

Pengaruh Temperatur Sintering dan Komposisi Air dalam Suspensi terhadap Ukuran Kristal Hidroksiapatit Berbasis Tulang Sapi Aceh

The Effect of Sintering Temperature and Water Composition in Suspension to the Crystallite Size of Hydroxyapatite Based on Aceh's Bovine Bone

Ireka Salsabila, Irhamni* dan Zulkarnain Jalil

Jurusan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Unsyiah
Jl. Syekh Abdul Rauf, Darussalam, Banda Aceh 23111, Indonesia

Received September, 2018, Accepted September, 2018

Telah dilakukan penelitian yang mengkaji tentang pengaruh temperatur sintering dan komposisi air dalam suspensi terhadap ukuran kristal lapisan hidroksiapatit yang disintesis dari tulang sapi lokal Aceh kemudian dicoating pada SS316L menggunakan metode dip-coating. Suspensi dibuat dengan 10 g serbuk hidroksiapatit dan 1 g tepung tapioka yang dicampurkan dengan variasi penambahan komposisi air sebanyak 2, 4, 6, dan 8 g. Untuk mendapatkan suspensi yang stabil, suspensi diaduk menggunakan magnetic stirrer pada putaran 150 rpm selama 20 jam, kemudian dilakukan pencelupan plat stainless steel ke dalam suspensi selama 10 detik sebanyak 1 kali pencelupan. Selanjutnya, hidroksiapatit yang sudah berhasil menempel pada permukaan plat stainless steel dikeringkan menggunakan oven dengan temperatur 110°C selama 30 menit dan disintering dengan variasi temperatur 500, 600, 700, dan 800°C selama 1 jam. Plat stainless steel yang sudah dicoating dengan hidroksiapatit dikarakterisasi menggunakan XRD (X-Ray Diffraction) agar dapat dihitung ukuran kristalnya. Berdasarkan hasil pengujian XRD, variasi temperatur sintering dan variasi komposisi air dalam suspensi mempengaruhi nilai ukuran kristal hidroksiapatit, dimana semakin tinggi temperatur sintering dan semakin banyak penambahan komposisi air dalam suspensi, maka ukuran kristal yang dihasilkan semakin besar.

The effect of sintering temperature and water compositions into suspense to crystallite size of hydroxyapatite from Aceh's bovine bone which was coated on 316L stainless steel using a dip-coating method was studied. The suspension is made with 10 g of hydroxyapatite powder and 1 g of tapioca flour mixed with variations in the addition of water composition as much as 2, 4, 6 and 8 g. To get a stable suspension, the suspension is stirred using a magnetic stirrer with a speed of 150 rpm for 20 h. Then dipping the stainless steel plate into suspension for 10 s in one time dipping. Furthermore, hydroxyapatite which has been successfully attached to the surface of the stainless steel plate is dried using an oven with a temperature of 110°C for 30 min and sintered with temperature variations of 500, 600, 700, and 800°C for an hours. Stainless steel plates that have been coated with hydroxyapatite are characterized using XRD (X-Ray Diffraction). Based on XRD test results, sintering temperature variations and water compositions into suspense variations affect the hydroxyapatite crystallite size value, where the higher the sintering temperature and the more addition of the water composition in the suspension, the larger the resulting crystal size.

Keywords: *Aceh's Bovine Bone, hydroxyapatite, 316L stainless steel, dip-coating, crystallite size*

Pendahuluan

Hidroksiapatit adalah turunan senyawa kalsium fosfat yang merupakan komponen penyusun kalsium utama dari tulang. Hidroksiapatit terbentuk karena proses kristalisasi hingga menjadi kalsium

ortofosfat hidroksida (Singh dan Sidhu, 2014). Hidroksiapatit dapat disintesis dari sumber alami. Fadhillah dkk. (2016) telah berhasil mensintesis hidroksiapatit berbasis tulang sapi Aceh dengan memvariasikan temperatur sintering. Hidroksiapatit

dengan rumus kimia $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ yang secara kimia komposisinya mirip antara komponen mineral yang dimiliki oleh tulang alami dan jaringan keras pada mamalia (Jayaswal *et al*, 2010). Aplikasi hidroksiapatit yang paling banyak dikembangkan yaitu sebagai pelapis hidroksiapatit atau HAp-coating yang sering digunakan untuk melapisi implan logam yang tujuannya untuk merubah sifat permukaan hidroksiapatit tersebut. Selain itu hidroksiapatit dapat bekerja dalam bentuk serbuk, mengisi bagian-bagian tulang yang kosong di dalam tubuh, sebagai pengisi tulang dan membantu pembentukan tulang baru dalam bentuk *bone graft* (Jayaswal *et al*, 2010).

