangan gelombang $3431,1\text{ cm}^{-1}$. Intensitas yang paling tinggi merupakan ikatan *gugus fosfat* (PO_4) yang terdapat pada bilangan gelombang $3855,4\text{ cm}^{-1}$, dan $3735,9\text{ cm}^{-1}$. Adanya ikatan *Calcium Sulfat* (CaSO_4) ditandai dengan ikatan dari C-O pada bilangan gelombang $962,4\text{ cm}^{-1}$.

Hasil dari karakterisasi FTIR dapat didukung juga dari hasil persamaan reaksi kimia (1) di atas. Dari persamaan reaksi kimia diatas dapat diketahui bahwa dihasilkannya senyawa hidroksiapatit dan senyawa-senyawa lain merupakan akibat adanya ikatan-ikatan ion yaitu antar ion positif dan ion negatif saling mengikat yang disebabkan karena adanya serah terima elektron. Ikatan *ion* biasanya terjadi pada atom-atom logam dengan atom-atom gas. Perlakuan *Hydrothermal* dengan menggunakan *Microwave* sebagai sumber panas dapat mempercepat terjadinya reaksi kimia. Dengan adanya pemanasan maka energi pun akan meningkat sehingga dapat menyebabkan meningkatnya energi kinetik molekul yang dapat mempercepat Bergeraknya molekul sehingga tabrakan antar molekul lebih cepat terjadi (Salangka, 1997).

Pola spektra infrared pada grafik 3.c menunjukkan bahwa *peak-peak* KPHAp setelah sintering dibandingkan dengan sebelum sintering dan data base dari HAp 200 Jepang terjadi perubahan. Pada KPHAp sebelum sintering dan HAp data base memiliki kurang lebih 12 – 15 *peak*, tetapi pada KPHAp setelah sintering terdapat 7 *peak* hal ini sebagai bukti bahwa jumlah *peak-peak* mengalami penurunan. Pada *peak-peak* setelah sintering banyak perubahan walaupun ada pola *peak* yang mendekati yang ditandai dengan C-O pada bilangan gelombang $601,7\text{ cm}^{-1}$, dan bilangan gelombang $547,7\text{ cm}^{-1}$. Dan paling membedakan pada bilangan gelombang $3452,3\text{ cm}^{-1}$ yang memiliki ikatan *Hidrogen*, tetapi pada intensitas yang rendah. Hal ini disebabkan dalam proses sintering terjadi pencampuran dengan unsur lain. Dalam hal ini yang digunakan sebagai landasan spesimen berupa serbuk *alumina* dimaksudkan supaya spesimen tidak lengket waktu sintering 1400°C . Akan tetapi, realitasnya serbuk *alumina* tersebut telah bercampur dengan unsur-unsur lain (Fe), sehingga hasil XRD dari KPHAp setelah sintering memunculkan *peak-peak* yang berbeda dengan hasil sebelum sintering. Dalam hal ini dibuktikan dalam hasil XRD seperti yang terlihat pada Gambar 2.c. yang ditandai dengan adanya unsur-unsur lain, dan yang paling menonjol ialah unsur (Fe), sehingga dari hasil tersebut sudah tidak hidroksiapatit lagi karena menjadi *Calcium Iron Phosphate* [$\text{Ca}_{19}\text{Fe}_2(\text{PO}_4)_{14}$]

Kesimpulan

Berdasarkan data hasil dan pembahasan dari penelitian, dapat diperoleh kesimpulan bahwa setelah dilakukan sintering, hasil karakterisasi pola XRD maupun FTIR biomaterial hidroksiapatit dari gipsum alam Kulon Progo Yogyakarta mengalami perubahan fase.

Ucapan Terimakasih

Ucapan terima kasih ditujukan kepada pemerintah dalam hal ini melalui Dirjen Dikti dalam program TPSDP dan Universitas Muhammadiyah Surakarta atas dukungannya dalam pelaksanaan penelitian ini.

Daftar Pustaka

- Furuta, S., Katsuki, H., and Komarmeni, S., (1998), “*Porous Hydroxyapatite Monoliths from Gypsum Waste*”, *J mater chem.* 8: 1803-6
- Kalpakjian, S., Schmid, and Steven R., (2003), “*Manufacturing Processes for Engineering Materials*”, Fourth Edition, Illinois Institute of Technology, Chicago
- Katsuki, H., Furuta, S., and Komarmeni, S., (1999), “*Microwave Versus Conventional-Hydrothermal Synthesis of Hydroxyapatite Crystals from Gypsum*”, *J am ceram soc* 87 (8) : 2257-9
- Khrisna, D.S.R., Chatanya, C.K., Seshadri, S.K., and Kumar, T.S.S., (2002), “*Flourinated Hydroxyapatite by Hydrolysis Under Microwave Irradiation*”, *Trends Biomater, Artif. Organs.* Vol. 16(1), pp 15-17
- Nasution, D.A., (2006), “*Fabrikasi serta Studi Sifat Mekanis dan Fisis biokeramik Hidroksiapatit (HAp) dari Kalsit Gunung Kidul*”, Tesis, Sekolah Pasca Sarjana UGM, Jogjakarta.
- Nath, S., Basu, B., and Sinha, A., (2006), “*A Comparative Study of Convencional Sintering with Microwave Sintering of Hydroxyapatite Synthesized by Chemical Route*”, *Trenes Biomater. Artif. Organs,* Vol. 19 (2), pp 93-98

Salangka, S., (1997), "*Sains Kimia*", Poliyama Widya Pustaka, Jakarta.

Sedyono, J., Tontowi, A.E. dan Ana, I.D., (2007), "*Fabrikasi dan Karakterisasi XRD Hidroksiapatit dari Gypsum Alam Kulon Progo*", Proceeding Seminar Nasional Perkembangan Riset dan Teknologi di Bidang Industri ke-13 2007, UGM, Jogjakarta

Sedyono, J. dan Tontowi, A.E., (2008), "*Proses Sintesis dan Karakterisasi FTIR Hidroksiapatit dari Gypsum Alam Kulon Progo*", Media Mesin UMS, Surakarta

Suchanek, W., and Yoshimura, M., (1998), "*Processing and Properties of Hydroxyapatite-based Biomaterials for use as Hard Tissue Replacment Implants*", Journal of Material Research, Vol. 13, No. 1, Pp 94-115

Suzuki, S., Fuzita, T., Maruyana, T., and Takashi, J., (1993), "*Journal American Ceramic Society*", Vol. 76, p 1638

Thamareiselvi, T. V., and Rajeswari, S., (2004), "*Biological Evaluation of Bioceramic Materials-A Review*", Trends Biomaterial. Artif. Organs. Vol. 18 (1), pp 9-17