

## SINTESIS DAN KARAKTERISASI TRICALCIUM FOSFAT UNTUK GRAFT TULANG

Erizal

Pusat Aplikasi Teknologi Isotop dan Radiasi- BATAN  
Jl. Lebak Bulus Raya No. 49, Pasar Jumat, Jakarta Selatan  
Telp.021-7690709; Fax: 021-7691607

### ABSTRAK

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI TRICALCIUM FOSFAT UNTUK GRAFT TULANG.** Dalam kerangka menunjang ketersediaannya bahan pengganti tulang baik allograft maupun xenograft yang kebutuhannya dalam bidang kesehatan khususnya di bidang orthopedik dan gigi yang pada saat ini meningkat, telah dilakukan pembuatan komposit *tricalcium phosphate* (TCP). Sintesis komposit terdiri dari tahapan pembentukan hidroksi apatite (Hap), selanjutnya dilakukan sintering Hap pada suhu yang relatif tinggi ( $\geq 750$  °C). Bahan kimia yang dipakai dalam penelitian berbasis pada senyawa-senyawa kimia yang mengandung unsur Ca dan fosfat. Senyawa-senyawa pembentuk Hap tersebut direaksikan dalam sistem larutan dengan mengontrol suhu, pH dan konsentrasi untuk memperoleh hasil optimal. Parameter yang diamati terdiri dari uji komposisi Ca/P dan uji gugus fungsi menggunakan FTIR dari TCP hasil sintering, serta uji spectrum Resonansi Spin Elektron (RSE). Hasil evaluasi menunjukkan bahwa kandungan Ca/P dalam TCP adalah 2,23 dan pada pengujian spectrum FT-IR diperoleh informasi bahwa sintering pada suhu  $\geq 750$  °C dapat merubah Hap menjadi TCP. Spektra RSE TCP relatif sama bentuknya yang menunjukkan bahwa TCP dapat dibentuk dari Hap.

### PENDAHULUAN

Memperbaiki kerusakan tulang dan patah tulang merupakan masalah kesehatan yang serius dalam setiap pekerjaan klinis. Bahan pengganti tulang yang umumnya digunakan adalah *autograft* (penggantian bagian tubuh dengan bagian tubuh lainnya dalam satu individu), *allograft* (penggantian tulang manusia dengan tulang yang berasal dari manusia lainnya), *xenograft* (penggantian tulang manusia dengan tulang yang berasal dari hewan), *exogenous* (penggantian atau implantasi dengan bahan sintetik disebut biomaterial) dan beragam bahan sintetik lainnya misalnya polimer, bahan logam, komposit dan biokeramik. Namun demikian, setiap bahan tersebut memiliki kekurangan dan kelebihan sebagai bahan untuk memperbaiki tulang, seperti stabilitas kimia, biokompatibilitas, biodegradasi dengan tubuh dalam waktu yang relatif lama.

Dikarenakan keterbatasannya ketersediaannya tulang *allograft* maupun *xenograft*, maka untuk mengatasi masalah ini pada beberapa tahun belakangan ini telah dilakukan usaha penggunaan tulang sintetik (bahan pensubsitusi tulang) misalnya keramik kalsium fosfat yang merupakan basis dari hidroksi apatit (HAp :  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$  dan  $\beta$ -trikalsium fosfat ( $\beta$ -TCP :  $\{\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2\}$ ). Komposisi kimia dari senyawa-senyawa tersebut sangat erat hubungannya dengan kimia tulang dan telah lama diketahui bahwa TCP memiliki biokompatibilitas yang baik terhadap kontak langsung dengan tulang. Oleh karena itu, dalam penelitian akan dilakukan studi pendahuluan pembuatan TCP.

## METODOLOGI

### Bahan

$\text{CaCl}_2$  p.a,  $\text{NH}_4(\text{H}_2\text{PO}_4)$  dan  $\text{NaOH}$  p.a dibeli dari Merck. Serta pereaksi lainnya kualitas p.a.