Kestabilan hidroksiapatit pada jaringan tubuh dikarenakan kandungan kalsium fosfat yang dapat larut di dalam tubuh menjadikan penggunaan HAp-coating semakin banyak dipilih untuk aplikasi dibidang medis. Salah satu aplikasi menggunakan HAp-coating ini adalah pada oseointegrasi *dental implant*. Permukaan implan yang telah dilapisi dengan hidroksiapatit menunjukkan kesesuaian yang cocok secara alami ketika terjadi kontak antara tulang dan tulang buatan (misalnya *dental implant*). Teknik HAp-coating pertama kali digunakan untuk keramik alumina yang saat itu digunakan untuk implan gigi dan logam (*stainless steel*, campuran Co-Cr, campuran Ti, dan Ta) untuk pengganti tulang. Hidroksiapatit telah diaplikasikan sebagai perangkat implan khususnya sebagai pelapis dengan mempertimbangkan sifat mekanik dan sifat kimianya. Ikatan antara hidroksiapatit dan substrat menjadi hal yang paling diperhatikan karena sangat penting dalam metode pelapisan (Park, 2008).

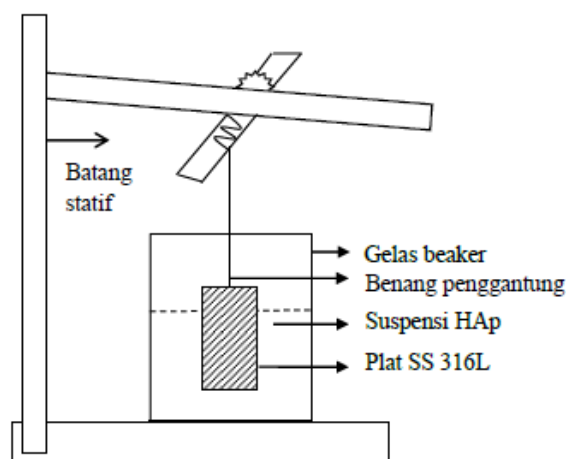
Menurut Al-Sanabani *et al*. (2013), implan menggunakan lapisan hidroksiapatit jauh lebih memuaskan dibandingkan penggunaan implan titanium tanpa pelapisan hidroksiapatit. Pelapisan hidroksiapatit dapat dilakukan dengan salah satu metode yaitu metode *dip-coating*. Dalam proses *dip-coating*, substrat dicelupkan ke larutan pelapis cair dan kemudian ditarik dari larutan pada kecepatan yang dikontrol. Lapisan pelapis diendapkan pada permukaan substrat tanpa dekomposisi atau reaksi dengan substrat logam (Mohseni *et al*, 2014). Salah satu faktor yang mempengaruhi kekuatan adhesi pada coating hidroksiapatit adalah *binder*, dimana *binder* berfungsi membantu proses deposisi yang terjadi pada permukaan substrat (Hidayah dkk, 2016).

Penggunaan material HAp sebagai bahan coating tentunya memiliki beberapa karakteristik yang harus dipenuhi, salah satunya adalah ukuran

kristal. Ukuran kristal merupakan ukuran diameter dari suatu kristal pada material tertentu. Nilai ukuran kristal yang harus dipenuhi oleh material *coating dental implant* adalah 20-50 nm (Raphel *et al*, 2015).

Metodologi

Hidroksiapatit (HAp) yang digunakan yaitu hidroksiapatit yang telah diperoleh dari penelitian sebelumnya oleh Fadhilah dkk (2016) yang akan digunakan untuk pembuatan suspensi. Suspensi HAp dibuat dengan 10 g HAp dan 1 g tepung tapioka yang dicampurkan dengan variasi penambahan komposisi air sebanyak 2, 4, 6, dan 8 g di dalam gelas beaker. Selanjutnya suspensi diaduk menggunakan *magnetic stirrer* dengan kecepatan 150 rpm selama 20 jam. Alat *dip-coating* dirangkai dengan menggunakan batang statif dan benang nilon, seperti pada Gambar 1.



