

## PENGARUH ATMOSFER DAN SUHU *SINTERING* TERHADAP KOMPOSISI PELET HIDROKSIAPATIT YANG DIBUAT DARI SINTESIS KIMIA DENGAN MEDIA AIR DAN *SYNTETHIC BODY FLUID (SBF)*

Arifianto<sup>1</sup>, Siti Nikmatin<sup>1</sup> dan Ratih Langenati<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Departemen Fisika, FMIPA - IPB

Kampus Darmaga, Bogor

<sup>2</sup>Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir (PTBBN) - BATAN

Kawasan Puspiptek, Serpong 13514, Tangerang

### ABSTRAK

**PENGARUH ATMOSFER DAN SUHU *SINTERING* TERHADAP KOMPOSISI PELET HIDROKSIAPATIT YANG DIBUAT DARI SINTESA KIMIA DENGAN MEDIA AIR DAN *SYNTETHIC BODY FLUID (SBF)*.** Penggunaan hidroksiapatit (HAp) sebagai bahan implantasi tulang sintetis telah banyak digunakan. Salah satu penerapannya adalah sebagai bahan pelapis logam yang akan diimplantasikan ke dalam tubuh sebagai pengganti tulang. Masalah yang timbul pada saat pelapisan adalah pada suhu yang tinggi, HAp dapat terdekomposisi menjadi  $\beta$ -TCP,  $\alpha$ -TCP, CaO ataupun senyawa lain yang tidak diinginkan. Pada penelitian ini digunakan variasi jenis pelarut pada saat pembuatan HAp yakni pelarut air dan pelarut *SBF (Syntethic Body Fluid)*. Pelarut *SBF* menyumbangkan gugus karbonat dan ion-ion lain pada HAp yang menyebabkannya stabil. *Sintering* dilakukan untuk mendapatkan HAp dengan densitas tinggi yang stabil. Variasi suhu *sintering* yang digunakan adalah 900 °C, 1000 °C, 1100 °C dan 1150 °C. Variasi atmosfer yang digunakan adalah gas Ar dan gas CO<sub>2</sub>. Dari hasil karakterisasi dengan *XRD (X-Ray Diffraction)* diperoleh hasil bahwa secara umum HAp yang disinter dengan gas Ar maupun CO<sub>2</sub> tidak mengalami dekomposisi sampai suhu 1150 °C. Pengamatan terhadap foto *SEM (Scanning Electron Microscope)* HAp menunjukkan perbedaan bentuk morfologi HAp dengan pelarut air memiliki bentuk butir yang bulat dan berdempetan satu sama lain sedangkan morfologi HAp dengan pelarut *SBF* menunjukkan bentuk seperti jaring yang lebar. Pengukuran volume dan massa tiap sampel menunjukkan perubahan densitas, yakni semakin tinggi suhu *sinter* maka densitas pelet HAp semakin besar.

**Kata kunci :** Hidroksiapatit, *sintering*, atmosfer, dekomposisi

### ABSTRACT

**TEMPERATURE AND ATMOSPHERE SINTERING INFLUENCE TO PELETTE HYDROXYAPATITE COMPOSITION WHICH IS MADE BY CHEMICAL SINTESA WITH MEDIA WATER AND SYNTETHIC BODY FLUID (SBF).** Hydroxyapatite (HAp) as syntethic material for bone implantation had wide application. One of the most important use of it is to layering metal wich then implant to body as bone substitute. A problem arising out at layering process is when heating at high temperature, HAp will decompose to  $\beta$ -TCP,  $\alpha$ -TCP, CaO or other unwanted compounds. At this research used variation type of solution at the time of making of HAp namely water solution and SBF solution. SBF solution contribute carbonate bunch and other ions to HAp causing it stabilize. Sintering done to get stable, high density of HAp. The sintering temperature variation that use in this experiment is 900 °C, 1000 °C, 1100 °C and 1150 °C. The variation of atmosphere that use in this experiment is argon and carbondioxyde. From result characterisation of XRD obtained that in general HAp which sintered with argon gas and also carbondioxyde gas did not decompose until temperature 1150 °C. Observation of SEM picture that mophology of HAP is like sphere for HAP with water solution and with SBF solution more like net.

**Key words :** Hydroxyapatite, sintering, atmosphere, decompose

### PENDAHULUAN

Memperbaiki kerusakan tulang dan patah tulang merupakan masalah kesehatan yang serius dalam setiap pekerjaan klinik. Material pengganti tulang yang umum digunakan adalah *autograf* (penggantian satu bagian tubuh dengan bagian tubuh lainnya dalam satu

individu), *allograf* (penggantian tulang manusia dengan tulang yang berasal dari manusia lain), *xenograf* (penggantian tulang manusia dengan tulang yang berasal dari hewan), *exogenus* (penggantian atau implantasi dengan bahan sintetis disebut dengan biomaterial)

dan berbagai macam material sintetis lainnya seperti polimer, material logam, komposit dan biokeramik. Namun, setiap material tersebut memiliki kekurangan dan kelebihan sebagai material untuk memperbaiki tulang, seperti stabilitas kimia, biokompatibilitas, biodegradasi dengan tubuh dalam waktu yang lama [1].

Saat ini, material pensubstitusi tulang yang terkemuka adalah keramik kalsium fosfat yang merupakan basis dari hidroksiapatit (HAp;  $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ ) dan  $\beta$ -tricalcium phosphate ( $\beta$ -TCP;  $\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2$ ). Komposisi kimia dari senyawa-senyawa tersebut memiliki hubungan dengan mineral tulang (*calcium-deficient carbonated hydroxyapatite*). HAp memiliki biokompatibilitas yang baik terhadap kontak langsung dengan tulang [2,3]. Perbedaan utama antara hidroksiapatit yang telah disintering dan mineral tulang adalah derajat kristalinitas yang tinggi dan besar pori atau kekosongan yang lebih sedikit karena terjadi proses pemadatan. Hasilnya menyebabkan laju biodegradasi yang rendah dibandingkan dengan mineral tulang. Keramik  $\beta$ -TCP memiliki laju biodegradasi yang lebih tinggi dan memiliki komposisi kimia yang berbeda dengan mineral tulang [1].

