

PEMBUATAN KERAMIK BERPORI BERBAHAN BAKU *TRICALCIUM PHOSPHATE* DENGAN METODE *PROTEIN FOAMING-STARCH CONSOLIDATION*

Teddy Pratama¹, Ahmad Fadli², Zuchra Helwani²

¹Mahasiswa Jurusan Teknik Kimia S1, ²Dosen Jurusan Teknik Kimia,
Fakultas Teknik, Universitas Riau
Kampus Binawidya Jl. HR Subrantas Km 12,5 Pekanbaru 28293
pratama.teddy88@yahoo.com

ABSTRACT

Porous Tricalciumphosphate (TCP) is a synthetic material that can be used as bone implant. Porous TCP production can be conducted by Protein Foaming-Starch Consolidation method that using yolk as an agent to form pore. This research aims to study the influence of process variables i.e time of sintering (1-3 hours), time of burning (1-3 hours) and mixing rate (100-200 rpm) toward physical, chemical and mechanical properties of porous TCP using Response Surface Methodology (RSM) also characteristic porous TCP. Analyzed respons were porosity, density and compressive strength. Product characteristic of TCP resulted of porosity was 69.71-81.88%, density was 0.569-0.951g/cm³ and compressive strength was 1.05-1.85 MPa. Data processing using second order model obviously seen from significant curvature. Significance level between variables can be seen from $p_{value} < 0,05$ and lack of fit $> 0,05$ which show that model was corresponding toward the result. R^2 obtained were $Y_1 = 0.9383\%$, $Y_2 = 0.9384\%$, $Y_3 = 0.9674\%$. The most affecting factor significantly towards all the responses was time of sintering that followed by time of burning and mixing rate. Optimum condition was obtained at 3 hours time of sintering, 3 hours time of burning and mixing rate of 100 rpm with the optimum value of response for porosity by 70.56%, density by 0.92 gr/cm³ and compressive strength 1.66 MPa.

Keywords : *bone implant, protein foaming-starch consolidation, response surface methodology, tricalcium phosphate.*

1. Pendahuluan

Tulang merupakan bahan komposit alami yang tersusun atas 60% mineral, 10% air, dan 30% matriks anorganik. Tulang memiliki fungsi sebagai kerangka tubuh, pelindung organ vital, dan tempat untuk mengembangkan sistem imun [Gomes, 2004]. Namun fungsi tersebut dapat terganggu oleh kerusakan/cacat tulang sehingga tulang perlu diperbaiki untuk mengembalikan fungsinya. Hal ini dapat

dilakukan dengan berbagai cara, salah satunya dengan implan tulang.

Implan tulang adalah penggantian jaringan tubuh dengan menggunakan material sintetik yang kompatibel dengan jaringan tubuh [Kuo dkk, 2007]. Material sintetik yang umum digunakan sebagai pengganti implan tulang adalah bahan-bahan *biomaterials*. *Biomaterials* merupakan material yang berfungsi mengembalikan dan meregenerasi jaringan hidup yang rusak. *Biomaterials* sintetik yang mengalami

kemajuan pesat dalam 20-30 tahun terakhir adalah *Tricalcium Phosphate* (TCP) [Kuo dkk, 2007].

TCP merupakan *bioceramics* yang memiliki sifat biocompatibility yang baik serta tidak menimbulkan inflamasi ketika digunakan sebagai implan jaringan tulang. Penggunaan TCP mempunyai beberapa keunggulan dibandingkan metode lainnya yaitu tidak terjadinya imunogenik terhadap material TCP dalam tubuh. Dan pasca implantasi TCP dalam jaringan tulang tidak terjadi penurunan volum, perubahan morfologi serta mampu teradsorpsi dan menyatu baik dengan tulang [Oonishi dkk., 1997]. Keunikan TCP dibandingkan *biomaterials* sintetik lain adalah similaritas sifat kimianya dengan fase mineral tulang [Ghosh dkk., 2008].

