

## Proses Pembuatan dan Karakterisasi Biomaterial *Functionally Graded Material Hydroxyapatite- Sutra Dengan Teknik Pulsa Electric Current Sintering*

Tjokorda Gde Tirta Nindhia

Departemen Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Udayana, Jimbaran, Bali  
e-mail: nindhia@me.unud.ac.id, nindhia@yahoo.com

### Abstrak

Penelitian ini bertujuan memproduksi *functionally graded material (FGM)* dari *hydroxyapatite (Hap)*-sutra, melalui teknik *pulse electric current sintering* untuk memenuhi tantangan kebutuhan akan bahan jenis ini untuk digunakan dibidang biomaterial. Perekat tiap-tiap lapis dari FGM dalam penelitian ini menggunakan lembaran sutra. Target tebal benda uji adalah 1.6 mm dengan diameter 15 mm. Benda uji dibuat dengan menggunakan cetakan berbentuk silinder yang terbuat dari karbon. Benda uji terdiri dari 4 lapis dengan ketebalan sama untuk tiap lapisnya. Diantara tiap-tiap lapis diletakkan lembaran sutera dengan tebal 100  $\mu\text{m}$ . Komposisi lapisan paling bawah adalah 100% sutra, setelah itu 90% sutra+10% Hap untuk lapisan kedua, lapisan ketiga dengan komposisi 80% sutra+20% Hap, dan 70% sutra+30% Hap untuk lapisan paling atas. Prilaku produk FGM ini dikarakterisasikan dengan mikroskop optik, *scanning electron microscope (SEM)*. Uji ketangguhan retak dilakukan dengan *three point bend with single-edge*. Gradasi (*grade*) dari FGM dibuktikan dengan *electron probe micro analyzer (EPMA)*. Ketangguhan retak produk ini adalah 0.651  $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ . Lembaran sutra pada batas tiap lapis dapat menahan perambatan retak dengan baik, sehingga kegagalan secara tiba-tiba dapat dihindari. Benda uji masih dapat menahan beban setelah beban maksimum tercapai. Struktur mikro dari optikal mikroskop dan juga *scanning electron mikroskop* menunjukkan Hap-serat sutra FGM dapat dibuat dengan menggunakan cara yang dikembangkan dalam penelitian ini.

**Kata kunci:** *Hydroxyapatite, sutra, functionally graded material (FGM) dan pulse electric current sintering*

### Abstract

This research was intended to produce *functionally graded material (FGM)* of *Hydroxyapatite (Hap)*-silk fibroin by *pulse electric current sintering* in facing the need in biomaterial application. Silk sheet was utilized as a bound between each layer. The target sample thickness was 1.6 mm with diameter 15 mm. Sample was created by using cylindrical type of carbon die and consisted of 4 layers with the same thickness in which silk film with the thickness of 100  $\mu\text{m}$  was placed between the layers. The composition of lower layer was 100% silk fibroin, second layer was 90% silk fibroin + 10% Hap, third layer was 80% silk fibroin + 20% Hap, and 70% silk fibroin + 30% Hap for the upper layer. The properties of FGM was characterized by optical microscope and *scanning electron microscope (SEM)*. Three point bend with single-edge beam was used for fracture toughness test ( $K_{IC}$ ). The grade of the FGM material was proven by using *electron probe micro analyzer (EPMA)*. The value of fracture toughness was 0.651  $\text{MPa}\cdot\text{m}^{1/2}$ . The silk film in the borders of the sample can arrest the crack perfectly, so that sudden fracture could be avoided. The sample still remained capable supported the load after maximum load was reached. Optical micrograph and SEM indicated that the Hap-silk fibroin FGM could be produced by using the method that was introduced in this research.

**Key words:** *Hydroxyapatite, silk, functionally graded material and pulse electric current sintering*

### 1. Pendahuluan

*Hydroxyapatite* ( $\text{Hap:Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ ) merupakan salah satu bahan yang amat menjanjikan sebagai bahan implantasi karena

memiliki biokompatibilitas dan bioaktif yang baik. Secara struktur kristal dan kimia, sifat-sifat Hap mendekati sifat-sifat yang dimiliki tulang dan gigi. Selain itu Hap dapat langsung terikat dengan jaringan dan

memungkinkan terbentuknya pertumbuhan jaringan. Karena sifat-sifat inilah yang menyebabkan Hap banyak digunakan untuk aplikasi di bidang tulang dan gigi [1]-[3].