Kalsium fosfat hidroksiapatit biasanya digunakan sebagai biokeramik dalam bentuk serbuk atau bentuk kompak yang telah disintering. Sejumlah penelitian telah dilakukan untuk membentuk pemadatan HAp. Tetapi hanya sedikit pengetahuan tentang mekanisme sintering dari keramik ini sehingga perilakunya belum dapat dipahami. Pemahaman tentang sintering sangat penting karena memungkinkan untuk identifikasi dari parameter yang berpengaruh sehingga dapat mengendalikan pertumbuhan butir dan mendesain struktur mikro dari keramik [4].

Telah banyak publikasi perilaku HAp pada suhu tinggi mengacu pada potensinya untuk diaplikasikan dalam rekonstruksi tulang. Biasanya HAp dapat digunakan dalam bentuk serbuk yang halus dan permukaannya secara aktif berinteraksi dengan atmosfer disekelilingnya pada suhu tertentu. Perlakuan suhu dan atmosfer merupakan parameter yang penting dan bertanggung jawab terhadap proses densifikasi dari serbuk hidroksiapatit [5].

Aplikasi HAp di bidang medis telah banyak digunakan diantaranya sebagai tulang buatan, semen tulang, sendi buatan, saluran darah buatan dan sistem pengantar obat (*drug delivery system*) [6]. Beberapa penggunaannya memerlukan pemanasan pada suhu yang tinggi, misalnya penggunaan HAp untuk melapisi logam alloy (dengan metode *spray plasma*) yang digunakan untuk implantasi tulang buatan. Penggunaan HAp sebagai lapisan logam alloy memberikan kontak yang baik terhadap jaringan tubuh sekitarnya [5].

Adanya karbonat dalam HAp (disebut juga *carbonated hydroxyapatite* CHA) akan meningkatkan biokompatibel dan bioaktif. Seperti yang telah disebutkan

sebelumnya bahwa  $\beta$ -TCP memiliki sifat biodegradasi yang tinggi dan mudah larut, konsekuensinya adalah menurunkan kekuatan Hap [7,8].

Untuk mendapatkan HAp dengan densitas tinggi yang stabil, perlu dilakukan sintering sampai suhu tertentu dan dijaga agar tidak terjadi dekomposisi HAp menjadi  $\beta$ -TCP atau senyawa lainnya. Jenis atmosfer dan suhu saat sintering merupakan faktor-faktor yang dapat mempengaruhi dekomposisi, karena secara aktif permukaan HAp dapat berinteraksi dengan atmosfer disekitarnya pada suhu tertentu [4].

Dalam penelitian ini ingin diketahui pengaruh atmosfer argon dan  $\text{CO}_2$  dengan variasi suhu sintering 900 °C, 1000 °C, 1100 °C, 1150 °C terhadap kestabilan HAp. Juga dibandingkan antara HAp yang dibuat dengan pelarut air dan dengan pelarut SBF (*Synthetic Body Fluid*). Identifikasi dan karakterisasi dengan menggunakan alat XRD (*X-Ray Diffraction*) dan SEM (*Scanning Electron Microscope*).

Tujuan dari dilakukannya penelitian ini adalah membandingkan HAp yang dibuat dengan media air dengan HAp yang dibuat dengan media SBF setelah sintering, mengetahui pengaruh suhu sintering terhadap kestabilan HAp dan Mengetahui pengaruh atmosfer gas argon dan  $\text{CO}_2$  pada proses sintering terhadap kestabilan HAp.

## METODE PERCOBAAN

Penelitian ini dilakukan dengan beberapa tahap yang diuraikan sebagai berikut : HAp (Bahan dasar yang digunakan adalah serbuk HAp yang telah dibuat dengan metode presipitasi pada suhu 40 °C dengan dua jenis pelarut yakni pelarut air dan pelarut SBF) yang telah disiapkan digerus dengan menggunakan *ball mill* pada 40 rpm selama  $\pm 10$  menit. Kemudian dilakukan pengayakkan bertingkat, dimulai dari ayakan kasar (ukuran pori 250  $\mu\text{m}$ , *mesh no.60*), kemudian ayakan sedang (ukuran pori 180  $\mu\text{m}$ , *mesh no.80*) dan yang terakhir ayakan halus dengan ukuran pori 90  $\mu\text{m}$ , *mesh no.170*. Karakterisasi dengan XRD, bertujuan untuk mengetahui fasa awal pada sampel. Kemudian sampel dipadatkan (dikompakkan) menjadi pelet. Untuk membuat 1 pelet ditimbang sampel sebanyak 1,7 gram, kemudian dimasukkan ke dalam cetakan logam dan ditekan dengan tekanan 50 psi sampai dengan 150 psi. Setelah itu sampel pelet diukur dimensinya yaitu dimensi panjang dan tebal dengan menggunakan jangka sorong dan ditimbang dengan neraca analitik. Setelah itu HAp yang telah berbentuk pelet disintering dengan menggunakan oven pada suhu 900 °C, 1000 °C, 1100 °C dan 1150 °C, dengan menggunakan dua jenis gas yakni gas karbon dioksida dan argon sebagai atmosfer sintering. Pemanasannya sekitar 3 °C/menit sampai dengan 5 °C/menit sampai suhu yang diinginkan dan ditahan selama satu jam dan didinginkan secara alami (didiamkan sampai mencapai suhu ruang). Karakterisasi dengan menggunakan XRD

bertujuan untuk mengetahui fasa-fasa yang terbentuk dalam sampel. Parameter yang digunakan adalah kecepatan putar detektor 2°/menit, cacahan kontinu dengan selang 0,054° per cacahan, sudut 2 $\theta$  yang diambil dari 10° sampai 70°. Sampel HAp sebelum *sinter* adalah dalam bentuk serbuk sehingga mudah dimasukkan ke dalam *holder*, dimampatkan dengan penggaris dimana bagian belakang *holder* telah direkatkan dengan selotip agar serbuk tidak tumpah. Sedangkan sampel setelah *sinter* adalah dalam bentuk pelet yang diameternya bervariasi antara 1,5 cm sampai 2,4 cm. Variasi diameter terjadi karena variasi ukuran cetakan (*dies*), sebab selama pengompakkan beberapa *dies* telah rusak sehingga diganti dengan *dies* yang ukurannya berbeda, sebab lain dari variasi diameter juga terjadi karena variasi perubahan volume setelah *sintering*.

