

# Pengaruh lama maturasi pada sintesis biokeramik komposit CaO-TiO<sub>2</sub> terhadap ukuran kristal, mikrostruktur dan kekerasan

M Farid Khoirul Alim, Hartatiek\*, Chusnana Insjaf Yogihati

Universitas Negeri Malang, Jl. Semarang No. 5 Malang, Jawa Timur, Indonesia

\*Penulis korespondensi, Surel: hartatiek.fmipa@um.ac.id

Paper received: Paper received: 01-01-2022; revised: 15-01-2022; accepted: 31-01-2022

## Abstrak

Perkembangan Ilmu Pengetahuan dan Teknologi (IPTEK) akhir-akhir ini mendorong banyaknya inovasi dalam dunia medis terutama penggunaan biomaterial sebagai implan pengganti tulang dan gigi, salah satunya bahan tersebut adalah biokeramik komposit CaO-TiO<sub>2</sub>. Bahan biokeramik komposit CaO-TiO<sub>2</sub> dapat digunakan untuk memperbaiki bagian tubuh yang rusak terutama sebagai implan gigi, penyambung tulang, struktur penahan katup jantung, dan pengganti tulang tengkorak. Paduan antara CaO-TiO<sub>2</sub> memiliki beberapa keuntungan diantaranya memiliki biokompatibilitas yang baik, dapat tumbuh serta berkembang bersama-sama dengan tulang asli serta memiliki ketahanan mekanik yang baik. Berdasarkan paparan di atas, tujuan dari penelitian ini adalah mengetahui pengaruh lama maturasi pada biokeramik komposit CaO-TiO<sub>2</sub> dengan metode kopresipitasi terhadap kristalinitas, mikrostruktur, dan kekerasan. Pada penelitian ini bahan dasar yang digunakan adalah CaO yang berasal dari batuan kapur alam yang diambil dari pantai Balekambang Kabupaten Malang dan TiO<sub>2</sub> dengan kemurnian 99%. Sampel dilarutkan dalam aquades dan distirer selama 15 jam pada suhu 70°C. Lama maturasi divariasi mulai dari 12, 24, 36, 48, dan 60 jam, diannealing pada suhu 100°C selama 24 jam dan disintering selama 4 jam pada suhu 1100°C. Sampel dikarakterisasi ukuran kristal, mikrostruktur, dan kekerasan, dengan menggunakan XRD, SEM, dan Micro Vickers Hardness. Hasil analisis CaO-TiO<sub>2</sub> menunjukkan kecocokan dan keberhasilan sintesis dengan model pembandingan CaO-TiO<sub>2</sub> dari Inorganic Crystal Structure Database (ICSD) dengan nilai score diatas 50. Berdasarkan perhitungan teoritik yang dilakukan dengan menentukan nilai FWHM (Full Width at Half Maximum) dari pola difraksi sampel yang kemudian digunakan pada formula scherrer, diperoleh hasil peningkatan ukuran kristal yang bervariasi terhadap lama maturasi komposit CaO-TiO<sub>2</sub> dengan besar antara 45,06 nm-70,85 nm. Dengan meningkatnya ukuran kristal terhadap lama maturasi maka akan disertai oleh peningkatan ukuran butir, sehingga semakin sedikit jumlah pori-pori yang terbentuk pada bahan yang ditunjukkan oleh menurunnya nilai luas fraksi pori sebesar 4,97% pada lama maturasi 12 jam menjadi 4,79% pada lama maturasi 60 jam. Dengan semakin kecilnya nilai fraksi total pori maka semakin besar kekerasan dari bahan tersebut, hal ini ditunjukkan dengan nilai kekerasan tertinggi diperoleh pada lama maturasi 60 jam sebesar 497,2 MPa.

