

STRUKTUR MIKRO KOMPOSIT HYDROXYAPATI/KITOSAN YANG DIINFILTRASI CYANOACRYLATE

Purnomo¹⁾, Endang Tri Wahyuni Maharani²⁾

- 1) Program Studi Teknik Mesin, Universitas Muhammadiyah Semarang.
Email : purnomounimus@yahoo.co.id
- 2) Program Studi Analisis Kesehatan, Universitas Muhammadiyah Semarang.
Email: endangtm@gmail.com

ABSTRACT

Brittle nature of hydroxyapatite (HA) for bone implants reduced by adding chitosan (K). To strengthen the particles bond of the composite, cyanoacrylate infiltrated into the composites. Infiltration performed at room temperature and without any external pressure treatment system. The purpose of this study is to examine the microstructure of hydroxyapatite-chitosan composite by the presence infiltration cyanoacrylate. The aim of this study is to examine the microstructure of hydroxyapatite-chitosan composite by infiltration of cyanoacrylate. Surface morphology observed by SEM on the specimen showed that the higher the content of chitosan, cyanoacrylate increasingly looks much infiltrated composite hydroxyapatite-chitosan.

Keywords : hydroxyapatite, chitosan, cyanoacrylate, microstructure

PENDAHULUAN

Jumlah penggunaan implan untuk menggantikan kegagalan jaringan keras seperti sendi pinggul buatan, implan gigi, dan juga implan tulang terus meningkat (Niinomi, 2003). Awal pengembangan penggunaan keramik untuk aplikasi teknik biomedis dikembangkan pada akhir 1960-an, misalnya oleh Hulbert dkk (1982). Pada dekade terakhir ini, perhatian dunia telah banyak dicurahkan ke keramik hydroxyapatite (HA) sebagai bahan implan tulang. Hydroxyapatite ($\text{HA} - \text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$) ini merupakan mineral komponen alami tulang dan gigi. HA memiliki kesamaan kimia dan komposisi fasa anorganik dalam tulang, HA memiliki biokompatibilitas dan aktivitas biologis yang terbaik dari semua ortofosfat. Sayangnya sifat mekanik (termasuk ketangguhan retak dan kekuatan tekuk) dari HA yang masih belum sebaik sifat mekanik dari tulang alami (Guo, 2004). Keuntungan HA dibanding bahan implan lain adalah inert, biokompatibel dan biokimia yang stabil, ringan untuk meningkatkan motilitas, permukaan halus, struktur berpori untuk jaringan dalam pertumbuhan sehingga meningkatkan motilitas dan ekstrusi minimum.

Biokeramik HA mempunyai morfologi berpori. Adanya pori ini berdampak pada kemampuan ikatan yang kuat ke tulang (biaktif), dan memberikan *interlock* mekanik yang kuat dari materi. Dimensi dan morfologi pori-pori sangat mendukung osteointegrasi yang baik (Le Huec, dkk. 1995; Yoshikawa dkk, 2005). Ukuran pori minimum diperlukan untuk memungkinkan pertumbuhan tulang sekitarnya bersama dengan suplai darah, adalah sekitar 100-150 μm untuk pori makro (Hulbert dkk, 1972; Hulbert dkk, 1971, dan bahkan pada ukuran pori 50 μm osteokonduksi masih dimungkinkan (Chang dkk, 2000). Beberapa hasil penelitian merekomendasikan bahwa ukuran seharusnya 200-500 μm untuk kolonisasi osteoblas dalam pori-pori (Frieb dkk, 2002; Flatley dkk, 1983).

Banyak penelitian yang telah dilakukan untuk menggantikan tulang dari material komposit yang dibentuk dari HA dan matrik polimer. Beberapa polimer yang dapat digunakan antara lain adalah kitosan (Verma, 2007). Kitosan merupakan biopolimer yang berasal dari limbah cangkang kepiting. Kandungan kalsium yang tinggi pada cangkang kepiting dapat dimanfaatkan sebagai donor kalsium pada sintesis kalsium fosfat. Cangkang kepiting yang terdiri dari struktur kitin dapat diekstrak menjadi biopolimer kitosan.