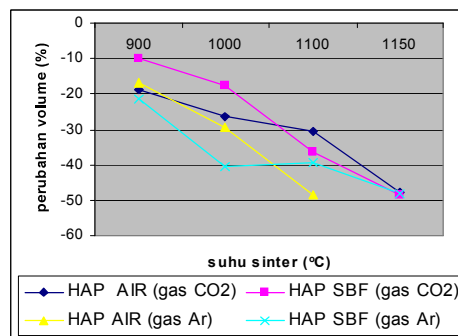
Ukuran lubang *holder* sekitar 1,8 cm x 2 cm, untuk sampel yang memiliki ukuran lebih kecil dari itu dapat langsung dimasukkan ke dalam *holder* dan direkatkan dengan selotip, tetapi untuk sampel yang memiliki ukuran yang lebih besar harus dipotong dahulu secara hati-hati agar pelet tidak pecah, sehingga dapat masuk ke dalam *holder* dan direkatkan dengan selotip. SEM, bertujuan untuk membandingkan morfologi strukturmikro untuk setiap sampel. Preparasi sampel HAp dengan memberi lapisan tipis emas agar sampel bersifat konduktif. Teknik pelapisan yang digunakan adalah dengan metode *sputtering*. Alat *sputtering* diset pada arus 40 mA dalam waktu 40 detik, lapisan yang terbentuk sekitar 200  $\mu\text{m}$  sampai 300  $\mu\text{m}$ . Sebelum dilapisi sampel dipotong kecil hingga dalam satu sampel *holder* dapat terisi oleh satu jenis sampel, kemudian direkatkan dengan perekat aluminium dan dilakukan *sputtering*. Analisis data yang diperoleh meliputi membandingkan data XRD dengan data base JCPDS untuk menentukan perubahan fasa yang terjadi pada sampel, dari gambar SEM dibandingkan secara kualitatif ukuran butir untuk setiap sampel. Pengambilan kesimpulan tentang pengaruh atmosfer *sintering* gas CO<sub>2</sub> dan Ar, serta pengaruh suhu *sintering* terhadap dekomposisi HAp dan perubahan densitas HAp.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

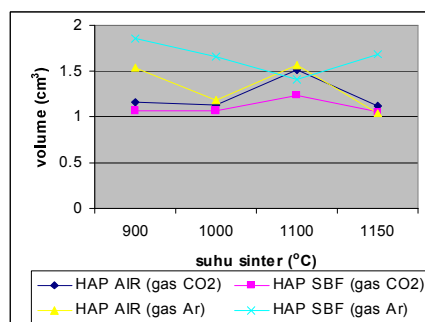
### Pengaruh Suhu Sinter Terhadap Perubahan Densitas

Gambar 1 menunjukkan reduksi volume pelet HAp setelah *sintering* dari suhu 900 °C hingga 1150 °C. Proses reduksi volume ini terjadi karena tingginya suhu sehingga terjadi pembentukan leher antar batas butir dan jarak antar butir menjadi mengecil. Terlihat bahwa besarnya perubahan volume tergantung dari volume awal, yakni semakin besar volume awal maka semakin besar pula perubahan volume (reduksi volume), sebaliknya secara umum semakin kecil volume awal maka semakin kecil

perubahan volume. Hal ini dikaitkan dengan densitas pelet mentah (sebelum *sintering*) dari tiap pelet HAp. Terlihat bahwa secara umum sampel yang memiliki volume yang besar memiliki densitas yang rendah, perbedaan volume ini cukup bervariasi karena pada proses pengompakkan terjadi perbedaan tekanan kompaksi (Gambar 2).



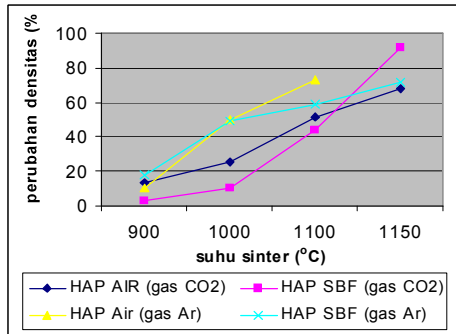
Gambar 1. Perubahan volume HAp setelah *sintering* dari suhu 900 °C sampai dengan 1150 °C.



Gambar 2. Volume HAp sebelum *sintering* pada suhu 900 °C sampai dengan 1150 °C.

Perubahan densitas yang terjadi tergantung dari suhu *sinter*, lama *sintering* dan densitas pelet mentah [10]. Dalam penelitian ini variasi suhu dilakukan, variasi tekanan tidak dilakukan (namun densitas pelet mentah sedikit bervariasi karena tekanan yang diberikan kurang seragam sehingga pengaruhnya dapat dilihat dari perubahan densitas) dan waktu *sinter* untuk setiap sampel dilakukan sama yaitu selama 1 jam. Sehingga variabel yang diperhatikan dalam penelitian ini adalah variasi suhu dan densitas pelet mentah yang mempengaruhi perubahan densitas setelah *sintering*.