TCP memiliki kemiripan komposisi kimia dengan jaringan tulang namun memiliki kekuatan mekanik yang lemah. Sehingga dilakukan peningkatan kekuatan mekanik dengan membuat pori pada TCP dikarenakan pori-pori tersebut akan dilalui oleh jaringan tulang sehingga kekuatan mekanik implan akan meningkat [Swain, 2009]. Pembuatan pori dilakukan dengan berbagai metode, seperti : *replication method*, *starch consolidation method*, *direct foaming method* dan *protein foaming-starch consolidation method*.

TCP berpori telah digunakan dalam implantasi jaringan, pengisi sel, dan *drug-releasing agent* [Sopyan dkk, 2007]. Pori dapat dibentuk dengan menggunakan beberapa metode, salah satu metode yaitu *protein foaming consolidation* [Fadli & Sopyan, 2009]. Metode ini menggunakan kuning telur sebagai pembentuk pori pada TCP. Beberapa keunggulan kuning telur sebagai pembentuk pori adalah harga murah,

ramah lingkungan dan distribusi pori yang tersebar merata [Fadli & Sopyan, 2009].

Tujuan dilakukannya penelitian ini adalah mempelajari pengaruh antar variabel proses yaitu waktu *sintering*, kecepatan pengadukan dan waktu *burning* terhadap sifat fisik, kimia dan mekanik TCP berpori yang dibuat dengan metode *protein foaming-starch consolidation* menggunakan pengolahan data *Respon Surface Methodology* (RSM) serta karakteristik TCP berpori yang dibandingkan dengan standar sebagai *graft* tulang sintetik.

2. Metode Penelitian

2.1 Bahan baku

Bahan baku penelitian meliputi bubuk TCP (Sigma Aldrich, Jerman), kuning telur yang telah diisolasi dari telur ayam lokal, Darvan 821A (Vanderbilt Company, USA), tepung sagu (*starch*) dan minyak goreng.

2.2 Peralatan yang digunakan

Alat utama yang digunakan dalam penelitian ini adalah *muffle furnace* (PPF-1300, Indonesia). Peralatan penunjang yang digunakan adalah *oven* (Cosmos CO 9919, Indonesia), *stirrer* (Heidolph, Jerman), *stainless steel mold*, jangka sorong, mistar dan gelas beker 250 ml.

2.3 Prosedur Penelitian

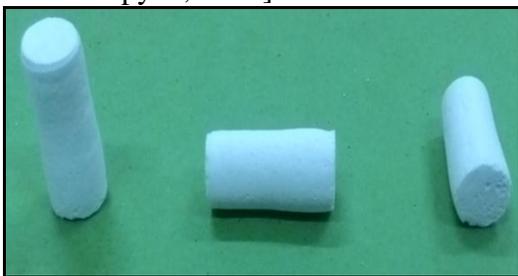
Penelitian ini dimulai dengan tahapan persiapan *slurry*. *Slurry* disiapkan dengan mencampur 24 gr bubuk TCP, 24 gr kuning telur, 6 gr Darvan 821A dan 3 gr *starch* di gelas beker. *Slurry* diaduk menggunakan *stirrer* pada kecepatan pengadukan 100 rpm, 150 rpm, dan 200 rpm selama 3 jam. Kemudian campuran tersebut dimasukkan ke dalam cetakan dan dipanaskan di oven dengan suhu 180°C selama 1 jam untuk proses *foaming* dan *consolidation*. Sebelum *slurry* dimasukkan ke dalam cetakan, cetakan

dilumasi dengan minyak goreng untuk mempermudah proses pelepasan dari *mold* serta mendapatkan kualitas permukaan sampel yang bagus. Sampel dilepas dari cetakan dan dibakar pada temperatur 600°C (laju pemanasan 10°C) selama 1, 2, dan 3 jam untuk menghilangkan kuning telur sehingga terbentuk pori didalam *green bodies* dan diakhiri dengan *sintering* (laju pemanasan 2°C) pada suhu 1100°C masing-masing selama 1, 2, dan 3 jam.