**Kata kunci:** maturasi, CaO-TiO<sub>2</sub>; ukuran kristal; mikrostruktur; kekerasan.

## 1. Pendahuluan

Perkembangan Ilmu Pengetahuan dan Teknologi (IPTEK) akhir-akhir ini mendorong banyaknya inovasi dalam dunia medis terutama penggunaan biomaterial sebagai implan pengganti tulang dan gigi. Biomaterial dalam golongan ini sering disebut sebagai biokeramik (Dorozkhin, 2010; Tathe, dkk., 2010; Respati, 2010). Kebutuhan akan suatu material yang *biocompatibility*, *bioactivity*, dan *osteointegration* dalam bidang ortopedi mendorong kemajuan teknologi untuk menciptakan banyak kemungkinan penggunaan perangkat biomedis dan implan (Marcelo, dkk, 2006; Sopyan, 2003). Menurut Omar (2007), menyatakan bahwa bahan biokompatibel diterapkan sebagai pengganti tulang dan jaringan tubuh manusia. Pemilihan bahan yang biokompatibel sebagai implan pengganti tulang maupun gigi sangatlah penting, dikarenakan bahan yang biokompatibel memiliki kemungkinan kecil

terjadi penolakan oleh tubuh manusia serta material ini memiliki sifat tidak beracun, tidak mengandung zat karsinogik, tidak menyebabkan alergi, tidak menyebabkan radang, dan tahan lama sehingga aman bagi tubuh manusia.

Kalsium oksida merupakan material anorganik yang penting karena memiliki banyak keuntungan yaitu memiliki aktivitas yang tinggi, tahan lama, harga murah serta memiliki kekuatan basah yang tinggi (Liu, dkk., 2008). Kalsium erat kaitannya dengan pembentukan tulang dan gigi. Selain itu, kalsium sangat penting dalam pengaturan jumlah besar aktivitas sel, fungsi saraf dan otot, kerja hormon, pembekuan darah, dan mobilitas seluler. Sifat mekanik CaO yang mudah rapuh perlu ditambahkan bahan biokeramik jenis bioinert yaitu titanium dioksida ( $\text{TiO}_2$ ).

Titanium dioksida ( $\text{TiO}_2$ ) merupakan salah satu bahan yang penting dalam pembuatan implan permanen dalam bidang bedah ortopedi dan gigi. Titanium dioksida mempunyai sifat dapat menstabilkan organ dan mudah menyatu dengan tulang manusia (Mitsionis, dkk., 2011; Thangavelu, dkk., 2013).  $\text{TiO}_2$  memiliki sifat biomekanis dan biokompatibilitas yang lebih baik dari logam lainnya. Secara biologi  $\text{TiO}_2$  memiliki sifat inert dan memiliki ketahanan korosi yang cukup tinggi. Hasil penelitian yang dilakukan oleh Lindahl (2012) menunjukkan bahwa titanium dioksida mempunyai sifat biokompatibilitas yang tinggi dan disarankan sebagai bahan pengganti tulang atau implan.

Bahan yang memiliki biokompatibilitas belum tentu memiliki sifat bioaktif. Suatu bahan dikatakan bioaktif jika tidak hanya memberikan *osteoconductive* tapi juga mampu memberikan *osteoinductive*.  $\text{TiO}_2$  memiliki sifat biokompatibilitas yang baik, akan tetapi  $\text{TiO}_2$  kurang bioaktif sehingga dapat mengurangi *osteointegrasi* tulang dengan bahan implan. Sebagai solusi permasalahan tersebut, paduan antara CaO- $\text{TiO}_2$  diharapkan mendapatkan *osteointegrasi* yang baik dan menjadi bioaktif sehingga menghasilkan bahan implan yang baik.

Faktor pendorong penggunaan kalsium oksida dan titanium dioksida seperti Hydroxyapatit (HA) sebagai bahan pengganti tulang adalah kemiripan kimianya dengan komponen bahan tulang dan gigi manusia sehingga bersifat tidak beracun, biokompatibel, tidak dianggap sebagai bahan asing oleh tubuh, dan bersifat bioaktif serta terpadu dalam jaringan hidup dengan proses aktif yang sama seperti dalam tulang sehat (Dorozhkin, 2010).