### Alat

Alat yang digunakan dalam penelitian ini adalah Resonan Spin Elektron (RSE) buatan Jeol tipe RE1X, FT-IR, Neraca AND tipe GR – 200, dan *Heater Magnet Stirrer* buatan Heidolph,

### Metode

#### 1. Penentuan kandungan ca/p

Ditimbang 5,5495 gr  $\text{CaCl}_2$ , 3,9618 gr  $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ , dan dipipet 5,29 ml  $\text{NH}_4\text{OH}$  lalu masing-masing dilarutkan 100 air suling ke dalam erlenmeyer 250 ml, kemudian ketiga larutan tersebut dicampur dalam erlenmeyer 1000 ml setetes demi tetes, diaduk dengan magnet stirrer pada suhu  $90^\circ\text{C}$  selama 4 jam dan pH 6 – 9, selanjutnya didiamkan selama 24 jam. Endapan yang terbentuk disaring dengan kertas saring dan endapan dicuci dengan air panas sampai bebas klorida posfat dengan penambahan larutan  $\text{AgNO}_3$ . Kandungan kalsium ditetapkan dengan cara gravimetri dan ammonium oksalat sebagai pengendap, sedangkan posfat ditetapkan secara spektrofotometer dengan pereaksi ammonium vanadat dan ammonium molibdat sebagai pereaksi, gugus fungsi dianalisis dengan infra red dan radikal bebas diukur dengan resonan spin elektron.

#### 2. Pembuatan serbuk TCP terdiri dari tahapan-tahapan berikut :

- Menyiapkan larutan 0,018 M  $\text{NH}_4(\text{H}_2\text{PO}_4)$
- Menyiapkan larutan 0,008 M  $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$
- Kedalam 100 ml larutan  $\text{NH}_4(\text{H}_2\text{PO}_4)$  dengan konsentrasi 0,008 M dalam beker gelas ukuran 500 mL dimasukkan 100 ml larutan 0,018 M  $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  sedikit demi sedikit sambil diaduk dengan pengaduk magnet. Lalu, setelah semua larutan  $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  direaksikan dengan  $\text{NH}_4(\text{H}_2\text{PO}_4)$ , kemudian ke dalam campuran ditambahkan  $\text{NaOH}$  secara perlahan-lahan untuk mendapatkan endapan gel sambil diaduk dengan pengaduk magnet. Selanjutnya, endapan yang dihasilkan dari hasil reaksi disaring dengan kertas saring Whatman 42, lalu endapan dicuci dengan air suling dan selanjutnya dikeringkan di oven pada suhu  $60^\circ\text{C}$ .
- Kalsinasi dari endapan kering hasil reaksi pada poin c. Serbuk kering selanjutnya dikalsinasi dalam oven pada suhu 750, 900, dan  $1000^\circ\text{C}$ . Produk hasil kalsinasi dikarakterisasi spektra FT-IR nya.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

### Penentuan Kadar Kalsium dan Posfat

Kadar kalsium dan posfat dianalisis untuk menentukan kemurnian hasil sintesis HA. Pada Tabel 1 disajikan data kandungan posfat dan kalsium dari HA hasil sintesis. Kadar posfat yang

diperoleh adalah 17,35 %, menurut perhitungan teoritis berdasarkan rumus molekul HA adalah 18,53% dengan faktor kesalahan 6,36%, sedangkan kadar kalsium 38,74% dan menurut teoritis adalah 39,80 dengan faktor kesalahan 2,66 %. Dengan demikian faktor kesalahan kemungkinan disebabkan terbentuknya garam kalsium posfat.

Tabel 1. Kadar kalsium dan posfat dalam HA hasil sintesis dan perhitungan dari rumus molekul  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$

	Hasil Penetapan (%)	Perhitungan Teoritis (%)
Kalsium	38,74	39,80
Posfat	17,35	18,53
Rasio Ca/p	2.23	2,15