Serat sutra memiliki sifat mekanik yang baik, dan diketahui juga bersifat *biocompatible* dan terurai secara lambat (*slow degradability*). Sifat-sifat tersebut menyebabkan serat sutra merupakan bahan biomaterial yang menarik untuk pemakaian di bidang yang berkaitan dengan tulang (*orthopedic*) [4].

Jika bagian-bagian seperti tulang, tendon, atau ligamen mengalami kerusakan atau terserang penyakit yang tidak memungkinkan lagi untuk sembuh dengan sendirinya (*self-repair*), maka pada kondisi seperti ini bahan biomaterial pengganti dibutuhkan untuk membantu proses penyembuhan. Akhir-akhir ini perhatian tertuju pada pengembangan suatu matriks protein sutra yang baru yang memiliki sifat *biocompatible*, kuat secara mekanik, dan dapat didisain untuk mencapai kekuatan mekanik pada spesifikasi tertentu [5]-[7].

Suatu keberadaan khusus yang dimiliki oleh biomaterial adalah terbentuk dari struktur yang memiliki jenjang (*hierarchical structures*), misalnya berjenjang dari suatu struktur atau komposisi ke struktur atau komposisi berikutnya. Contohnya adalah suatu struktur dari tulang berjenjang dari bagian yang padat dan kaku pada bagian luar (*the cortical bone*) menjadi berpori pada bagian dalam. Hal ini menunjukkan bahwa bahwa gradasi fungsional (*functional gradation*) berperan saat adaptasi secara biologis. Struktur yang bergradasi ini meningkatkan respon bahan terhadap pembebanan eksternal. Dengan demikian untuk mengoptimalkan struktur implan buatan maka haruslah dibuat bergradasi sesuai keberadaan dari biomaterial yang sebenarnya [8].

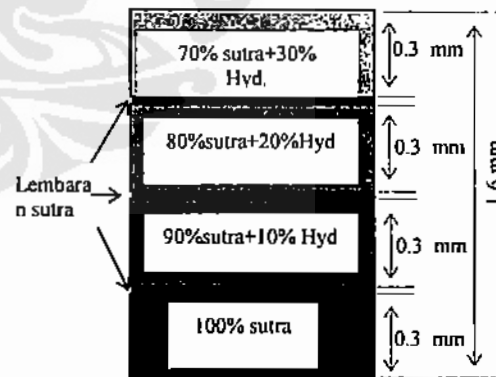
Penelitian ini bertujuan untuk mengembangkan suatu biomaterial *functionally graded material* (FGM) dari bahan Hap dan serat sutra dengan menggunakan lembaran sutra pada lapisan antar muka (*interface*) tiap lapis. Jenis

biomaterial ini dikembangkan untuk dapat digunakan sebagai bahan pengganti (*replacement*) tulang ataupun ligamen.

## 2. Eksperimental

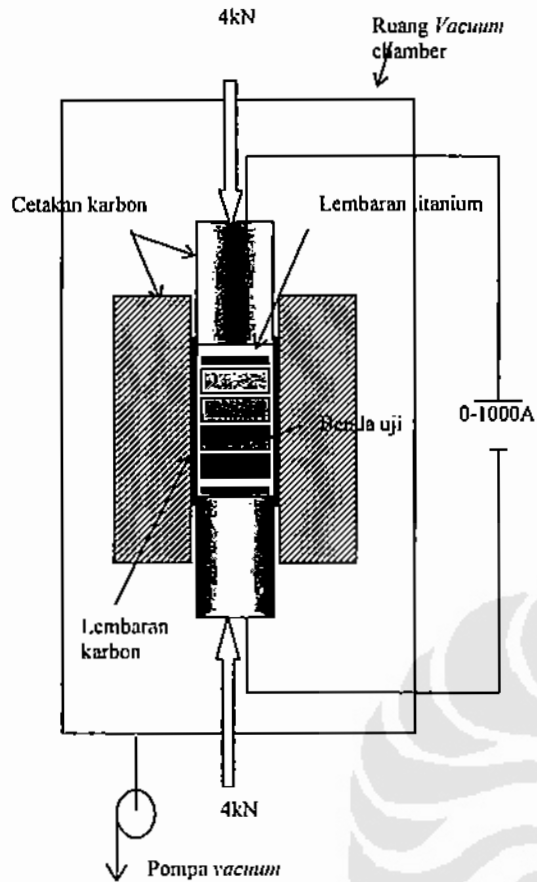
Bahan bahan yang digunakan dalam penelitian ini meliputi serbuk *hydroxyapatite* (Hap) murni dengan ukuran butir 10-30  $\mu\text{m}$  (produk dari Taiheikagaku, Oosakasi Cyuouku, Japan), Serat sutra (produk dari Kanebou, Sigaken Nagahamashi, Japan), dan lembaran sutra dengan ketebalan 100  $\mu\text{m}$  (produk dari NIAS, Japan)