Salah satu metode sintesis adalah metode kopresipitasi (*wet chemical methode*). Kopresipitasi adalah merupakan salah satu metode sintesis senyawa anorganik yang didasarkan pada pengendapan lebih dari satu substansi secara bersama-sama ketika melewati titik jenuhnya. Pembentukan kristal campuran terjadi selama proses pengendapan. Setelah endapan kristalin terbentuk untuk meningkatkan kemurnian, maka endapan disaring kemudian dikeringkan.

Dalam penelitian ini sintesis biokeramik komposit CaO- $\text{TiO}_2$  menggunakan metode kopresipitasi. Keuntungan menggunakan metode kopresipitasi adalah teknik yang dilakukan secara sederhana karena prosesnya menggunakan suhu rendah serta peluang terkontaminasi selama pemrosesan sangat rendah. Selain itu, proses basah sendiri memiliki keuntungan yakni partikel yang dihasilkan lebih halus daripada proses kering (Omar, 2007).

Dalam sintesis biokeramik komposit menggunakan metode kopresipitasi diperlukan maturasi (*aging*) yaitu proses pemeraman yang bertujuan untuk membuat bahan homogen

dan membuat butir lebih halus. Proses maturasi pada metode kopresipitasi sangat mempengaruhi ukuran partikel dari material yang akan disintesis (Rahmawati, dkk., 2012). Selama proses maturasi (*aging*) maka terjadi perubahan ukuran butir, bentuk, homogenitas dan kekerasannya sehingga akan mempengaruhi pertumbuhan kristal dan pertumbuhan butir pada waktu sintering. Hal ini secara tidak langsung akan mempengaruhi ukuran kristal, mikrostruktur, dan kekerasan hasil sintesis biokeramik komposit CaO-TiO<sub>2</sub>.

## 2. Metode

### 2.1. Tahap Persiapan

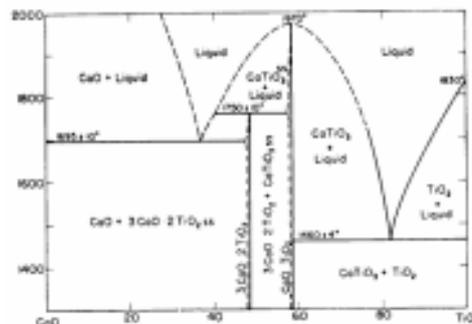
Semua bahan yang dibutuhkan dalam penelitian dipersiapkan. Ukuran serbuk dari bahan baku penelitian seperti batu kapur mentah (CaCO<sub>3</sub>) diusahakan homogen, dengan cara diayak dengan ayakan mesh #200 terlebih dahulu. Kalsinasi pada suhu 1000 °C selama 1 jam dilakukan untuk menghilangkan kadar CO<sub>2</sub> dari serbuk batuan kapur (CaCO<sub>3</sub>), sehingga diperoleh serbuk kalsium oksida (CaO).

### 2.2. Tahap Pembuatan

Proses ini merupakan proses dimana komposit CaO-TiO<sub>2</sub> dibuat dengan metode presipitasi. Langkah-langkah sintesis komposit CaO-TiO<sub>2</sub> yang dilakukan adalah:

- 2.2.1. Menentukan persentase massa pada komposisi komposit CaO-TiO<sub>2</sub> dengan melihat diagram fasenya.

**Gambar 1 Diagram Fase Sistem CaO-TiO<sub>2</sub>**



Dari diagram fase tersebut, komposit CaO TiO<sub>2</sub> terbentuk pada persentase massa dengan perbandingan 42% : 58%. Apabila massa tiap sampel sebesar 1 gram maka massa masing-masing bahan per sampel sebagai berikut.

$$\text{massa CaO} = 42\% \times 1 \text{ gram} = 0,42 \text{ gram} \quad \text{massa TiO}_2 = 58\% \times 1 \text{ gram} = 0,58 \text{ gram}$$

- 2.2.2. Mencampurkan CaO dan TiO<sub>2</sub> yang telah ditimbang ke dalam gelas kimia berukuran 200 ml, ditambahkan aquades sampai penuh dan diaduk menggunakan magnetik stirrer dengan kecepatan putaran 500 rpm pada suhu 70 °C selama 15 jam.
- 2.2.3. Selanjutnya larutan diendapkan selama 12, 24, 36, 48 dan 60 jam.
- 2.2.4. Endapan disaring menggunakan kertas saring dan diangin-anginkan pada suhu ruang hingga bahan mengering selama 24 jam.
- 2.2.5. Annealing pada suhu 100 °C selama 24 jam, yang bertujuan menghilangkan kadar H<sub>2</sub>O.

