

# **Karbonat Hidroksiapatit dari Bahan Alam**

Pengertian, Karakterisasi, dan Aplikasi

Yusril Yusuf  
Almukarrama  
Hestining Ajeng Permatasari  
I Komang Januariyasa  
Muhamad Fajar Muarif  
Rista Mutia Anggraini  
Rosita Wati



GADJAH MADA UNIVERSITY PRESS

## KATA PENGANTAR

---

Puji syukur kami ucapkan kepada Allah Swt. atas karunia dan kesempatan-Nya sehingga buku yang berjudul *Karbonat Hidroksiapatit dari Bahan Alam* ini dapat diselesaikan. Karbonat hidroksiapatit menjadi salah satu material yang mulai dikembangkan dalam aplikasi kehidupan. Oleh karena itu, penyusunan buku ini dilakukan dalam rangka untuk menambah referensi mengenai sintesis dan karakterisasi karbonat hidroksiapatit serta aplikasinya dalam kehidupan sehari-hari, khususnya dalam bidang medis.

Buku ini berisi tentang definisi dan karakteristik karbonat hidroksiapatit, sumber bahan yang dapat digunakan sebagai prekursor sintesis (seperti cangkang kerang mutiara, cangkang kerang abalone, cangkang kerang tiram, cangkang kerang jagoan, cangkang kerang batik, cangkang kerang susu, cangkang keong sawah dan cangkang kepiting bakau), metode yang dapat digunakan (hidrotermal, *microwave*, presipitasi, nanoemulsi, *sol-gel* dan *mechanochemical*), alat karakterisasi, dan parameter sintesis (seperti rasio mol karbonat/pospat, persentase berat karbonat, besar pH, waktu pengadukan, waktu *aging* serta suhu dan waktu *sintering*). Selain itu, buku ini juga menyajikan informasi mengenai salah satu aplikasi dari karbonat hidroksiapatit yakni dalam bentuk *scaffold* tulang.

Penyusunan buku ini diharapkan dapat membantu pembaca dalam menggali informasi lebih mengenai karbonat hidroksiapatit. Selain itu juga, diharapkan dari para pembaca untuk memberikan masukan dan saran yang bersifat membangun dan bermanfaat untuk menyempurnakan buku ini.

Akhir kata penulis mengucapkan terima kasih kepada seluruh pihak yang telah berperan dalam menyelesaikan buku ini.

Penulis



# DAFTAR ISI

---

KATA PENGANTAR.....	v
DAFTAR ISI.....	vii
DAFTAR TABEL.....	ix
DAFTAR GAMBAR.....	x
BAB 1    PENDAHULUAN.....	1
BAB 2    KARBONAT HIDROKSIAPATIT DAN BAHAN ALAM .....	11
2.1 Karbonat Hidroksiapatit .....	11
2.2 Potensi Bahan Alam .....	16
BAB 3    METODE SINTESIS KARBONAT HIDROKSIAPATIT. ....	43
3.1 Metode Hidrotermal.....	43
3.2 Metode <i>Microwave</i> .....	44
3.3 Metode Nanoemulsi .....	47
3.4 Metode Presipitasi .....	48
3.5 Metode <i>Sol-Gel</i> .....	50
3.6 Metode <i>Solid-State</i> .....	52
3.7 Metode <i>Mechanochemical</i> .....	55
BAB 4    KARAKTERISASI KARBONAT HIDROKSIAPATIT ..	59
4.1 <i>X-Ray Diffractometer (XRD)</i> .....	59
4.2 <i>Fourier Transform Infrared (FTIR)</i> .....	62