Benda uji terdiri dari 4 lapis dibuat dengan menggunakan cetakan karbon berbentuk silindris. Tebal tiap lapis dibuat sama dan di antara tiap lapis diletakkan lembaran sutra. Komposisi lapis paling bawah (% berat) terbuat dari 100% sutra, dilanjutkan dengan lapisan kedua dengan komposisi 90% sutra+10% Hap. Komposisi lapisan ketiga terdiri dari 80% sutra+20% *hydroxyapatite*. Lapisan paling atas dibuat dengan komposisi 70% sutra + 30% *hydroxyapatite*. Deskripsi dari benda uji dapat diamati pada Gambar 1.



Gambar 1.  
Susunan Benda Uji *Functionally Graded Material* (FGM) *Hydroxyapatite*-Sutra

Benda uji selanjutnya memasuki proses sintering dengan teknik *pulse electric current sintering* (SPS-511L, Japan) sampai mencapai suhu 200°C dengan laju pemanasan 100°C/menit. Gaya yang digunakan untuk menekan adalah 4kN. Susunan peralatan untuk proses *pulse electric current sintering* dapat dilihat pada Gambar 2

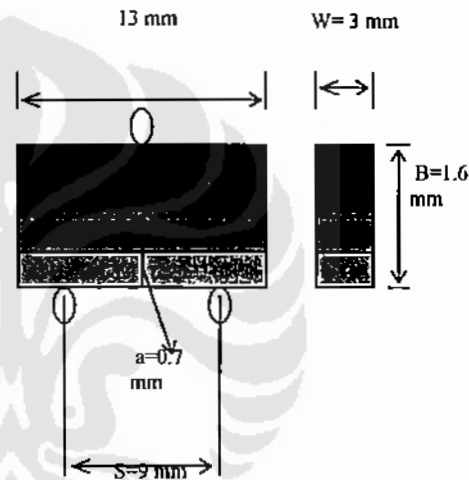


**Gambar 2.**  
Susunan Peralatan Pulse Electric Current Sintering



**Gambar 3.**  
Pengujian Ketangguhan Retak ( $K_{IC}$ ) dengan Uji Tekuk Tiga Titik dengan Retak Tepi Tunggal (*three-point bend with single-edge beam*). Pengujian Dilaksanakan dengan Alat Uji Instron 4204 Buatan Amerika Serikat

Pengujian ketangguhan retak (*fracture toughness*) dilakukan dengan terlebih dahulu memotong benda uji menjadi berbentuk balok segi empat. Benda uji disiapkan untuk pengujian ketangguhan retak dengan 3 titik tekuk dengan retak tepi tunggal (*three point bend with single-edge beam fracture toughness test*) atau  $K_{IC}$ . Pengujian ini dilaksanakan dengan menggunakan mesin Instron 4204 buatan Amerika Serikat (Gambar 3). Retak awal (*initial crack*) disiapkan dengan menggunakan pemotong intan (*diamond cutter*) dengan ketebalan 0.1 mm pada lapisan dengan komposisi 70% sutra+30% *hydroxyapatite* (Gambar 4.)