### 2.3. Tahap Karakterisasi

Karakterisasi untuk ukuran kristal menggunakan uji XRD. Sedangkan morfologi ditentukan melalui uji SEM. Untuk pengujian kekerasan (hardness) dilakukan dengan alat vickes hardness dengan mengukur dalamnya indentasi.

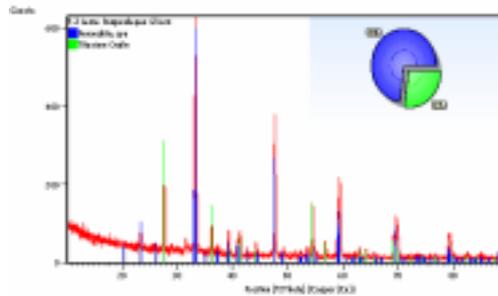
## 3. Hasil dan Pembahasan

### 3.1. Data Hasil Uji XRD komposit CaO-TiO<sub>2</sub>

Adanya perbedaan lama maturasi yang diberikan memberikan pola difraksi yang berbeda. Dari pengujian XRD pada variasi lama maturasi 12, 24, 36, 48 dan 60 jam, diperoleh pola difraksi sebagai berikut.

**Gambar 2 Pola XRD nano-HAp dengan lama maturasi 12 jam.**

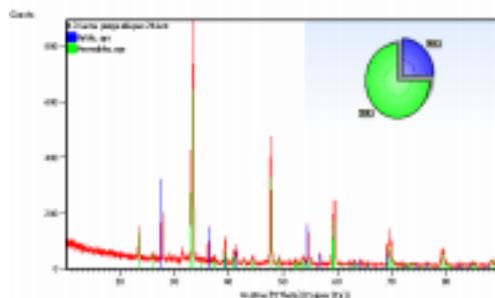
#### Pattern List



Visible Ref.Code	Score	Compound Name	Displ.[°2Th]	Scale	Fac.	Chem. Formula
* 01-089-6949	62	Calcium Titanium O.	0.120	0.734		Ca (Ti O <sub>3</sub> )
* 01-076-1939	67	Titanium Oxide	0.241	0.358		Ti O <sub>2</sub>

**Gambar 3 Pola XRD nano-HAp dengan lama maturasi 24 jam.**

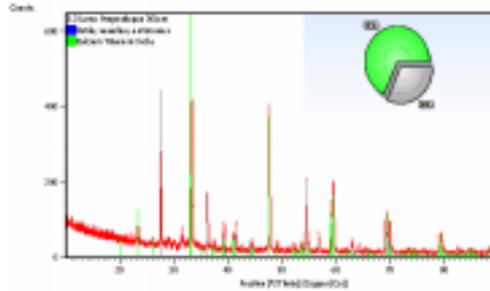
#### Pattern List



Visible Ref.Code	Score	Compound Name	Displ.[°2Th]	Scale	Fac.	Chem. Formula
* 01-089-8300	65	Titanium Oxide	0.160	0.302		Ti O <sub>2</sub>
* 00-022-0153	59	Calcium Titanium O.	0.119	0.644		Ca Ti O <sub>3</sub>

**Gambar 4 Pola XRD nano-HAp dengan lama maturasi 36 jam.**

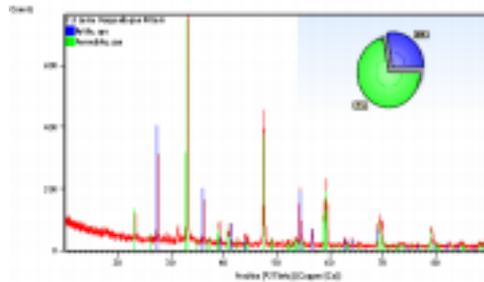
**Pattern List**



Visible Ref.Code Score Compound Name Displ.[°2Th] Scale Fac. Chem. Formula  
\* 01-077-8907 62 Calcium Titanium O.. 0.119 0.860 Ca (Ti O3)  
\* 01-078-4190 61 Titanium Oxide 0.110 0.531 Ti O2