4.3	<i>Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy (SEM-EDS) dan Mapping</i> .....	63
4.4	<i>Transmission Electron Microscopy (TEM)</i> .....	68
4.5	Uji Tarik .....	71
4.6	Uji Kemampuan Material Dalam Lingkungan Biologis Secara <i>in Vitro</i> .....	74
BAB 5	KARBONAT HIDROKSIAPATIT DARI BAHAN ALAM .....	81
5.1	Preparasi Kalsium Oksida .....	83
5.2	Sintesis Karbonat Hidroksiapatit (CHAp) .....	85
5.3	Karakterisasi Karbonat Hidroksiapatit (CHAp).....	86
BAB 6	PARAMETER SINTESIS .....	91
6.1	Rasio Mol Karbonat/Fosfat .....	92
6.2	Persentase Berat Karbonat .....	95
6.3	Besar pH.....	98
6.4	Waktu Pengadukan.....	101
6.5	Waktu <i>Aging</i> .....	103
6.6	Suhu dan Waktu <i>Sintering</i> .....	107
BAB 7	APLIKASI KARBONAT HIDROKSIAPATIT BERBASIS SCAFFOLD NANOFIBER PVA/CS/CHAP .....	117
7.1	<i>Scaffold</i> Nanofiber sebagai Rekayasa Jaringan Tulang.....	118
7.2	Fabrikasi Scaffold Nanofiber Komposit Organik/Inorganik .....	122
	DAFTAR PUSTAKA.....	135
	GLOSARIUM .....	153
	INDEKS.....	161
	TENTANG PENULIS.....	163

---

## DAFTAR TABEL

---

Tabel 1.1	Jenis biomaterial dan karakteristiknya .....	3
Tabel 1.2	Komposisi unsur-unsur/senyawa-senyawa penyusun fase mineral tulang manusia .....	5
Tabel 2.1	Komponen jaringan keras manusia dewasa .....	13
Tabel 2.2	Rumus kimia berbagai tipe CHAp .....	14
Tabel 3.1	Prekursor kalsium, fosfat, dan karbonat dalam sintesis CHAp.....	48
Tabel 4.1	Bahan-bahan untuk membuat SBF (1x) sebanyak 1 liter.	76
Tabel 5.1	Persentase efisiensi massa masing-masing bahan alam ...	85
Tabel 5.2	Data efisiensi bahan alam untuk CHAp .....	86
Tabel 5.3	Kandungan karbonat dan nilai rasio Ca/P dari CHAp.....	90
Tabel 6.1	Ukuran partikel CHAp variasi persentase berat karbonat	97
Tabel 6.2	Kandungan karbonat dan rasio Ca/P sampel untuk waktu pengadukan 4 jam.....	101
Tabel 6.3	Kalkulasi sifat kristalografi CHAp dengan variasi waktu <i>aging</i> .....	105
Tabel 6.4	Parameter kisi, kristalinitas dan ukuran kristalit CHAp dari cangkang kerang jagoan.....	109
Tabel 6.5	Ukuran butir CHAp dari cangkang kerang jagoan.....	113
Tabel 7.1	Jenis-jenis <i>scaffold</i> berdasarkan jenis material yang digunakan .....	120
Tabel 7.2	Metode fabrikasi nanofiber.....	123
Tabel 7.3	Konsentrasi ion-ion pada plasma darah manusia dan SBF.....	131

# DAFTAR GAMBAR

---

Gambar 1.1	Ilustrasi penerapan biomaterial pada tubuh manusia .	2
Gambar 1.2	Ilustrasi ideal <i>scaffold</i> sebagai BTE .....	9
Gambar 1.3	Contoh <i>scaffold</i> berporos dari biokeramik .....	10
Gambar 2.1	Struktur kristal HAp .....	12
Gambar 2.2	Peluang posisi beberapa ion pengganti pada kisi HAp	13
Gambar 2.3	Struktur kisi CHAp tipe A dan B di sepanjang sumbu <i>a</i>	15
Gambar 2.4	Struktur kisi CHAp tipe A dan B di sepanjang sumbu <i>c</i>	16
Gambar 2.5	Cangkang kerang abalone .....	18
Gambar 2.6	Hasil karakterisasi menggunakan XRD cangkang kerang abalone: (a) sebelum kalsinasi dan (b) setelah kalsinasi .....	19
Gambar 2.7	Hasil karakterisasi menggunakan FTIR cangkang kerang abalone (a) sebelum kalsinasi dan (b) setelah kalsinasi .....	21
Gambar 2.8	Anatomi kerang mutiara .....	22
Gambar 2.9	Pola XRD serbuk cangkang kerang mutiara (a) sebelum kalsinasi; (b) setelah kalsinasi .....	23