3. Hasil dan Pembahasan

3.1 *Porous Bodies Properties*

Untuk melihat pengaruh kondisi proses seperti waktu *sintering*, waktu *burning*, dan kecepatan pengadukan terhadap TCP berpori dapat dilihat pada Gambar 1. Keramik berpori dilakukan *burning* dan *sintering* pada suhu masing-masing 600°C dan 1100°C dengan waktu tinggal 1, 2, dan 3 jam dengan kecepatan pengadukan 100, 150, dan 200 rpm. Setelah proses *sintering*, didapatkan sampel berbentuk silinder. TCP berpori yang didapatkan tidak terjadi deformasi atau kerusakan setelah mengalami proses *sintering*. Hal ini terjadi karena komponen organik yang terdapat di dalam TCP berpori telah hilang di proses *burning* pada suhu 600°C. Komponen organik seperti air, lemak, dan protein akan hilang pada suhu 600°C [Fadli & Sopyan, 2011].



Gambar 1. *Porous bodies*

TCP berpori juga mengalami penyusutan setelah dilakukan proses *sintering*. Penyusutan berhubungan dengan proses densifikasi (pemadatan) yang terjadi

pada proses *sintering*. Penyusutan menyebabkan penurunan volum, disisi lain sampel yang telah mengalami proses *sintering* akan menjadi lebih padat karena struktur partikel material tumbuh (*coarsening*) dan menyatu membentuk kesatuan massa (densifikasi) [Kang, 2005].

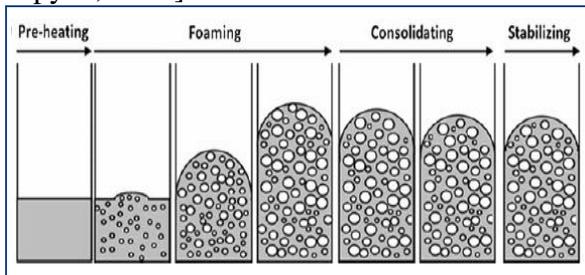
Pada penelitian ini, penyusutan sampel berkisar antara 21,56-56,99%. Penyusutan volum terendah sebesar 21,56% diperoleh pada waktu *sintering* 2 jam, waktu *burning* 0,32 jam, dan kecepatan pengadukan 150 rpm. Sedangkan penyusutan volum tertinggi sebesar 56,99% diperoleh pada waktu *sintering* 2 jam, waktu *burning* 3,68 jam, dan kecepatan pengadukan 200 rpm. Waktu *burning* adalah variabel yang berpengaruh signifikan terhadap penyusutan volum.

3.2 *Proses Foaming-Consolidating*

Mekanisme proses foaming-consolidating selama pemanasan terjadi empat tahapan proses, yaitu *pre-heating*, *foaming*, *consolidating* dan *stabilizing* (Gambar 2). Tahap *pre-heating* terjadi pada saat 2 menit awal pengeringan dimana terjadi *denaturation* yaitu perubahan struktur protein tanpa adanya perubahan volum dari protein tersebut [Sopyan dkk, 2012]. Kemudian tahap *foaming* terjadi pada waktu pengeringan 3-22 menit yang ditunjukkan oleh peningkatan volum dari *slurry* sampai mencapai volum maksimum. Peningkatan volum ini terjadi karena kemampuan *foaming* dari kuning telur didalam *slurry*.