**Gambar 5 Pola XRD nano-HAp dengan lama maturasi 48 jam.**

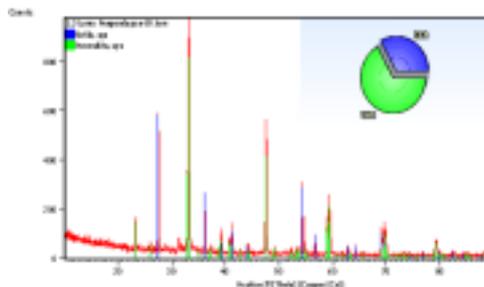
**Pattern List**



Visible Ref.Code Score Compound Name Displ.[°2Th] Scale Fac. Chem. Formula  
\* 01-078-4185 71 Titanium Oxide 0.096 0.384 Ti O2  
\* 00-022-0153 54 Calcium Titanium O 0.037 0.739 Ca Ti O3

**Gambar 6 Pola XRD nano-HAp dengan lama maturasi 60 jam.**

**Pattern List**



Visible Ref.Code Score Compound Name Displ.[°2Th] Scale Fac. Chem. Formula  
\* 01-089-4202 70 Titanium Oxide 0.068 0.503 Ti O2  
\* 00-022-0153 58 Calcium Titanium O.. 0.053 0.727 Ca Ti O3

Pada Gambar 5-6, fase difraksi komposit CaO-TiO<sub>2</sub> dapat disimpulkan sudah cocok dengan model pembanding dari ICSD dengan kode 00-022-0153 dan 01-089-4202. Selain menunjukkan keberhasilan sintesis komposit CaO-TiO<sub>2</sub> pola XRD juga digunakan sebagai penentu ukuran kristal. Ukuran kristal dihitung dengan persamaan *scherrer*, besar ukuran kristal untuk komposit CaO-TiO<sub>2</sub> dapat dilihat pada Tabel 1 berikut.

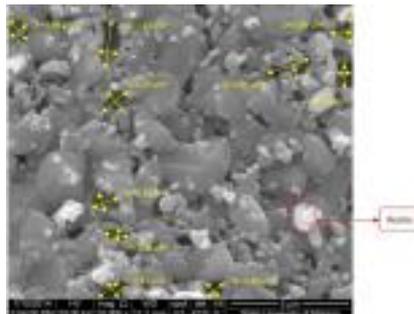
**Tabel 1 Besar Ukuran Kristal Komposit CaO-TiO<sub>2</sub>**

Variasi Lama	Maturasi	Sudut 2θ FWHM (°)	Ukuran Kristal (nm)
12 jam	33,2974	0,1673	49,59
24 jam	33,2768	0,1171	70,85
36 jam	33,3030	0,1506	55,09
48 jam	33,1927	0,1840	45,06
60 jam	33,1956	0,1171	70,79

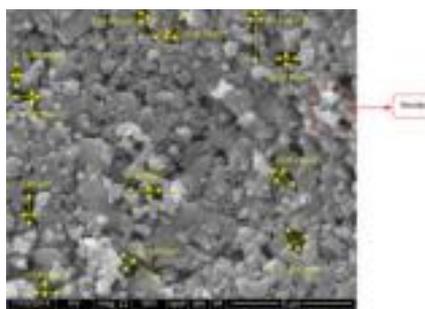
Dengan demikian, dapat disimpulkan bahwa semakin lama waktu maturasi yang diberikan akan cenderung membuat ukuran kristal semakin besar.