Jika dibandingkan untuk setiap variasi suhu *sinter*, maka dapat dilihat pada Gambar 3 bahwa semakin tinggi suhu *sinter* semakin tinggi pula perubahan densitas yang terjadi. Tingginya suhu akan menurunkan energi bebas permukaan antar butir sehingga terjadi difusi atau pertukaran materi antar butir. Semakin tinggi suhu akan semakin menurunkan energi bebas tersebut sehingga akan menyebabkan semakin besarnya proses difusi. Difusi ini akan menyebabkan

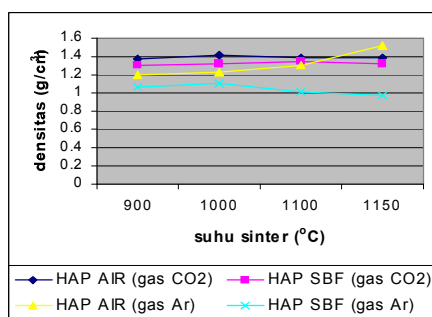


Gambar 3. Perubahan densitas HAP setelah sintering dari suhu 900 °C sampai dengan 1150 °C.

penggabungan butir-butir yang menyebabkan volume tereduksi sehingga menaikkan densitas.

### Pengaruh Densitas Pelet Mentah Terhadap Perubahan Densitas

Perbedaan perubahan densitas untuk setiap sampel dipengaruhi oleh densitas pelet mentah (terkait dengan proses kompaksi pelet mentah). Secara umum semakin tinggi densitas pelet mentah maka perubahan densitasnya akan semakin kecil, sebaliknya densitas pelet mentah yang kecil akan menyebabkan perubahan densitas yang lebih besar (lihat Gambar 3 dan Gambar 4). Hal tersebut terjadi karena untuk pelet mentah dengan densitas yang besar memiliki pori atau ruang kosong antar butir yang kecil, juga memiliki tegangan sisa (*residual stres*) sehingga menghambat proses *sintering* dimana energi bebas permukaan akan meningkat akibat tegangan sisa ini, hasilnya menghambat proses difusi antar butir. Pada proses kompaksi dengan tekanan kecil menghasilkan pelet mentah dengan densitas yang kecil (juga volume yang besar), tidak meninggalkan tegangan sisa dan butir-butir cukup bersinggungan sehingga memungkinkan terjadi perubahan permukaan spesifik dari batas antar butir dan terjadi pertumbuhan leher. Hal ini dapat dilihat dari sampel dengan suhu *sinter* 1000 °C dan 1100 °C baik HAP dengan pelarut air maupun HAP dengan pelarut SBF yang *disinter* dengan gas CO<sub>2</sub> mengalami perubahan densitas yang lebih kecil dibandingkan dengan sampel yang

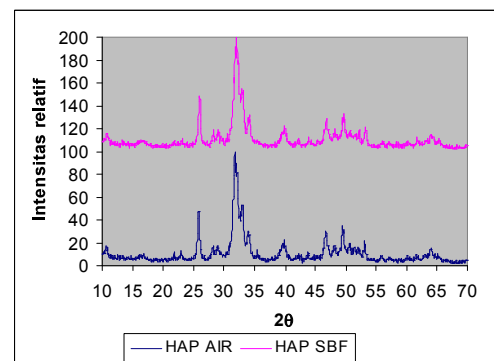


Gambar 4. Densitas pelet mentah HAP pada suhu 900 °C sampai dengan 1150 °C.

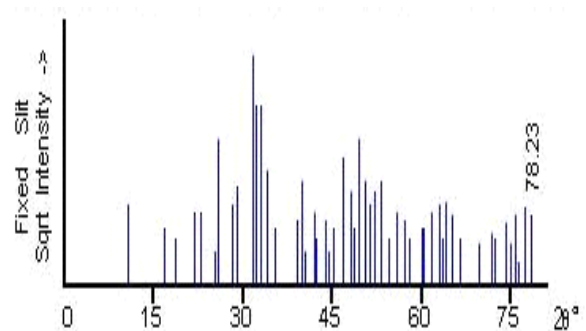
*disinter* dengan gas Ar karena memang densitas pelet mentah dari HAP dengan pelarut air maupun HAP dengan pelarut SBF yang *disinter* dengan gas CO<sub>2</sub> lebih besar dibandingkan dengan HAP dengan pelarut air maupun HAP dengan pelarut SBF yang *disinter* dengan gas Ar.

### Identifikasi Fasa Awal Serbuk HAP

Untuk mengetahui fasa yang terbentuk dalam sampel serbuk HAP pelarut air dan HAP pelarut SBF sebelum sintering, dilakukan karakterisasi dengan alat *XRD* (Gambar 5). Dari gambar dapat dilihat bahwa empat puncak tertinggi yang berada pada pola *XRD* tersebut berada pada posisi  $2\theta$  yakni 25,8°, 31,7°, 32,1°, dan 32,9°. Posisi jika dibandingkan dengan data *JCPDS* No. 090432 maka ternyata puncak-puncak tersebut adalah milik HAP dengan arah bidang (*hkl*) : 002, 211, 112, 300 dan puncak-puncak yang lain pada sudut *Bragg* lebih besar dari 37° pada pola *XRD* tersebut sesuai dengan data *JCPDS* untuk HAP. Untuk puncak-puncak dengan intensitas sangat kecil tidak diambil karena dianggap sebagai *background* atau *noise*. Jadi sampel sebelum sintering dapat dikatakan tidak memiliki fasa lain selain fasa HAP.



Gambar 5. Pola *XRD* HAP pelarut air dan HAP pelarut SBF sebelum sintering.



Gambar 6. Data *JCPDS* Hap

Dari Gambar 5 dapat dijelaskan bahwa puncak-puncak yang terbentuk lebar dan puncak-puncak yang berdekatan saling berhimpit dan hampr tak bisa dibedakan. Lebar nya puncak yang terbentuk disebabkan

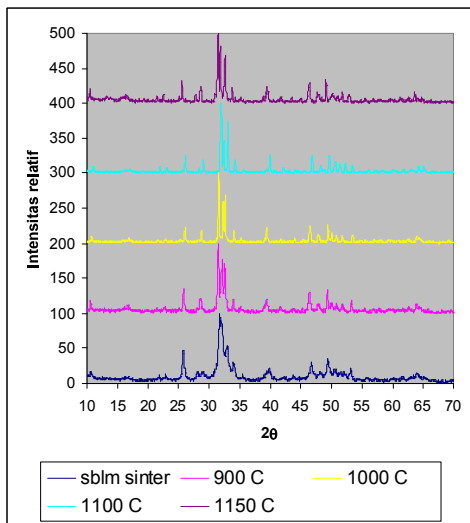
karena fasa amorf pada bahan tersebut masih cukup banyak sehingga membuat pola XRD kristal dan pola XRD amorf bergabung menyebabkan puncak kristal melebar.