Gambar 1 Rangkaian alat *dip-coating*

Plat logam SS316L yang berukuran 25 x 10 x 1 mm dibersihkan permukaannya menggunakan kertas amplas grit-500 dilanjutkan menggunakan grit-100 sampai permukaan terlihat bersih. Plat logam SS316L yang telah diampas kemudian disterilkan dengan cara direndam dengan larutan etanol selama 15 menit, kemudian dikeringkan di dalam oven dengan temperatur 110°C selama 10 menit. Larutan suspensi yang berada di dalam gelas beaker kemudian diletakkan di dudukan batang statif yang merupakan serangkaian alat *dip-coating*. Plat logam SS316L digantung dengan benang nilon yang diikatkan pada batang statif. Pencelupan logam dilakukan selama 10 detik sebanyak 1 kali pencelupan dan kemudian ditarik dengan memutar 3 kali batang statif yang sudah dirangkai seperti katrol. Prosedur yang sama dilakukan untuk sampel dengan variasi penambahan air dalam suspensi. Setelah proses pelapisan HAp

selesai, sampel dikeringkan menggunakan oven dengan temperatur 110°C selama 30 menit dan selanjutnya disintering dengan variasi temperatur 500, 600, 700, dan 800 °C selama 1 jam. Setelah proses pendinginan, kemudian lapisan HAp yang terbentuk di karakterisasi dengan menggunakan alat uji XRD. Berdasarkan data hasil pengujian XRD maka dapat dihitung nilai ukuran kristalnya dengan menggunakan persamaan *Scherrer* (Suryanarayana and Norton, 1998).

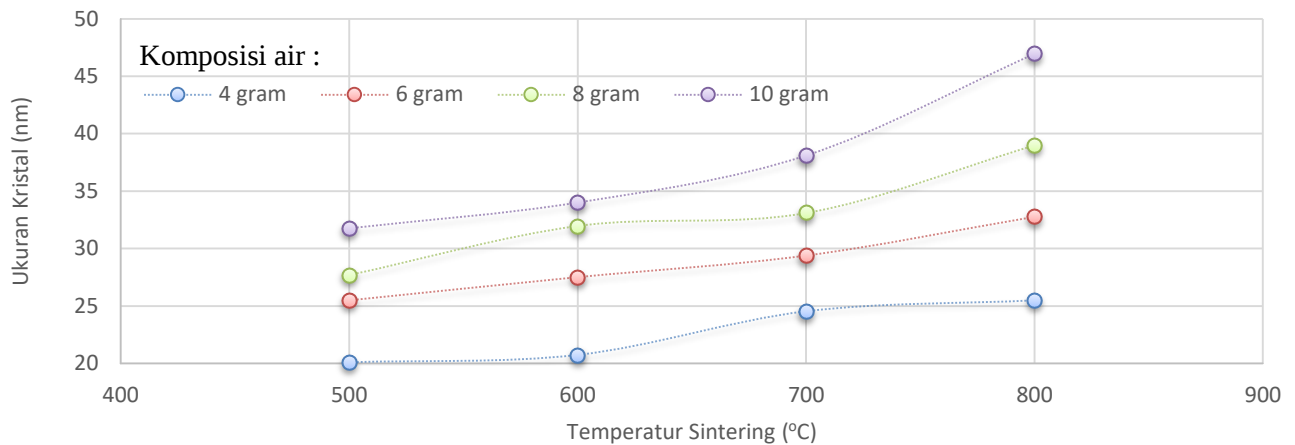
Hasil dan Pembahasan

Perhitungan nilai ukuran kristal dapat dihitung dengan menggunakan persamaan *Scherrer* melalui data pengujian XRD. Ukuran kristal suatu material sangat ditentukan oleh lebar setengah puncak difraksi material atau disebut nilai FWHM. Semakin lebar puncak difraksi material, maka nilai FWHM juga semakin besar sehingga juga menentukan besar dan kecilnya ukuran kristal. Semakin besar nilai FWHM maka ukuran kristal akan semakin kecil, begitu juga sebaliknya. Hal tersebut dapat dilihat pada hasil yang diperoleh dari data pengujian XRD masing-masing sampel. Nilai FWHM yang akan diambil untuk perhitungan adalah nilai FWHM yang memiliki nilai intensitas yang paling tinggi. Intensitas yang tertinggi menunjukkan bahwa kristal tersebut memiliki keteraturan kristal yang baik atau banyak atom-atom yang tersusun teratur dan rapi. Hasil ukuran kristal yang diperoleh dari HAp-coating pada plat SS316L