Kitosan bersifat biokompatibel, biodegradabel, osteokonduktif dan dapat mengurangi sifat *brittle* senyawa kalsium fosfat sehingga dapat dimanfaatkan sebagai matriks pada sintesis HA-Kitosan sebagai biomaterial substitusi tulang. Komposit dengan menggunakan bahan alam diharapkan dapat meningkatkan biokompatibilitas saat diaplikasikan. HA yang serupa dengan komponen utama mineral tulang memiliki kekerasan yang rendah dan bersifat rapuh sehingga memberi kendala dalam proses desain (Pattanayak et al. 2005). Sedangkan kitosan (K) merupakan biopolimer alami yang diharapkan dapat bersifat layaknya komponen organik

matriks tulang serta dapat mengatasi sifat rapuh HA. Komposit HA-K juga memiliki keuntungan karena ketika matriks polimer terserap yang baru dapat tumbuh di sekitar partikel HA. Komposit dengan menggunakan bahan alam diharapkan dapat meningkatkan biokompatibilitas saat diaplikasikan.

Namun demikian, penggabungan HA dan kitosan melalui proses sintering pada temperatur 900°C – 1100°C akan berakibat memperbanyak adanya pori-pori pada komposit. Kitosan mempunyai titik leleh di bawah 300°C sehingga akan menguap dan membentuk *void* (celah/pori) pada komposit. Banyaknya pori ini akan menyebabkan rendahnya densitas bahan dan lemahnya ikatan antar partikel komposit. Untuk memperkuat ikatan partikel dan mengisi rongga/pori, diperlukan bahan pengisi yang mampu meningkatkan kekutan bahan.

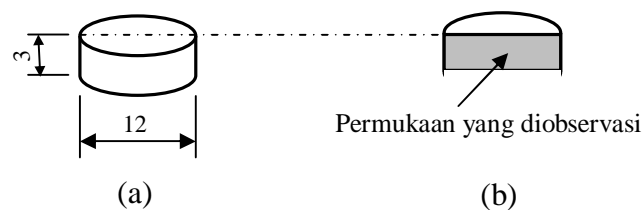
Teknologi pengikatan jaringan dan tulang terus berkembang. Salah satu bahan yang biasa digunakan sebagai perekat jaringan adalah cyanoacrylate (CA). CA merupakan material polimer yang bioaktif dan biokompatibel terhadap tubuh. CA menampilkan kekuatan adhesi unggul dibandingkan dengan akrilik lain dan baik digunakan dalam lingkungan biomedis yang lembab (I.S. Bayer, 2008). Dalam perkembangannya dibidang material biomedis, CA digunakan sebagai bahan perekat jaringan kulit akibat luka (R. Vanholder dkk, 1993). CA juga sering dipadukan dengan material lain misalnya *polyvinylidene fluoride* dalam meningkatkan kekuatan rekat material bioimplan ortopedi berbasis polyethylene (Bayer (2008). CA ini sangat cocok sebagai bahan pengisi (*filler*) tulang, meningkatkan ikatan jaringan tulang dan pertumbuhan tulang baru (S. Bhat, 1992). Begitu juga, CA sangat cocok digunakan sebagai material filler (pengisi) bioaktif pada aplikasi tulang gigi (Kyeong, 2005).

Cyanoacrylate sangat baik jika digunakan sebagai *filler* pada komposit HA-K yang dibentuk melalui proses sintering dengan parameter proses sebagaimana yang dilakukan pada penelitian tahun pertama. Karakteristik komposit ini sangat penting untuk diketahui dan karakteristik fisik bahan sangat tergantung dari sifat mikro bahan. Dengan demikian karakterisasi mikro bahan sangat dibutuhkan.