Pada waktu pengeringan 23-24 menit, kuning telur membentuk struktur jaringan gel yang terjadi karena terjadinya denaturasi protein penyusunnya, proses ini mengakibatkan terjadinya *molecular-consolidation* sehingga *slurry* berbentuk seperti karet. *Drying bodies* tersusun atas fase padat dan fase liquid, selama proses *consolidating* fase liquid tersebut akan mengalami evaporasi hingga membentuk fase gas, fase gas yang terbentuk akan keluar dari *drying bodies* secara difusi. Proses ini mengakibatkan terjadinya mengurangan

volum *bodies* hingga mencapai volum minimum. Pada waktu pengeringan lebih dari 24 menit, tidak ada terjadi perubahan volum yang dapat diamati, ini menandakan *drying bodies* telah mencapai tahap *stabilizing*. Tahap *stabilizing* terjadi setelah *bodies* dipanaskan lebih dari 20 menit [Fadli & sopyan, 2012].



Gambar 2. Mekanisme proses foaming-consolidating selama pemanasan

3.3 Desain dan Validasi Model

Pada penelitian ini percobaan model orde dua digunakan untuk memperkirakan kelengkungan (*curvature*) dari respon. Tempuhan rancangan percobaan orde dua merupakan pengembangan model orde satu dengan penambahan tempuhan kuadratik masing-masing variabel dan interaksi antar variabel tersebut. Untuk dapat menggunakan model persamaan orde 2, *p-value* pada uji kelengkungan haruslah dibawah tingkat probabilitas yang digunakan yaitu 5% atau 0.05 yang menunjukkan adanya kecendrungan variabel-variabel percobaan untuk membentuk kelengkungan.

Persamaan orde 2 yang akan digunakan dapat mengestimasi pengaruh kuadratik dari variabel percobaan. Metode yang digunakan untuk mengetahui kesesuaian orde 2 memiliki nilai R^2 pada interval 0 hingga 1. Nilai R^2 yang mendekati 1 menunjukkan derajat korelasi yang tinggi antara hasil observasi terhadap model yang dihasilkan [Montgomery, 2013]. *Lack of fit* juga dapat digunakan untuk menentukan tingkat kesesuaian antara data dengan model yang dihasilkan.

P-value dari *lack of fit* merupakan

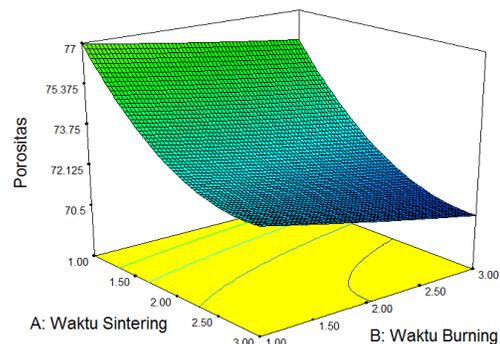
ukuran untuk ketidaktepatan model terhadap data observasi yang didapatkan pada probabilitas tertentu. Model akan dianggap tepat ketika nilai *p-value* dari *lack of fit* berada di atas tingkat probabilitas yang digunakan. *P-value* yang diinginkan dari sebuah hasil analisa statistika *lack of fit* adalah yang tidak signifikan. Rangkuman nilai R^2 dan *lack of fit* untuk setiap model dapat dilihat pada Tabel 4.2.

Tabel 4.2 Nilai R^2 dan *lack of fit* untuk berbagai respon.

Respon	R^2	<i>p-value lack of fit</i>
Porositas	0.9383	0.2926
Densitas	0.9384	0.2932
Kuat tekan	0.9674	0.2032

3.4 Pengaruh Kondisi Proses dan Interaksinya terhadap Nilai Respon

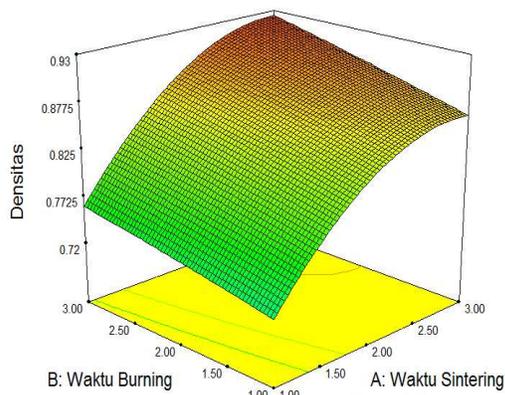
Kondisi proses yang dipelajari ada tiga yaitu waktu *sintering* (x_1), waktu *burning* (x_2), dan kecepatan pengadukan (x_3). Berdasarkan hasil pengujian *p-value*, semua kondisi proses memberikan pengaruh terhadap porositas, densitas dan kuat tekan. Waktu *sintering* (x_1) memberikan pengaruh yang signifikan terhadap porositas, densitas dan kuat tekan, diikuti dengan waktu *burning* (x_2) dan kecepatan pengadukan (x_3). Dapat dituliskan kedalam perbandingan $x_1 > x_2 > x_3$.