Gambar 2.10 Anatomi <i>Crassostrea gigas</i> dengan skala 1 cm yang terdiri dari: 1. Palp labial, 2. Insang, 3. Lobus mantel kanan, 4. Rongga epibransial kanan, 5. Pylorus, 6. Lobus mantel kiri, 7. Rongga epibransial kanan, 8. Jantung aksesori kiri, 9. Fusi mantel posterior, 10. Kantung mantel, 11. Anus, 12. Otot adductor, 13. Rongga pericardial, 14. Bagian promita, 15. Rongga mantel antero-dorsal, dan 16. Fusi mantel anterior ....	24
Gambar 2.11 Cangkang kerang tiram .....	25
Gambar 2.12 Pola (a) XRD dan (b) FTIR serbuk cangkang kerang tiram .....	26
Gambar 2.13 Cangkang kerang jagoan .....	27
Gambar 2.14 Anatomi kerang jagoan .....	28
Gambar 2.15 Pola XRD cangkang kerang jagoan: (a) sebelum kalsinasi dan (b) setelah kalsinasi 1.000 °C selama 4 jam.....	29
Gambar 2.16 Spektra FTIR cangkang kerang jagoan: (a) sebelum kalsinasi dan (b) setelah kalsinasi 1000°C selama 4 jam .....	30
Gambar 2.17 Cangkang kerang batik .....	32
Gambar 2.18 Pola XRD cangkang kerang batik (a) sebelum kalsinasi dan (b) setelah kalsinasi 1.000°C selama 4 jam .....	33
Gambar 2.19 Spektra FTIR cangkang kerang batik: (a) sebelum kalsinasi dan (b) setelah kalsinasi 1.000°C selama 4 jam .....	34
Gambar 2.20 Cangkang kerang susu .....	35
Gambar 2.21 Pola XRD cangkang kerang susu (a) sebelum kalsinasi dan (b) setelah kalsinasi 1.000°C selama 4 jam .....	36
Gambar 2.22 Spektra FTIR cangkang kerang susu (a) sebelum kalsinasi dan (b) setelah kalsinasi 1.000°C selama 4 jam .....	37
Gambar 2.23 (a) Morfologi keong sawah dengan l: lebar cangkang, k: kolumela, sp: seluk pengais, s: sulur, sa: seluk akhir, t: tinggi cangkang, p: peristome, mc: mulut cangkang (b) Penampakan asli cangkang keong sawah .....	39



Gambar 2.24	Pola difraksi serbuk cangkang keong sawah .....	40
Gambar 2.25	Morfologi keping bakau (tampak bawah) .....	42
Gambar 3.1	Skema gelombang elektromagnetik .....	44
Gambar 3.2	Skematis metode <i>microwave</i> untuk <i>nano-hydroxyapatite (nHAp)</i> .....	46
Gambar 3.3	Proses preparasi beberapa cangkang kerang menjadi CaO .....	49
Gambar 3.4	Proses sintesis CHAp setelah tahap preparasi .....	49
Gambar 3.5	Pola-pola XRD dari gel kering (a) dan bubuk hasil dari proses pemanasan pada perbedaan temperatur: 300°C (b), 450°C (c), 600°C (d), dan 750°C (e) .....	51
Gambar 3.6	<i>Fishbone</i> metode <i>solid-state</i> .....	53
Gambar 3.7	Hasil karakterisasi menggunakan sampel dengan waktu <i>milling</i> : a) 2 jam, b) 3 jam, c) 4 jam, dan d) 5 jam .....	54
Gambar 3.8	Proses sintesis menggunakan metode <i>mechanochemical</i> menggunakan prekursor berbentuk serbuk .....	56
Gambar 3.9	Proses sintesis menggunakan metode <i>mechanochemical</i> menggunakan prekursor berbentuk suspensi .....	57
Gambar 4.1	Skema kerja XRD .....	60
Gambar 4.2	Diagram Skematik FTIR .....	63
Gambar 4.3	Skema komponen SEM .....	64
Gambar 4.4	Hasil SEM pada morfologi CHAp, (a) sebelum dipanaskan dan (b) setelah dipanaskan selama 2 jam pada suhu 600°C .....	65
Gambar 4.5	Skematik prinsip SEM-EDS .....	66
Gambar 4.6	Contoh hasil uji SEM-EDS .....	67
Gambar 4.7	Hasil <i>elemental mapping</i> CHAp pada nanofiber (Hijau: unsur Ca dan Kuning: unsur P) .....	68
Gambar 4.8	Skema Instrumentasi TEM .....	69
Gambar 4.9	Skema Prinsip Kerja TEM .....	70
Gambar 4.10	Contoh hasil karakterisasi TEM sampel CHAp .....	70
Gambar 4.11	Ilustrasi (a) prinsip dasar uji tarik, (b) <i>universal testing machine</i> , dan (c) bentuk spesimen untuk uji tarik .....	72
Gambar 4.12	Ilustrasi kurva <i>stress-strain</i> dari material .....	73

