

# Kualitas Hidroksiapatit dan Diammonium Hidrogen Fosfat Sebagai Bahan Pembuatan *Bonegraft*

Agusriyadin\*<sup>1</sup>, Faradisa Anindita<sup>2</sup>, Alimuddin<sup>3</sup>, L.A. Kadir<sup>4</sup>

<sup>1,2,3</sup>Jurusan Kimia, Fakultas Sains dan Teknologi, Universitas Sembilanbelas November Kolaka

<sup>4</sup>Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Halu Oleo, Kendari

e-mail: \*[agusriyadin85@gmail.com](mailto:agusriyadin85@gmail.com)

## Abstrak

Hidroksiapatit,  $Ca_{10}(PO_4)_6(OH)_2$  adalah mineral utama penyusun tulang dan gigi. Material pengganti tulang yang tersusun atas hidroksiapatit, telah digunakan secara luas untuk aplikasi biomedis seperti di bidang periodontologi dan ortopedi. Hidroksiapatit dapat disintesis menggunakan bahan sintesis dan dapat pula diekstraksi dari hewan laut atau disebut juga sumber biogenik. Biogenik antara lain bersumber dari koral, sponges, dan mollusca. *Acropora* adalah salah satu genus karang yang memiliki tingkat ketahanan hidup yang besar dan kecepatan pertumbuhan yang tinggi. Jenis ini memiliki sebaran yang cukup banyak di Indonesia pada umumnya dan di Sulawesi Tenggara khususnya di daerah kawasan pesisir Kabupaten Kolaka. Kelebihan *Acropora* ini bersifat oportunistik dan dapat bertahan pada tekanan alam seperti pemanasan dan siltasi. Disamping itu, karang bercabang ini dapat menghasilkan karbonat yang sangat tinggi. Berdasarkan fakta tersebut peneliti tertarik untuk melakukan penelitian mengenai kualitas hidroksiapatit *Acropora* berdasarkan variasi rasio Precipitated Calcium Carbonate dan diammonium hidrogen fosfat sebagai bahan pembuatan bonegraft/transplantasi tulang. Sintesis hidroksiapatit dilakukan dengan menggunakan metode hidrotermal. Metode ini memungkinkan proses pembentukan material yang dapat diproses lebih lanjut, sehingga terbentuk padatan kristal tunggal, partikel murni atau nano-partikel hidroksiapatit. Pada penelitian ini juga akan dilakukan sintesis hidroksiapatit dari Precipitated Calcium Carbonate (PCC) terumbu karang melalui proses hidrotermal dengan variasi rasio Ca/P yaitu 1,57, 1,67, dan 1,77.

**Kata Kunci:** Hidroksiapatit, Bonegraft, PCC, *Acropora*

## 1. PENDAHULUAN

Bone grafting adalah prosedur bedah yang menggantikan tulang yang hilang dengan bahan dari tubuh pasien sendiri, pengganti buatan, sintesis, atau alami. Pencangkokan tulang dimungkinkan karena jaringan tulang memiliki kemampuan untuk regenerasi sepenuhnya jika disediakan ruang dimana ia harus tumbuh (Nandi et al. 2010).

Jenis bone graft terbagi menjadi dua yaitu; jenis bone graft dari tulang alami seperti autograft, allograft, dan xenograft, alloplastic graft. Jenis bone graft dari hasil substitusi seperti; keramik, polimer, material natural (Barth et al. 2010). Autograft adalah bone graft yang berasal dari host itu sendiri. Autograft dianggap membawa sel-sel mesenkim yang akan berdiferensiasi menjadi sel osteogenik. Teknik ini memiliki kerugian seperti prosedur operasi tambahan yang menyebabkan trauma, morbiditas serta keterbatasan jumlah material tulang yang tersedia. Allograft adalah bone graft yang berasal dari donor yang spesiesnya sama (Othsuki. 2019).