### Pengaruh Parameter *Sinter* dan Jenis Pelarut HAp

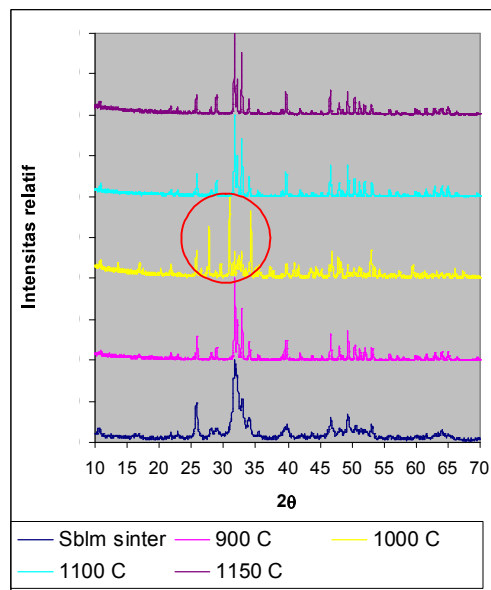
Telah dibandingkan Gambar 7 sampai dengan Gambar 10 antara sampel HAp dengan pelarut air dan SBF sebelum dan setelah *sintering* dengan gas CO<sub>2</sub> dan Ar dengan suhu *sinter* bervariasi. Hasil perbandingan menunjukkan bahwa sampel yang belum *disinter* memiliki

puncak yang lebar, sedangkan sampel yang telah *disinter* memiliki puncak yang lebih ramping. Terlihat pada pola XRD tersebut bahwa semakin tinggi suhu *sinter* dari 900 °C hingga 1150 °C lebar puncak semakin mengecil, artinya fasa amorf semakin berkurang dan fasa kristal semakin banyak dengan meningkatnya suhu *sinter*. Dengan kata lain semakin tinggi suhu *sinter* semakin besar pula derajat kristalinitas bahan.

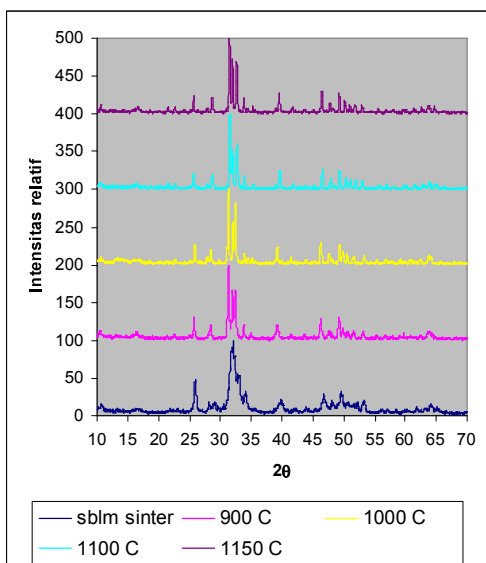
Pada saat HAp dipanaskan diatas suhu 1000°C maka HAp akan terdekomposisi menjadi β-TCP. Puncak pola XRD sampel yang telah *disinter* dibandingkan dengan data JCPDS untuk HAp No.090432, untuk β-TCP data No.090169, dan untuk α-TCP data No.290359.



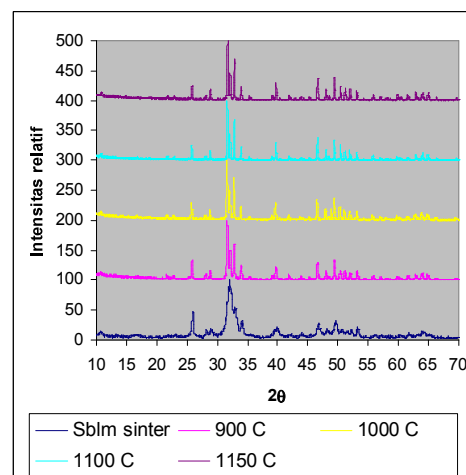
Gambar 7. Perbandingan pola XRD HAp pelarut air sebelum dan setelah *sintering* dengan gas CO<sub>2</sub> dengan variasi suhu 900 °C, 1000 °C, 1100 °C dan 1150 °C



Gambar 9. Perbandingan pola XRD HAp pelarut air sebelum dan setelah *sintering* dengan gas Ar dengan variasi suhu 900 °C, 1000 OC, 1100 °C dan 1150 °C.



Gambar 8. Perbandingan pola XRD HAp pelarut SBF sebelum dan setelah *sintering* dengan gas CO<sub>2</sub> dengan variasi suhu 900 °C, 1000 °C, 1100 °C dan 1150 °C



Gambar 10. Perbandingan pola XRD HAp pelarut SBF sebelum dan setelah *sintering* dengan gas Ar dengan variasi suhu 900 °C, 1000 °C, 1100 °C dan 1150 °C.



Berdasarkan data tersebut puncak-puncak tertinggi yang dimiliki oleh  $\beta$ -TCP adalah pada posisi sudut  $2\theta$ :  $27,769^\circ$ , dan  $34,341^\circ$  dengan arah bidang 214 dan 220. Sedangkan untuk  $\alpha$ -TCP memiliki puncak-puncak tertinggi pada sudut  $2\theta$ :  $22,765^\circ$ ,  $22,890^\circ$ ,  $30,709^\circ$  dan  $34,209^\circ$  dengan arah bidang  $\bar{1}62$ , 132, 034 dan 290. Jika dibandingkan dengan pola XRD yang telah diperoleh puncak-puncak ini tidak ditemukan. Puncak-puncak yang diambil sebagai pembanding merupakan puncak-puncak tertinggi yang mungkin dimiliki oleh  $\beta$ -TCP dan  $\alpha$ -TCP karena biasanya fasa-fasa tersebut muncul dengan jumlah yang sedikit. Setelah perbandingan dilakukan, ternyata pada suhu *sinter*  $900^\circ\text{C}$ ,  $1000^\circ\text{C}$ ,  $1100^\circ\text{C}$  sampai  $1150^\circ\text{C}$  ternyata secara umum puncak-puncak tertinggi milik  $\beta$ -TCP dan  $\alpha$ -TCP tidak muncul (Gambar 7, Gambar 8, Gambar 9 dan Gambar 10).