**Gambar 4.**  
Ukuran Benda Uji untuk Pengujian Ketangguhan Retak ( $K_{IC}$ )

Nilai ketangguhan retak dihitung dengan menggunakan persamaan

$$K_{IC} = \frac{1.5PS}{BW^{3/2}} Y(\alpha)\sqrt{a}$$

$$\alpha = \frac{a}{W}$$

$$Y(\alpha) = \frac{1.99 - \alpha(1 - \alpha)(2.15 - 3.93\alpha + 2.7\alpha^2)}{(1 + 2\alpha)(1 - \alpha)^{3/2}}$$

Dengan P adalah nilai beban maksimum yang dapat ditahan oleh benda uji.

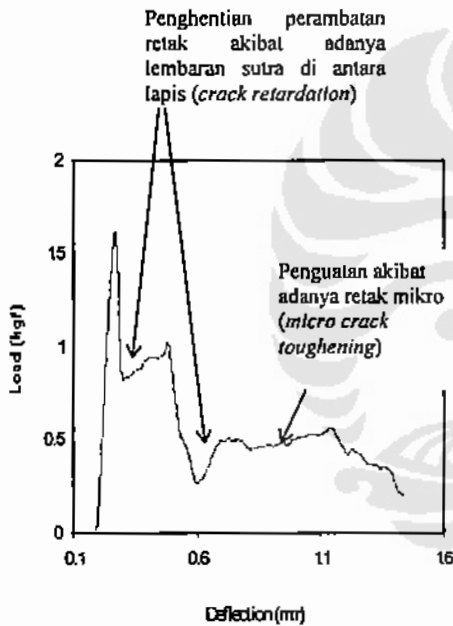
Mikrostruktur diamati dengan menggunakan mikroskop optik, sedangkan

permukaan patahan diamati dengan *scanning electron microscope* (SEM). Adanya gradasi komposisi dibuktikan dengan menggunakan *electron probe micro analyzer* (EPMA).

pula dilihat bahwa lembaran sutra dapat menjaga agar kandungan Hap pada tiap lapis dapat terjaga sehingga tidak bercampur dengan kandungan pada lapisan lainnya.

### 3. Hasil dan Diskusi

Suatu perilaku patah yang unik ditemukan dalam penelitian ini seperti terlihat pada Gambar 5. Nilai ketangguhan retak diperoleh sebesar  $0.651 \text{ Mpa}\cdot\text{m}^{1/2}$ . Lembaran sutra pada lapisan antar muka dapat menahan retak dengan baik sehingga kegagalan tiba-tiba (*sudden fracture*) dapat dihindari. Benda uji masih dapat menahan beban setelah beban maksimum dicapai.

