

# Sintesis Dan Studi Mikroskopik Biokomposit Dari Bahan Dasar Hidroksiapatit, Kitosan dan Gentamicin Untuk Implan Tulang

Rizky Amalia S<sup>1,2</sup>, Jan Ady, S.Si., M.Si<sup>1</sup>, Djoni Izak Rudyardjo, Drs., M.Si

<sup>1</sup>Departemen Fisika, Fakultas Sains dan Teknologi, Universitas Airlangga

<sup>2</sup>[rizky.amalia789@gmail.com](mailto:rizky.amalia789@gmail.com)

## Abstrak

Perkembangan material komposit saat ini berkembang sangat pesat dilakukan untuk mendukung kebutuhan medis. Komposit hidroksiapatit/kitosan (HA/CS-gentamicin) telah disintesis oleh solusi berbasis metodologi pencampuran sederhana dengan berbagai variasi partikel hidroksiapatit (Hap) dari 70 sampai 90% (w/w). Dalam pembuatan komposit tersebut, kitosan (CS) 100 ml asam asetat 3% dan 6 gram asam ortofosforik 85%. Campuran yang diperoleh dipanaskan dengan stirrer  $70^{\circ}\text{C} \pm 10$  jam dibawah pengadukan konstan. Hasil dari sintesis kemudian didinginkan dan diendapkan dalam larutan metanol berlebih. Proses pengendapan dalam metanol merupakan proses pengendapan berulang untuk menghapus semua  $\text{H}_3\text{PO}_4$  dan asam asetat yang tidak bereaksi (pada proses pengendapan kedua endapan gel dilarutkan dalam aquades kemudian dalam larutan metanol berlebih) sampai pH netral. Gel yang terbentuk dikumpulkan dan didinginkan semalam kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu  $70^{\circ}\text{C}$  selama lebih dari 5 jam. Serbuk partikel hidroksiapatit (Hap) Campuran tersebut diaduk dengan bantuan *mechanical stirrer* dengan kecepatan konstan. Setelah semua hidroksiapatit ditambahkan ke dalam larutan polimer, solusi yang dihasilkan disimpan dalam desikator untuk menghilangkan gelembung-gelembung udara. Bubur yang dihasilkan dari proses tersebut kemudian dituangkan ke dalam cawan petri dan dikeringkan dalam oven pada suhu  $80^{\circ}\text{C}$  selama lebih dari semalam. Setelah itu proses sintesis komposit hidroksiapatit/kitosan (Hap/CS) dengan penambahan gentamicin dilakukan dengan metode pencampuran sederhana. Pertama, serbuk hidroksiapatit/ kitosan dilarutkan dalam air biasa, dan kemudian ditambahkan gentamicin secara perlahan-lahan dengan suhu ruang. Pada sampel uji, gentamicin yang digunakan adalah 10% dari berat total. Interaksi ikatan antar muka antara partikel hidroksiapatit (Hap) dan kitosan (CS) serta gentamicin telah diteliti melalui absorpsi spektrum transformasi Fourier (FTIR) dan difraksi sinar-x (XRD). Permukaan morfologi dari nanokomposit dan dispersi partikel hidroksiapatit (Hap) homogen dalam matriks polimer kitosan (CS) telah diselidiki melalui pemindaian mikroskop elektron (SEM). Hasil XRD menunjukkan fasa lain  $\text{CaHPO}_4$  hadir pada sampel komposit. Pada FTIR, gugus fosfat ( $\text{PO}_4$ ), hidroksil (OH) dan karbonat ( $\text{CO}_3$ ) yang merupakan milik hidroksiapatit muncul bersama dengan gugus fungsi milik kitosan dan gentamicin yaitu N-H dan amida. Pada karakterisasi SEM, terbentuknya komposit hidroksiapatit/kitosan (Hap/CS-gentamicin) ditandai dengan morfologi sampel yang berbentuk bongkahan yang menunjukkan bahwa kitosan telah berikatan dengan partikel hidroksiapatit (Hap).

**Kata kunci** : Hidroksiapatit, kitosan., gentamicin, Komposit HA/kitosan - gentamicin, XRD, Uji FTIR, Uji SEM

## Abstract

The development of composite materials is growing very rapidly carried out to support the medical needs. Hydroxyapatite/chitosan composite (HA/CS-gentamicin) was synthesized by a solution based on a simple mixing methodology with different variations of the Hydroxyapatite particles (Hap) from 70% to 90% (w/w). In the manufacture of the Composite, chitosan (CS) 100ml acetic acid 3% and 6 grams of acid ortofosforik 85%. The mixture obtained is heated to 70 degrees Celcius stirrer in  $\pm$  10 hours under constant stirring. The results of the synthesis is then cooled and precipitated in excess methanol solution. Precipitation in methanol process is repeated deposition process to remove all of  $H_3PO_4$  and unreacted acetic acid (In the second deposition process, deposition gel dissolved in distilled water and then in excess methanol solution) until pH neutral. The formed gel is collected and refrigerated overnight and then dried in an oven at a temperature of 70 degrees celcius for more than 5 hours. Hydroxyapatite particles (Hap) powder of the mixture is stirred with a mechanical stirrer at constant speed. After all Hydroxyapatite added into the polymer solution, the resulting solution is stored in a desiccator to remove air bubbles. Slurry which is produced from the process is then poured into a petri dish and dried in an oven at a temperature of 80 degrees celcius for more than overnight. After that, the process of the synthesis of composite hydroxyapatite/chitosan with the addition of gentamicin is done by simple mixing method. First of all, hydroxyapatite/chitosan powder dissolved in the water, and gentamicin was then added slowly with room temperature. In the test sample, gentamicin that is used was 10% of the total weight. Interfacial bonding interactions among the particles of Hydroxyapatite (Hap) and Chitosan (CS) and also Gentamicin has been investigated by absorption spectrum Fourier Transform Infrared (FTIR) and X-Ray Diffraction (XRD). Surface morphology of the nanocomposite and particle of Hydroxyapatite (Hap) homogeneous dispersion in the polymer matrix of Chitosan (CS) has been investigated by Scanning Electron Microscopy (SEM). XRD results showed the other phases  $CaHPO_4$  present in the composite sample. In FTIR, phosphate groups ( $PO_4$ ), Hydroxyl (OH) and Carbonate ( $CO_3$ ) which is owned by Hydroxyapatite appear along with belonging functional groups of Chitosan and Gentamicin are N-H and amides. In the SEM characterization, the formation of composite Hydroxyapatite/Chitosan (Hap/CS-Gentamicin) marked with the sample morphology in the form of chunks which showed that Chitosan has bonded with Hydroxyapatite particles (Hap).

