

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Penggunaan *graft* tulang (*allograft* dan *xenograft*) di Indonesia terus meningkat dari tahun ke tahun. Hal ini disebabkan oleh bertambah luasnya bidang pemakaian *graft* tulang tersebut tidak hanya pada bidang *orthopedik* tetapi juga telah mulai banyak dipakai pada *ophthalmologik* dan *periodontal* (gigi). Selain itu peningkatan pemakaian *graft* juga disebabkan oleh bertambahnya prevalensi penyakit yang memerlukan *graft* tulang. Pada berbagai kasus kerusakan tulang (*bone defect*) seperti kanker tulang, *periodontitis* dan lain sebagainya, sering diperlukan *graft* tulang sebagai pengganti tulang yang rusak. Saat ini *graft* tulang yang banyak digunakan pada bidang ortopedi yaitu *natural bone* antara lain autograft (tulang dari pasien yang sama), *allograft* (tulang dari donor manusia lain) dan *xenograft* (tulang sapi). Autograft mempunyai kelemahan yaitu tulang harus diambil dari bagian tubuh lain pasien yang sama melalui teknik operasi sehingga dapat menimbulkan masalah-masalah klinis, terbatasnya tulang yang ada dan dapat menimbulkan resiko kematian. Sedangkan *allograft* dan *xenograft* dapat menimbulkan reaksi autoimun serta kemungkinan terjadinya transfer penyakit. Pusat Aplikasi Teknologi Isotop dan Radiasi - BATAN telah berhasil membuat beberapa produk *graft* tulang (*Allograft* dan *xenograft*) steril radiasi untuk keperluan klinis, dan hingga saat ini telah digunakan pada beberapa rumah sakit dengan hasil yang memuaskan. *Allograft* merupakan *graft* tulang yang berasal dari donor manusia baik donor hidup maupun donor jenazah. *Xenograft* merupakan *graft* tulang yang berasal dari donor spesies selain manusia, umumnya yang digunakan adalah sapi (Darwis, 2008).

Kendala utama yang dihadapi dalam pengembangan *graft* tulang yaitu sukar untuk mendapatkan donor tulang sehingga ketersediaan ketiga *graft* tersebut sangat terbatas disamping masalah yang telah disebutkan diatas. Oleh karena itu perlu suatu alternatif untuk mengganti *graft* tulang dengan bahan sintetik yang mempunyai sifat menyerupai tulang asli. Hidroksiapatit (HA) dengan rumus kimia

$\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ merupakan salah satu senyawa inorganik penyusun jaringan keras (*hard tissue*) tubuh manusia seperti tulang, gigi, dentin dan lain sebagainya. HA sintetik merupakan material seperti tulang yang mempunyai sifat dapat berikatan dengan tulang secara baik. Beberapa hasil penelitian menyebutkan bahwa HA sintetik berpotensi untuk digunakan sebagai pengganti *graft* tulang (*allograft* dan *xenograft*) dengan sifat biokompatibilitas yang baik terhadap tulang dan gigi. HA telah banyak digunakan sebagai implan biomedik dan regenerasi tulang karena mempunyai sifat bioaktif dan *biodegradable*. Namun HA mempunyai kelemahan yaitu bersifat rapuh, tidak bersifat osteoinduktif, sifat mekanik rendah dan ketidakstabilan struktur pada saat bercampur dengan cairan tubuh atau darah pasien. Penyembuhan tulang pada kasus kerusakan tulang (*bone defect*) merupakan suatu proses yang kompleks dimana diperlukan adanya proses *osteosis* yaitu *osteokonduksi* dan *osteoinduksi*. Untuk meningkatkan proses *osteosis* pada penanganan kerusakan tulang diperlukan suatu bahan yang mempunyai sifat osteoinduksi pada HA sintetik. Salah satu bahan yang mempunyai sifat tersebut adalah kitosan. Selain itu agar tulang sintetik ini tidak mudah rapuh, diperlukan adanya pencampuran dengan senyawa yang bersifat elastis seperti *polivinil alcohol* (Darwis, 2008).