Gambar 3. Grafik respon permukaan waktu *sintering* dan waktu *burning* terhadap respon nilai porositas

Pada Gambar 3 dapat dilihat grafik respon permukaan waktu *sintering* dan waktu

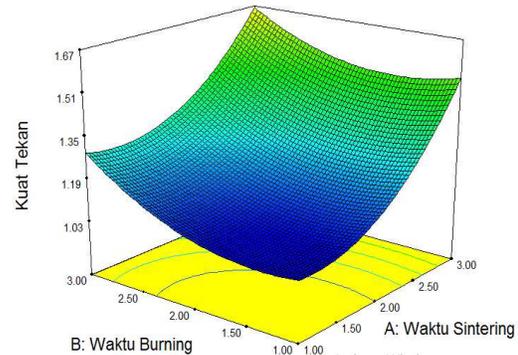
burning terhadap respon nilai porositas. Porositas terendah sebesar 72.64% didapatkan pada waktu *sintering* 3 jam dan waktu *burning* 1 jam dan porositas tertinggi sebesar 81.88% yaitu pada waktu *sintering* 1 jam dan waktu *burning* 3 jam. Semakin lama waktu *burning* dan waktu *sintering* maka porositas yang dihasilkan akan semakin kecil. Homogenitas pada *slurry* mempengaruhi porositas yang terbentuk, semakin baik homogenitas pada *slurry* maka porositas yang dihasilkan semakin turun [Abdurrahim & Sopyan, 2008]. Hal ini disebabkan karena *slurry* yang dihasilkan menjadi lebih kental sehingga mampu mempertahankan konstruksinya menjadi lebih rekat dan lebih padat. Grafik respon permukaan waktu *sintering* dan waktu *burning* terhadap respon densitas dapat dilihat pada Gambar 4.



Gambar 4. Grafik respon permukaan waktu *sintering* dan waktu *burning* terhadap respon nilai densitas

Densitas terendah sebesar 0.569 gr/cm³ didapatkan pada waktu *sintering* 1 jam dan waktu *burning* 3 jam dan densitas tertinggi sebesar 0.859 gr/cm³ diperoleh pada waktu *sintering* 3 jam dan waktu *burning* 1 jam. Semakin lama waktu *burning* dan waktu *sintering* maka densitas yang diperoleh akan semakin besar. Ini dikarenakan selama *sintering* berlangsung, struktur partikel material akan tumbuh (*coarsening*) dan menyatu membentuk kesatuan massa (densifikasi). Densifikasi akan meningkat

apabila temperatur semakin tinggi, tekanan besar, ukuran partikel semakin kecil dan waktu *sintering* yang semakin lama [Kang, 2005]. Gambar 5 merupakan grafik respon permukaan waktu *sintering* dan waktu *burning* terhadap respon kuat tekan.