**Key Words** : Hydroxyapatite, Chitosan, Gentamicin, Hydroxiapatite/Chitosan Composite (Hap/CS - Gentamicin), XRD, FTIR Test, SEM Test.

## Pendahuluan

Tulang adalah jaringan yang tersusun oleh sel dengan matriks kolagen ekstraselular yang terdiri dari 25% air, 25% serat *collagen*, 50% *fiber* garam yang mengkristal berupa *proteoglycans* dan *Hydroxyapatite* (garam calcium dan *phosphorus*). Tulang manusia dibedakan menjadi dua, yaitu tulang rawan (kartilago) dan tulang keras (osteon).

Kerusakan tulang akibat patah atau terputusnya jaringan tulang merupakan masalah kesehatan yang serius bagi manusia contohnya, manusia tidak dapat beraktivitas baik seperti berjalan dan menggerakkan persendian. Rekayasa material tulang dengan cara implant merupakan salah satu upaya perbaikan atau menumbuhkan jaringan tulang yang telah rusak. Penggunaan material yang tepat untuk penanganan kerusakan tulang merupakan faktor keberhasilan implantasi tulang karena masing-masing biomaterial implan memiliki kelebihan

dan kekurangan. Ketika semua biomaterial dari polimer, keramik dan logam dianggap kurang mampu mengatasi permasalahan, memproduksi material dari bahan komposit untuk aplikasi implan tulang adalah pendekatan yang baik (Yildirim, 2004).

Biomaterial komposit banyak digunakan dalam bidang implantasi jaringan adalah biokeramik yaitu hidroksiapatit (Hap), kitosan (Cs) dan Gentamicin. Biokeramik hidroksiapatit merupakan jenis biomaterial keramik yang mampu menggantikan mineral jaringan tulang. Hal ini dikarenakan sifat kimia dan struktur hidroksiapatit yang memiliki kemiripan dengan komponen anorganik pada tulang, sehingga mampu untuk menggantikan kandungan Ca (kalsium) dan P (Nabakumar et al, 2009). Kitosan adalah salah satu polimer alami yang berpotensi untuk digunakan sebagai *serat/filler* dalam pembuatan komposit. Kitosan memiliki karakter bioresorbabel, biokompatibel, non-toksik, non-antigenik, biofungsional dan osteokonduktif. Karakter osteokonduktif yang dimiliki kitosan dapat mempercepat pertumbuhan osteoblas pada komposit HA-kitosan sehingga dapat mempercepat pembentukan mineral tulang. Penambahan antibiotik seperti gentamicin pada bahan implan diharapkan mampu mencegah tumbuhnya mikroba yang mungkin muncul pada implan serta mencegah infeksi (Sivakumar dan Rao, 2002). Selain itu diharapkan dapat bekerja sebagaimana fungsinya sampai jaringan tulang baru terbentuk. Penelitian tentang biomaterial komposit berbasis hidroksiapatit pernah dilakukan oleh Smallman. Smallman mendapatkan hasil adanya keterbatasan hidroksiapatit murni yang memiliki sifat rapuh yang tinggi (bersifat getas dan mudah patah) (Smallman, 2000). Karena hidroksiapatit murni memiliki kelemahan, ditambahkan polimer agar terbentuk sifat yang lebih kuat. Penelitian tentang biomaterial nanokomposit berbasis hidroksiapatit dan kitosan pernah dilakukan oleh Irindah, dimana hasilnya memperoleh nilai derajat kristalinitas sebesar 19% - 35% (Irindah, 2012). Dan penelitian lain yang pernah dilakukan untuk mengetahui ukuran pori dari sampel pernah dilakukan oleh Nurur, dimana hasilnya mendapatkan ukuran pori sebesar 25,4  $\mu\text{m}$  (Nurur, 2010). Tetapi kedua bahan tersebut sangat rentan akan bakteri-bakteri yang ada di udara. Oleh karena itu perlu ditambahkan bahan yang berfungsi sebagai anti bakteri.

Fokus penelitian ini adalah melakukan proses sintesis hidroksiapatit, kitosan dan gentamisin untuk mengetahui informasi penting atas penentuan sifat mikroskopik pada suatu material seperti derajat kristalinitas, ukuran pori dan kandungan Ca/P dengan melakukan beberapa uji, yang meliputi uji *X-Ray Diffraction (XRD)*, uji *Fourier Transform Infrared (FTIR)* dan uji morfologi permukaan dengan menggunakan *Scanning Electron Microscopy (SEM)*.

## **Teori**

Tulang atau kerangka merupakan penopang tubuh vertebrata dan juga tubuh manusia. Tulang merupakan jaringan keras yang sangat penting karena tanpa tulang tubuh tidak bisa berdiri tegak. Fungsi tulang adalah untuk memberikan dukungan dan penopang bagi tubuh. Tulang merupakan sebuah material komposit yang terdiri dari matriks kolagen yang diperkuat oleh kristal hidroksiapatit. Tulang terdiri dari suatu struktur selular yang berpori (tulang ringan/tulang *cancellous*) yang diselubungi oleh suatu kulit yang lebih padat.

Hidroksiapatit (Hap) adalah komponen anorganik utama dari jaringan keras tulang dan menyumbang 60-70% dari fase mineral dalam tulang manusia. Hidroksiapatit (Hap) termasuk

dalam golongan biomaterial keramik yang memiliki rumus kimia  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$  dan memiliki rasio Ca : P adalah 1,67. Hal paling menarik dari sifat hidroksiapatit (Hap) adalah kemampuan biokompatibilitasnya yang sangat baik. Hidroksiapatit (Hap) mampu berinteraksi dan menyatu secara kimiawi dengan jaringan tulang. Hidroksiapatit (Hap) memiliki beberapa sifat yang menonjol lainnya, seperti : osteokonduktif, berpori, bioresorbabel, bioaktif, tidak korosi, inert, tahan aus (Samsiah 2009).

