

PEMBUATAN FILAMEN BIODEGRADASI PRINTER 3D METODE *FUSED DEPOSITION MODELLING* DARI POLIMER SINTESIS DAN HIDROKSIAPATITE BOVINE UNTUK IMPLAN SCAFFOLDS REKONSTRUKSI MANDIBULA

Saifudin Alie Anwar¹, Solechan²

Kedokteran Gigi-Fakultas kedokteran Gigi-Universitas Muhammadiyah Semarang
Jl. Kedungmundu Raya no.18 Semarang 50273

* Teknik Mesin-Fakultas Teknik- Universitas Muhammadiyah Semarang
Jl. Kasipah no 12 Semarang 50274
E-mail : Solechan1981@gmail.com

Abstrak

Penyebab kematian di dunia salah satunya penyakit kanker dan menyumbang sekitar 0.2% dari jumlah kasus kanker. Setiap tahun tidak kurang dari 240.000 kasus kanker tulang terjadi di Indonesia, terdiri dari tumor jinak dan tumor ganas. Tercatat 455 kasus tumor tulang yang terdiri dari 327 kasus tumor tulang ganas (72%) dan 128 kasus tumor tulang jinak (28%) dalam kurun waktu 10 tahun (1995-2004) di RSCS DR. Cipto Mangunkusumo Jakarta. Tumor mandibula berpotensi menimbulkan gangguan penyembuhan tulang mandibula. Adapun prosedur reseksi tumor mandibula menimbulkan defek mulai dari celah pada tulang alveolus sampai dengan diskontinuitas tulang mandibula. Rekonstruksi mandibular bertujuan untuk pembentukan kontinuitas mandibula salah satunya menggunakan media scaffolds. Penelitian ini bertujuan untuk menentukan komposisi yang optimal, temperatur semi cair yang rendah dan waktu degradasi lebih cepat. Metode penelitian dengan variabel komposisi campuran 90:10, 85:15, dan 90:10. Spesimen diuji XRD, SEM, dan TGA. Hasil uji untuk komposisi campuran terbaik pada komposisi 90:10, untuk interface baik, butiran kecil, temperatur rendah, ikatan antar muka lebih kuat, dan material mudah terdegradasi.

Kata kunci : filamen, hydroxyapatite, scaffolds, tumor, lebur.

I. PENDAHULUAN

Penyakit tulang diakibatkan kanker menurut WHO tahun 2008 mencapai 12 juta kasus kanker baru, 7 juta orang meninggal dan 5 juta orang hidup dengan kanker. Tumor tulang bagian dari kanker, kasusnya kurang dari 1% dari semua jenis kanker (salter RB., 1984). Lokasi tumor paling banyak ditibia 41%, tulang femur 33%, tulang maxillofacial dan mandibular 3%, tulang radius 2% dan tulang fibula 2 % (*Nacomical surveillance system data.*, 2011). Tumor mandibula berpotensi menimbulkan gangguan pengunyahan, saluran napas, penelanan dan berbicara (Fonseca RJ., 2000). Pengangkatan tumor mandibula sering menimbulkan cacat, mulai dari celah pada tulang alveolus sampai diskontinuitas tulang mandibula (Smith., 2006). Maka perlu rekonstruksi mandibula untuk pembentukan kontinuitas mandibula (Stošić S., 2008). Rumah Sakit telah mengembangkan pendekatan alternatif dengan meniadakan operasi panen tulang (*autografting*), yaitu dengan scaffolds (*Sandia National Laboratories dan Carle Foundation Hospital.*, 2010).

Teknik pembuatan scaffolds harus presisi, porositas, berpori-pori dan interkoneksi antar pori-pori. Proses ini, perlu parameter pengolahan dan kondisi terkontrol (Salgado., 2004). Scaffolds bisa diproduksi menggunakan teknik konvensional atau canggih (Holy et al., 2003). Keterbatasan teknik konvensional yaitu dalam mengontrol ukuran pori-pori, geometri pori-pori, interkoneksi pori-pori, dan konstruksi saluran internal scaffolds (Chua CK., 2003). Teknik canggih menjadi alternatif dalam pengontrolan arsitektur scaffolds diantaranya *fused deposition modeling* (FDM), (K. F. Leong et.al., 2003) FDM memiliki kelayakan untuk membuat scaffolds secara langsung dan teknik presisi tinggi (Iwan Zein., 2002). Scaffolds adalah implant tiga dimensi (3D) yang biokompatibel, *biodegradable* dan osteokonduksi (Papenburg BJ., 2009). Material scaffolds didapat dari polimer, keramik dan komposit. Pemilihan material menentukan karakteristik, sifat mekanik, degradasi dan fungsi biologis (Salvalani., 2006). Proses FDM tidak memerlukan pelarut dan mudah pengolahan materialnya (Iwan Zein., 2001). Hutmacher, (2000) telah membuat scaffolds dengan proses FDM dari komposit PCL-HA (Hidroksiapatit) dengan pola 0°/60°/120°, interkoneksi pori-pori 100% dan modulus keseimbangan 0,16-4,33 MPa.