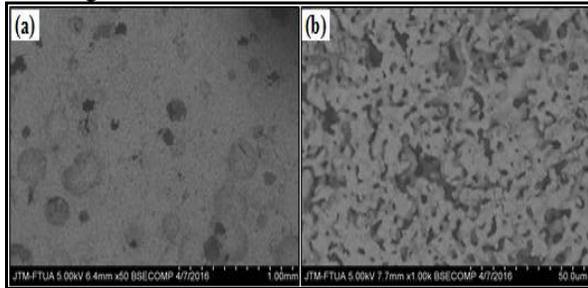
Gambar 5. Grafik respon permukaan waktu *sintering* dan waktu *burning* terhadap respon nilai kuat tekan

Kuat tekan terendah sebesar 1.06 MPa didapatkan pada waktu *sintering* 1 jam dan waktu *burning* 3 jam dan kuat tekan tertinggi sebesar 1.59 MPa diperoleh pada waktu *sintering* 3 jam dan waktu *burning* 3 jam. Semakin lama waktu *burning* dan waktu *sintering* maka kuat tekan yang dihasilkan akan semakin besar. Ini dikarenakan selama *sintering* berlangsung, struktur partikel material akan tumbuh (*coarsening*) dan menyatu membentuk kesatuan massa (densifikasi) [Kang, 2005]. Kuat tekan meningkat seiring dengan berkurangnya porositas [Gibson & Asby, 1988].

3.5 Makrostruktur dan Mikrostruktur

Perbedaan lama waktu *sintering* mempengaruhi makrostruktur dari keramik berpori. Semakin lama waktu *sintering* akan meningkatkan densifikasi karena partikel keramik akan membentuk kesatuan massa yang lebih padat. Proses densifikasi akan menyebabkan perubahan pada ukuran pori dari keramik. Peningkatan waktu *sintering* akan menghasilkan ukuran pori yang semakin kecil seperti yang terlihat pada Gambar 6. Ukuran pori yang semakin kecil akan

menyebabkan kuat tekan dari keramik berpori meningkat.



Gambar 6. Makrostruktur (a) dan mikrostruktur (b) sampel.

Mikrostruktur dari keramik berpori juga mengalami perubahan dengan peningkatan waktu *sintering*. Gambar 6 menunjukkan dengan peningkatan waktu *sintering* akan menyebabkan jumlah *grain* yang berikatan satu sama lain akan meningkat. Ikatan antar permukaan *grain* tersebut akan menyebabkan kuat tekan yang dihasilkan dari keramik berpori meningkat. Pada proses *sintering*, struktur partikel akan tumbuh (*coarsening*) dan menyatu membentuk kesatuan massa (densifikasi) [Kang, 2005]. Laju densifikasi akan meningkat apabila temperatur semakin tinggi, tekanan semakin besar, ukuran partikel semakin kecil dan waktu *sintering* yang semakin lama.

3.6 Optimasi Kondisi Proses TCP Berpori

Untuk menghasilkan respon optimum dengan persamaan empiris lebih dari satu digunakan pendekatan dengan fungsi *desirability*. Fungsi pendekatan *desirability* berfungsi untuk mengoptimasi lebih dari satu respon secara bersamaan [Montgomery, 2008]. *Design Expert v7.0.0* dapat melakukan optimasi pada beberapa respon secara bersamaan dengan menggunakan fungsi *desirability*. Kondisi operasi pada penelitian tetap dijaga pada interval yang digunakan (waktu *sintering* 1-3 jam, kecepatan pengadukan 100-200 rpm, dan waktu *burning* 1-3 jam).

Sementara itu respon seperti porositas,

densitas, dan kuat tekan diatur pada kondisinya masing-masing. Nilai respon optimum yang diharapkan adalah nilai maksimum dari ketiga respon tersebut. Nilai *desirability* untuk setiap respon adalah Y_1 (porositas) = 0.947657, Y_2 (densitas) = 0.885769, dan Y_3 (kuat tekan) = 0.765661. *Desirability* gabungan respon didapat adalah 0.862984. Nilai respon optimum diprediksi untuk $Y_1 = 70.56\%$, $Y_2 = 0.92\text{gr/cm}^3$, dan $Y_3 = 1.66\text{ MPa}$. Kondisi proses optimum yang didapat pada waktu *sintering* 3 jam, waktu *burning* 3 jam dan kecepatan pengadukan 100 rpm.