Kitosan ( $\text{C}_6\text{H}_{11}\text{NO}_4$ )<sub>n</sub> merupakan polimer alami yang berpotensi digunakan sebagai serat/filler dalam pembuatan komposit. Kitosan dapat diekstrak dari kepiting atau udang. Kitosan termasuk dalam biomaterial polimer. Kitosan merupakan *aminopolysaccharide* dengan struktur mirip dengan selulosa (Kalinnikov, dalam Barinov, 2010). Kitosan memiliki karakter bioresorbabel, non-toksin, non-antigenik dan biofungsional. Kitosan tidak larut dalam air, alkali dan pelarut organik, tetapi larut dalam larutan asam organik dan dapat terdegradasi oleh enzim dalam tubuh (Dewi, 2008). Selain itu, kitosan memiliki karakter biokompatibel, biodegradabel, dan osteokonduktif (Liu *et al.*, 2006). Karakter osteokonduktif yang dimiliki kitosan dapat mempercepat pertumbuhan osteoblas sehingga dapat mempercepat pembentukan mineral tulang. Kitosan bersifat hidrofilik (menahan air) dan membentuk gel secara spontan. Pembentukan gel ini disebabkan sifat kationik kitosan. Selain itu, kitosan juga memperlihatkan aktivitas biologi seperti *hypocholesterolemic*, anti mikroba dan anti jamur (Rhoades & Roller, 2000).

*Gentamicin* merupakan antibiotik yang efektif untuk mencegah tumbuhnya mikroba serta pengobatan infeksi yang disebabkan oleh bakteri, seperti *Proteus*, *Pseudomonas aeruginosa*, *Klebsiella*, *Serratia*, *E. coli*, *Enterobacter* dan lain-lain (Nori *et al.*, 2011). Fungsi gentamisin pada penelitian ini adalah sebagai antibiotik yang bekerja dengan cara memperlambat pertumbuhan atau membunuh bakteri yang sensitif dalam tubuh. Selain itu, berfungsi juga sebagai antibiotik setelah proses implan dilakukan.

## **METODE PENELITIAN**

Tahap pertama yaitu mempersiapkan sampel kitosan yang diperoleh dengan melarutkan 2 gram bubuk kitosan (kitosan dari kulit udang) dalam 100 ml asam asetat 3% dan 6 gram asam ortofosforik 85%. Campuran yang diperoleh dipanaskan dengan stirrer  $70^{\circ}\text{C} \pm 10$  jam dibawah pengadukan konstan. Hasil dari sintesis kemudian didinginkan dan diendapkan dalam larutan metanol berlebih. Proses pengendapan dalam metanol merupakan proses pengendapan berulang untuk menghapus semua  $\text{H}_3\text{PO}_4$  dan asam asetat yang tidak bereaksi (pada proses pengendapan kedua endapan gel dilarutkan dalam aquades kemudian dalam larutan metanol berlebih) sampai pH netral. Gel yang terbentuk dikumpulkan dan didinginkan semalam kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu  $70^{\circ}\text{C}$  selama lebih dari 5 jam.

Sedangkan tahap kedua adalah proses sintesis komposit hidroksiapatit/kitosan (Hap/CS) dilakukan dengan metode pencampuran sederhana. Pertama, bubuk kitosan dilarutkan dalam air panas, dan kemudian partikel hidroksiapatit ditambahkan secara perlahan-lahan. Sampel uji komposit hidroksiapatit/kitosan (Hap/CS) dibuat dengan menambahkan partikel HAp masing-masing 70%, 80%, 90%, dan pada sampel uji larutan kitosan dengan menggunakan perbandingan variasi massa.

Campuran tersebut diaduk dengan bantuan *mechanical stirrer* dengan kecepatan konstan. Setelah semua hidroksiapatit ditambahkan ke dalam larutan polimer, solusi yang dihasilkan disimpan dalam desikator untuk menghilangkan gelembung-gelembung udara. Bubur yang dihasilkan dari proses tersebut kemudian dituangkan ke dalam cawan petri dan dikeringkan dalam oven pada suhu 80°C selama lebih dari semalam.

Sedangkan tahap ketiga adalah proses sintesis komposit hidroksiapatit/kitosan (Hap/CS) dengan penambahan gentamicin dilakukan dengan metode pencampuran sederhana. Pertama, bubuk hidroksiapatit/ kitosan dilarutkan dalam air biasa, dan kemudian ditambahkan gentamicin secara perlahan-lahan dengan suhu ruang. Pada sampel uji, gentamicin yang digunakan adalah 10% dari berat total. Rumus umum yang digunakan dalam penentuan massa adalah penjumlahan dari berat hidroksiapatit, kitosan serta sepuluh persen berat gentamicin dari massa total.

Campuran tersebut diaduk dengan bantuan *mechanical stirrer* dengan kecepatan konstan. Setelah semua hidroksiapatit ditambahkan ke dalam larutan polimer, solusi yang dihasilkan disimpan dalam desikator untuk menghilangkan gelembung-gelembung udara. Bubur yang dihasilkan dari proses tersebut kemudian dituangkan ke dalam cawan petri dan dikeringkan dalam oven pada suhu 40°C selama lebih dari semalam. Hasil akhir ini selanjutnya dilakukan uji mikroskopik di Laboratorium Metalurgi ITS.

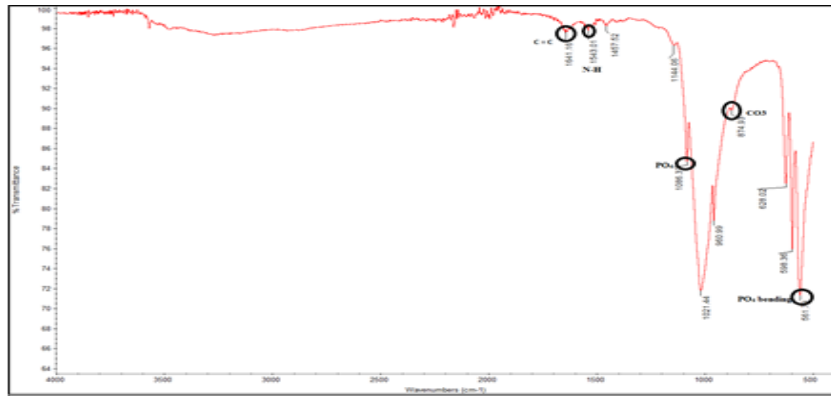
**Tabel 3.1. Variasi Komposisi Sintesis HAp/CS-Gentamicin**