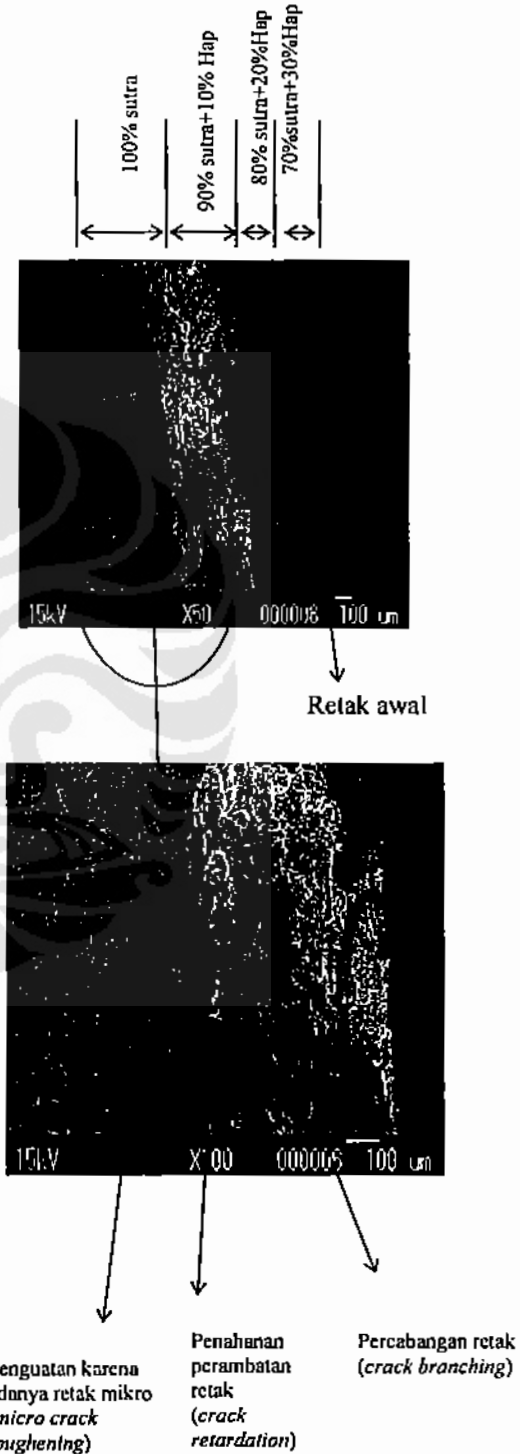


**Gambar 5.**

Gratik Defleksi Terhadap Beban. Tebal Benda Uji Adalah 1.6 mm. Pada Ketebalan ini Keberadaan Lembaran Sutra Dapat Memperlambat Perambatan Retak (*crack retardation*)

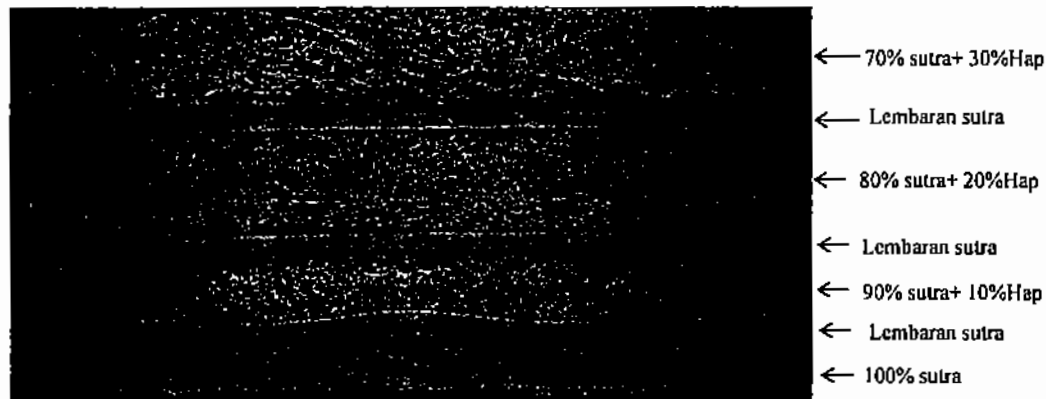
Permukaan patahan seperti tersaji pada Gambar 6, sedangkan potongan melintang dari benda uji dapat diamati pada Gambar 7.

Sesuai dengan namanya yaitu *functionally graded material*, maka kandungan Hap haruslah bergradasi. Adanya gradasi ini dapat dibuktikan dengan *electron probe micro analyzer* (EPMA) seperti tersaji pada Gambar 8. Dari hasil EPMA ini dapat