4. Kesimpulan

TCP berpori telah berhasil dibuat dengan metode Protein *Foaming-Starch Consolidation* dengan kondisi operasi waktu *sintering* (1-3 jam), waktu *burning* (1-3 jam), dan kecepatan pengadukan (100-200 rpm). Waktu *sintering*, waktu *burning*, dan kecepatan pengadukan masing-masing memberikan pengaruh yang signifikan terhadap perubahan nilai respon seperti porositas, densitas serta kuat tekan. Porositas yang diperoleh pada penelitian ini adalah 69.71-81.88%, densitas yang diperoleh 0.569-0.951 gr/cm^3 , dan kuat tekan yang diperoleh 1.05-1.85 MPa. Kondisi optimum yang diperoleh pada penelitian ini adalah pada kondisi operasi waktu *sintering* 3 jam, waktu *burning* 3 jam dan kecepatan pengadukan 100 rpm. Nilai respon optimum yang didapatkan adalah porositas sebesar 70.56%, densitas sebesar 0.92 gr/cm^3 , dan kuat tekan sebesar 1.66 MPa.

Daftar Pustaka

- Abdurrahim, T. & Sopyan, I. (2008). Recent progress on the development of porous bioactive calcium phosphate for biomedical applications. *Biomedical Engineering*. 1: 213-229.
- Fadli, A. & Sopyan, I. (2009). Preparation of Porous Alumina for Biomedical Applications through Protein Foaming-

- Consolidation Method. *Material Research Innovation*. 13(3): 327-329.
- Fadli, A. & Sopyan I. (2011). Porous ceramics with controllable properties prepared by protein foaming-consolidation method. *Journal of Porous Material*, 18, 195-203.
- Ghosh, S. K., Nandi, S. K., Kundu, B., Datta, S., De, D. K. & Roy, S. K. (2008). In vivo response of porous hydroxyapatite and β -tricalcium phosphate prepared by aqueous solution combustion method and comparison with bioglass scaffolds. *Journal of Biomedical Material Research Part B Applied Biomaterials* 86: 217-227.
- Gomes, M.M.E. (2004). A Bone tissue engineering strategy based on starch scaffolds and bone marrow cells cultured in a flow perfusion bioreactor. Disertasi Doktor, University of Minho.
- Gibson, L. J. & Asby, M. F. (1988). Cellular solids structure and properties. Pergamon Press.
- Kang, S-J. L. (2005). Sintering: densification, grain growth and microstructure. Amsterdam: John Wiley & Sons.
- Kuo, T. C., Lee B. S., Kang, S. H., Lin, F. H. & Lin, C. P. (2007). Cytotoxicity of DP-bioglass paste used for treatment of dentin hypersensitivity. *Journal of Endodostics*. 33: 451-454.
- Ramay, H. R. & Zhang, M. (2003). Preparation of porous HA scaffolds by combination of the gel-casting and polymeric sponge method. *Biomaterials* 24: 3293-3302.
- Montgomery, D.C. (2013). Design and Analysis of Experiment, 8th Ed. J. Wiley & Sons : New Jersey.
- Oonishi, H., Kushitani, S., Yasukawa, E., Iwaki, H., Hench, L. L., Wilson, J., Tsuji, E. & Sugihara, T. (1997). Particulate bioglass compared with hydroxyapatite as a bone graft substitute. *Clinical Orthopaedics and Related Reasearch*. 334: 316-325.
- Sopyan, I., Fadli, A. & Mel, M. (2012). Porous alumina-hydroxyapatite composites through protein foaming-consolidation method. *Journal of Mechanical Behaviour Biomedical Material*. 8 : 86-98.
- Sopyan, I., Mel, M., Ramesh, S. & Khalid, K. A. (2007). Porous hydroxyapatite for artificial bone applications. *Science and Technology of Advanced Materials*. 8: 116-123.
- Swain, S. K. (2009). *Processing of porous hydroxyapatite scaffold*. Tesis Master. National Institute of Technology Rourkela.