Sampel	Hap (%)	Hap (gram)	Kitosan (gram)	<i>Gentamicin</i> (gram)	Komposit HAp/CS-gentamicin (gram)
A	70	1.4	0.6	-	2
B	70	1.4	0.6	0.2	2
C	80	1.6	0.4	0.2	2
D	90	1.8	0.2	0.2	2

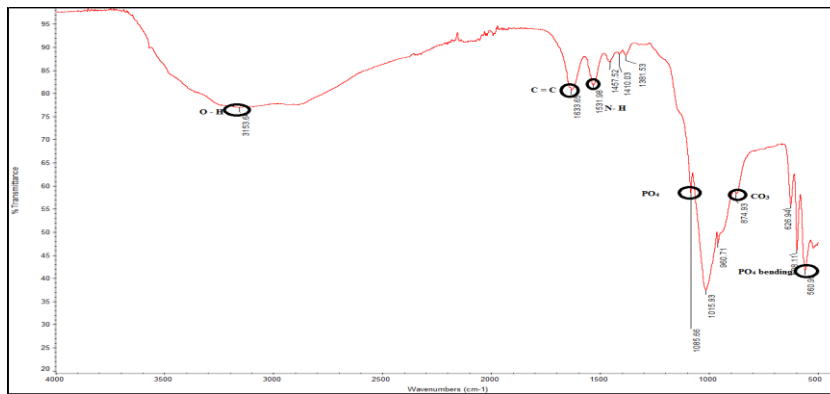
## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Hasil Serapan *Fourier Transform Infrared* (FTIR)

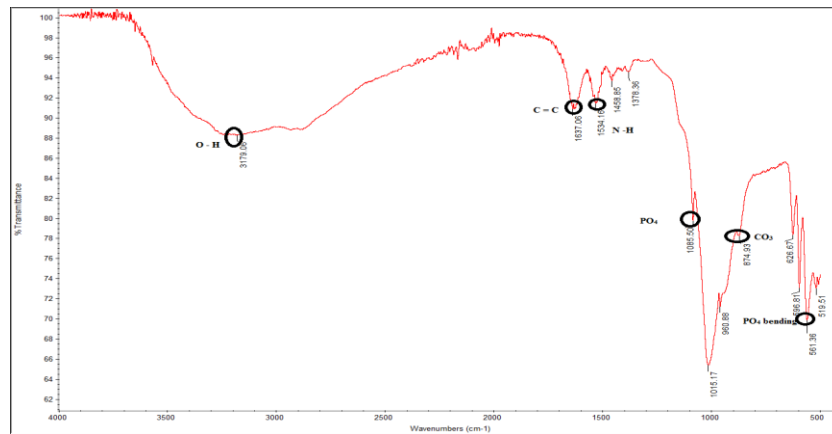
Karakterisasi mikroskopik yang dilakukan pertama adalah analisis FTIR. Analisis serapan FTIR dilakukan untuk mengetahui gugus fungsi yang terkandung.



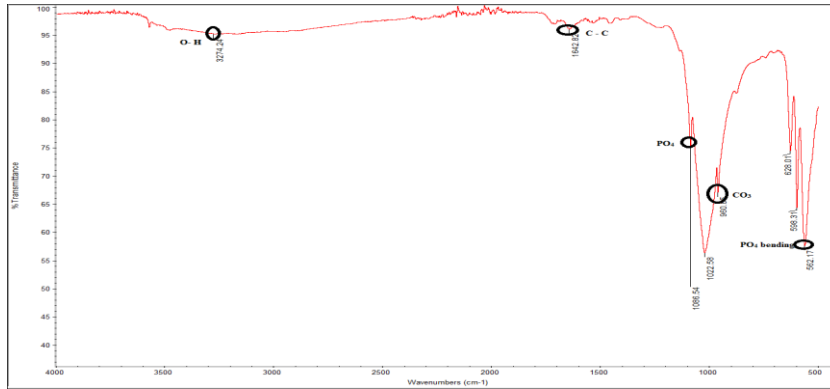
Pola FTIR Sampel Uji sampel A HA (70%) + CS (30%)



Pola FTIR Sampel Uji B HA (70%) + CS (30%) + gentamicin



Pola FTIR Sampel Uji C HA (80%) + CS (20%) + gentamicin



Pola FTIR Sampel Uji D HA (90%) + CS (10%) + gentamicin

Pola Pita absorpsi sampel Uji FTIR

Sampel	Pita Absorpsi ( $\text{cm}^{-1}$ )					
	PO <sub>4</sub>	C = C	O – H	N – H	PO <sub>4</sub> bending	CO <sub>3</sub>
A	1086.33	1641.16	-	1542.01	561.79	874.93
B	1085.66	1633.65	3153.64	1531.98	560.99	874.93
C	1085.5	1637.06	3179.06	1534.16	562.17	874.93
D	1086.54	1642.82	3274.24	-	562.17	960.85

Pada tabel diatas memperlihatkan peta absorpsi FTIR dari keseluruhan sampel. Spektrum IR pada ke empat sampel tersebut menunjukkan adanya pita absorpsi fosfat, pita absorpsi karbonat, pita absorpsi NH serta peta absorpsi hidroksil. Munculnya keempat gugus tersebut menandakan bahwa keempat sampel mengandung gugus Hap. Pada sampel A terbentuk pita absorpsi 1086.33  $\text{cm}^{-1}$ . Gugus fosfat *bending* muncul pada bilangan gelombang 561.79  $\text{cm}^{-1}$ . Selain gugus fosfat, gugus karbonat juga terlihat pada kisaran bilangan gelombang 874.93  $\text{cm}^{-1}$ . Gugus amida I sampel A juga muncul pada bilangan gelombang 1641.2  $\text{cm}^{-1}$ .

Pada sampel B terlihat gugus NH dan amida I ( C = C ) yang merupakan karakteristik atau gugus fungsi milik kitosan dan gentamicin. Pada sampel B terdapat gugus hidroksil pada bilangan gelombang 3153.6  $\text{cm}^{-1}$ . Pada sampel B juga terdapat gugus amida I yang tampak pada bilangan gelombang 1633.7  $\text{cm}^{-1}$ . Gugus amida I yang terbentuk bertumpukan dengan gugus OH sehingga pita serapan terlihat sedikit lebih lebar.