Pada Gambar 9 pola XRD untuk suhu *sinter*  $1000^\circ\text{C}$  memiliki keanehan, bawa muncul puncak-puncak yang tinggi pada posisi  $27,757^\circ$ ,  $31,021^\circ$ , dan  $32,430^\circ$ . Puncak-puncak tersebut bukan milik fasa HAp namun milik fasa  $\beta$ -TCP. Pada sampel yang lain tidak tampak adanya fasa ini. Terjadinya dekomposisi pada bagian ini mungkin disebabkan selama pemanasan terjadi kebocoran sehingga udara dapat masuk ke dalam sel. Dekomposisi HAp pelarut air pada suhu  $1000^\circ\text{C}$  yang *disinter* dengan gas Ar menunjukkan bahwa HAp dengan pelarut SBF lebih stabil dibandingkan HAp dengan pelarut air, karena kedua sampel tersebut berada dalam satu sel yang sama.

Perubahan fasa HAp menjadi TCP merupakan akibat dari lepasnya gugus  $\text{OH}^-$  (dan melepaskan uap air) sehingga HAp mengalami dehidrasi dan membentuk TCP. Penelitian tentang sifat stabil HAp dengan pelarut SBF setelah dipanaskan pada suhu tinggi hingga  $1600^\circ\text{C}$  pada atmosfer udara menunjukkan bahwa gugus  $\text{CO}_3^{2-}$  yang mensubstitusi gugus  $\text{OH}^-$  dan  $\text{PO}_4^{3-}$  membuat HAp stabil pada suhu tinggi [14].

Berdasarkan hasil yang diperoleh pada penelitian ini HAp dengan pelarut SBF stabil sampai suhu  $1150^\circ\text{C}$  baik *disinter* dengan gas Ar maupun gas  $\text{CO}_2$ . Hal tersebut sesuai dengan penelitian yang pernah dilakukan sebelumnya bahwa HAp stabil pada suhu pemanasan tinggi bahkan pada atmosfer udara. HAp dengan pelarut SBF mengandung karbonat yang diperoleh dari SBF pada saat pembuatan. Terlebih saat *disinter* dengan menggunakan gas  $\text{CO}_2$ , pelepasan gugus karbonat dari HAp menjadi  $\text{CO}_2$  akan tertahan sehingga meningkatkan kestabilannya.

Pada HAp dengan pelarut air yang *disinter* baik dengan gas Ar maupun gas  $\text{CO}_2$  menunjukkan hasil yang sama tentang kestabilan HAp pada suhu hingga  $1150^\circ\text{C}$ . HAp tersebut tidak mengandung karbonat yang berasal dari komponen pembuatannya, tetapi dari udara sekitarnya sehingga kadar karbonat cukup kecil dibandingkan dengan HAp dengan pelarut SBF. *Sintering* dengan menggunakan gas  $\text{CO}_2$  akan menghalangi terjadinya dekomposisi HAp. Dekomposisi

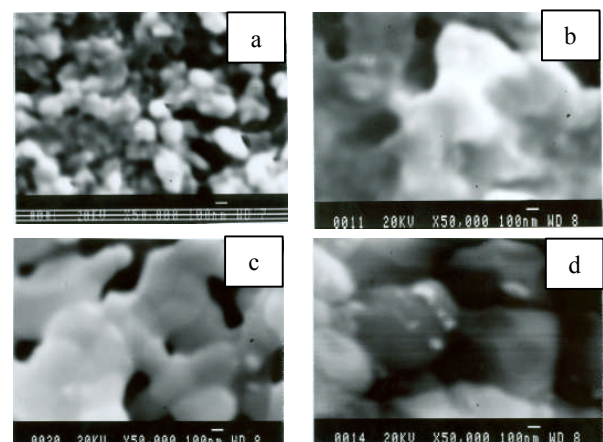
terjadi karena HAp melepaskan gugus  $\text{OH}^-$  dan menjadi TCP. Penggunaan gas  $\text{CO}_2$  menghalangi hal tersebut terjadi karena menahan pelepasan  $\text{CO}_2$  yang berasal dari karbonat pada HAp. Sedangkan penggunaan gas Ar sebagai atmosfer *sintering* juga dapat mencegah dekomposisi karena telah diketahui bahwa gas Ar merupakan gas inert sehingga tidak bereaksi dengan permukaan butir HAp.

Pada awal pembuatan sampel HAp harus dipastikan bahwa fasa yang terbentuk hanya fasa HAp tidak ada fasa lain. Jika fasa  $\beta$ -TCP dan  $\alpha$ -TCP telah muncul pada awal pembuatan sampel, maka setelah *sintering* fasa-fasa tersebut akan memiliki puncak (pola XRD) yang semakin kuat (tinggi), artinya pembentukan  $\beta$ -TCP dan  $\alpha$ -TCP saat awal pembuatan sampel akan menambah tingkat dekomposisi selama *sintering*.