Gambar 4.13	Tahapan mineralisasi pada permukaan material. <i>Stage</i> 1) terbentuknya agrerat dari kluster pre-nukleasi dengan ion-ion di larutan, <i>stage</i> 2) agrerat tersebut mendekati permukaan material, <i>stage</i> 3) agrerat terus bertambah menyebabkan densifikasi mineral di permukaan material, <i>stage</i> 4) nukleasi dari partikel amorf pada permukaan material, dan <i>stage</i> 5) kristalisasi pada partikel-partikel amorf yang diarahkan oleh permukaan material. ....	76
Gambar 4.14	Ilustrasi mekanisme serapan protein dan penempelan sel di permukaan material .....	77
Gambar 4.15	Ilustrasi ringkas uji viabilitas sel .....	79
Gambar 5.1	Beberapa bahan alam sebagai bahan dasar sintesis CHAp .....	82
Gambar 5.2	Spektrum XRD cangkang kerang abalone dengan variasi suhu kalsinasi .....	84
Gambar 5.3	Pola XRD CHAp yang disintesis dari berbagai bahan .....	87
Gambar 5.4	Spektrum FTIR CHAp yang berasal dari berbagai bahan .....	88
Gambar 5.5	Morfologi serbuk CHAp pada skala mikrometer yang diambil dengan SEM dari a) kerang abalone, b) kerang tiram, c) kerang mutiara, d) kerang jagoan, e) kerang batik, f) kerang susu, g) cangkang keong sawah. (Skala = 5 $\mu$ m) .....	89
Gambar 5.6	Morfologi partikel CHAp pada skala mikrometer yang diambil dengan TEM dari: a) kerang abalone, b) kerang tiram, c) kerang mutiara, d) kerang batik, e) kerang susu, f) cangkang keong sawah, g) kerang jagoan (Skala = 100 nm) .....	90
Gambar 6.1	(a) Pola difraksi XRD dari karbonat hidroksiapatit untuk semua variasi dan (b) kristalinitas dan ukuran kristalit semua variasi .....	93
Gambar 6.2	(a) Pola difraksi XRD dari karbonat hidroksiapatit untuk semua variasi pada sudut dan (b) Parameter kisi <i>a</i> dan <i>c</i> untuk semua variasi .....	94

Gambar 6.3	Pola XRD sampel CHAp dengan (A) 0 wt.%, (B) 2 wt.%, (C) 5 wt.%, dan (D) 8 wt.% persentase berat karbonat .....	96
Gambar 6.4	Spektrum FTIR sampel CHAp dengan (A) 0 wt.%, (B) 2 wt.%, (C) 5 wt.%, dan (D) 8 wt.% persentase berat karbonat .....	97
Gambar 6.5	Pola XRD sampel CHAp dengan variasi pH pada waktu pengadukan 4 jam .....	99
Gambar 6.6	Spektrum FTIR sampel CHAp dengan variasi pH pada waktu pengadukan 4 jam .....	99
Gambar 6.7	Morfologi CHAp untuk waktu pengadukan 4 jam pada: (a) pH 8; (b) pH 9; dan (c) pH 10 .....	100
Gambar 6.8	Pola XRD CHAp dengan variasi waktu pengadukan pada pH 10 .....	101
Gambar 6.9	Pola FTIR CHAp dengan variasi waktu pengadukan pada pH 10 .....	102
Gambar 6.10	Morfologi CHAp untuk waktu pengadukan: (a) 0 jam; (b) 2 jam 9; dan (c) 4 jam .....	102
Gambar 6.11	Spektrum XRD CHAp dengan variasi waktu <i>aging</i> : (a) <i>aging</i> 0 jam; (b) <i>aging</i> 24 jam; dan (c) <i>aging</i> 48 jam .....	104
Gambar 6.12	Spektrum FTIR CHAp dengan variasi waktu <i>aging</i> ..	106
Gambar 6.13	Hasil karakterisasi TEM CHAp variasi waktu <i>aging</i> .	107
Gambar 6.14	Tahapan proses <i>sintering</i> , (a) tahapan awal dan mulai <i>sintering</i> ; (b) tahapan pertengahan; (c) tahapan akhir <i>sintering</i> .....	108
Gambar 6.15	Pola difraksi CHAp dari cangkang kerang jagoan: (a) KJ-90, (b) KJ-400, (c) KJ-600, dan (d) KJ-800 .....	109
Gambar 6.16	Spektra FTIR CHAp dari cangkang kerang batik tanpa <i>sintering</i> (KB-90) dan dengan <i>sintering</i> pada suhu 400°C (KB-400), 600°C (KB-600), dan 800°C (KB-800) .....	111
Gambar 6.17	Morfologi CHAp dari cangkang kerang susu: (a) KS-90, (b) KS-400, (c) KS-600, dan (d) KS-800 .....	112
Gambar 6.18	Hasil TEM CHAp dari cangkang kerang jagoan: (a) KJ-90, (b) KJ-400, (c) KJ-600, dan (d) KJ-800 .....	113