dapat dilihat pada Tabel 1. Berdasarkan tabel maka dapat diperoleh grafik hubungan variasi temperatur sintering dan variasi komposisi air dalam suspensi terhadap ukuran kristal seperti pada Gambar 2. Berdasarkan gambar dapat diketahui bahwa variasi temperatur sintering yang dilakukan akan mempengaruhi nilai ukuran kristal material hidroksiapatit, dimana nilai ukuran kristal akan terus meningkat seiring dengan pertambahan temperatur sintering yang diberikan. Proses sintering merupakan proses panas yang diberikan pada suatu sampel dengan tujuan untuk menggabungkan butir-butir melalui peristiwa difusi pada saat temperatur meningkat. Melalui proses sintering ini, ukuran butir akan cenderung semakin membesar. Akibat panas yang diberikan, maka kristal-kristal yang berada di dalam suatu butir akan semakin membesar, hal inilah yang menyebabkan butir tersebut tumbuh. Peristiwa ini akan terus terjadi seiring dengan peningkatan temperatur sintering yang diberikan. Dengan semakin membesarnya ukuran kristal pada butir tersebut maka akan menyebabkan masing-masing butir juga mengalami pertumbuhan sehingga butir-butir tersebut akan semakin rapat (Callister, 2007). Hal ini membuktikan bahwa nilai ukuran kristal suatu sampel dapat dipengaruhi oleh perlakuan panas (sintering) yang diberikan. Hal ini sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Rofiko dkk. (2017) dengan memvariasikan temperatur sintering pada pembuatan Strontium Titanat (SrTiO₃).

Tabel 1 Hasil perhitungan nilai ukuran kristal

Temperatur sintering (°C)	Komposisi air (gram)	FWHM (derajat)	2θ (derajat)	Ukuran kristal (nm)
500	4	0.45000	43.9150	20.10
	6	0.35500	43.9025	25.48
	8	0.32670	43.8966	27.68
	10	0.27270	28.9754	31.77
600	4	0.42500	35.8275	20.74
	6	0.32000	35.1700	27.50
	8	0.27110	28.9519	31.96
	10	0.25350	35.7347	34.77
700	4	0.35930	35.7346	24.53
	6	0.30000	35.8100	29.38
	8	0.26640	35.7982	33.09
	10	0.23130	35.6356	38.10
800	4	0.35500	43.9225	25.48
	6	0.35500	43.8975	32.79
	8	0.23200	43.9040	38.99
	10	0.18580	31.7600	46.94



Gambar 2 Grafik pengaruh variasi temperatur sintering dan variasi komposisi air dalam suspensi terhadap nilai ukuran kristal lapisan hidroksiapatit untuk aplikasi *coating dental implant*.

Hasil yang didapatkan adalah bahwa variasi suhu sintering mempengaruhi ukuran kristal dan derajat kristalinitas dari sampel. Semakin besar temperatur sintering yang diberikan, maka ukuran kristal yang terbentuk juga semakin besar. Hal ini disebabkan semakin tinggi temperatur sintering yang diberikan terhadap sampel, energi yang diterima oleh atom semakin besar untuk berdifusi dan beraglomerasi. Sehingga ukuran kristal yang terbentuk semakin besar dan ikatan antar atom semakin kuat dan teratur (Callister, 2007). Penelitian lainnya dilakukan oleh Fadhillah (2016) untuk melihat pengaruh variasi temperatur sintering terhadap karakteristik material hidroksiapatit berbasis tulang sapi, hasil yang didapatkan adalah nilai ukuran kristal semakin meningkat seiring dengan pertambahan temperatur sintering.

Pada gambar tersebut juga dapat dilihat bahwa penambahan komposisi air dalam suspensi juga mempengaruhi ukuran kristal yang dihasilkan, dimana semakin banyak penambahan komposisi air dalam suspensi, maka akan semakin besar ukuran kristal yang dihasilkan. Menurut kajian yang dilakukan oleh Asmawi (2009), bahwa semakin banyak komposisi air yang digunakan dalam suspensi hidroksiapatit maka ukuran butir akan semakin besar. Sedangkan semakin sedikit komposisi air dalam suspensi hidroksiapatit yang digunakan maka ukuran butir akan semakin kecil. Hal ini disebabkan karena pada saat suspensi hidroksiapatit yang digunakan airnya banyak maka suspensi akan semakin cair sehingga menyebabkan distribusi antara satu butir dengan butir yang lainnya akan semakin mudah sehingga ukuran butirnya akan semakin besar. Pada suspensi dengan komposisi airnya banyak akan terbentuk lapisan yang tipis dan memiliki pori-pori

