

UJI DEGRADASI TERMAL PADA KOMPOSIT HIDROKSIAPATIT-KITOSAN-KOLAGEN SEBAGAI BONEGRAFT

THERMAL DEGRADATION TEST ON HYDROXYAPATITE-CHITOSAN-COLLAGEN COMPOSITE AS BONEGRAFT

Maya Dany Puspitasari* dan **Sari Edi Cahyaningrum**
Department of Chemistry, Faculty of Mathematics and Natural Sciences
Universitas Negeri Surabaya
Jl. Ketintang, Surabaya (60231), Telp. 031-8298761
*Corresponding author, email: saricahyaningrum@unesa.ac.id

Abstrak. Komposit hidroksiapatit-kitosan-kolagen (HAp-kit-kol) merupakan biomaterial sintetik yang berfungsi dalam proses penyembuhan tulang. Komposit disintesis dengan metode *ex-situ* dan dibuat menjadi material berpori dengan metode *freeze-drying*. Komposit dikarakterisasi dengan TGA menghasilkan perubahan massa yang drastis pada suhu 230-510 °C sebesar 13,9% menandakan terjadinya dekomposisi material organik dalam komposit dan perubahan massa pada suhu 510-900 °C sebesar 4,2% menandakan terjadinya proses dekomposisi dan kristalisasi hidroksiapatit.

Kata kunci: Komposit HAp-kitosan-kolagen, *ex-situ*, TGA.

Abstract. Hydroxyapatite-chitosan-collagen (HAp-chit-coll) composites are synthetic biomaterials that function in the process of bone healing. Composites are synthesized by the *ex-situ* method and made into porous material by the *freeze-drying* method. Composites characterized by TGA produce a drastic mass change at a temperature of 230-510°C of 13.9% indicating the decomposition of organic material in the composite and a change in mass at a temperature of 510-900°C of 4.2% indicating the decomposition and crystallization of hydroxyapatite.

Keywords: Composite HAp-chitosan-collagen, *ex-situ*, TGA.

PENDAHULUAN

Biomaterial sintetik di Indonesia merupakan hasil produksi impor yang memiliki harga relatif mahal[1]. Penggunaan biomaterial sintetik di Indonesia terus mengalami peningkatan, contohnya adalah penggunaan *bone graft*. *Bone graft* merupakan biomaterial sintetik yang dapat digunakan dalam bidang kedokteran pada proses penyembuhan tulang yang diakibatkan oleh fraktur (retak atau patah tulang) maupun faktor lainnya. Hal ini disebabkan *bone graft* secara komposisi bahan dan struktur senyawa mirip dengan tulang alami. *Bone graft* yang baik harus bersifat non-karsinogenik, tidak beracun, dan bersifat biokompatibel (dapat diterima oleh tubuh), sehingga dapat disubstitusikan ke dalam jaringan tulang yang mengalami fraktur. *Bone graft* dapat diperoleh dari *natural bone* seperti *allograft*, *autograft*, dan *xenograft*. Dalam penggunaan ketiga material ini terdapat hambatan yakni dapat dilakukan apabila

fraktur yang dialami adalah kecil, sehingga tidak dapat diterapkan pada penderita fraktur tulang yang besar.

Bonegraft dapat dibuat dengan menggabungkan bahan biomaterial lainnya seperti hidroksiapatit (HAp), kitosan, dan kolagen. Hidroksiapatit merupakan unsur anorganik alami yang dapat diperoleh dari tulang atau secara sintetik dengan mereaksikan kalsium dengan fosfat[2]. Hidroksiapatit (HAp) dengan rumus kimia $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ termasuk dalam bahan yang berpotensi untuk rekayasa jaringan karena memiliki sifat bioaktivitas dan biokompatibilitas yang baik. Sifat biokompatibilitas mampu berikatan secara kimiawi dengan jaringan tulang[3]. Hidroksiapatit juga memiliki beberapa sifat lainnya yaitu bioresorbabel, osteokonduktif, bioaktif, dan berpori[4].