Kitosan [poli(1,4),- β -Dglukopiranosamin] merupakan polimer alam jenis polisakarida, berantai linear merupakan turunan dari kitin, berasal dari ekstraskeliton antropoda (Jones, 2006). Kitosan memiliki karakteristik *bioresorbabel*, *biokompatibel*, *non-toksik*, *non-antigenik*, *biofungsional* dan *ostekonduktif*. Karakter *ostekonduktif* yang dimiliki kitosan dapat mempercepat pertumbuhan *osteoblas* pada komposit Hidroksiapatit-kitosan sehingga dapat mempercepat pembentukan mineral tulang (Istifarah, 2012). Kitosan memiliki kelarutan yang tinggi pada asam lemah dan hidrofilitas yang tinggi didasarkan pada adanya gugus amino dan hidroksil di kerangka kitosan. Sifat kitosan tersebut berdampak pada sifat mekanik yang lemah (Piluharto, 2017).

Dilakukan modifikasi dengan menambahkan polimer sintetik untuk mengatasi kekurangan kitosan. Polivinil alkohol (PVA) adalah salah satu polimer yang digunakan sebagai material *blending* untuk kitosan untuk meningkatkan

kestabilan termal dan mekanik. Sifat-sifat PVA seperti mudah larut dalam air, kestabilan mekanik dan fleksibel, mudah dibentuk menjadi film dan tidak beracun, menjadi dasar pilihan penggunaan PVA untuk aplikasi di dunia medis, kosmetik dan pertanian (Piluharto, 2017). Pencampuran kitosan dan polimer sintetis PVA bertujuan untuk mengatasi kekurangan membran kitosan yang kurang fleksibel, kaku dan rapuh jika dalam kondisi basah.

Karakteristik bioaktif (kemampuan untuk membentuk ikatan kimia langsung dengan jaringan disekitar material) merupakan hal yang penting dalam biomaterial. Dilakukan pengembangan lebih lanjut dengan membuat komposit keramik/polimer, dimana sifat bioaktif dari partikel keramik dapat menempel pada matriks *biodegradabel* polimer. Komposit tersebut diketahui memiliki bioaktivitas dan bisa memperbaiki sifat mekanik membran jika dibandingkan dengan individual polimer. Salah satu jenis keramik yang sering digunakan adalah hidroksiapatit (Warastuti, 2014).

Hidroksiapatit (HA) memiliki sifat bioaktif terhadap jaringan tubuh dan dapat berfungsi bersamaan dengan jaringan tubuh. Struktur kimia dari hidroksiapatit memiliki kesamaan dengan mineral jaringan tulang dan gigi sehingga dapat berikatan secara kimiawi dengan tulang dan gigi.

Hidroksiapatit merupakan material dengan struktur yang terdiri dari ion kalsium, fosfor, dan hidroksil ($\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$) yang sering diaplikasikan sebagai pengganti mineral jaringan tulang. Berguna dalam pemanfaatan biologis karena kemampuannya untuk memungkinkan terjadinya *osteointegrasi* yang sempurna, tidak adanya toksisitas lokal dan sistemik, dan tidak ada aktivitas *genotoksik* pada sistem biologis tubuh (Arboleda, 2016). Sekitar 65% fraksi mineral di dalam tulang manusia tersusun atas hidroksiapatit. Hidroksiapatit telah dipergunakan secara luas untuk memperbaiki, mengisi, menambahkan dan merekonstruksi ulang jaringan tulang dan gigi yang telah rusak dan juga di dalam jaringan lunak (Putri, 2015). Sifat-sifat ion kalsium (Ca^{2+}) pada hidroksiapatit dapat mengubah ion-ion logam berat yang beracun dan memiliki kemampuan yang cukup baik dalam menyerap unsur-unsur kimia organik dalam tubuh serta memiliki sifat *biokompatibilitas* dan *bioaktivitas* yang baik juga (Suzuki, 1993).

Hidroksiapatit mempunyai kelemahan yaitu bersifat rapuh, tidak bersifat *osteoinduktif*, sifat mekanik rendah dan ketidakstabilan struktur pada saat bercampur dengan cairan tubuh atau darah manusia. Penyembuhan tulang pada kasus kerusakan tulang (*bone defect*) merupakan suatu proses yang kompleks dimana diperlukan adanya proses *osteosis* yaitu *osteokonduksi* dan *osteoinduksi*. Untuk meningkatkan proses *osteosis* pada penanganan kerusakan tulang diperlukan suatu bahan yang mempunyai sifat *osteoinduksi* pada hidroksiapatit sintetik. Salah satu bahan yang mempunyai sifat tersebut adalah kitosan. (Darwis, 2008). Untuk itu hidroksiapatit cocok dicampurkan dengan kitosan.