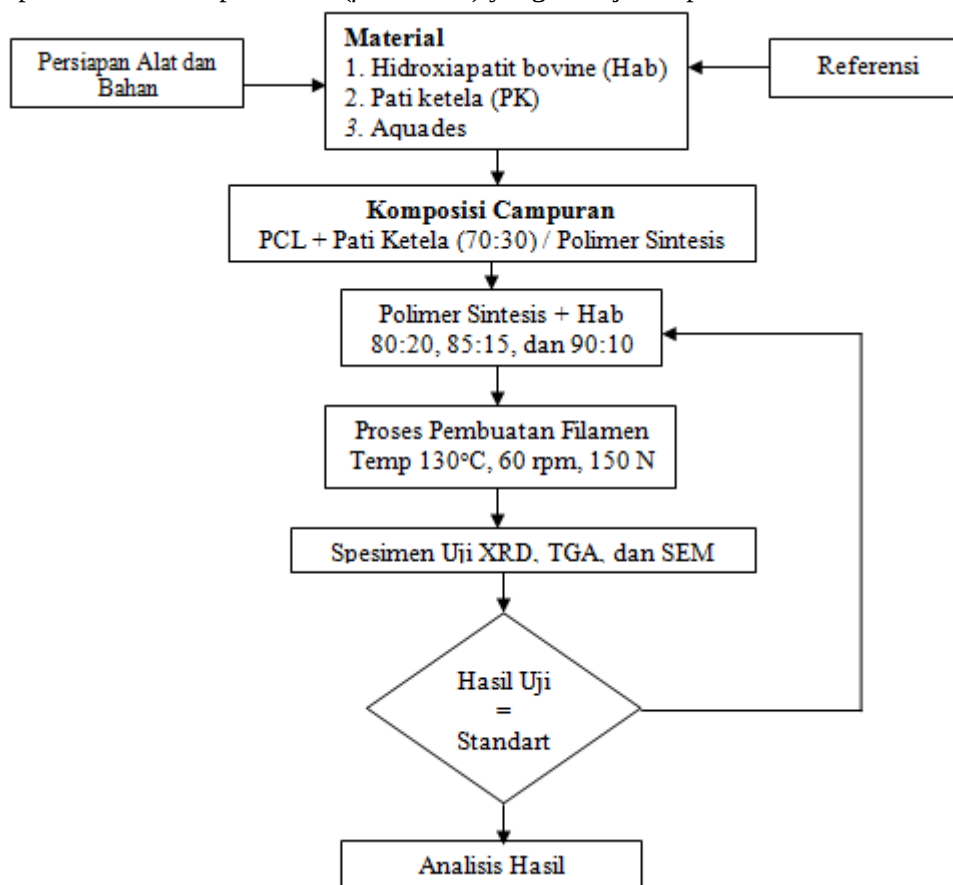
Proses FDM juga dibuat dari komposit PCL-TCP (*Tricalciumphosphat*). Menghasilkan sifat sesuai aliran thermoplastik proses FDM. Tetapi prosentasi kandungan TCP terlalu tinggi akan menjadikan rapuh (C lam xu f., 2003). Meskinfam (2011) menggunakan hidroksiapatit (HA bovine) dan pati ketela (*starch*) untuk pembuatan scaffolds dengan metode FDM, tetapi kekuatan mekanis rendah dan temperatur lebur tinggi. *Liquefier* FDM mampu memanaskan pada suhu 150-350°C, sehingga titik lebur polimer harus menyesuaikan (www.pp3dp.com). Pencampuran PCL 80% dan pati 20% akan meningkatkan kekuatan mekanis dan menurunkan temperatur lebur (Chin-San Wu., 2002). Harga PCL per gram mencapai \$ 657, bila dicampur 20% pati akan mengurangi \$ 131,4 (www.polysciences.com). Memahami latar belakang diatas, riset difokuskan pada pengembangan filamen biodegradasi printer 3D metode FDM untuk prototipe scaffolds presisi tinggi dari visual data image CT-Scan penderita. Material yang dipakai HA bovine dan PLA dari pati ketela. Diharapkan harga scaffolds lebih murah dan mengurangi ketergantungan material import.