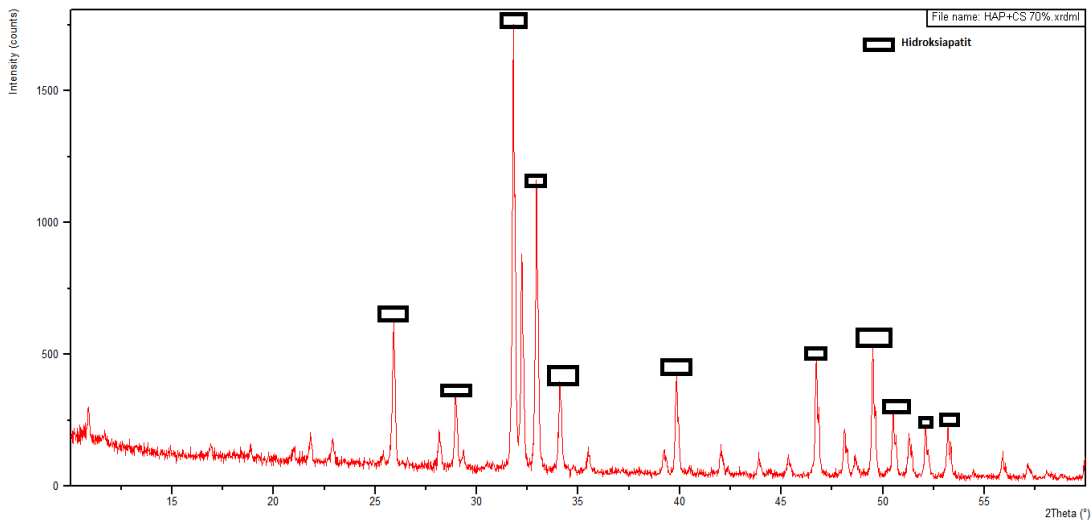
Pada sampel C juga terlihat gugus amida I ( C = C ) dan NH yang menandakan adanya gugus fungsi milik kitosan dan gentamicin. Pada sampel C terbentuk pita absorpsi fosfat muncul pada bilangan gelombang 1085.5  $\text{cm}^{-1}$ . Selain gugus fosfat, gugus karbonat juga terbentuk pada kisaran bilangan gelombang 874.93  $\text{cm}^{-1}$ . Gugus hidroksil sampel C juga muncul pada bilangan gelombang 3179.1  $\text{cm}^{-1}$ . Selain terdapat gugus NH , juga terdapat gugus amida I ( C = C ) yang tampak pada bilangan gelombang 1637.1  $\text{cm}^{-1}$ .

Pada sampel D juga hampir sama dengan sampel B dan C. Sampel D terbentuk gugus amida I yang bertumpukan dengan gugus OH. Hadirnya gugus C-H dan amida pada sampel D adalah gugus fungsi milik kitosan serta gentamicin. Kemunculan gugus Hap dan gugus fungsi NH<sub>2</sub>, C-H dan amida menandakan bahwa komposit keempat sampel apatit-kitosan telah berhasil dibentuk. Penambahan kitosan dan gentamicin tidak memperlihatkan hasil yang terlalu

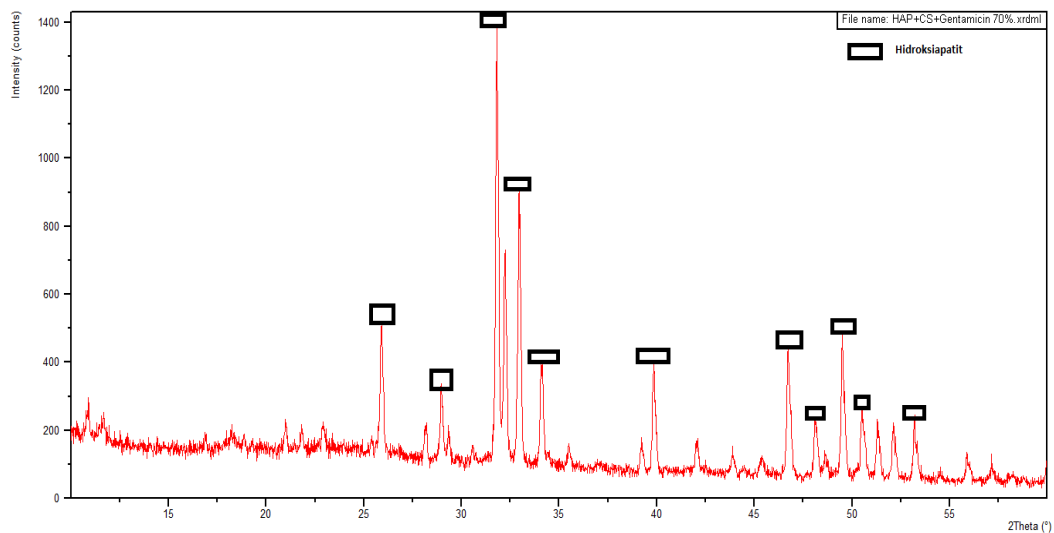
signifikan. Gugus fungsi yang hadir pada ketiga sampel sama, hanya berbeda pada nilai transmisinya saja.