### 3.2. Data Hasil Uji SEM

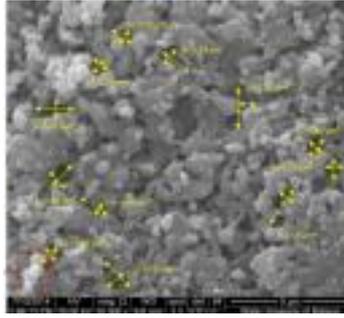
**Gambar 7 Hasil Uji SEM dengan lama maturasi 12 jam**



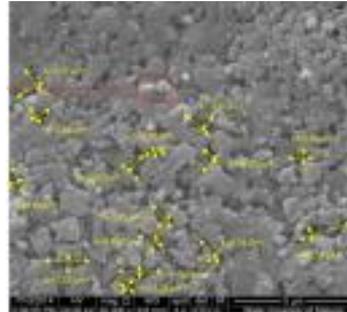
**Gambar 8 Hasil Uji SEM dengan lama maturasi 24 jam**



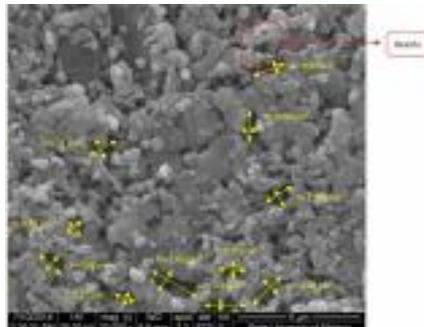
**Gambar 9 Hasil Uji SEM dengan lama maturasi 36 jam**



**Gambar 10 Hasil Uji SEM dengan lama maturasi 48 jam**

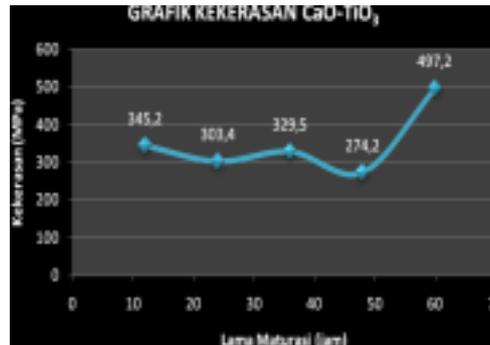


**Gambar 11 Hasil Uji SEM dengan lama maturasi 60 jam**



Pada hasil perhitungan luasan pori pori dan fraksi total pori yang terbentuk menunjukkan kecenderungan bahwa semakin lama waktu maturasi mengakibatkan berkurangnya luasan pori pori dan fraksi pori pori yang terbentuk, dari Gambar 7-11, untuk lama maturasi 12 jam fraksi total pori yang terbentuk adalah 4,97%, untuk lama maturasi 24 jam fraksi total pori yang terbentuk adalah 5,27%, untuk lama maturasi 36 jam fraksi total pori yang terbentuk adalah 5,09%, untuk lama maturasi 48 jam fraksi total pori yang terbentuk adalah 4,67%, untuk lama maturasi 60 jam fraksi total pori yang terbentuk adalah 4,79%,

**Gambar 12 Grafik Sifat Kekerasan komposit CaO-TiO<sub>2</sub>**



Gambar 12 merupakan grafik hubungan antara lama maturasi biokeramik komposit CaO-TiO<sub>2</sub> dengan nilai kekerasan didapatkan kecenderungan bahwa dengan semakin bertambahnya lama maturasi maka akan didapatkan nilai kekerasan cenderung semakin besar. Nilai kekerasan tertinggi secara signifikan didapatkan dengan lama maturasi 60 jam yang berarti lama maturasi paling efektif yang dibutuhkan untuk menghasilkan kekerasan tertinggi secara signifikan pada kisaran waktu maturasi 60 jam. Hal ini disebabkan saat proses maturasi terjadi pertumbuhan butir sehingga jarak antar partikel semakin dekat karena cenderung akan membentuk ikatan yang kuat diantara ukuran butir (interkonektivitas baik) dan mengisi rongga kosong diantara butir sehingga meningkatkan kekerasan. Sedangkan kaitan ukuran kristal terhadap sifat kekerasan juga berkaitan dengan ukuran butir dari bahan. Sebagaimana diketahui bahwa semakin kristalin suatu bahan maka dapat diindikasikan semakin besar pula ukuran butir bahan tersebut jika dibandingkan dengan ukuran butir bahan tersebut saat berfase amorf. Semakin besar ukuran butir, maka semakin sedikit jumlah pori-pori yang ada pada bahan. Dengan semakin kecilnya tingkat porositas maka semakin besar nilai kekerasan dari bahan tersebut.