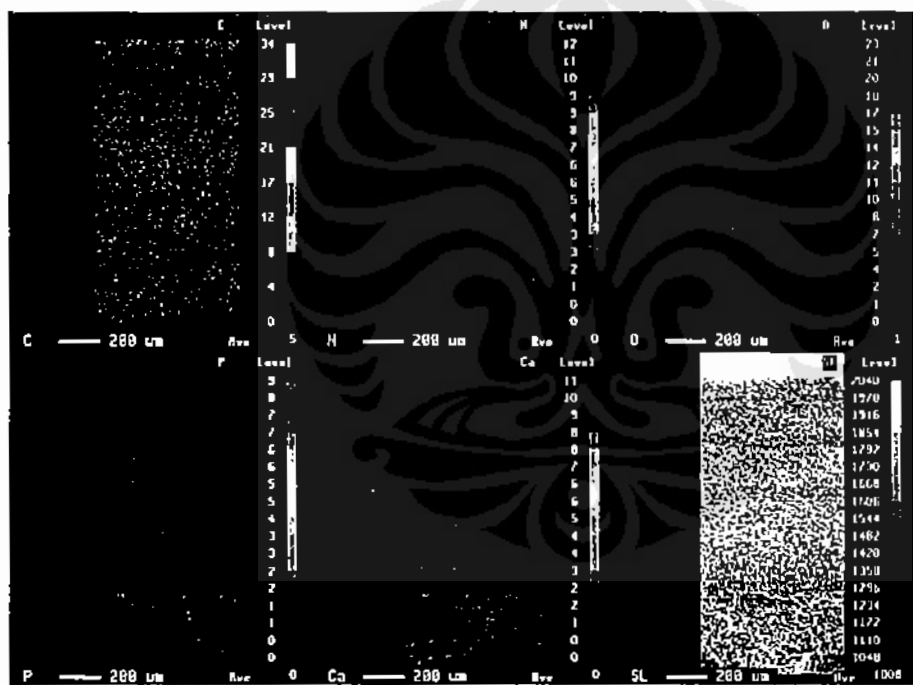
**Gambar 6.**

Permukaan Patahan Benda Uji *Functionally Graded Material* (FGM) dengan Menggunakan Lembaran Sutra



**Gambar 7.**

Foto Struktur Mikro Potongan Melintang Benda Uji *Functionally Graded Material (FGM)*. Gambar Diambil dengan Menggunakan Mikroskop Optik dengan Pembesaran 10x.



**Gambar 8.**

Distribusi Kandungan Utama yang Terdapat dalam Benda uji. Lapisan yang Paling Bawah Adalah 70% sutra+30% Hap, dan lapisan yang paling atas adalah 100% sutra. Kandungan Utama dari Hap adalah Ca dan P. Dapat Dilihat Bahwa Terdapat Banyak Kandungan Ca dan P pada Lapisan Paling Bawah dan Jumlahnya Semakin Berkurang Pada Lapisan di Atasnya

#### 4. Kesimpulan

*Functionally graded material (FGM)* dari *Hydroxyapatite (Hap)*-sutra dengan ketebalan 1.6 mm dengan diameter 15 mm berhasil dibuat dengan menggunakan teknik *pulse electric current sintering* yang dikembangkan dalam penelitian ini. Penggunaan lembaran

sutra dengan ketebalan 100  $\mu\text{m}$  di antara tiap-tiap lapis memberikan kontribusi positif pada ketangguhan retak benda uji.

#### Daftar Acuan

- [1]. Zeming He, J. Ma, Cong Wang, 2005, Constitutive modeling of the

- densification and the grain growth of hydroxyapatite ceramics, *Biomaterials*, 26, 1613–1621
- [2]. Y.W. Gu, N.H. Loh, K.A. Khor, S.B. Tor, P. Cheang, 2002, Spark plasma sintering of hydroxyapatite powders, *Biomaterials*, 23, 37–43
- [3]. Nasser Y. Mostafa, 2005, Characterization, thermal stability and sintering of hydroxyapatite powders prepared by different routes, *Materials Chemistry and Physics*, 94, 333–341
- [4]. Lorenz Meinel, Robert Fajardo, Sandra Hofmann, Robert Langer, Jake Chen, Brian Snyder, Gordana Vunjak-Novakovic, 2005, David Kaplan, Silk implants for the healing of critical size bone defects, *Bone*, 37, 688 – 698
- [5]. Rebecca L. Horan, Kathryn Antle, Adam L. Collette, Yongzhong Wang, Jia Huang, Jodie E. Moreau, Vladimir Volloch, David L. Kaplan, Gregory H. Altman, 2005, In vitro degradation of silk fibroin, *Biomaterials*, 26, 3385–3393
- [6]. Hyoung-Joon Jin, Jingsong Chen, Vassilis Karageorgiou, Gregory H. Altman, David L. Kaplan, 2004, Human bone marrow stromal cell responses on electrospun silk fibroin mats, *Biomaterials*, 25, 1039–1047.
- [7]. Gregory H. Altman, Frank Diaz, Caroline Jakuba, Tara Calabro, Rebecca L. Horan, Jingsong Chen, Helen Lu, John Richmond, David L. Kaplan, 2003, Silk-based biomaterials, *Biomaterials*, 24, 401–416.
- [8]. W. Pompe, H. Worch, M. Epple, W. Friess, M. Gelinsky, P. Greil, U. Hempel, D. Scharnweber, K. Schulte, 2003, Functionally graded materials for biomedical applications, *Materials Science and Engineering*, A362, 40–60.