Tujuan Penelitian

1. Menentukan komposisi yang optimal antara PCL + PLA pati ketela + Hab pada filamen biodegradasi printer 3D.
2. Mencari komposisi spesimen filamen biodegradasi yang memiliki temperatur semi cair rendah dan waktu degradasi cepat.

2. METODOLOGI PENELITIAN

Awal penelitian mulai dari persiapan material dan alat. Untuk memudahkan pembuatan spesimen uji perlu dibuat alur penelitian (*flow chart*) yang ditunjukkan pada **Gambar 1**.



Gambar 1. Diagram alur penelitian

Langkah pertama penimbangan material sesuai prosentase. Hidroksiapatite bovine (Hab) ukuran partikel 50 nm, pellet Poly(ϵ -caprolactone) (PCL), *coupling agent vinyl silane* dan pati ketela merk Bogasari. Langkah kedua pencampuran PCL dan pati ketela dengan perbandingan

70:30 untuk berat total 10 gr dan 1 gram *vinyl silane*. Masukkan TCP- pati ketela ke cawan keramik dan aduk dengan spatula. Temperatur pada material 100°C, kecepatan 50 rpm selama 8 menit. Masukkan adonan kedalam alat suntik (sprit) untuk dibentuk filamen, sesudah kering dipotong-potong berbentuk pellet, material diberi nama polimer sintesis. Filamen biodegradasi dibuat dari polimer sintesis dan Hab dengan komposisi perbandingan 90:10, 85:15, dan 80:20. Berat total material 10 gr dan 1 gr *vinyl silane*. Temperatur material 130°C, kecepatan 60 rpm selama 5 menit sampai terbentuk pasta. Selanjutnya dimasukkan ke sprit lagi untuk diekstursi manual.

Hasil sprit berbentuk filamen dan didinginkan sampai padat. Filamen dipotong-potong menjadi pellet. Material pellet ini digunakan untuk pembuatan filamen biodegradasi printer 3D. Untuk pembuatan filamen yang panjang menggunakan mesin *screw extruder* dengan tekanan 100 N dengan kecepatan 4 mm/min, yang diperlihatkan pada **Gambar 2**. Filamen dijadikan spesimen uji dengan pengujian XRD, TGA, dan SEM.

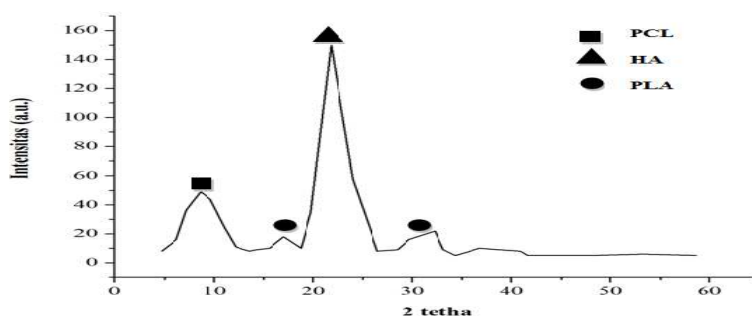


Gambar 2. Proses pembuatan filamen biodegradasi printer 3D

3. HASIL PENELITIAN DAN PEMBAHASAN

3.1 Hasil Uji X-Ray Diffractometer (XRD)

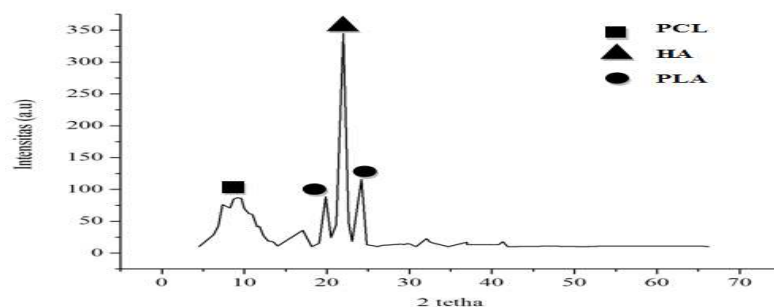
Hasil pengujian XRD untuk melihat struktur kristal dan unsur filamen biodegradasi printer 3D. Uji spesimen XRD berbentuk serbuk dengan sudut tembak 90°C. Pengujian dilakukan pada 3 (tiga) spesimen untuk komposisi campuran polimer sintesis dan Hab. Perbandingan komposisi campuran 90:10, 85:15, dan 80:20. Hasil uji XRD perbandingan komposisi 80:10 pada **Gambar 3** memperlihatkan puncak-puncak atau peak intensitas sangat rendah yang dimiliki beberapa unsur. Untuk senyawa PLC memiliki puncak intensitas rendah dan pola puncak yang lebar. Ketinggian puncak intensitas material PLC pada 2 theta 21,791° dan peak 150, material HA pada 2 theta 9,713° dan peak 58, dan material PLA dari pati ketela pada 2 theta 18,024° dan peak 49. Untuk pola puncak atau *Full Width Half Maximum* (FWHM) semakin lebar pada material PCL dan Hab yaitu 0,95800° dan 0,84330°.