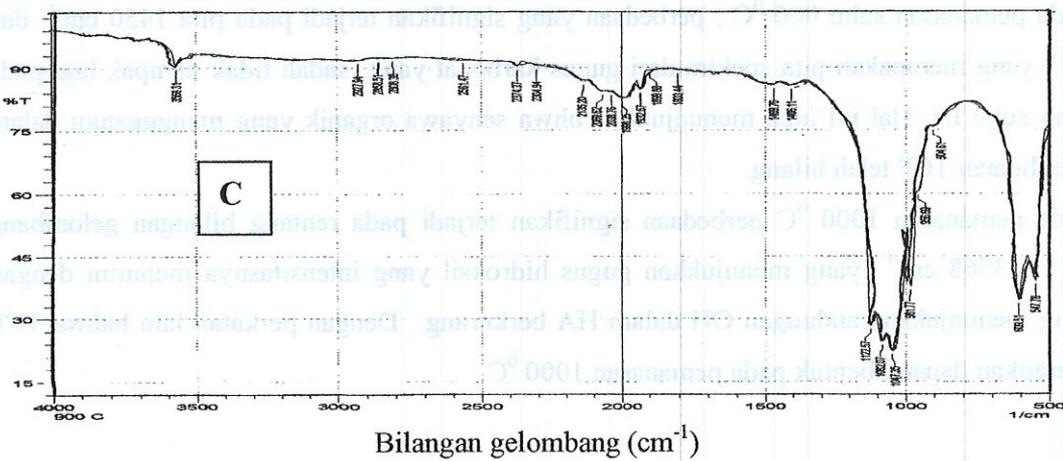
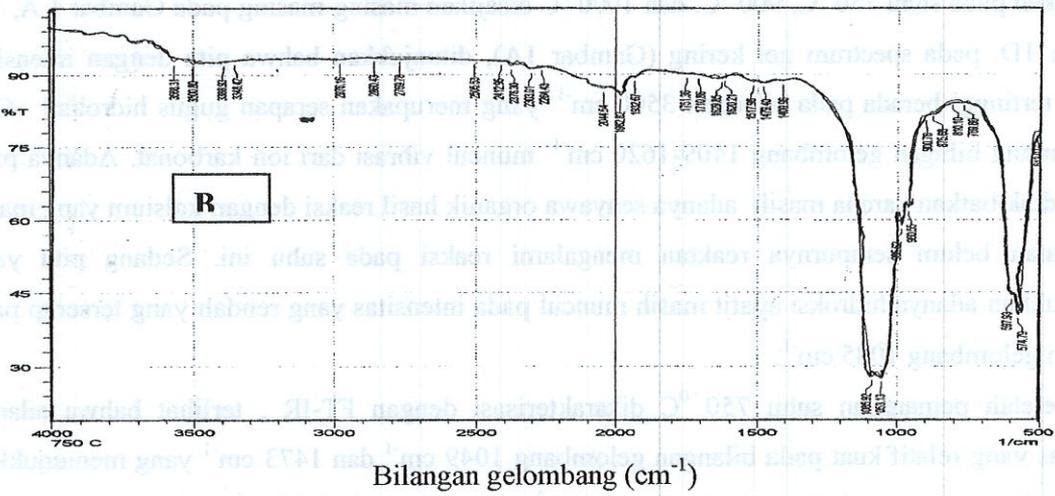
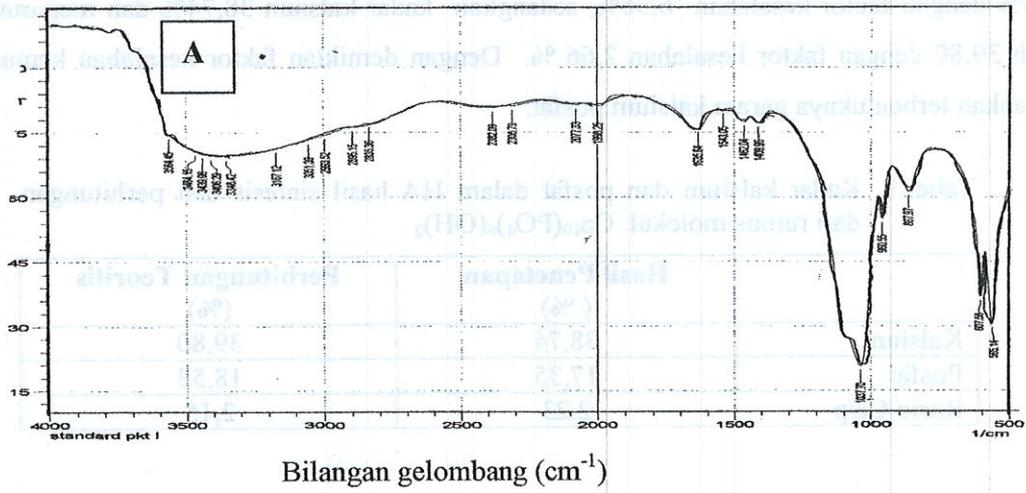
### Hasil pengukuran FT-IR