#### 4. Simpulan

Dari hasil analisis dan pembahasan yang telah dilakukan pada bagian sebelumnya, dapat diambil kesimpulan sebagai berikut.

- 4.1. Berdasarkan hasil uji XRD diketahui bahwa lama maturasi (*aging*) memberikan kecenderungan terhadap semakin besarnya ukuran kristal pada lama maturasi 60 jam sebesar 70,79 nm.
- 4.2. Berdasarkan hasil uji mikrostruktur, lama maturasi memberikan pengaruh pada semakin menurunnya tingkat porositas dengan didukung dengan hasil perhitungan fraksi total pori sebesar 4,79% pada lama maturasi 60 jam.
- 4.3. Lama maturasi juga memberikan pengaruh pada nilai kekerasan. Hal ini berkaitan dengan kesimpulan poin 1 dan 2, yang menyatakan bahwa semakin tinggi lama maturasi maka akan memiliki kecenderungan semakin besar juga ukuran kristalnya dan semakin kecil luasan pori porinya, sehingga mempengaruhi kecenderungan komposit CaO-TiO<sub>2</sub> akan semakin besar pula nilai kekerasannya. Hal ini ditunjukkan dengan besarnya nilai kekerasan pada lama maturasi 60 jam sebesar 497.2 Mpa

## Daftar Rujukan

- Dorozhkin, S. V. (2010). Bioceramics of calcium orthophosphates. *Biomaterials*, 31(7), 1465-1485.
- Lindah, C. (2012). Biomimetic deposition of hydroxyapatite on titanium implant materials (Doctoral dissertation, Acta Universitatis Upsaliensis).
- Liu, X., He, H., Wang, Y., Zhu, S., & Piao, X. (2008). Transesterification of soybean oil to biodiesel using CaO as a solid base catalyst. *Fuel*, 87(2), 216-221.
- Marcelo, T. M., Livramento, V., Oliveira, M. V. D., & Carvalho, M. H. (2006). Microstructural characterization and interactions in Ti-and TiH<sub>2</sub>-hydroxyapatite vacuum sintered composites. *Materials Research*, 9(1), 65-71.
- Mitsionis, A., Vaimakis, T., Trapalis, C., Todorova, N., Bahnemann, D., & Dillert, R. (2011). Hydroxyapatite/titanium dioxide nanocomposites for controlled photocatalytic NO oxidation. *Applied Catalysis B: Environmental*, 106(3-4), 398-404.
- Omar, Z. (2007). Synthesis of hydroxyapatite powders via mechanical activation technique (Doctoral dissertation).
- Rahmawati, A., Noor, I. I., Heru, S., & Samsudin, A. (2012). Sintesis Hydroxyapatite Berukuran Nano dengan Metode Elektrokimia Menggunakan Pulse Direct Current (PDC) sebagai Bioimplant Tulang dan Gigi. *Jurnal Teknik POMITS*, 1(1), 1-4.
- Respati, S. M. B. (2010). Bahan biomaterial stainless steel dan keramik. *Jurnal Ilmiah MOMENTUM*, 6(1).
- Sopyan, I. (2003). Preparation Of Hydroxyapatite Powders For Medicalapplications Via Sol-gel Technique. *Jurnal Sains Materi Indonesia*, 4(2), 46-51.
- Tathe, A., Ghodke, M., & Nikalje, A. P. (2010). A brief review: biomaterials and their application. *International Journal of Pharmacy and Pharmaceutical Sciences*, 2(4), 19-23.
- Thangavelu, K., Annamalai, R., & Arulnandhi, D. (2013). Preparation and characterization of nanosized TiO<sub>2</sub> powder by sol-gel precipitation route. *International Journal of Emerging Technology and Advanced Engineering*, 3(1), 636-639.