Gambar 6.19	Grafik (a) kristalinitas dan (b) ukuran kristalit pada CHAp 19 (sampel kontrol), CHAp 20 ( <i>sintering</i> 0.25 jam), CHAp 21 ( <i>sintering</i> 0.5 jam), CHAp 22 ( <i>sintering</i> 1 jam), CHAp 23 ( <i>sintering</i> 2 jam) dan CHAp 24 ( <i>sintering</i> 4 jam) .....	114
Gambar 7.1	Struktur tulang dari skala makro sampai nano .....	121
Gambar 7.2	Ilustrasi struktur <i>scaffold</i> nanofiber komposit antara material organik (polimer) dan inorganik (biokeramik) .....	122
Gambar 7.3	Ilustrasi (a) <i>set-up</i> elektrospinning dan (b) proses pemberian muatan pada larutan dalam elektrospinning .....	124
Gambar 7.4	Ilustrasi berbagai macam metode mengomposit nanopartikel ke dalam larutan polimer ketika proses elektrospinning .....	125
Gambar 7.5	Ilustrasi eksperimen nanofiber PVA/CS/CHAp .....	126
Gambar 7.6	Fotograf <i>scaffold</i> nanofiber PVA/CS/CHAp .....	126
Gambar 7.7	Morfologi <i>scaffold</i> nanofiber PVA/CS/CHAp pada skala submikrometer.....	127
Gambar 7.8	(A) Spektra FTIR dari <i>scaffold</i> PVA/CS/CHAp (a) 0, (b) 5, (c) 10, (d) 15, dan (e) 20 wt.%. Pola spektra yang menyoroti spektra pada panjang gelombang (B) 1200 – 900 $\text{cm}^{-1}$ dan (C) 4000 – 2500 $\text{cm}^{-1}$ .....	129
Gambar 7.9	Pola difraksi x-ray dari semua sampel <i>scaffold</i> PVA/CS/CHAp .....	130
Gambar 7.10	Grafik batang yang menggambarkan korelasi konsentrasi CHAp di dalam <i>scaffold</i> dengan (a) <i>ultimate strength</i> , (b) Modulus Young, (c) <i>elongation of break</i> , dan (d) kurva <i>stress-strain</i> dari <i>scaffold</i> PVA/CS/CHAp .....	131
Gambar 7.11	Ilustrasi nanopartikel dan polimer dan interaksinya dalam bentuk nanofiber ketika berikan gaya eksternal, dengan situasi (a) nanopartikel memperkuat sifat mekanis nanofiber dan (b) melemahkan sifat mekanis dari nanofiber .....	131

Gambar 7.12 Morfologi dari *scaffold* (a) PVA/CS/CHAp 0 wt.%, (b) PVA/CS/CHAp 15 wt.%, dan (c) Pola EDX dari salah satu deposit apatit di permukaan PVA/CS/CHAp 15 wt.% ..... 132

Gambar 7.13 Ilustrasi mekanisme biomineralisasi di permukaan apatit. Keterangan: HA: hidroksiapatit, ACP: *amorphous calcium phosphate*, SBF: *simulated body fluid* ..... 133

Gambar 7.14 Morfologi sel *osteoblast* di permukaan *scaffold* PVA/CS/CHAp 15 wt.% pada pembesaran (a) 100×, (b) 300×, dan (c) 5000× ..... 134