Kitosan merupakan biopolimer karbohidrat hasil ekstraksi kitin yang diperoleh dengan menghilangkan gugus asetilnya[5]. Kitosan adalah biopolimer yang berpotensi dalam

teknik penyembuhan jaringan tulang. Kitosan memiliki sifat kompatibel dan mampu didegradasi enzim di dalam tubuh manusia tanpa meninggalkan racun[6]. Kitosan tidak karsinogenik terhadap hewan maupun manusia, bersifat bioaktif[2], serta memiliki efek persembuhan yang cepat bagi jaringan.

Kolagen digunakan karena karakteristik fisikokimianya, yaitu tidak beracun, *biodegradable*, biokompatibel, relatif stabil, sifat antigenitas rendah, afinitas dengan air tinggi, dan mudah dilarutkan di dalam air maupun asam [7]. Kolagen yang akan digunakan pada penelitian ini adalah kolagen dari sisik ikan nila.

Pengembangan komposit hidroksiapatit-kolagen-kitosan bertujuan memperbaiki sifat mekanik dan kekuatan hidroksiapatit [9]. Oleh karena itu, peneliti akan memanfaatkan komposit hidroksiapatit (HAp), kolagen, dan kitosan untuk membentuk biomaterial yang mendekati struktur asli tulang agar dapat digunakan sebagai bahan tulang sintetik dalam aplikasi penyembuhan tulang. Pada penelitian ini, disintesis komposit HAp-kit-kol menggunakan metode *ex-situ*, dengan menggunakan perbandingan massa 7:1:2. Metode tersebut diartikan sebagai pembuatan komposit setelah pembentukkan sampel utama, yakni hidroksiapatit[10]. Pengondisian komposit agar menjadi material berpori menggunakan metode *freeze drying*[11]. Komposit kemudian dikarakterisasi dengan uji TGA (*Thermal Gravimetric Analysis*).

METODE PENELITIAN

Bahan

Bahan yang digunakan adalah HAp tulang sapi, kitosan, kolagen, larutan H_2O_2 , larutan CH_3COOH 2%, larutan H_3PO_4 , larutan $NaOH$, dan aquademineral.

Alat

Alat yang digunakan adalah *furnace*, ayakan 100 mesh, neraca analitik, erlenmeyer, *magnetic stirrer*, *freeze dryer*, indikator universal serta pH meter. Instrumen yang digunakan adalah *Thermal Gravimetric Analyzer* (TGA).

Prosedur Penelitian

Kalsinasi Tulang Sapi

Tulang sapi segar dicuci sampai bersih, lalu direbus berkali-kali hingga lemak tidak muncul. Tulang sapi yang telah direbus kemudian direndam dalam larutan H_2O_2 beberapa jam.

Tulang sapi yang telah bebas lemak dikalsinasi menggunakan *furnace* pada suhu $900^\circ C$ selama 5 jam.

Sintesis Komposit HAp-Kit-Kol

Sebanyak 0,5 g kitosan dilarutkan dalam asam asetat 2%. 1,75 g HAp dilarutkan dalam asam fosfat. Larutan kitosan yang telah terbentuk kemudian ditambahkan ke dalam larutan HAp sambil diaduk menggunakan *magnetic stirrer*. Sebanyak 0,25 g kolagen dilarutkan ke dalam asam asetat 2% lalu ditambahkan ke dalam larutan HAp-kitosan sambil tetap diaduk dengan *magnetic stirrer*. Komposit yang telah terbentuk dinetralkan dan *freeze dry* sampai kering.

HASIL DAN PEMBAHASAN

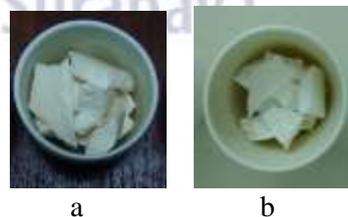
Sintesis Hidroksiapatit

Tulang sapi dibersihkan dari daging, otot, lemak, dan sumsum. Tulang sapi yang sudah bersih, kemudian direbus dengan air mengalir untuk menghilangkan lemak. Tulang sapi yang sudah direbus kemudian dicuci dengan air dan direndam di dalam larutan H_2O_2 10% untuk menghilangkan lemak sisa. Tulang sapi hasil perendaman kemudian dijemur di bawah sinar matahari dan diangin-anginkan hingga kering.