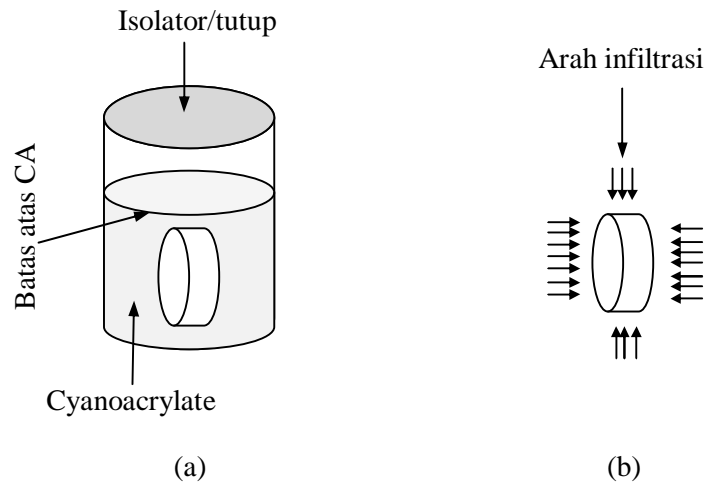
METODE PENELITIAN

Komposit dalam penelitian ini dibentuk dari bahan serbuk hydroxyapatite (HA), kitosan (K) dari cangkang kepiting dan cyanoacrylate (CA). Hydroxyapatite dengan ukuran $1\ \mu\text{m}$ diklasifikasikan dalam dua kategori yaitu HA tanpa dikalsinasi dan HA yang dikalsinasi pada temperature 600°C dengan *holding time* selama 3 jam. Kedua kategori serbuk HA ini kemudian dicampur dengan kitosan dari bahan cangkang kepiting. Komposisi berat kitosan secara berturut-turut adalah 0%, 10% dan 20%. Pencampuran ini dilakukan dalam sebuah mixer yang berputar sekitar 120 rpm. *Green part* komposit HA-K dibentuk melalui *uniaxial compaction* pada tekanan $50\ \text{kg/cm}^2$, $75\ \text{kg/cm}^2$ dan $100\ \text{kg/cm}^2$. *Green part* berbentuk plat dengan diameter 12 mm dan tebal sekitar 3 mm. Proses sintering terhadap *green part* dilakukan pada temperatur 1000°C dengan *holding time* selama 60 menit.

Infiltrasi CA terhadap spesimen uji yang dihasilkan setelah proses sintering dilakukan dengan cara merendam spesimen komposit HA-K ke dalam CA selama 24 jam dan tanpa tekanan dari luar. Selama proses perendaman, wadah/tempat diisolasi dari udara bebas supaya tidak terjadi polimerisasi CA dan infiltrasi bisa terjadi dari semua arah. Mikrostruktur komposit dianalisis melalui observasi permukaan menggunakan sanning electron microscope (SEM) pada permukaan patahan specimen setelah diinfiltrasi CA.



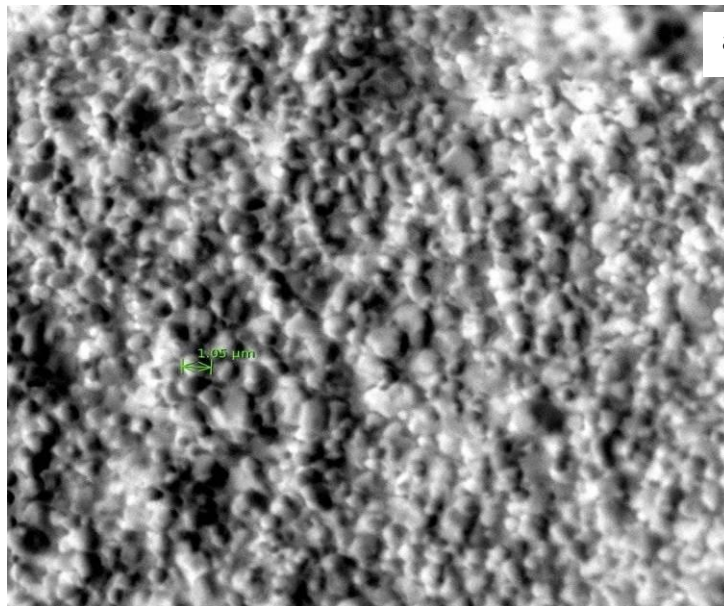
Gambar 1. Dimensi spesimen uji (a) dan daerah potongan specimen yang diobservasi (b)