Xenograft yaitu bone graft yang berasal dari donor yang berbeda spesies. Kekurangan dari kedua material ini yaitu rendahnya vaskularisasi, lemahnya sel, tingginya tingkat resorpsi, reaksi imunologi ditambah dengan resiko kontaminasi serta biaya yang tinggi (Nandi et al. 2010). Tingginya tingkat kebutuhan bone graft menyebabkan para peneliti dan ahli bedah terus mengembangkan biomaterial sebagai alternatif pilihan dalam merestorasi jaringan tulang yang rusak. Material ini disebut dengan alloplast. Material yang akan digunakan sebagai bahan rehabilitasi jaringan harus memiliki karakteristik sama dengan tulang alami

Salah satu jenis bone graft berdasarkan jenis bahan yang digunakan adalah alloplastic. Cangkok alloplastik dapat dibuat dari hidroksiapatit, mineral alami (komponen mineral utama tulang), terbuat dari kaca bioaktif. Kelebihan dari penggunaan alloplastic sebagai bone graft adalah tidak adanya sifat antigenik, tidak ada potensi membawa penyakit menular, dan ketersediaannya yang tidak terbatas (Amri et al 2019).

Hidroksiapatit,  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$  adalah mineral utama penyusun tulang dan gigi. Material pengganti tulang yang tersusun atas hidroksiapatit, telah digunakan secara luas untuk aplikasi biomedis seperti di bidang periodontologi dan ortopedi. Hidroksiapatit dapat disintesis menggunakan bahan sintesis dan dapat pula diekstraksi dari hewan laut atau disebut juga sumber biogenik. Biogenik antara lain bersumber dari koral, sponses, moluska, dan tulang ikan (Warastuti et al. 2017).

Koral laut berasal dari family poritidae memiliki beberapa spesies, diantaranya Porites, Goniopora, Corallina officinalis, Acropora, dan lain-lain tersusun atas rangka kalsium karbonat ( $\text{CaCO}_3$ ) (Warastuti et al. 2017). Jumlah jenis karang batu (hard coral) di Indonesia tercatat sebanyak 590 jenis, yang didominasi oleh karang dari genus Acropora (91 jenis), Montipora (29 jenis dan Porites (14 Jenis) (Akram et al. 2014).

Acropora adalah salah satu genus karang yang memiliki tingkat ketahanan hidup yang besar dan kecepatan pertumbuhan yang tinggi. Acropora dapat tumbuh antara 5-10 cm per tahun. Ada beberapa bentuk dari pertumbuhan Acropora yaitu bentuk cabang (branching Acropora), Acropora meja (tabulate Acropora), Acropora merayap (encrusting Acropora), Acropora submassive (submassive Acropora), dan Acropora berjari (digitate Acropora). Kelebihan Acropora bersifat oportunistik dan dapat bertahan pada tekanan alam seperti pemanasan dan siltasi. Disamping itu, karang bercabang ini dapat menghasilkan produksi karbonat yang tinggi (Oguzhan. 2014). Berdasarkan data tersebut maka penelitian mengenai kualitas hidroksiapatit Acropora berdasarkan variasi rasio Precipitated Calcium Carbonate dan diamonium hidrogen fosfat sebagai bahan pembuatan bonegraft dilakukan.

## 2. METODE PENELITIAN

### 2.1 Lokasi Pengambilan Sampel

Lokasi pengambilan sampel Acropora yaitu di perairan laut Kota Kolaka.

### 2.2 Preparasi Sampel

Acropora dibersihkan, dijemur satu hari untuk menghilangkan kadar air pada proses pembersihan. Selanjutnya dihaluskan menggunakan lumpang dan diayak menggunakan ayakan +100 dan -120 mesh untuk mendapatkan ukuran partikel cangkang kerang rata-rata 100 mesh (Warastuti et al. 2017).

### 2.3 Pembuatan PCC (*Precipitated Calcium Carbonate*)

Sampel ditimbang 0,1025 gram, lalu ditambah 10 ml asam nitrat pekat. Sampel diekstraksi pada suhu 100 oC selama 1 jam, diangkat dan didinginkan. Larutan dimasukkan dalam labu ukur 100 ml dan dibilas dengan air suling. Acropora yang sudah dihaluskan hingga berukuran 100 mesh selanjutnya dikalsinasi di dalam furnace dengan suhu 900 °C selama 3 jam untuk mendapatkan CaO. CaO yang didapatkan kemudian dilarutkan dengan  $\text{HNO}_3$  2M dengan rasio 17 gram CaO/ 300 ml  $\text{HNO}_3$  2M dan diaduk menggunakan stirer selama 30 menit setelah itu disaring.