Gambar 1. Tulang sapi bebas lemak

Tulang sapi bebas lemak kemudian dikalsinasi dengan *furnace* pada suhu $900^\circ C$ selama 5 jam. Tulang sapi yang *difurnace* mengalami perubahan massa dan warna karena adanya pelepasan CO_2 dan H_2O dalam tulang. Rendemen tulang sapi setelah dikalsinasi adalah 62,10%.



Gambar 2. (a) Tulang sapi berwarna kuning sebelum kalsinasi, (b) tulang sapi berwarna putih setelah kalsinasi.

Pada suhu $20-200^\circ C$ kandungan air dalam tulang sapi akan menghilang. Pada suhu di bawah $450^\circ C$ seluruh komponen organik akan mengalami proses karbonisasi. Pada suhu $750^\circ C$,

senyawa CaCO_3 dalam tulang sapi terurai menjadi CaO (Haris, 2016). Fase CaO stabil pada suhu 850°C - 1000°C (Sari, 2013). Suhu optimum proses kalsinasi tulang sapi adalah 900°C , pada suhu tersebut proses kalsinasi tidak memberikan perubahan massa yang berarti dan menghasilkan kristalinitas yang tinggi. Kalsinasi pada suhu 900°C menghasilkan kandungan senyawa yang tersisa adalah mineral dari tulang sapi yakni CaO .

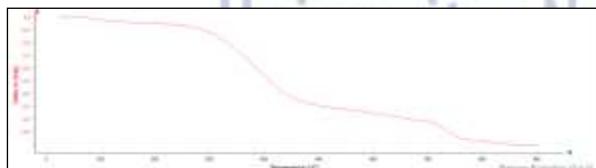
Sintesis Komposit HAp-Kit-Kol

Pada pembuatan larutan kitosan dan kolagen digunakan asam asetat 2% sebagai pelarut. Pada sintesis komposit HAp-kitosan, HAp dilarutkan dalam asam fosfat. Hidroksiapatit yang sudah larut ditambahkan larutan kitosan sambil diaduk dengan *magnetic stirrer*. Pada tahap ini terjadi interaksi antara Ca^{2+} dari HAp dengan gugus NH_2 dari kitosan. Langkah berikutnya adalah penambahan kolagen yang telah dilarutkan pada komposit HAp-kitosan. Komposit yang terbentuk kemudian difreeze dry sampai komposit kering.



Gambar 3. Komposit HAp-kitosan-kolagen.

Komposit yang telah dibuat kemudian diuji degradasi termal dengan menggunakan instrumen TGA. Dalam pengujian, sampel komposit diletakkan dalam *crucible* dan dipanaskan secara bertahap mulai suhu 20°C sampai dengan suhu 900°C . Hasil yang diperoleh adalah grafik penurunan massa akibat pemanasan seperti grafik berikut.

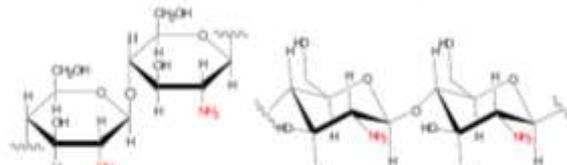


Gambar 4. Grafik TGA Komposit HAp-Kit-Kol

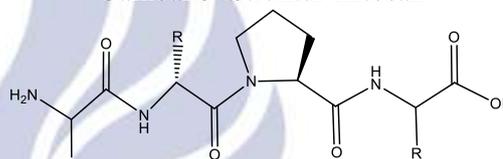
Tabel 1. Hasil Uji TGA pada Komposit HAp:Kit:Kol dengan Variasi 7:1:2

Suhu ($^\circ\text{C}$)	Perubahan massa (%)
<100	-
230-510	13,945
510-900	4,206

Komposit HAp:Kit:Kol terjadi penurunan massa pertama pada suhu $<100^\circ\text{C}$. Perubahan massa tersebut tidak begitu signifikan karena dalam komposit HAp:Kit:Kol tidak mengandung air yang besar karena dalam proses sintesis komposit juga sudah melewati proses *freeze dry*. Penurunan massa kedua pada suhu 230 - 510°C terjadi perubahan massa yang cukup besar, yakni sebesar 13,945%. Perubahan massa pada suhu ini terjadi karena adanya dekomposisi zat organik dalam komposit. Dalam penelitian ini, zat organik yang terkandung adalah kitosan dan kolagen yang memiliki rantai karbon yang panjang.