Gambar 3. Hasil uji XRD pada material komposisi campuran 80:10

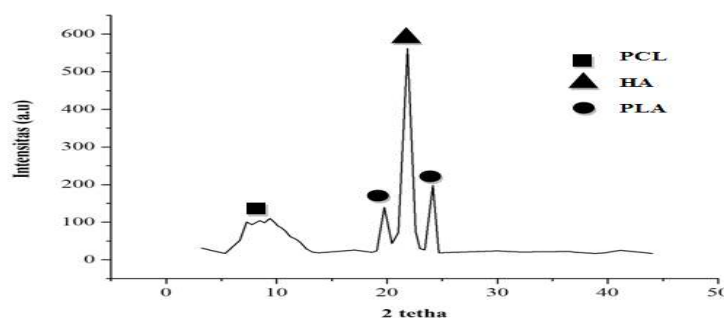
Bertambahnya kandungan komposisi campuran Hab sebesar 15% meningkatkan ketinggian peak intensitas dan pola puncak yang sempit. Hasil uji XRD komposisi campuran 85:15 diperlihatkan pada **Gambar 4**. Senyawa yang terdeteksi material PCL, PLA, dan Hab. Ketinggian puncak intensitas material PCL mengalami kenaikan, yaitu pada 2 theta 21,9600° pada peak 345, material Hab pada 2 theta 24,2158° pada peak 116, dan material PLA pati ketela pada 2 theta

19,8566° pada peak 89. Pola puncak menyempit dengan FWHM pada 0,43200°, 0,48170°, dan 0,48670°.



Gambar 4. Hasil uji XRD pada material komposisi campuran 85:15

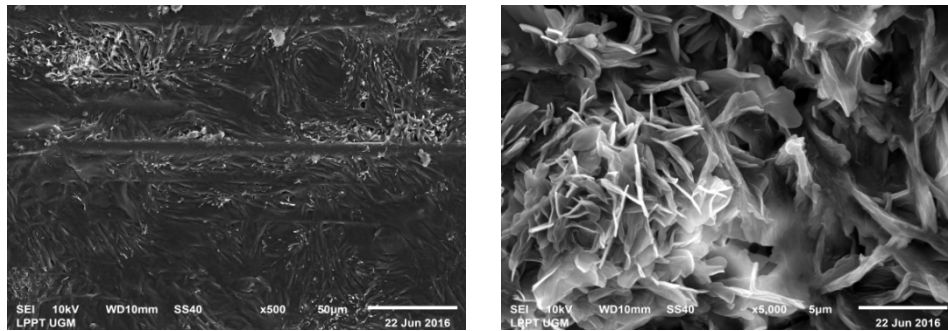
Semakin bertambahnya kandungan material Hab untuk puncak intensitas semakin tinggi, dan pola puncak semakin sempit, bagaimana dibuktikan pada komposisi campuran 80:20 dengan hasil diperlihatkan pada **Gambar 5**. Material mengalami kenaikan, yaitu pada 2 theta 21,8687° pada peak 562, material Hab pada 2 theta 24,1333° pada peak 198, dan material PLA pati ketela pada 2 theta 19,7685° pada peak 140. Pola puncak menyempit dengan FWHM pada 0,47130°, 0,47130°, dan 0,47130°. Bertambahnya kandungan Hab untuk intensitas semakin tinggi dan pola puncak semakin sempit. Untuk tinggi nilai intensitas maka nilai *Full Width Half Maximum* (FWHM) semakin kecil, (Ashari B. Prasada., 2008). FWHM pada pola puncak difraksi memiliki hubungan yang berbanding berbalik dengan besaran kristal, semakin lebar pada pola maka semakin besar ukuran kristal yang didapat (Witjaksono. A., 2011). Intensitas paling tinggi menandakan sampel berbentuk kristal dengan tingkat kristalinitas yang tinggi atau kristal yang sempurna (Nasution, D., 2006). Namun demikian menurunnya kandungan Hab menyebabkan penurunan intensitas atau penurunan kristalinitas. Semakin kecil kandungan Hab, maka yang terbentuk pada sampel adalah semi kristal. Bentuk semi kristal termasuk zat yang lebih stabil dan waktu degradasi lama (Basavoju, S., D. Bostrom, and S. P. Velaga, 2008).