Rasid (2017) telah mensintesis biokomposit Hidroksiapatit untuk aplikasi material *Bone filler*. Kitosan digunakan dalam pembuatan Hidroksiapatit sebagai pembalut porus, sementara bahan dasar yang digunakan adalah tulang sapi dengan penguat *shellac*. Hasil yang didapat adalah sifat mekanik dari Hidroksiapatit meliputi kuat tekan dan kekerasan mengalami penurunan tiap penambahan kitosan. Nilai uji kekerasan yang tertinggi didapat dari sampel Hidroksiapatit/*shellac*/Kitosan dengan variasi 70:30 yaitu sebesar 7.47 VHN, dan terendah terdapat pada sampel Hidroksiapatit/*shellac*/Kitosan dengan variasi 30:70 yaitu sebesar 3.73 VHN. Pada uji kuat tekan, nilai tertinggi juga didapat pada sampel dengan variasi kitosan yang paling sedikit yaitu sampel 70:30 dengan nilai 36.66 kPa dan nilai terendah terdapat pada sampel 70:30 yaitu sebesar 13.90 kPa.

Warastuti (2015) mensintesis membran Hidroksiapatit untuk aplikasi biomaterial dengan variasi persentase Hidroksiapatit. Bahan dasar Hidroksiapatit yang digunakan adalah tulang sapi sebagai sumber biologi. Penelitian Warastuti juga menggunakan kitosan sebagai pengikat atau *binding agent* dan penambahan polimer sintetis polivinil-alkohol (PVA). Pencampuran kitosan dengan polimer PVA bertujuan untuk memperbaiki sifat mekanik dari membran kitosan yaitu kaku atau kurang fleksibel dan rapuh pada kondisi basah. Terdapat interaksi antarmolekul spesifik antara PVA dan kitosan dalam campuran, sehingga campuran PVA/kitosan memiliki sifat mekanik yang baik. Hasil uji mekanik yang didapat dari sintesis Tulang sapi/Kitosan/PVA ini adalah semakin tinggi

persentase konsentrasi dari serbuk Hidroksiapatit, maka karakterisasi kuat tarik dan nilai perpanjangan putus semakin rendah. Nilai kuat tarik dan perpanjangan putus tertinggi didapat dari sampel M4-321 dengan persentase PVA 3%, Kitosan 2% dan Hidroksiapatit tulang sapi 1% yaitu 7.5-8 MPa dan 165-215%. Nilai terendah didapat dari sampel M6-325 dengan persentase PVA 3%, Kitosan 2% dan Hidroksiapatit 5% yaitu 3-5 MPa dan 90-190%. Untuk karakterisasi elastisitas modulus young nilai tertinggi didapat dari sampel M4-321 dengan konsentrasi Hidroksiapatit 1% yaitu 3-5 MPa.

Sintesis hidroksiapatit membutuhkan kalsium yang cukup tinggi sebagai sumber biologis. Salah satu bahan yang memiliki sumber kalsium dalam jumlah besar adalah batu kapur. Batu kapur merupakan mineral anorganik dengan zat penyusun utama berupa kalsium. Kandungan kalsium karbonat (CaCO_3) pada batu kapur sekitar 95% dan kandungan kalsium karbonat pada batu kapur dapat dimurnikan untuk mendapatkan kalsiumnya. Dengan begitu, batu kapur dapat diaplikasikan langsung pada berbagai aplikasi seperti klinis, medis, untuk pengembangan biomaterial dan sangat cocok di aplikasikan pada Hidroksiapatit.

Margareta (2015) telah di sintesis Hidroksiapatit berbasis batu kapur menggunakan metode hidrotermal dengan variasi pemanasan dan pH. Hasil yang didapat dari karakterisasi XRF adalah batu gamping mengandung kalsium murni sebesar 98,2%. Dari Analisis XRD dan XRF didapatkan bahwa score tertinggi dalam pembuatan Hidroksiapatit adalah pada pH 10. Dan dari analisis XRD didapatkan Hidroksiapatit terbaik dengan ukuran kristal lebih kecil pada pemanasan 700°C dengan waktu 3 jam.