Gambar 5. Struktur Kitosan



Gambar 6. Struktur Kolagen

Penurunan massa ketiga terjadi pada suhu 510 - 900°C yakni sebesar 4,206 %. Pada penurunan massa ketiga, terjadi dekomposisi hidroksiapatit, sehingga hasil akhir pemanasan komposit pada uji TGA diperoleh CaO yang murni.

SIMPULAN

Karakteristik fisika komposit berupa identifikasi dekomposisi senyawa dari berat susut dan suhu degradasi pada uji degradasi termal komposit hidroksiapatit-kitosan-kolagen menghasilkan perubahan massa pada suhu 230 - 510°C menunjukkan dekomposisi senyawa organik dalam komposit yaitu kitosan dan kolagen, sedangkan perubahan massa pada suhu 510 - 900°C menunjukkan proses dekomposisi hidroksiapatit sehingga diperoleh CaO yang murni.

DAFTAR PUSTAKA

1. Darwis D. 2008. Aplikasi Teknik Isotop dan Radiasi pada Pembuatan Biomaterial untuk Keperluan Klinis. dalam *Kajian Morfologi Proses Persembuhan*

- Kerusakan Segmental pada Tulang Domba yang Diimplan dengan Komposit Hidroksiapatit-Kitosan (HA-K).*
- Nurlaela A. 2009. *Penumbuhan Kristal Apatit dari Cangkang Telur Ayam dan Bebek Pada Kitosan dengan Metode Presipitasi*. Tesis. Bogor: Program Pascasarjana, Institut Pertanian Bogor.
 - Pane MS. 2008. *Penggunaan Hidroksiapatit Sebagai Bahan Dental Implant*. USU Library, USU Official Website.
 - Samsiah R. 2009. *Karakterisasi Biokomposit Apatit-Kitosan dengan XRD, FTIR, SEM, dan Uji Mekanik*. Skripsi. Bogor: Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Pertanian Bogor.
 - Berlianty, Ayu. 2011. *Kajian Morfologi Proses Persembuhan Kerusakan Segmental Pada Tulang Domba yang Diimplan dengan Komposit Hidroksiapatit-Kitosan*. Skripsi. Fakultas Kedokteran Hewan, Institut Pertanian Bogor.
 - Kumar MN, Muzzarelli R.A., Muzzarelli C., Sashiwa H., dan Domb AJ. 2004. Chitosan Chemistry and Pharmaceutical Perspective. *Chem Kev.* 104(12):6017-84.
 - Lee, C.H., Singla, A., Lee, Y. 2001. *Biomedical Application of Collagen*. Department of Pharmaceutics, College of Pharmacy, The University of Missouri-Kansas City.
 - Sari, Wahyuni Richa, Charlena, dan Henny Purwaningsih Suyuti. 2013. *Sintesis dan Pencirian Hidroksiapatit Berbahan Dasar Cangkang Telur Bebek*. Skripsi. Bogor: Departemen Kimia FMIPA IPB.
 - Cahyaningrum, Sari Edi dan Muhamad Ilham Fadila Ramadhan. 2018. Sintesis dan Karakterisasi Hidroksiapatit/Kolagen/Kitosan sebagai Bahan Material *Bonegraft* Menggunakan Metode *Ex-Situ*. *UNESA Journal of Chemistry* Vol. 7, No. 2, 53-57.
 - Cahyaningrum, Sari Edi dan Zeti Lindawati. 2018. Pengaruh Komposisi Hidroksiapatit/Kitosan/Kolagen Terhadap Karakteristik *Bonegraft*. *UNESA Journal of Chemistry* Vol. 7, No. 3, 101-104.
 - Cahyaningrum, Sari Edi dan Muslimatul Khoiriyah. 2018. Sintesis dan Karakterisasi *Bonegraft* dari Komposit Hidroksiapatit/Kolagen/Kitosan (HA/Coll/Chi) dengan Metode *Ex-Situ* sebagai Kandidat Implan Tulang. *UNESA Journal of Chemistry* Vol. 7, No. 1, 25-29.