Gambar 5. Hasil uji XRD pada material komposisi campuran 80:20

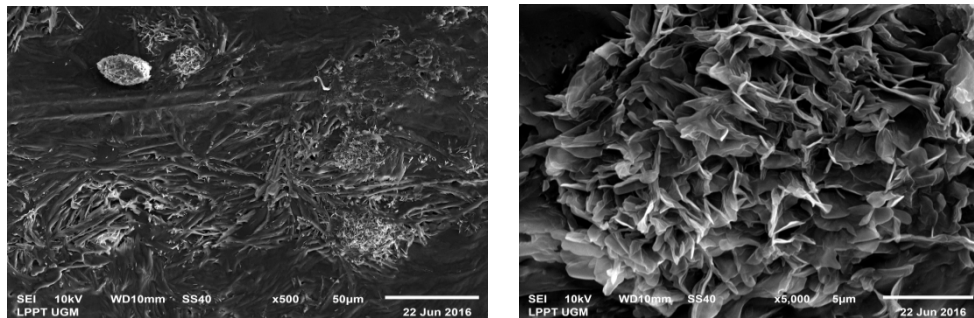
3.2 Hasil Uji Scanning Electron Microscope (SEM)

Pengujian SEM untuk mendapatkan morfologi, model struktural, interface antar muka dan ukuran butir material komposisi campuran filamen biodegradasi printer 3D. Bentuk spesimen uji SEM dalam bentuk filamen dengan diameter 1,75 mm dan panjang 5 mm. Uji SEM dilakukan pada 3 (tiga) spesimen dengan komposisi campuran 90:10, 85:15, dan 80:20. Komposisi campuran polimer sintesis dan Hab 90:10 memperlihatkan material Hab sangat sedikit dibandingkan polimer sintesis yang diperlihatkan pada **Gambar 6.a** pembesaran 500x. Untuk ikatan antar muka pada butiran Hab dan polimer sintesis sangat baik. Ikatan antar muka Hab dan polimer sintesis diperlihatkan pada **Gambar 6.b** pembesaran 5000x. Hab berwarna putih dan berbentuk butiran dan polimer sintesis berwarna agak gelap dan permukaan rata.



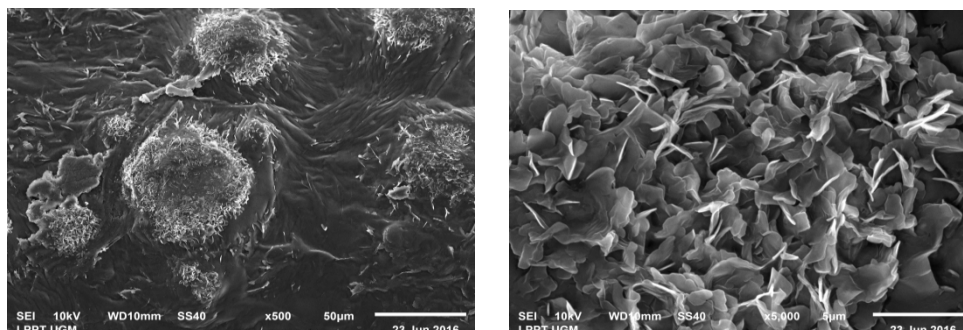
Gambar 6. Hasil uji SEM spesimen 90:10 a) Pembesaran 500x, b) 5000x

Meningkatnya kandungan HAB pada komposisi material filamen biodegradasi printer 3D sebesar 5% dari komposisi semula 10%, mempengaruhi perubahan morfologi, ukuran butir, ikatan antar muka. Nampak Hab berbentuk gumpalan atau aglomerat berwarna putih ditunjukkan hasil uji SEM spesimen 85:15 pada **Gambar 7a**. Material Hab secara visual untuk komposisi campuran bertambah dan ikatan antar muka polimer sintesis dan Hab kurang kuat karena ada celah diinterface yang ditunjukkan pada **Gambar 7b**.