Filtrat yang didapat pada proses penyaringan dipanaskan pada suhu 60 °C dan diatur sampai pH 12 dengan penambahan  $\text{NH}_4\text{OH}$  pekat lalu disaring kembali. Filtrat yang didapatkan diendapkan dengan menambahkan gas  $\text{CO}_2$  secara perlahan hingga pH filtrat menjadi 8 dan terlihat endapan berwarna putih susu (PCC). Endapan yang didapat kemudian disaring dan dicuci dengan aquades sampai pH 7 lalu dikeringkan dalam oven pada suhu 105 °C sampai berat hasil timbangan yang didapat konstan untuk menghilangkan sisa air dari proses pengendapan (Warastuti et al. 2017).

### 2.4 Tahap sintesis Hidroksiapatit (HAp)

Tahap sintesis hidroksiapatit dilakukan dengan mencampurkan PCC dan  $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$  pada variasi rasio mol Ca/P 1,61; 1,67 dan 1,71 dengan pengaturan pH reaksi sebesar 11 menggunakan  $\text{NH}_4\text{OH}$  33%. Proses pencampuran ini dilakukan di dalam vessel hidrotermal dengan waktu reaksi selama 20 jam dan pada suhu operasi 140 oC pada oven dan tekanan operasi 3,57 atm (Warastuti et al. 2017).

## 2.5 Tahap Pemurnian Hidroksiapatit

Tahap pemurnian dilakukan untuk memisahkan hidroksiapatit dari sisa reaktan dan air sehingga hasil yang didapat lebih murni dan dapat dikarakterisasi lebih lanjut. Proses pemurnian ini dilakukan dengan menyaring campuran hidroksiapatit dari sisa reaktan menggunakan kertas saring. Endapan yang didapat dikeringkan dalam oven pada suhu 110 °C dan ditimbang hingga beratnya konstan (Warastuti et al. 2017).

## 2.6 Penilaian Hidroksiapatit

Data diperoleh dengan menggunakan dua instrumen utama yaitu SEM-EDX dan FTIR. Dari SEM-EDX akan diperoleh informasi morfologi pada hidroksiapatit hasil sintesis. Penentuan kondisi terbaik sintesis hidroksiapatit akan dilihat berdasarkan karakteristik hasil yang sesuai dengan karakteristik hidroksiapatit komersial melalui karakterisasi FTIR [6]. Pada senyawa kalsium fosfat, gugus fungsi yang dapat diamati yaitu gugus PO<sub>4</sub>, gugus CO<sub>3</sub>, dan gugus OH. Gugus PO<sub>4</sub> memiliki 4 mode vibrasi (Fa'ida, 2014), yaitu:

- Vibrasi stretching (v1), dengan bilangan gelombang sekitar 956 cm<sup>-1</sup>. Pita absorpsi v1 ini dapat dilihat pada bilangan gelombang 960 cm<sup>-1</sup>.
- Vibrasi bending (v2), dengan bilangan gelombang sekitar 363 cm<sup>-1</sup>
- Vibrasi asimetri stretching (v3), dengan bilangan gelombang sekitar 1040 sampai 1090 cm<sup>-1</sup>. Pita absorpsi v3 ini mempunyai dua puncak maksimum, yaitu pada bilangan gelombang 1090 cm<sup>-1</sup> dan 1030 cm<sup>-1</sup>.
- Vibrasi anti simetri bending (v4), dengan bilangan gelombang sekitar 575 sampai 610 cm<sup>-1</sup>. Spektrum senyawa kalsium fosfat dapat diteliti pada pita v4. Pita absorpsi OH<sup>-</sup> dapat juga dilihat pada spektrum kalsium fosfat, yaitu sekitar 3576 cm<sup>-1</sup> dan 632 cm<sup>-1</sup> sedangkan pita absorpsi CO<sub>3</sub> (karbonat) dilihat pada 1545, 1450, dan 890 cm<sup>-1</sup>.