### Hasil Perhitungan X-Ray Diffraction (XRD)

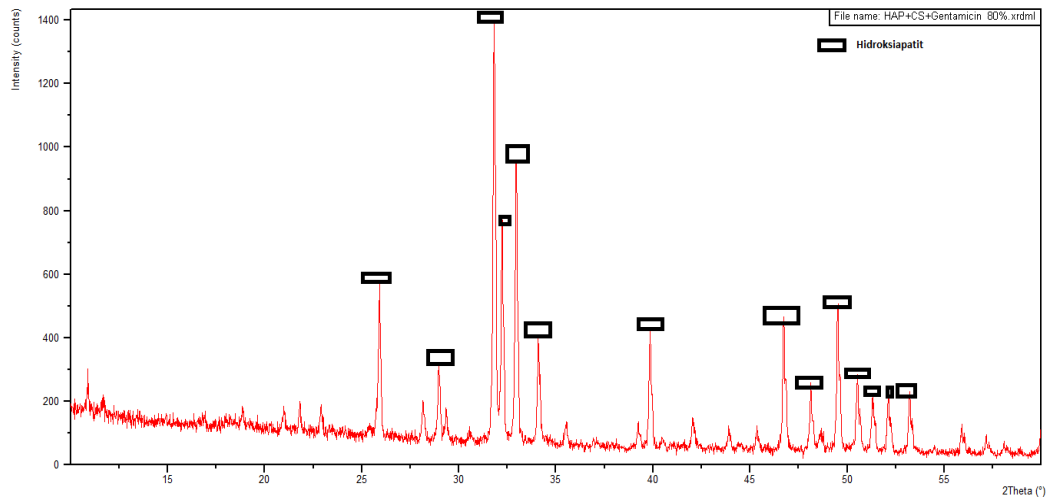
Karakterisasi XRD dilakukan untuk mengetahui fasa yang telah terbentuk pada sampel dan menghitung derajat kristalinitas pada sampel. Sepanjang proses sintesis dengan perlakuan variasi Hap dan kitosan memungkinkan terjadinya ikatan antar filler dan matrik. Pada pola XRD digambarkan dalam bentuk kurva dengan puncak-puncak serta memiliki absis dan ordinat. Absis adalah sudut  $2\theta$  dan ordinat adalah kalkulasi intensitas difraksi. Berikut adalah pola ke empat sampel. Berikut adalah pola keempat sampel.



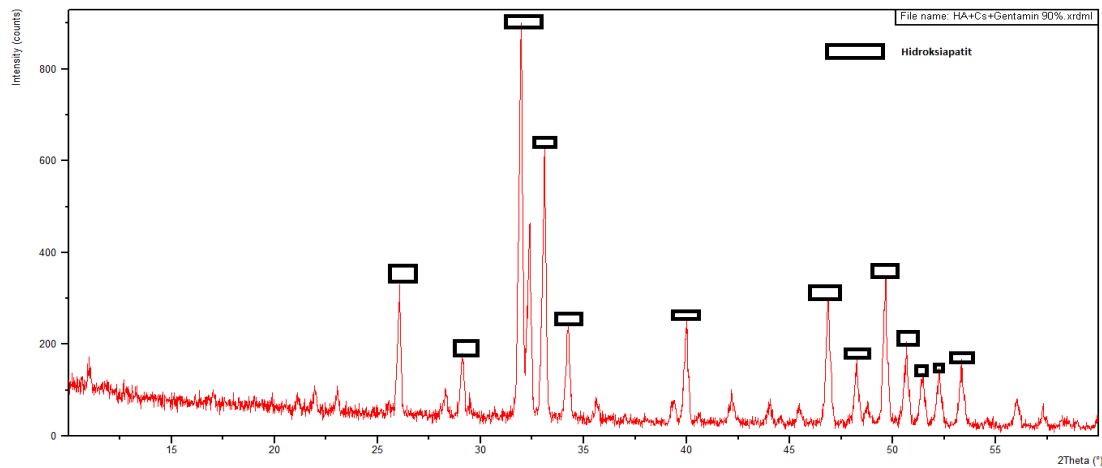
. Hasil Uji XRD komposit HidroksiApatit ( 70 % ) - Kitosan ( 30% )



Hasil Uji XRD komposit HidroksiApatit ( 70 % ) - Kitosan ( 30% ) bergentamicin



Hasil Uji XRD komposit HidroksiApatit ( 80 % ) - Kitosan ( 20 % ) bergentamicin



Hasil Uji XRD komposit HidroksiApatit ( 90 % ) - Kitosan ( 10 % ) bergentamicin

Pada sampel diatas dapat terlihat puncak tertinggi milik hidroksiapatit, karena hidroksiapatit bersifat kristal dibandingkan dengan kitosan dan gentamicin yang bersifat amorf. Identifikasi keempat sampel dapat dilihat pada tabel berikut.

Nilai Puncak tertinggi Sampel

Sampel	Puncak Tertinggi (2θ)	Intensitas
HAp(70%)+Cs (30%)	31.7991	100
HAp(70%)+Cs (30%)+G	31.7909	100
HAp(80%)+Cs (20%)+G	31.8082	100
HAp(90%)+Cs (10%)+G	31.9707	100

Pada tabel diatas dapat dilihat jika puncak tertinggi masing-masing sampel hamper sama, hanya berbeda nilainya dengan intensitas yang sama. Puncak – puncak yang teridentifikasi pada setiap sampel adalah *Calcium Hydroxide phosphate*. Hal ini terjadi karena pada saat sintesis, komposisi hidroksiapatit paling dominan, sehingga terjadi fasa yang lebih dominan dibandingkan dengan kitosan dan gentamicin. Munculnya fasa  $\text{CaHPO}_4$  diprediksi menyebabkan ketidaksetabilan  $[\text{HA}, \text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2]$ . Ketidaksetabilan ini kemungkinan berpengaruh pada nilai parameter kisi dan derajat kristalinitas. Hasil perhitungan data XRD yang menunjukkan nilai parameter kisi dan derajat kristalinitas partikel hidroksiapatit (HA) dalam komposit hidroksiapatit/kitosan-gentamicin (HA/CS)-G

Parameter Kisi Sampel

kode sampel	parameter kisi		
	A	b	C
Hap(70%)+Cs(30%)	9.4239	9.4239	6.8841
Hap(70%)+Cs(30%)+G	9.4223	9.4223	6.8818
Hap(80%)+Cs(20%)+G	9.4218	9.4218	6.8813
Hap(90%)+Cs(10%)+G	9.4257	9.4257	6.8853

Parameter kisi diperoleh setelah melakukan proses pengukuran. Parameter kisi hidroksiapatit dalam komposit sampel menunjukkan nilai parameter kisi masih sama dengan referensi yaitu  $a=b \neq c$  dan memiliki struktur fasa heksagonal. Nilai parameter kisi pada ke empat sampel mendekati referensi yaitu  $a=b$  bernilai 9,448A dan c bernilai 6,881 A. Begitu juga dengan sampel Hal ini sekaligus menjelaskan bahwa dengan kehadiran fasa lain  $\text{CaHPO}_4$ , HA masih dalam fase kristal stabil didalam sintesis komposit hidroksiapatit/ kitosan (HA/CS), yaitu  $[\text{HA}, \text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2]$ . Derajat kristalinitas dihitung dengan membandingkan luas kristalin dengan penjumlahan fraksi luas kristalin dan fraksi luas amorf. Hasil yang diperoleh untuk nilai derajat kristalinitas adalah