Gambar 7. Hasil uji SEM spesimen 85:15 a) Pembesaran 500x, b) 5000x

Bertambahnya komposisi campuran material Hab pada material filamen spesimen 80:20, nampak terlihat material Hab bertambah, ukuran butir semakin besar, dan menggumpal. Hasil uji SEM spesimen diperlihatkan pada **Gambar 8a** dengan pembesaran 500x. Ikatan antara muka polimer sintesis dan Hab sangat lemah dibandingkan 85:15. Polimer sintesis tidak mampu menyelimuti Hab secara sempurna dan hanya sebagian kecil yang menempel, bagaimana ditunjukkan pada **Gambar 8b**.



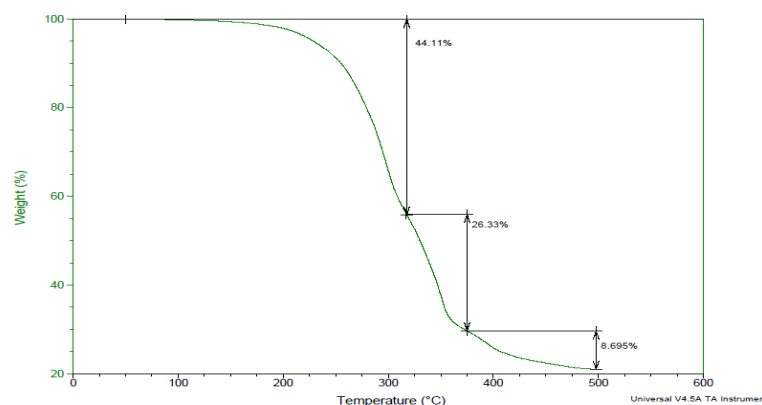
Gambar 8. Hasil uji SEM spesimen 80:20 a) Pembesaran 500x, b) 5000x

Fenomena terbentuknya aglomerat pada butiran Hab menunjukkan material polimer sintesis tidak dapat menyelimuti butiran Hab secara sempurna, dikarenakan kurangnya material *coupling agent vinyl silane*. Jumlah *coupling agent* yang digunakan hanya 1 gr pada berbagai

komposisi campuran (Power Chemical Corporation Limited., 2009). *Coupling agent vinyl silane* memperkuat ikatan antara filler Hab dan matrik polimer bereaksi secara kimia dengan keduanya. Fungsinya untuk memperbaiki sifat fisik dan mekanis dari polimer, juga mencegah cairan dari penetrasi kedalam filler-polimer (Dalvag et al., 1985). Perbedaan kandungan komposisi campuran juga berpengaruh terhadap hasil morfologi permukaan material. Kandungan prosentase komposisi campuran polimer sintesis lebih tinggi, maka *surface* atau permukaan akan lebih halus karena aglomerat berkurang (Hendra Suprayogi, 2007). Sebaliknya kandungan prosentase Hab lebih besar permukaan material lebih kasar dan ikatan antar muka lemah, ini dipengaruhi jumlah *coupling agent vinyl silane* sedikit tidak mampu menyelemuti butiran Hab (Advanced Polymer, Inc., 2014).

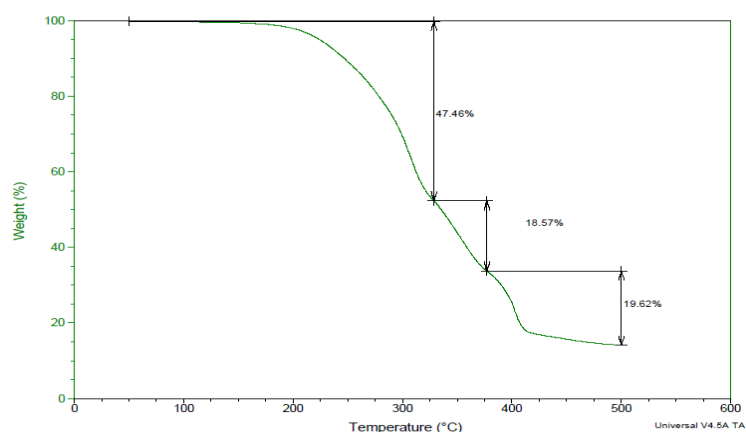
3.3 Hasil Uji *Thermo Gravimetric Analysis* (TGA)

Hasil uji TGA untuk mendapatkan pengurangan massa terhadap suhu dan waktu. Suhu atau temperatur semi cair dari filamen biodegrasi didapatkan dari hasil uji TGA. Temperatur semi cair yang didapat untuk mensetting temperatur pada mesin printer 3D. Printer 3D bekerja mengeluarkan cairan semi cair atau aliran thermoplastik untuk membentuk scaffolds (C lam xu f., 2003). Pengujian TGA dilakukan pada 3 (tiga) spesimen dengan berat sampel 13,9210 mg dan mode TGA 1000°C pada komposisi campuran 90:10, 85:15, dan 80:20. Komposisi campuran 90/10 yang ditunjukkan pada **Gambar 9**. Diagram grafik menunjukkan pengurangan massa sebanyak 3 step. Step pertama pengurangan massa pada temperatur 305°C sebesar 4,11% atau 4.2364 mg. Step kedua pada temperatur 381°C terjadi pengurangan massa 26.33% atau 9,4246 mg, dan step ketiga temperatur 500°C terjadi pengurangan massa 8.695% 10,6598 mg.