## 3. HASIL DAN PEMBAHASAN

### 3.1 Gambaran Umum Lokasi Penelitian

Sampel Acropora diperoleh dari Perairan Laut Kabupaten Kolaka, Provinsi Sulawesi Tenggara, pada kedalaman 2-3 meter. Di perairan tersebut terdapat banyak coral sebagai tempat hidup yang berlimpah bagi karang jenis Acropora.

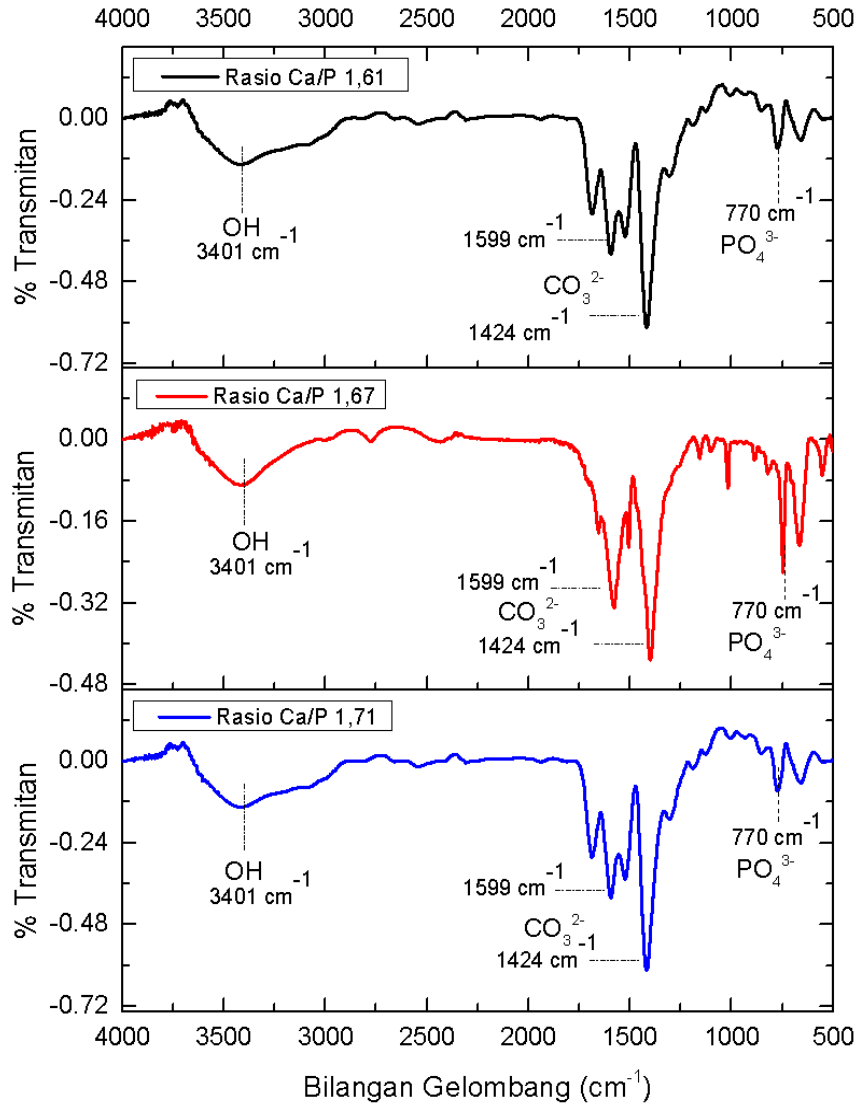
### 3.2 Hasil Penelitian

Proses pembuatan Precipitated Calcium Carbonate (PCC) sampai dengan tahap pemurnian hidroksiapatit dilakukan di Laboratorium Kimia Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam yang berlokasi di lantai satu gedung Laboratorium Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam. Selanjutnya, penilaian gambaran kualitas hidroksiapatit dengan variasi rasio dilakukan di Laboratorium Bandung. Hasil Penelitian Analisis Kandungan CaO Analisis kandungan CaO dan CaCO<sub>3</sub> dilakukan dengan menggunakan XRF

Tabel 1. Analisis kandungan CaO Acropora setelah kalsinasi

Kandungan	Satuan	Komposisi
CaO	%	62,22
CaCO <sub>3</sub>		18,16
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		7,84
MgO		5,82
SiO <sub>2</sub>		5,31