Derajat Kristalinitas

Sampel	kristalinitas
a)hidroksiapatit (70% ) + kitosan (30%)	74.48 %
b)hidroksiapatit (70% ) + kitosan (30%) + gentamicin	77.50 %
c) hidroksiapatit (80% ) + kitosan (20%) + gentamicin	81.46%
d)hidroksiapatit (90% ) + kitosan (10%) + gentamicin	87.62%

Pada tabel diatas menunjukkan bahwa keempat sampel dengan prosentase Hap yang semakin banyak menghasilkan derajat kristalinitas yang semakin tinggi keempat sampel. Kenaikan derajat kristalinitas pada sampel terjadi karena banyaknya Hap yang akan teridentifikasi pada sifat porositasnya. Derajat kristalinitas Hap(90%)+ Cs (10%)+G mendekati derajat kristalinitas yang dimiliki HA ex-Aldric(84%). Sehingga sampel Hap(90%)+Cs (10%)+ G cocok untuk implant tulang.

## Analisis Morfologi SEM dan EDX

Uji SEM dilakukan pada Hap murni dan kitosan murni. Perbedaan diantara Hap murni dan kitosan murni adalah pada struktur HAp terdapat bongkahan dibandingkan kitosan, pada HAp murni terdapat porus yang lebih banyak dibandingkan kitosan. Lalu dilakukan pencampuran antara HAp dan kitosan dengan penambahan gentacimin. Hasilnya diperoleh seperti gambar dibawah ini.

Analisis partikel apatit dalam komposit menyebar secara seragam, serta dapat terlihat melalui matriks kitosan yang telah saling berhubungan antar sel. Bentuk pori-pori pada kitosan terlihat berubah dibandingkan dengan sampel Hap sendiri. Dalam gambar, dapat kita lihat bahwa pori-pori kitosan murni lebih datar dibandingkan dengan pori-pori Hap murni. Tetapi setelah diberi kitosan, lebih banyak porus yang terlihat. Semakin sedikit kitosan yang diberikan maka ukuran pori semakin kecil egitu juga sebaliknya. Data diatas menunjukkan bahwa nilai poros yang dihasilkan oleh sampel HAp(80%)+Cs(20%)+G memiliki range antara (33,33- 66,6 ) $\mu\text{m}$ , sedangkan pada sampel HAp(90%)+Cs(10%)+G memiliki range antara (23,3-40 )  $\mu\text{m}$ . Hal ini masih jauh dibawah litetatur yang bernilai 100  $\mu\text{m}$ .

Rasio Molaritas Ca/P

Sampel	Ca/P
HAp(80%)+Cs(20%)+ G	1.48
HAp(90%)+Cs(10%)+ G	1.51

Adapun berdasarkan EDX pada lampiran, didapatkan komposisi Ca/P seperti ditunjukkan pada tabel diatas. Observasi SEM dilakukan bersamaan dengan pengukuran EDAX. Rasio molaritas Ca/P dapat dilihat pada lampiran. Rasio Ca/P pada HA murni adalah 1.67. Rasio pada sampel uji relatif lebih kecil daripada rasio HAp murni atau disebut sebagai *down grade*. Hal ini dikarenakan kemungkinan hadirnya elemen lain yang ikut terkandung dalam sampel dan juga unsur P yang lebih banyak daripada unsur Ca. Hal ini dikarenakan karena kandungan asam orthofosforik yang belum sepenuhnya menguap. Sehingga hasil yang didapat dibawah literatur. Sampel D adalah yang paling mendekati literatur dengan nilai 1,51. Jadi, semakin banyak persentase Hap, semakin baik kandungan Ca/P.

## KESIMPULAN

- Variasi komposisi hidroksiapatit pada sampel HA/Cs/*Gentamicin* mempengaruhi sifat mikroskopik sampel HA/Cs/G. Pada karakterisasi FTIR terlihat tidak ada gugus baru Pada karakterisasi XRD, menunjukkan puncak yang dominan adalah milik Hidroksiapatit. Semakin banyak prosentase Hap, menyebabkan nilai derajat kriticalitas semakin tinggi dimana nilai tertinggi pada sampel HAp(90%)+Cs(10%)+G. pada hasil SEM, ukuran pori terlihat lebih kecil pada

sampel HAp(90%)+Cs(10%)+G begitu juga dengan EDX didapatkan CA/P yang paling mendekati literatur adalah sampel HAp(90%)+Cs(10%)+G

- Karakteristik sampel HA/Cs/G yang terbaik karena memenuhi standart untuk diaplikasikan dalam bidang medis khususnya untuk tulang kortikal ditunjukkan oleh sampel dengan penambahan konsentrasi HA sebesar 90%, dimana sampel ini memiliki nilai derajat kristalinitas sebesar 87,62%, dan nilai CA/P 1,51.

## DAFTAR PUSTAKA

1. Aoki, Hideki. 1991. **Science and Medical Application of Hydroxyapatite**. JAAS : Tokyo, Japan.
2. Lestari, Astri. 2009. **Sintesis Dan Karakterisasi Komposit Apatit-Kitosan Dengan Metode *In-Situ* dan *Ex-Situ***. IPB. Bogor.
3. Irindah. 2012. **Sintesis dan karakterisasi Mikroskopik Nano-Komposit Hidroksiapatit/CS untuk Pengisi Jaringan Tulang**. Skripsi S-1, UNAIR, Surabaya.
4. Nanang. 2012. **Sintesis dan karakterisasi Makroskopik Nano-Komposit Hidroksiapatit/CS n-HAp untuk Implantasi Tulang**. Skripsi S-1, UNAIR, Surabaya.
5. Bhat SV. 2002. **Biomaterials**. Alpha Science International Ltd : Pangbourne England
6. Cahyanto, Arief. (2009). **Biomaterial**. Skripsi S-1, Universitas Padjajaran, Bandung.
7. Combe E. C., 1992, **Notes and Dental Materials**, 6 th edition Churchill Livingstone, Edinburgh, London.
8. Guy, A G., (1980), **Elements of Material Science**, John Wiley, New York.
9. Handbook “ **Over view of Biomaterials and Their Use in Medical Devices** “, Chap.1.
10. Harapan S. **Sampai dengan Tahun 2010 Dekade Penyakit Tulang**, [terhubung berkala]; 2006. <http://www.sinar.harapan.co.id> [16 Mei 2006].
11. Howard, S. A & Preston, K. D. (1989), **Profilefitting of powder diffraction patterns, in Modern powder diffraction**, pp. 217-275.
12. J. Huang, L. Di Silvio, M. Wang, I. Rehman, C. Ohtsuki, and W. Bonfield, “**Evaluation of in vitro bioactivity and biocompatibility of Bioglass\_-reinforced polyethylene composite,**” *Journal of Materials Science: Materials in Medicine*, vol. 8, no. 12, pp. 809–813, 1997.
13. Koutsopoulos S. 2002. **Syntesis and Characterization of Hydroxyapatite Crystals: A review on The Analytical Methode**. Departement of Chemistry, University of Patras, Greece.
14. Kusumawati, Wheni. 2010. **Pengaruh Penambahan Konsentrasi Hidroksiapatit terhadap Karakteristik Komposit Co-Cr**. Skripsi S-1, UNAIR, Surabaya.
15. Langford, I. I. (1978). **A rapid method for analysing the breadths of diffraction and spectral lines**. *J Appl. Cryst.*, vol. 11, pp. 10-14.