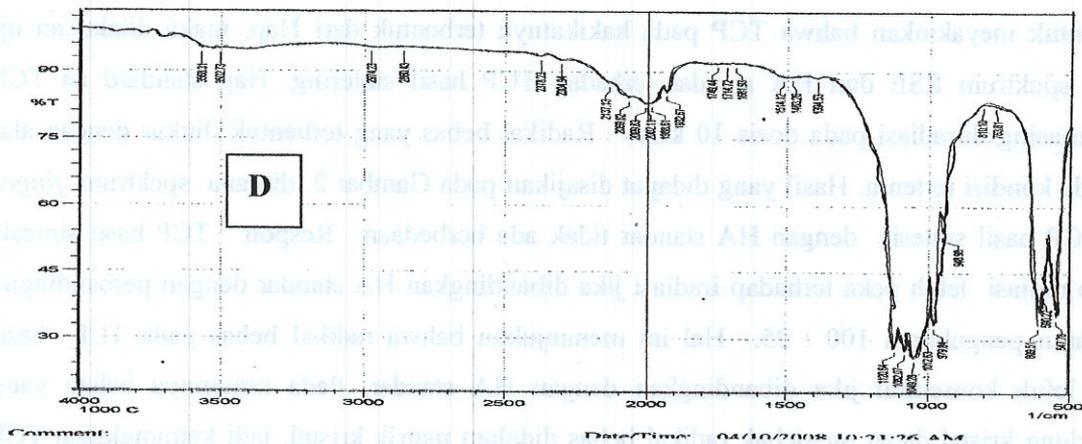
Hasil pengukuran spektra FT-IR dari gel hasil pengeringan pada suhu  $60^\circ\text{C}$ , gel kering yang dipanaskan pada suhu  $750^\circ\text{C}$ ,  $900^\circ\text{C}$ , dan  $1000^\circ\text{C}$  disajikan masing-masing pada Gambar 1 A, 1B, 1C, dan 1D. pada spectrum gel kering (Gambar 1A), ditunjukkan bahwa pita dengan intensitas puncak tertinggi berada pada bilangan  $3500\text{ cm}^{-1}$  yang merupakan serapan gugus hidroksil -OH. Pada rentang bilangan gelombang  $1409\text{--}1620\text{ cm}^{-1}$  muncul vibrasi dari ion karbonat. Adanya pita-pita ini diakibatkan karena masih adanya senyawa organik hasil reaksi dengan kalsium yang masih tinggi atau belum sempurna reaktan mengalami reaksi pada suhu ini. Sedang pita yang menunjukkan adanya hidroksi apatit masih muncul pada intensitas yang rendah yang terserap pada bilangan gelombang  $1085\text{ cm}^{-1}$ .

Setelah pemanasan suhu  $750^\circ\text{C}$  dikarakterisasi dengan FT-IR, terlihat bahwa adanya intensitas yang relatif kuat pada bilangan gelombang  $1049\text{ cm}^{-1}$  dan  $1473\text{ cm}^{-1}$  yang menunjukkan adanya vibrasi serapan dari ion karbonat ( $\text{CO}_3^{2-}$ ) umumnya terjadi pada hidroksi apatit telah berkurang dengan tajam.