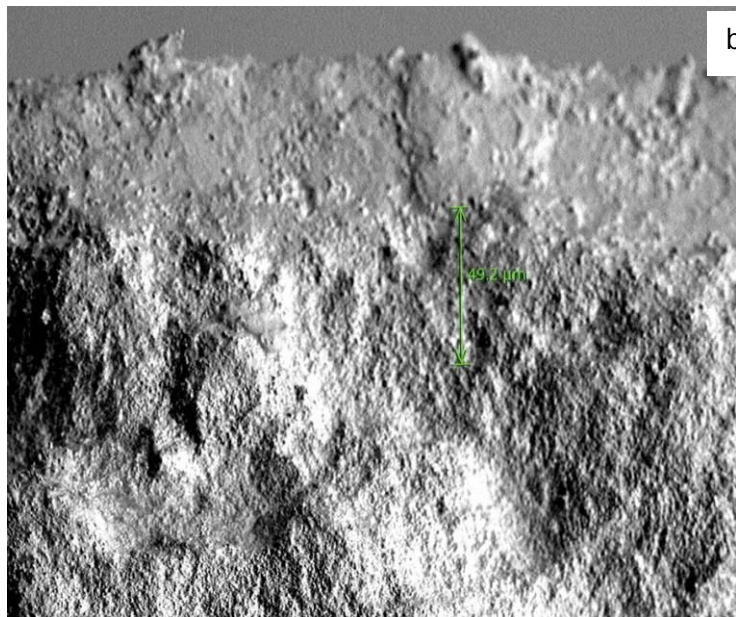


Gambar 2. Skema perendaman spesimen dalam CA (a) dan kondisi infiltrasi CA kedalam komposit HA-K

HASIL DAN PEMBAHASAN

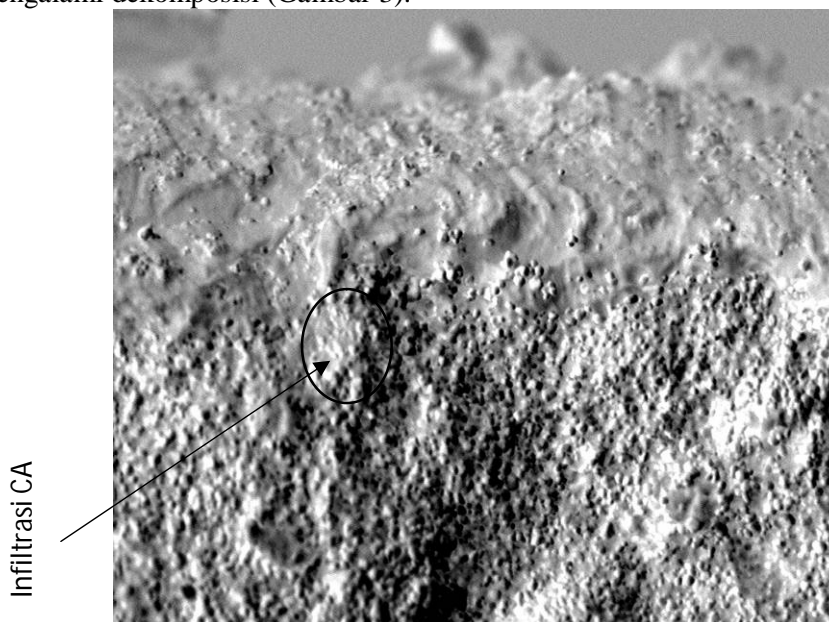
Morfologi permukaan spesimen hydroxyapatite terkalsinasi pada tekanan kompaksi 50 kg/cm² tanpa infiltrasi dan dengan infiltrasi cyanoacrylate ditunjukkan pada Gambar 3.