yang lebih kecil dibandingkan dengan suspensi dengan komposisi air yang sedikit yang akan menghasilkan lapisan yang tebal dan memiliki pori-pori yang besar. Ketika lapisan diberi perlakuan panas, pada lapisan yang tebal jumlah molekul HAp yang terlapisi lebih banyak sehingga energi panas yang terserap molekul pada proses pemanasan adalah kecil, sedangkan lapisan yang lebih tipis memiliki jumlah molekul HAp yang lebih sedikit sehingga energi yang terserap molekul pada proses pemanasan adalah besar. Hal ini sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Novitasari dkk. (2015), yang berkesimpulan pada penelitiannya bahwa semakin tebal lapisan maka akan menghasilkan pori-pori lapisan yang besar, sehingga saat diberikan perlakuan panas maka lapisan yang tebal tersebut akan menyerap energi yang kecil. Semakin besar energi yang terserap maka ukuran serat yang dihasilkan akan semakin kecil. Setelah dilakukan analisis dan perhitungan terhadap nilai ukuran kristal yang dihasilkan pada semua variasi temperatur sintering dan variasi komposisi air dalam suspensi, maka berdasarkan nilai ukuran kristal yang dihasilkan yaitu 20.10 – 46.94 nm maka hasil tersebut telah memenuhi karakteristik material *coating dental implant* (Raphel *et al*, 2015).

Kesimpulan

Variasi temperatur sintering dan variasi komposisi air dalam suspensi mempengaruhi nilai ukuran kristal hidroksiapatit, dimana semakin tinggi temperatur sintering dan semakin banyak penambahan komposisi air dalam suspensi, maka ukuran kristal yang dihasilkan semakin besar. Nilai ukuran kristal tersebut telah memenuhi karakteristik

material coating dental implant dengan jangkauan nilai 20.10 – 46.94 nm.

Referensi

- Al-Sanabani, J. S., Madfa, A. A., and Al-Sanabani, F. A. 2013. Application of Calcium Phosphate Materials in Dentistry. *Hindawi Publishing Corporation International Journal of Biomaterials*. Vol. 2013-12.
- Asmawi, R.B. 2009. Development of Bioactive Ceramic Coating for Biomedical Application Using Dip and Spin Coating Methods. *Disertasi*. Kuliyah of Engineering International Islamic University. Malaysia.
- Callister, W. D. 2007. *Material Science and Engineering*. Jhon Wiley & Sons, New York.
- Fadhilah, Nurul, Irhamni, dan Jalil, Zulkarnain. 2016. Sintesis Hidroksiapatit yang Berasal dari Tulang Sapi Aceh. *Journal of Aceh Physics Society*, Vol.5 No.2 pp. 19-21 2016.
- Hidayah, P.H., Fadli, A., Amri, A. 2016. Pelapisan Hidroksiapatit pada Stainless Steel 316L menggunakan Metode Dip Coating dengan Variasi Rasio Binder Pati Sagu dan Waktu Pengadukan. *JOM FTEKNIK*. Vol. 3 No. 1 Februari 2016.
- Jayaswal, G. P., Dange, S. P., and Khalikar, A. N. 2010. Bioceramic in Dental Implants: A Review. *Journal of Indian Prosthodontic Society*. 10:8-12.
- Mohseni, E., Zalnezhad, E., Bushroa, A.R. 2014. Comparative investigation on the adhesion of hydroxyapatite coating on Ti-6Al-4V implant: A review paper. *Int. J. Adhes. Adhes.* 48 (2014) 238–257.
- Novitasari, A., Masruroh, dan Tjahjanto, R.T. 2015. Pengaruh Ketebalan terhadap Nilai Resistansi Lapisan Tipis Seng Sulfoftalosianin (ZnPcSn) sebagai Prototipe Detektor Ozon. *Jurnal Natural B*. Vol. 3, No. 2, Oktober 2015.
- Park, J. 2008. *Bioceramics: Properties, Characterizations, and Applications*. Springer, USA.
- Raphel, J., Karlsson, J., Galli, S., Wennernerg, A., Lindsay, C., Haugh, M. G., Pajarinen, J., Goodman, S. B., Jimbo, R., Andersson, A., and Heilshorn, S. C. 2015. Engineered Protein Coatings to Improve The Osseointegration of Dental and Orthopaedic Implants. *Biomaterials*. 83(2016)269-282. Elsevier.
- Rofiko, Husnah, Iriani Yofentina, dan Suryana, Risa. 2017. Pengaruh Suhu Sintering pada Pembuatan Strontium Titanat (SrTiO₃) terhadap Konstanta Dielektrik menggunakan Metode Co-Precipitation. *Indonesian Journal of Applied Physics*. Vol. 7 No.1 halaman 28.
- Singh, R., and Sidhu, J. S. 2014. Synthesis and Characterization of Biomaterial Hydroxyapatite. *International Journal of Engineering Sciences & Research Technology*.
- Suryanarayana, C. and Norton, M. G. 1998. *X-Ray Diffraction: A Practical Approach*. Plenum Press, New York.