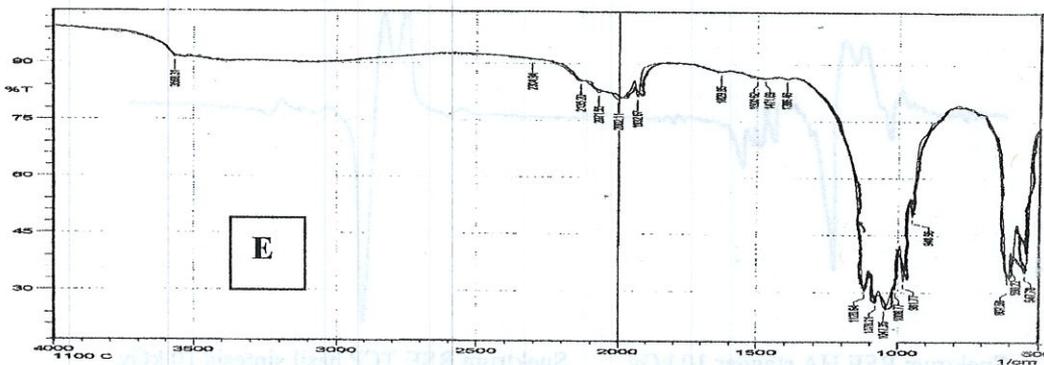
Pada pemanasan suhu  $900^\circ\text{C}$ , perbedaan yang signifikan terjadi pada pita  $1450\text{ cm}^{-1}$  dan  $3440\text{ cm}^{-1}$  yang merupakan pita spektra dari gugus karbonat yang sudah tidak nampak lagi pada pemanasan suhu ini. Hal ini juga menunjukkan bahwa senyawa organik yang mengganggu dalam proses pembuatan TCP telah hilang.

Pada pemanasan  $1000^\circ\text{C}$  perbedaan signifikan terjadi pada rentang bilangan gelombang  $3502\text{ cm}^{-1}$  –  $3568\text{ cm}^{-1}$  yang menunjukkan gugus hidroksil yang intensitasnya menurun dengan tajam yang menunjukkan kandungan OH dalam HA berkurang. Dengan perkataan lain bahwa TCP yang diharapkan dapat dibentuk pada pemanasan  $1000^\circ\text{C}$ .





Bilangan gelombang (cm<sup>-1</sup>)



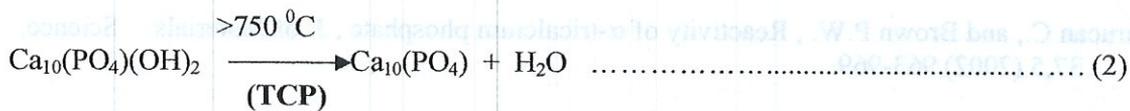
Bilangan gelombang (cm<sup>-1</sup>)

Gambar 1. Spektra FT-IR serbuk yang dipanaskan pada suhu  
A) 60 °C    B) 750 °C    C) 900 °C    D) 1000 °C

Berdasarkan stokhiometri reaksi pembentukan TCP yang dapat dinyatakan dengan persamaan berikut :

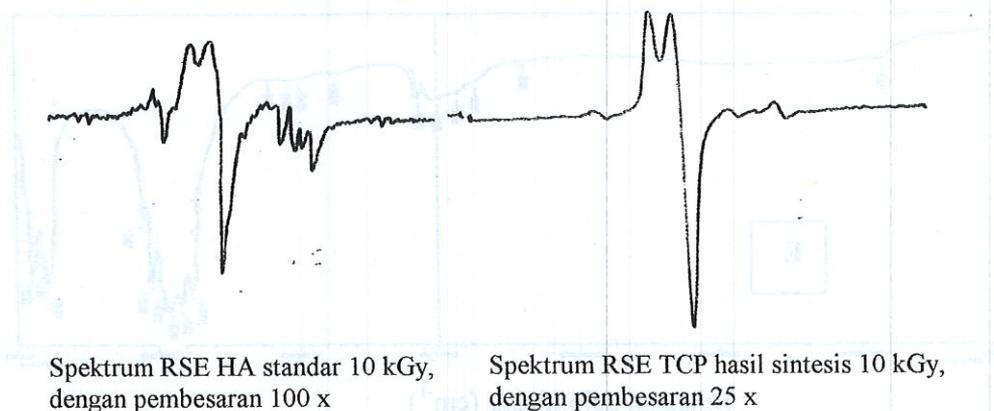


dapatlah diramalkan bahwa pemanasan hingga 1000 °C akan mengakibatkan berkurangnya kandungan hidroksil pada Ca<sub>10</sub>(PO<sub>4</sub>)(OH)<sub>2</sub> membentuk TCP yang reaksinya sbb;