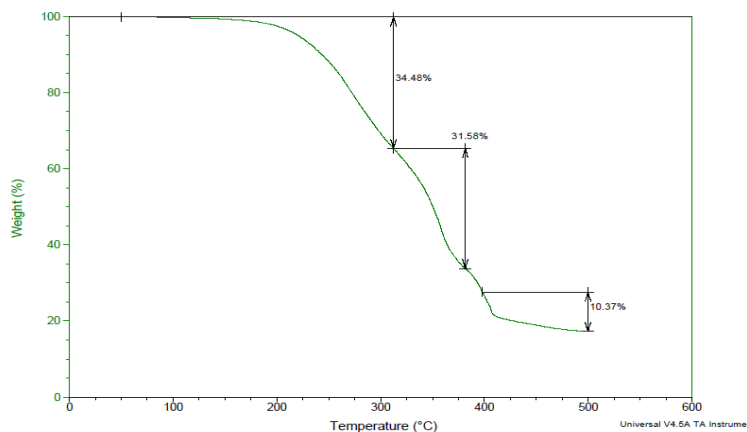
Gambar 9. Hasil uji TGA spesimen komposisi campuran 90:10

Komposisi campuran 85:15 dengan kandungan Hab 15% menunjukkan waktu peleburan semakin lama dan pengurangan massa kecil, bagaimana ditunjukkan pada **Gambar 10**. Step pertama pengurangan massa pada temperatur 309°C sebesar 47.46%, step kedua temperatur 384°C sebesar 18.57%, dan step ketiga temperatur 500°C pengurangan massa 19.62%.



Gambar 10. Hasil uji TGA spesimen komposisi campuran 85:15

Bertambahnya komposisi campuran material Hab untuk waktu peleburan dan temperatur lebur semakin tinggi, sedangkan pengurangan massa kecil. Ini terjadi pada komposisi campuran 80:20 dengan hasil uji TGA ditampilkan pada **Gambar 11**.



Gambar 11. Hasil uji TGA spesimen komposisi campuran 80:20

Step pertama pengurangan massa pada temperatur 314°C sebesar 34.48%, step kedua temperatur 388°C sebesar 31.58%, dan step ketiga temperatur 500°C pengurangan massa 10.37%. Perbedaan temperatur titik lebur dan pengurangan massa pada spesimen filamen biodegradasi printer 3D disebabkan kandungan komposisi Hab. Lebih banyak kandungan Hab maka penurunan massa semakin sedikit dan temperatur semakin tinggi. Ini disebabkan pada HA bovine tulang sapi memiliki titik lebur tinggi sebesar 954°(1227°K) (Sontang., 2000). Penurunan massa lainnya disebabkan hubungan dehidrasi spesimen dan hilangnya kelembaban awal mengakibatkan penurunan massa (Tamas David Szucs., 2008). Hasil uji TGA mencari beberapa temperatur semi cair spesimen uji untuk disamakan temperatur liquefier printer 3D pada waktu proses. Printer 3D mampu disetting pada temperatur 150-350°C (www.PP3DP.com).

4. KESIMPULAN

- (1) Komposisi campuran filamen biodegradasi printer 3D yang terbaik pada komposisi 90:10, untuk interface baik, butiran kecil, temperatur rendah, dan ikatan antar muka lebih kuat.
- (2) Komposisi campuran 90:10 memiliki temperatur semi cair 305°C dan puncak intensitas rendah dan pola puncak lebar yang menandakan material mudah terdegradasi.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Kementerian Riset, Teknologi, dan Pendidikan Tinggi Republik Indonesia yang telah memberikan dana untuk Penelitian Dosen Pemula tahun anggaran 2015-2016.