Gambar 3. Morfologi pada irisan permukaan specimen HA calcined pada tekanan kompaksi 50 kg/cm² tanpa infiltrasi (a) dan dengan infiltrasi cyanoacrylate.

Pada komposit yang tidak diinfiltrasi, pori-pori terlihat dengan jelas. Kondisi yang berbeda terlihat pada komposit yang diinfiltrasi dimana pori-pori tertutup oleh cyanoacrylate yang menginfiltrasi dan telah mengisi pori-pori. Dari pengamatan ketika komposit dimasukkan ke dalam cyanoacrylate dan dari observasi dengan SEM, diketahui bahwa permukaan komposit HA-K terdekomposisi, menyatu dengan cyanoacrylate dan menempel dipermukaan komposit. Infiltrasi cyanoacrylate mengisi pori-pori khususnya yang berada di dekat permukaan bahan yang mengalami dekomposisi (Gambar 3).



Gambar 4. Struktur mikro permukaan komposit HA tanpa kasinasi pada tekanan kompaksi 75 kg/cm²

Di dalam Gambar 4 ditunjukkan bahwa lapisan tipis cyanoacrylate terdapat pada permukaan komposit HA-K. Ditemukan fenomena permukaan komposit yang terdekomposisi, menyatu dan menempel pada permukaan komposit. Infiltrasi cyanoacrylate terjadi melalui pori-pori komposit. Hal ini berakibat tereduksinya porositas komposit akhir. Meskipun infiltrasi terjadi pada daerah di tengah penampang komposit, namun cyanoacrylate belum mampu mengisi pori-pori yang terbentuk pada komposit HA-K.

Pada Gambar 5, infiltrasi cyanoacrylate terjadi di banyak lokasi yang dekat dengan permukaan komposit. Pada daerah ini, infiltrasi cyanoacrylate mampu mengisi pori-pori komposit HA-K. Hal ini juga terjadi pada daerah yang berada di tengah irisan penampang

komposit HA-K. Terlihat bahwa daerah antar partikel HA yang dipotong terdapat infiltrasi cyanoacrylate.



Gambar 5. Struktur mikro permukaan komposit HA tanpa kalsinasi pada tekanan kompaksi 100 kg/cm²

Observasi pada seluruh specimen uji, terdapat keserupaan fenomena yang teramati. Komposit HA-K bersifat porous. Cyanoacrylate menginfiltrasi komposit melalui pori-pori. Permukaan penampang lintang yang mendekati permukaan kontak langsung komposit dan cyanoacrylate intensitas infiltrasinya lebih tinggi. Kondisi ini mendorong cyanoacrylate mampu mengisi penuh pori-pori dan menjadi pengikat antar partikel yang sebelumnya dipisahkan oleh pori. Adhesivitas cyanoacrylate yang baik mampu meningkatkan *interfacial bonding* partikel hydroxyapatit. Meningkatnya *interfacial bonding* ini berpengaruh meskipun kecil terhadap peningkatan Young's modulus (Fu, 2008). Kualitas *interfacial adhesion* mempengaruhi perilaku komposit dan kemampuan mentransfer beban akan meningkat oleh peningkatan kekuatan *interfacial bonding* (Fu, 2008).

KESIMPULAN

Infiltrasi cyanoacrylate merupakan fungsi jarak permukaan komposit. Makin jauh dari permukaan, cyanoacrylate terinfiltrasi tetapi makin tidak mampu mengisi penuh pori-pori komposit. Cyanoacrylate mampu mengisi penuh pori-pori komposit. Saat komposit berada di dalam cyanoacrylate, permukaan komposit mengalami dekomposisi dan hal-hal yang menjadi sebab belum dikaji.