Hidroksiapatit ( $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ ) disintesis melalui proses pengendapan (precipitation process) dari suspensi kalsium hidroksida ( $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ) oleh larutan asam fosfat ( $\text{H}_3\text{PO}_4$ ). Proses presipitasi ini dilakukan pada pH 7. Jika presipitasi dilakukan pada kondisi basa akan menyebabkan mudah terbentuknya fase lain yang merupakan pengotor, yaitu  $\text{CaO}$ . Sedangkan bila dilakukan pada kondisi asam, maka  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  akan larut dan sulit membentuk endapan HAp (Gopi et al. 2012).



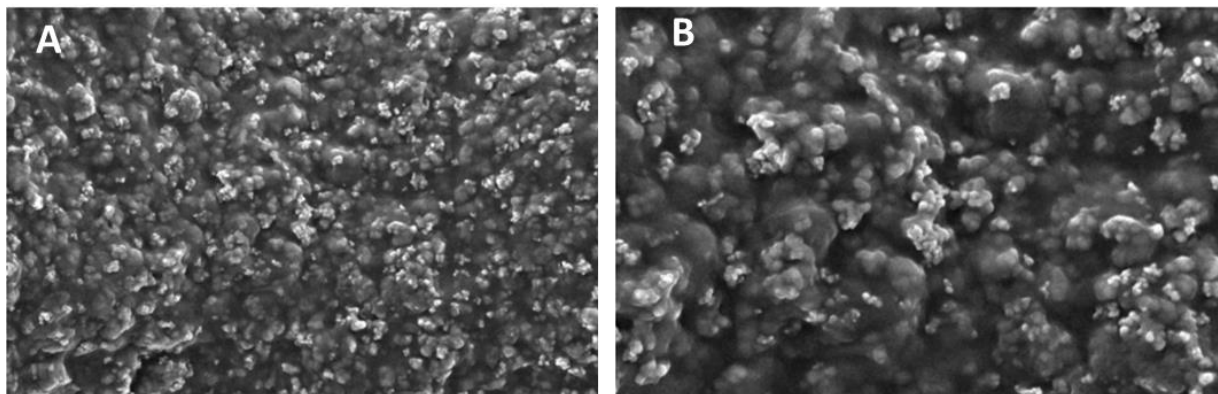
Gambar 1. Hasil FTIR Hidroksiapatit tiga variasi rasio Ca/P

Untuk mengidentifikasi gugus fungsi tersebut dilakukan analisis dengan menggunakan spektroskopi FTIR. Analisis gugus molekul pada spektra FTIR yang terbentuk dari sintesis hidroksiapatit terlihat gambaran kualitas hidroksiapatit terbaik dan variasi variasi rasio dapat dilihat pada gambar 1.

Hasil dari gambaran kualitas hidroksiapatit menunjukkan bahwa gugus fungsi memiliki puncak gugus yang tajam yaitu gugus  $\text{OH}^-$ , gugus  $\text{PO}_4^{3-}$ , dan gugus  $\text{CO}_3^{2-}$ . Gugus  $\text{OH}^-$  pada bilangan gelombang  $3401 \text{ cm}^{-1}$ , gugus  $\text{PO}_4^{3-}$  pada bilangan gelombang  $770 \text{ cm}^{-1}$ ,  $1013 \text{ cm}^{-1}$ , dan  $1188 \text{ cm}^{-1}$  dan gugus  $\text{CO}_3^{2-}$  pada bilangan gelombang  $1599 \text{ cm}^{-1}$  dan  $1424 \text{ cm}^{-1}$ . Sedangkan variasi rasio kualitas hidroksiapatit terbaik pada rasio 1,67 Ca/P atau pada transmitansi (Gambar 1b) menandakan sedikitnya zat pengotor.