### Analisis Morfologi dengan SEM

Untuk sampel HAp dengan pelarut air yang disinter dengan gas  $\text{CO}_2$  pada suhu  $900^\circ\text{C}$ ,  $1000^\circ\text{C}$ ,  $1100^\circ\text{C}$  dan  $1150^\circ\text{C}$  dan sampel HAp dengan pelarut SBF yang *disinter* dengan gas  $\text{CO}_2$  pada suhu  $900^\circ\text{C}$  dan  $1000^\circ\text{C}$  dilakukan pengambilan foto dengan menggunakan film polaroid. Sedangkan untuk sampel HAp dengan pelarut air yang *disinter* dengan gas Ar pada suhu  $900^\circ\text{C}$ ,  $1000^\circ\text{C}$ ,  $1100^\circ\text{C}$  dan  $1150^\circ\text{C}$ , sampel HAp dengan pelarut SBF yang *disinter* dengan gas Ar pada suhu  $900^\circ\text{C}$ ,  $1000^\circ\text{C}$ ,  $1100^\circ\text{C}$  dan  $1150^\circ\text{C}$  dan sampel HAp dengan pelarut SBF yang *disinter* dengan gas  $\text{CO}_2$  pada suhu  $1100^\circ\text{C}$  dan  $1150^\circ\text{C}$  digunakan pengambilan foto dengan komputer. Terlihat bahwa pengambilan gambar dengan film polaroid lebih jelas dibandingkan dengan pengambilan gambar dengan komputer karena perbesaran yang diambil cukup besar yakni 50.000 kali. Tetapi secara umum gambar tersebut masih bisa diinterpretasikan.

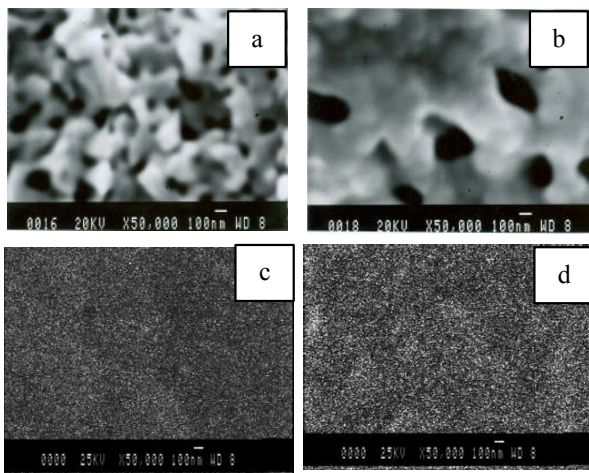
Gambar 11 menunjukkan morfologi HAp dengan pelarut air yang *disinter* dengan gas  $\text{CO}_2$ . Bagian putih



**Gambar 11.** Foto SEM HAp dengan pelarut air setelah *sinter* dengan gas  $\text{CO}_2$ . (a) suhu *sinter*  $900^\circ\text{C}$  (b) suhu *sinter*  $1000^\circ\text{C}$  (c) suhu *sinter*  $1100^\circ\text{C}$  (d) suhu *sinter*  $1150^\circ\text{C}$ .

dari gambar tersebut merupakan butir HAp sedangkan bagian hitam (gelap) adalah rongga atau pori pada sampel. Struktur sampel ini terlihat seperti bulatan-bulatan yang saling menyambung satu sama lain. Untuk setiap sampel terlihat pembentukan leher, yakni bagian yang berdempetan seperti yang telah dijelaskan sebelumnya. Pembentukan leher ini berhubungan erat dengan proses densifikasi. Pada Gambar (a) yakni dengan suhu *sinter* 900 °C pembentukan leher masih kecil, selanjutnya pada Gambar (b) ukuran butir lebih besar dan panjang leher juga semakin besar, begitu pula dengan meningkatnya suhu panjang leher semakin besar pada Gambar (c) sedangkan pada Gambar (d) butir-butir sudah saling berhimpitan satu sama lain.

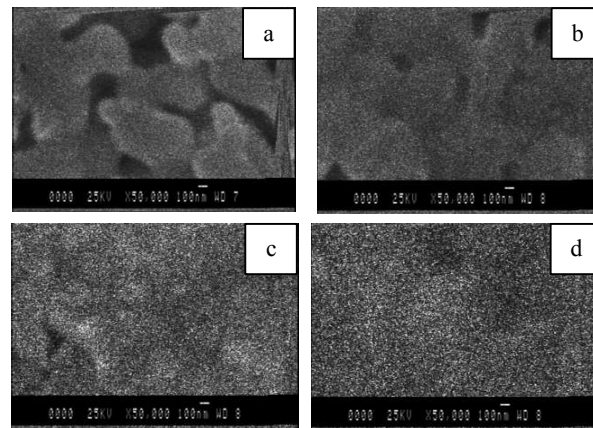
Pengamatan sampel HAp dengan pelarut SBF yang disinter dengan gas CO<sub>2</sub> menunjukkan struktur yang berbeda dengan HAp dengan pelarut air. Struktur HAp dengan pelarut SBF tidak bulat melainkan lebar dengan banyak pori dan bentuknya mirip jaring. Pada Gambar 12 (a) terlihat bahwa ukuran partikel masih relatif kecil dan rongga masih banyak dan besar pada Gambar 12 (b) ukuran partikel makin besar dan rongga mulai mengecil. Untuk Gambar 12 (c) dan Gambar 12 (d) terlihat kurang jelas namun jika diperhatikan maka terlihat besar rongga atau pori semakin mengecil. Sehingga proses densifikasi disini dapat dijelaskan dengan saling mendekatnya partikel-partikel penyusun sehingga membuat rongga semakin mengecil dan membuat sampel semakin padat atau kompak.



**Gambar 12.** Foto SEM HAp dengan pelarut SBF setelah *sinter* dengan gas CO<sub>2</sub>. (a) suhu *sinter* 900 °C (b) suhu *sinter* 1000 °C (c) suhu *sinter* 1100 °C (d) suhu *sinter* 1150 °C.