DAFTAR PUSTAKA

- Chang.B.S, Lee. C. K, Hong. K. S, Youn. H.J, Ryu. H.S, Chung. S.S, Park. K.W. 2000. *Biomaterials* 21 . 1291.
- Frieb. W, Warner. J. 2002. in: F. Schuth, K.S.W. Sing, J. Weitkamp (Eds.), *Handbook of Porous Solids*, Wiley-VCH, Weinheim, 2002, 2923pp.
- Niinomi,M. 2003. Recent research and development in titanium alloys for biomedical applications and healthcare goods, *Science and Technology of Advanced Materials* 4
- Guo, H.B, X. Miao, Y. Chen, P. Cheang, K.A. Khor. 2004. Characterization of hydroxyapatite- and bioglass-316L fibre composites prepared by spark plasma sintering, *Materials Letters*, 58, pp 304-307.
- Hulbert, S.F., Hench L.L., Forbers, D., Bowman, L.S. 1982. History of Bioceramics. *Ceramics International* 8 [4] 131–40
- Le Huec,J.C, Schaeverbeke. T, Clement. D, Faber. J, Le Rebeller. A, *Biomaterials* 16 (1995) 113.
- Yoshikawa. H, Myoui. A. 2005. *J. Artif. Organs* 8. 131.
- Hulbert. S.F, Morisson. S.J, J.J. Klawitter. J.J, J. Biomed. Mater. Res. 6 (1972) 347.
- Hulbert.S.F, Klawitter.J.J, Leonard. R.B, 1971. in: W.W. Kriegel, H. Palmour (Eds.), *Ceramics in Serve Environments*, Plenum Press, New York, 1971, 417pp.
- Flatley.T.J, Lynch.K.L, Benson.M, 1983. *Clin. Orthop.* 179.246. Product catalogue: CeraEye – synthetic hydroxyapatite orbital implant, IFGL Bioceramics Ltd., Kolkata India.
- Verma D, Katti KS, Katti DR, Mohanty B. 2007. Mechanical respons and multilevel structure of biomimetic hydroxyapatite/polygalacturonich/shitosan nano composte. *Materials Science and Engineering. C* 27. 352–371.
- Bayer,I.S.,Tiwariand, M. K.C., Megaridis, M.K. 2008. Biocompatible poly(vinylidene fluoride)/cyanoacrylate composite coatings with tunable hydrophobicity and bonding strength. *Applied Physics Letters* 93, 173902
- Bhat .S., Askew M.J., Njus G., Smith D.J. 1992. Alkyl Cyanoacrylates as Space Filling Bone Adhesives. *J Appl Biomater.* Fall;3 (3):207-10. PubMed PMID: 10147717.
- Kyeong-Jun Park, Ji-Ho Park, Sang-Bae Lee, Doug-Youn Lee, Kyoung-Nam Kim, and Kwang-Mahn Kim. 2005. Bioactive Cyanoacrylate-based Filling Material for Bone Defects in Dental Applications. *Key Engineering Materials Vols.* 284-286. pp. 933-936
- Shao-Yun Fu, Xi-Qiao Feng, Bernd Lauke, Yiu-Wing Mai. 2008. Effects of particle size, particle/matrix interface adhesion and particle loading on mechanical properties of particulate–polymer composites. *Composites: Part B* 39. 933–961
- Sahu S, Broutman LJ. 1972. Mechanical properties of particulate composites. *Polym Eng Sci*;12:91–100.
- Vanholder.R., Misotten.A., Roels. H., Matton.G.1993. Cyanoacrylate tissue adhesive for closing skin wounds: a double blind randomized comparison with sutures. *Biomaterials* ,Volume 14, Issue 10, Pages 737–742