16. L. L. Hench. 1998. **Bioceramics**, Journal of the American Ceramic Society, vol. 81, pp. 1705–1728.
17. Lazzeri, L., Cascone, M. G., Serena, D., Serino, L. P., Moscato, S., & Bernardini, N. G. (2006). **Gelatine/PLLA sponge-like scaffold: Morphologi caland biological characterization**. Journal of Materials Science : Materials in Medicine, 17, 1211–1217.
18. Michael, Debra. Kai-Uwe. Hasirci, Vasif. David E. Altobelli. Donald, 2002, **Materials in Orthopedic**. New York : Marcell Dekker. INC..
19. Nabakumar Pramanik, Mishra, Indranil, Tapas Kumar, Parag Bhargava. 2009. **Chemical Synthesis, Characterization, and Biocompatibility Study of Hydroxyapatite/Chitosan Phosphate Nanocomposite for Bone Tissue Engineering Applications**, International Journal of Biomaterials, Volume Article ID 512417, 8 pages doi:10.1155/2009/512417.
20. Nuriana, Wahidin. 2005. **Sintesis Titanium-Hidroksiapatit**. Disertasi Program Pascasarjana. UNAIR. Surabaya.
21. Noshi, T., Yoshikawa, T., Ikeuchi, M., Dohi, Y., Ohgushi, H., & Horiuchi, K., et al. (2000). **Enhancement of the in vivo osteogenic potential of marrow/ hydroxyapatite composites by bovine bone morphogenetic protein**. Journal of Biomedical Materials Research, 52, 621–630.
22. Panigrahi, Manas Ranjan. 2010, March 22. **X-ray Diffraction: The finger print of a material**. *SciTopics*. Retrieved January 19, 2012, from [http://www.scitopics.com/X\\_ray\\_Diffraction\\_The\\_finger\\_print\\_of\\_a\\_material.html](http://www.scitopics.com/X_ray_Diffraction_The_finger_print_of_a_material.html)
23. Park, John and Lakes, R.S., 2007. **Biomaterials in Introduction**. *Third edition* ns. Springer. Science and Business Media LLC.
24. Park, Joon B. Bronzino, Joseph D. 2003. **Biomaterial Principles and Applications**. Vol 1. USA : CRC Press
25. Park, Y. J., Lee, Y. M., Park, S. N., Sheen, S.Y., Chung, C.D., & Lee, S. J. (2000). **Platelet derived growth factor releasing chitosan sponge for periodontal bone regeneration**. Biomaterials, 21, 153–159.
26. Pujiastuti, P. 2001. **Kajian Transformasi Khitin Menjadi Khitosan Secara Kimiawi dan Enzimatis**. Seminar Nasional Jurusan Kimia, Jurusan Kimia F MIPA UNS, Surakarta
27. Q. Liu, J. R. de Wijn, and C. A. van Blitterswijk, “**Composite biomaterials with chemical bonding between hydroxyapatite filler particles and PEG/PBT copolymer matrix**,” *Journal of Biomedical Materials Research*, vol. 40, no. 3, pp. 490–497, 1998.
28. Smallman. & A.H.W. Ngan, 2007. **Physical Metallurgy and Advanced Materials**, *Seventh Edition*. Elsevier Science and Sabre Foundation Book.
29. Suh, J. K., & Matthew, H. W. (2000). **Application of chitosan based polysaccharide Biomaterial in cartilage tissue engineering** : A review. Biomaterials, 21, 2589–2598.
30. Susilowati, 2003, **Pengaruh Perlakuan Panas terhadap Sifat Mikro dan Sifat Mekanik Resin Akrilik Tipe Heat-Cured**, Skripsi S1, UNAIR, Surabaya.

31. Swanson, H. E, and Tatge, E. (1954), '**Standard x-ray diffraction powder patterns**', *Acta Crystallographica*, vol.7, pp.464 (ICSD Collection No. 64745)
32. Triana. Masykur dan Usman. 2004. **Synthesis of chitosan from chitin of escargot (*Achatina fulica*)**. BioFarmasi Journal. Jurusan Biologi FMIPA UNS Surakarta
33. Van, Vlack L. H. & Djaprie S., 1985, *Ilmu dan Teknologi Bahan*, Edisi Kelima. Jakarta : Erlangga.
34. Winarti, Ike Yuniarsari Putri, 2008. **Komparasi korosi antara material amorf gelas metalik  $Zr_{67,6}Cu_{11,8}Ni_{10,8}Al_{7,8}Si_2$** . Skripsi S1, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam. Universitas Airlangga.
35. Yildirim, Oktay. 2004. **Preparation and Characterization of Chitosan/Calcium Phosphate Based Composite Biomaterials**. [disertasi]. Turki : Departement Materials Science and Engineering, Mayor Materials Science and Engineering. Izmir Institute of Technology.
36. Zhang, Y., & Zhang, M, 2001. **Synthesis and characterization of macroporous chitosan/calcium phosphate composite scaffolds for tissue engineering**. Journal of Biomedical Materials Research.
37. Amrina, Helly Q. 2008. **Sintesa Hidroksiapatit Dengan Memanfaatkan Limbah Cangkang Telur: Karakterisasi XRD dan SEM**. IPB. Bogor