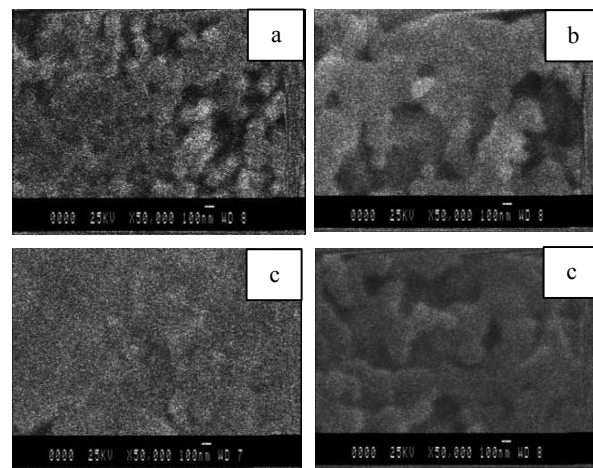
Hasil SEM untuk HAp dengan pelarut air yang disinter dengan gas Ar memperlihatkan struktur yang lebih memanjang dibandingkan dengan Gambar 13. Pembentukan leher dapat terlihat pada Gambar 13 (a) namun untuk Gambar 13 (b) pembentukan leher kurang terlihat, tetapi terlihat ukuran partikel semakin membesar dan ukuran pori semakin mengecil. Begitu pula untuk Gambar 13 (c) dan Gambar 13 (d) walau

kurang jelas terlihat tetapi terlihat bahwa bagian hitam yang merupakan rongga semakin mengecil, ini merupakan indikasi terjadinya densifikasi atau pemadatan pelet.



**Gambar 13.** Foto SEM HAp dengan pelarut air setelah *sinter* dengan gas Ar. (a) suhu *sinter* 900 °C (b) suhu *sinter* 1000 °C (c) suhu *sinter* 1100 °C (d) suhu *sinter* 1150 °C.

Kecenderungan pada Gambar 14 menunjukkan hasil yang sama dengan sampel yang lain. HAp dengan pelarut SBF yang disinter dengan gas Ar memiliki struktur yang mirip dengan HAp dengan pelarut SBF yang disinter dengan gas CO<sub>2</sub>. Perubahan ukuran partikel terlihat pada Gambar 14 (a) dan Gambar 14 (b) bahwa pada suhu *sinter* 1000 °C memiliki ukuran partikel yang lebih besar dari pada suhu 900 °C. Pada Gambar 14 (c) terlihat partikel-partikel membesar dan berdekatan, sedangkan pada Gambar 14 (d) tampak jelas pembentukan leher antar partikel.



**Gambar 14.** Foto SEM HAp dengan pelarut SBF setelah *sinter* dengan gas Ar (a) suhu *sinter* 900 °C (b) suhu *sinter* 1000 °C (c) suhu *sinter* 1100 °C (d) suhu *sinter* 1150 °C.

## KESIMPULAN

1. Densitas semakin besar pada proses sintering pelet HAp dan perubahan densitas semakin besar dengan meningkatnya suhu sinter.

2. Karakterisasi dengan menggunakan XRD menunjukkan bahwa sebelum sintering fasa yang terdapat dalam pelet mentah adalah hanya fasa HAp.
  3. Pelet HAp yang disinter dengan gas CO<sub>2</sub> maupun gas Ar tidak menunjukkan perubahan fasa sampai suhu sinter 1150 °C.
  4. HAp dengan pelarut SBF lebih stabil pada suhu tinggi dibandingkan HAp dengan pelarut air
- [15]. TIPLER, PAUL A., *Fisika Untuk Sains dan Teknik*. Penerbit Erlangga, Jakarta (1991)
  - [16]. CULLITY B.D., STOCK S.R., *Elements of X-Ray Diffraction*. Prentice Hall, New Jersey (2001)
  - [17]. JENKINS, R., *X-Ray Technique : Overview (In Encyclopedia of Analytical Chemistry)*, John Wiley & Sons Ltd, Chichester (2000)

## DAFTARACUAN

- [1]. TADIC, A., BECKMANN, F. et. al., *A Novel Methode to Produce Hydroxyapatite Object With Interconnecting Porosity that Avoids Sintering*. [www.elsevier.com](http://www.elsevier.com) (2003)
- [2]. CHELULE, K.L., T.J. COOLE, *Journal of Materials Processing Technology*. [www.elsevier.com](http://www.elsevier.com) (2003)
- [3]. KOUTSOPOULUS, S., *Syntesis and Characterization of Hydroxyapatite Crystals : Areview on The Analytical Methode*. Departement of Chemistry, University of Patras. Greece (2002)
- [4]. Bernache-Assolant, D., Ababou, A. et. al. *Sintering of Calcium Phosphate Hydroxyapatite Ca<sub>10</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>6</sub>(OH)<sub>2</sub>, I. Calcination and Particle Growth*. [www.elsevier.com](http://www.elsevier.com) (2002)
- [5]. JUANG, H.Y., HON, M.H., *Effect of Calcination on Sintering of Hydroxyapatite*. [www.elsevier.com](http://www.elsevier.com) (1996)
- [6]. AOKI, HIDEKI, *Science and Medical Application of Hydroxyapatite*. JAAS : Tokyo, Japan (1991)
- [7]. SUCHANEK, W., YOSHIMURA, M., *Processing and Properties of Hydroxyapatite-Based Biomaterials for Use as Hard Tissue Replacement Implants (review)*. Yokohama, Japan (1997)
- [8]. AOKI, S., SHUNRO Y., *Journal of The European Ceramic Society*. [www.elsevier.com](http://www.elsevier.com) (2003)
- [9]. GERMAN, R.M., *Powder Metalurgi Science*. Metal Powder Industries Federation, Princeton, New Jersey (1984)
- [10]. ANONIM, *Ceramics for Non-Ceramists: Body of Basic Knowledge for Materials Engineering Courses*. <http://www.mmat.ubc.ca/courses/mmat382/cnc51.htm> (2001)
- [11]. TANAKA, HIDEKAZU et al., *Influence of Thermal Treatment on The Structure of Calcium Hydroxyapatite*. Osaka University of Education, Osaka (2000)
- [12]. ANONIM, *Thermal Stability of Hydroxyapatite*. [www.azom.com](http://www.azom.com) (2000)
- [13]. LANGENATI, RATIH, *Aplikasi Hidroksiapatit Dibidang Medik*. BATAN-PUSPIPTEK, Serpong.
- [14]. CÜNEY, A., *Biomimetic Preparation of HA Powders at 37°C in Urea-and Enzyme Urease-Containing Synthetic Body Fluids*. Departement of Metallurgical and Materials Engineering, Middle east Technical University. Ankara-Turkey (2000)