### Spektrum Resonan Spin Elektron (RSE)

Untuk meyakinkan bahwa TCP pada hakikatnya terbentuk dari Hap, maka dilakukan uji banding spektrum RSE dari HA standar terhadap TCP hasil sintering. Hap standar dan TCP masing-masing diiradiasi pada dosis 10 kGy. Radikal bebas yang terbentuk diukur dengan alat RSE pada kondisi tertentu. Hasil yang didapat disajikan pada Gambar 2. dimana spektrum *finger print* TCP hasil sintesis dengan HA standar tidak ada perbedaan. Respon TCP hasil sintesis terhadap radiasi lebih peka terhadap iradiasi jika dibandingkan HA standar dengan perbandingan pembesaran pengukuran 100 : 25. Hal ini menunjukkan bahwa radikal bebas pada TCP hasil sintesis lebih konsentrasi jika dibandingkan dengan HA standar. Pada umumnya bahan yang mengandung kristal dapat menjebak radikal bebas didalam matrik kristal, jadi kemungkinan TCP hasil sintesis lebih mengandung kristal dibandingkan dengan HA standar.



Gambar 2. Spektrum RSE dari TCP hasil sintering dan HA standar.

### KESIMPULAN

Dari hasil penelitian dapatlah disimpulkan yaitu antara lain adalah :

1. TCP dapat disintesis melalui sintering dari Hap pada suhu  $\geq 750^{\circ}\text{C}$ .
2. Kandungan Ca/P pada TCP adalah 2,23.
3. TCP jika diiradiasi dapat menghasilkan radikal bebas yang dapat diukur dengan RSE.

### DAFTAR PUSTAKA

1. Durucan C., and Brown P.W. , Reactivity of  $\alpha$ -tricalcium phosphate , J. of Materials Science, 37,5 (2002) 963-969.
2. Xilin Yin and M.J. Stott, Theoretical insight into bone grafting silicon-stabilized  $\alpha$ -tricalcium phosphate , J.Chem. Phys. 122, 2005.

3. Cuneyt T.A., Korkusuz F., Timucin M., Akkas N., An investigation of the chemical synthesis and high-temperature sintering behaviour of calcium hydroxyapatite and tricalcium phosphate (TCP) bioceramics, *J. of Materials Science* 8, 2, (1997) 91-96.
4. Shibata Y, H. Yamamoto, and Takashi M., Colloidal  $\beta$ -tricalcium phosphate prepared by discharge in a modified body fluid facilities synthesis of collagen composites, *Biomaterials and bioengineering*.
5. Tobias J. B., Robert N.G., Marc B., and Wendelin J.S., Effect of particle size, crystal phase and crystallinity on the reactivity of tricalcium phosphate for bone reconstruction, *J. Mater. Chem* 17, (2007) 4072-4078.
6. Weitao Y., Kangmei K., Anmin J., An injectable cement : Synthesis , physical properties and scaffold for bone repair , *J of postgraduate Medicine*, 53, (2007) 34-38.

3. Chung T.A., Khorram F., Tamrin M., Akbas N., An investigation of the chemical synthesis and high-temperature sintering behavior of calcium hydroxyapatite and tricalcium phosphate (TCP) *Biomaterials*, 18, (1997) 91-96.
4. Shibata Y., H. Yamamoto, and Takashi M., Colloidal  $\beta$ -tricalcium phosphate prepared by discharge is a modified body fluid facilitates synthesis of collagen composite. *Biomaterials and Bioceramics*.
5. Tobias J. H., Robert N.G., Marc B., and Weidman J.S., Effect of particle size, crystal phase and crystallinity on the reactivity of tricalcium phosphate for bone reconstruction. *J. Mater. Chem.* 13, (2003) 4073-4078.
6. Weiss J., Karguer K., Armitage J., An injectable cement: Synthesis, physical properties and scaffold for bone repair. *J. of Postgraduate Medicine*, 53, (2007) 34-38.