Sintesis hidroksiapatit dapat dilakukan dalam beberapa metode diantaranya adalah metode basah, metode kering, presipitasi, sol gel, *mechanochemical*, dan hidrotermal. Pada penelitian ini metode yang digunakan adalah metode presipitasi. Metode presipitasi memiliki tingkat kemurniannya yang sangat tinggi yaitu mencapai 99% (Aziz dkk, 2015).

Pada penelitian Lenita Herawaty (2014) telah di Sintesis Nano Hidroksiapatit Dari Cangkang Tutut (*Bellamyia javanica*) dengan Metode Presipitasi Dan Hidrotermal. Hasil sintesis menggunakan metode pesipitasi

menunjukkan satu fasa HA, sedangkan metode hidrotermal dua fasa yaitu HA dan CaO. Hal ini menunjukkan bahwa dengan metode presipitasi menghasilkan produk HA yang murni. Ukuran partikel pada hasil presipitasi dan hidrotermal berkisar 20–50 nm dan rasio molar Ca/P 1.71 pada metode presipitasi sedangkan dengan metode hidrotermal 2.03. Produk HA yang di sintesis dengan metode presipitasi bentuk partikelnya spherical-poligonal, sedangkan metode hidrotermal menunjukkan bentuk nanorod.

Dari perbandingan penelitian-penelitian yang telah dilakukan maka pada penelitian ini akan disintesis dan dikarakterisasi membran komposit hidroksiapatit berbahan dasar batu kapur dengan penambahan kitosan polimer PVA. Sintesis hidroksiapatit batu kapur dilakukan dengan metode presipitasi kemudian Serbuk hidroksiapatit di karakterisasi dengan uji FTIR dan XRD. Pembuatan membran dilakukan dengan penambahan kitosan dan PVA dengan variasi hidroksiapatit. Kemudian membran hidroksiapatit dikarakterisasi dengan uji tarik dan uji SEM.

Berdasarkan uraian diatas maka penulis akan melakukan penelitian dengan judul **“Pembuatan dan Karakterisasi Komposit Hidroksiapatit Batu Kapur Sebagai Aplikasi Graft Tulang Sintetis”**.

1.2 Batasan Masalah

Berdasarkan identifikasi masalah pada latar belakang, maka penulis membatasi ruang lingkup masalah, yaitu sebagai berikut :

1. Metode yang digunakan untuk membuat serbuk Hidroksiapatit batu kapur adalah metode presipitasi atau pengendapan basah.
2. Metode yang digunakan untuk membuat membran hidroksiapatit adalah metode *film casting* dengan penguapan pelarut.
3. Karakterisasi yang dilakukan pada serbuk Hidroksiapatit batu kapur adalah uji XRD dan FTIR.
4. Variasi konsentrasi serbuk Hidroksiapatit yang dibuat adalah 0%, 1%, 2%, 3% dan 4% .
5. Perbandingan persentase PVA-Kitosan adalah 70:30%.
6. Karakterisasi yang dilakukan pada membran komposit Hidroksiapatit adalah SEM dan Uji Tarik.

1.3 Rumusan Masalah

Adapun rumusan masalah dari penelitian ini adalah :

1. Bagaimana karakteristik serbuk hidroksiapatit batu kapur pada uji FTIR dan XRD ?
2. Bagaimana karakteristik sifat mekanik membran komposit hidroksiapatit batu kapur-kitosan-PVA pada uji tarik ?
3. Bagaimana karakteristik morfologi membran komposit hidroksiapatit batu kapur-kitosan-PVA pada SEM ?

1.4 Tujuan Penelitian

Adapun tujuan dari penulisan proposal ini adalah :

1. Untuk mengetahui karakteristik serbuk hidroksiapatit batu kapur pada uji FTIR dan XRD.
2. Untuk mengetahui karakteristik sifat mekanik membran komposit batu kapur-khitosan-PVA pada uji tarik
3. Untuk mengetahui karakteristik morfologi membran komposit batu kapur-khitosan-PVA pada SEM.

1.5 Manfaat Penelitian

Manfaat yang diharapkan dari penelitian ini adalah :

1. Memberikan informasi pemanfaatan batu kapur sebagai biomaterial Hidroksiapatit yang dapat dimanfaatkan untuk aplikasi *graft* tulang sintetis.
2. Memberikan informasi komposisi Hidroksiapatit batu kapur terbaik untuk aplikasi *graft* tulang sintetis.
3. Dapat digunakan sebagai acuan untuk penelitian selanjutnya.