DAFTAR PUSTAKA

- Ashari, P.R. (2008). Peningkatan Kualitas Anthurium Hookeri Melalui Pemberian Unsur Boron (B). (Skripsi). Universitas Sebelas Maret. Surakarta. 45 Hlm
- Advanced Polymer, Inc., (2014)., Silane Coupling Agents., 400 Paterson Plank Road Carlstadt, NJ 07072., Website: www.advpolymer.com.
- Basavoju, S., D. Bostrom, and S. P. Velaga, (2008), Indomethacin Saccharin Co Crystal: Design, Synthesis and Preliminary Pharmaceutical Characterization, Pharm. Res., 25, 530-541.
- Chua, C.K., Leong, K.F., Lim, C.S., (2003)., Rapid Prototyping Principles and Applications, 2nd ed, p.13, Singapore, WS Publishing Co.Pte.Ltd.
- Chin-San Wu., (2003)., Physical properties and biodegradability of maleated-polycaprolactone/starch composite., Polymer Degradation. 80-127-134.
- Dalvåg, H., C. Klason, and H. -E. Strömwall, (1985). The efficiency of cellulosic fillers in common thermoplastics. Part II. Filling with processing aids and coupling agents. Intern. J. Polymeric Mater. 11: 9-38.

- Fonseca RJ., (2000)., Masticatory myalgias. In Oral and Maxillofacial Surgery. Temporomandibular Disorders et al.: Philadelphia: WB Saunders. 38–45.
- Hutmacher DW, Zein I., (2000)., Fused deposition modeling of novel scaffolds architectures for tissue engineering applications. *Biomaterials* ;23:1169–85
- Iwan Zein, Dietmar W. Hutmacherb, Kim Cheng Tanc, Swee Hin Teoha., (2002)., Fused deposition modeling of novel scaffold architectures for tissue engineering applications., *Biomaterials* 23-1169–1185., Elsevier
- Iwan Zein , Hutmacher DW, Tan KC, Teoh SH., (2001)., Fused deposition modeling of novel scaffolds architectures for tissue engineering applications. *Biomaterials*;23:1169–85.
- K. F. Leong, C. M. Cheah, and C. K. Chua, (2003) "Solid freeform fabrication of three-dimensional scaffolds for engineering replacement tissues and organs," *Biomaterials*, vol. 24, pp. 2363-2378.
- Meskinfam M, Sadjadi MA, et.al., (2011)., Biocompatibility evaluation of nano hydroxyapatite-starch biocomposites. *J Biomed Nanotechnol* 7 (3): 455-9.
- Nasution, D., (2006), Pembuatan Hydroxyapatite dari Calcite Gunung Kidul dan Karakterisasinya, Tesis S2, Jurusan Teknik Mesin FT UGM, Yogyakarta
- Nanocomial surveillance sytem data rumah sakit Dr. Kariadi , 2011.
- Papenburg BJ., (2009)., Design strategies for tissue engineering scaffolds., University of Twente., ISBN 9490122394, 9789490122393., hlm 198.
- Power Chemical Corporation Limited., 2009., Silane Coupling Agents Guide., www.PCC.asia www.SiSiB.com.
- Salter RB., (1984)., Text Book of Disorders and Injuries of the Musculoskeletal System. 2nd Ed. Baltimore: William-Wilkins p.320 – 45.
- Smith. JE., Blackwell K., (2006)., Mandibular Reconstruction, www.emedicine.medscape.com/article.
- Stošić S, (2008)., Mandibular reconstruction – state of the art and perspectives., Military Medical Academy, Clinic for Maxillofacial Surgery, Belgrade., UDC: 616.716.4–089.843–033.3., Volumen 65, Broj 5., 397-403.
- Sandia National Laboratories dan Carle Foundation Hospital., (2010)., - Technology Ventures Corporation., New and Highlihts press., 352
- Salgado,. Antó'nio J., (2004)., Bone Tissue Engineering: State of the Art and Future Trends., Braga, Portugal., DOI: 10.1002.
- Sontang, (2000)., Optimasi Hydroxyapatite dalam tulang sapi melalui prosese sintering, thesis, Universitas Indonesia (UI).
- Salvarani Carlo, Robert D Brown Jr, Gene G Hunder., (2006)., Adult primary central nervous system vasculitis., Vol 380 August 25, www.thelancet.com.
- Tamás Dávid Szűcs., (2008)., Production of Hard Tissue Scaffolds Using Three-Dimensional Printing Method., ID No.: 57100268., Dublin City University.
- Witjaksono A., (2011)., Karakteristik Nanokristaline ZnO hasil presipitasi dengan perlakuan pengeringan anil dan pasca-hidrotermal". Tesis Universitas Indonesia; Depok.
- www.pp3dp.com., Copyright © 2012 PP3DP. All Rights Reserved All Rights Reserved. Designed by PP3DP.com POWERED_BY Joomla!.
- www.polysciences.com., Monomers & Polymers. Diakses pada tanggal 6 mei 2013.