Selain identifikasi menggunakan FTIR, juga karakterisasi dengan SEM (*scanning electron microscopy*) untuk mengamati komposisi HAp. Foto SEM terhadap HAp hasil sintesis ditunjukkan pada Gambar 2. Dari foto SEM tampak morfologi dengan butir yang halus dan seragam seperti yang dilaporkan

oleh Sivakumar (Sivakumar et al. 2016). Gambar 3(a) pada perbesaran 2.500 kali morfologi sampel berbentuk columnar. Terlihat adanya aglomerasi dari partikel-partikel tersebut, hal ini disebabkan oleh tidak adanya dispersing agent. Morfologi ini memiliki kemiripan dengan Gambar 3(b) pada perbesaran 5.000 kali yang merupakan hasil sintesis HAp yang dilakukan oleh (Jamarun et al. 2015) dan (Hazar et al. 2014) dengan menggunakan metode yang sama menghasilkan produk dengan morfologi yang tidak jauh berbeda yaitu butir-butir halus dengan ukuran yang seragam



Gambar 3. SEM Hap rasio 1,67 (a) perbesaran 2500x (b) perbesaran 5000x

#### 4. KESIMPULAN

Pada penelitian ini didapatkan kualitas gambaran hidroksiapatit terbaik yang memiliki puncak gugus yang tajam. Didapatkan variasi rasio kualitas hidroksiapatit terbaik adalah 1,67 Ca/P dengan sedikitnya zat pengotor.

#### DAFTAR PUSTAKA

- Akram, M., R. Ahmed, I. Shakir, W. A. W. Ibrahim, and R. Hussain, 2014, Extracting Hydroxyapatite and Its Precursors from Natural Resources, *Journal of Materials Science* 49 (4): 1461–75.
- Amri, M. K., Azis, Y., & Komalasari, 2019, Sintesis Hidroksiapatit dari Precipitated Calcium Carbonate (PCC) Terumbu Karang Melalui Proses Hidrotermal Dengan Variasi Rasio Ca/P Dan pH Reaksi, *Jom Fteknik*, (6)1
- Barth, H. D., Launey, M. E., MacDowell, A. A., Ager, J. W., & Ritchie, R. O., 2010, On the effect of X-ray irradiation on the deformation and fracture behavior of human cortical bone. *Bone*, 46(6), 1475–1485.
- Gopi, D., M. T. Ansari, E. Shinyjoy, and L. Kavitha, 2012, Synthesis and Spectroscopic Characterization of Magnetic Hydroxyapatite Nanocomposite Using Ultrasonic Irradiation, *Spectrochimica Acta - Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy*. Elsevier B.V.: 245–50. dst.
- Hazar Yoruç, A. B., and Y. Ipek, 2012, Sonochemical Synthesis of Hydroxyapatite Nanoparticles with Different Precursor Reagents, *Acta Physica Polonica A* 121 (1): 230
- Jamarun, N., A. Asril, Z. Azharman, T. P. Sari, and W. Sumatera., 2015, Research Article Effect of Hydrothermal Temperature on Synthesize of Hydroxyapatite from Limestone through Hydrothermal Method, 7 (6): 832–37.
- Nandi, S. R., Mukherjee, P., Kundu, B., De D.K., dan Basu, D., 2010, Orthopaedic Applications of Bone Graft & Graft Substitutes: a Review, *Indian J Med Res* 132, Kolkata, p : 15-30.
- Nandi, S. R., Mukherjee, P., Kundu, B., De D.K., dan Basu, D., 2010, Orthopaedic Applications of Bone Graft & Graft Substitutes: a Review, *Indian J Med Res* 132, Kolkata, p : 15-30.
- Oguzhan Gunduz, 2014, A Simple Method of Producing Hydroxyapatite and Tri Calcium Phosphate from Coral (*Pocillopora verrucosa*). *Journal of the Australian Ceramic Society* 50(2):52-58
- Ohsuki M., 2019, Bone-grafting Materials Their Uses Advantages and Disadvantages, *The Journal of the American Dental Association*, Vol. 133.

<https://jurnal.unsulbar.ac.id/index.php/saintifik>

- Sivakumar, M., T. S. Sampath Kumar, K. L. Shantha, and K. Panduranga Rao, 2016, Development of Hydroxyapatite Derived from Indian Coral, *Biomaterials* 17 (17): 1709–
- Warastuti, Y. Abbas, B. Suryani, N., 2017, Konversi Korala Laut Menjadi Hidroksiapatit menjadi Metode Sonikasi, *Jurnal Kimia Dan Kemasan*, 39(2), 79-86