

PENGUJIAN DENSITAS DAN *BIODEGRADABLE* MATERIAL *FILAMENT 3D PRINT* BIO-KOMPOSIT BERBAHAN PCL, PLA DAN HIDROKSIAPATIT CANGKANG RAJUNGAN

Ilham Fajar Bagaskara¹, Athanasius Priharyoto Bayuseno¹, Rifky Ismail^{1,2}

¹Departemen Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Diponegoro

²Center for Biomechanics Biomaterial Biomechatronics and Biosignal Processing, Universitas Diponegoro

Jl. Prof. H. Soedarto, SH, Tembalang-Semarang 50275, Telp. +62247460059

*Email: rifky_ismail@ft.undip.ac.id

ABSTRAK

Pembuatan filamen biokomposit berbahan PLA, PCL dan hidroksiapatit cangkang rajungan dengan menggunakan alat *single screw extruder* secara keseluruhan berhasil dilakukan. Pembuatan filamen pada penelitian ini menggunakan variasi suhu *preheat* dengan rentang 150°C - 160°C dan suhu *mainheat* dengan rentang 170°C - 180°C. Pada penelitian ini filamen memiliki nilai densitas sebesar 1,24 gr/cm³. Semakin rendah densitas dari filamen juga berpengaruh pada tingkat *biodegradable* filamen yang dihasilkan semakin cepat filamen mengalami degradasi saat perendaman dengan larutan NaCl.

Kata kunci: filamen; *single screw extruder*; *polylactide-acid* (pla); *polycaprolactone* (pcl); hidroksiapatit

ABSTRACT

The manufacture of biocomposite filaments made of PLA, PCL and hydroxyapatite crab shells using a single screw extruder has been successfully carried out. The manufacture of filaments in this study used variations in preheat temperatures in the range of 150°C - 160°C and mainheat temperatures in the range of 170°C - 180°C. In this study, the filament has a density value of 1.24 gr/cm³. The lower the density of the filament also affects the level of biodegradable filament produced, the faster the filament degrades when soaked in NaCl solution.

Keywords: *filament*; *single screw extruder*; *polylactide-acid* (pla); *polycaprolactone* (pcl); *hydroxyapatite* (ha)

1. PENDAHULUAN

Kejadian fraktur di Indonesia sebesar 1,3 juta setiap tahun dengan jumlah penduduk 238 juta, merupakan terbesar di Asia Tenggara. Manajemen fraktur memiliki tujuan reduksi, imobilisasi, dan pemulihan fungsi tulang. Reposisi, reduksi, dan retaining merupakan suatu rangkaian tindakan yang tidak dapat dipisahkan [1]. Bahan stainless steel telah digunakan sekitar satu abad, bahan stainless steel banyak digunakan pada proses implan tulang permanen seperti sendi buatan maupun implan sementara seperti pin, dan skrup yang digunakan untuk fraktur pada tulang. Stainless steel yang digunakan adalah AISI 316L yang memiliki kadar karbon rendah sehingga dapat membuatnya lebih tahan terhadap korosi, selain itu stainless steel 316L juga memiliki ductility, dan kekerasan yang baik [2]. Dalam pandangan ilmu material, tulang adalah material komposit polimer termineralisasi, dimana kolagen adalah komponen polimer dan hidroksiapatit adalah komponen keramik. Hidroksiapatit (HA) adalah kalsium fosfat yang secara luas digunakan sebagai biomaterial untuk penggantian tulang. Sebagai serbuk berukuran nano, HA memiliki potensial bioaktif yang lebih tinggi [3].

Biokeramik ini sangat sesuai untuk pengobatan penyakit tulang karena kesamaan kandungan mineral anorganik pada tulang manusia, serta sifat osteokonduktivitas dan biokompatibilitas yang tinggi. HA menjadi menarik karena potensi aplikasi yang luas sebagai *bone filler*, *scaffold bone tissue engineering*, *implan coating*, perbaikan jaringan lunak, dan sistem *drug delivery* [4]. Material HA juga sudah ditinjau mengenai suhu dan efek penahan waktu oleh peneliti sebelumnya [5,6].

Polylactid acid (PLA) diperlukan untuk rekonstruksi dan regenerasi jaringan yang rusak karena mereka bertindak sebagai matriks untuk berkembang biakan sel, pertumbuhan, diferensiasi, dan deposisi matriks ekstraseluler (EMD). Polylactid acid (PLA) merupakan salah satu polimer biocompatible terbaik dan banyak digunakan untuk aplikasi

biomedical saat ini [7]. Polycaprolactone (PCL) merupakan polyester yang bersifat biodegradabel dan biocompatible. PCL merupakan salah satu jenis bahan yang ideal karena tidak beracun. Polycaprolactone (PCL) adalah salah satu bahan polimer yang sering digunakan pada bidang medis, hal ini dikarenakan polycaprolactone (PCL) memiliki sifat biodegradasi yang rendah dan memiliki sifat biocompatible [8]. Polycaprolactone (PCL) dicampurkan dengan polylactid acid (PLA) bertujuan untuk meningkatkan keuletan pada polylactid acid (PLA), Namun, PLA lebih baik dari pada PCL dalam hal *cell adhesion* dan *proliferasi* karena sifat hydrophilic dari PLA, sedangkan PCL memiliki sifat hydrophobic dan no physiological active sehingga tidak terjadi penumbuhan sel saat berkontak dengan sel biologis, oleh ksrns itu PCL ditambahkan untuk meningkatkan sifat physicochemical properties dari PLA[9].

Hidroksiapatit (HA) merupakan biokeramik kalsium fosfat yang memiliki rumus kimia $Ca_{10}(PO_4)_6(OH)_2$ yang sudah sering digunakan sebagai biomaterial pengganti tulang [10]. Hidroksiapatit memiliki kesamaan unsur kimia dan fisika dengan mineral penyusun tulang dan gigi dengan elemen utama berupa kalsium dan fosfor [11]. Hidroksiapatit banyak diaplikasikan secara luas untuk regenerasi tulang, implan tulang dan gigi, serta ortopedi, luasnya aplikasi tersebut tidak terlepas dari sifat penting yang dimiliki oleh hidroksiapatit diantaranya bioresorbabel, osteokonduktif, biocompatible, dan tidak beracun [12].

3D *printing* adalah proses pembuatan sebuah objek dari desain digital melalui penambahan material lapis demi lapis. Teknologi ini memungkinkan dibuatnya sebuah objek tanpa menyisakan material yang tidak digunakan atau terbuang, misalnya tatal atau *chips*. Kelebihan ini menjadikan teknik 3D *printing* lebih ekonomis dari segi penggunaan material. Selain itu, teknik ini mampu membuat objek dengan bentuk yang kompleks tanpa harus membuat cetakan terlebih dahulu. Teknik 3D *printing* juga mampu membuat bentuk internal suatu objek yang sulit dicapai dengan proses konvensional. Dengan kemampuan tersebut, proses pembuatan objek menjadi lebih mudah dan lebih cepat. Istilah 3D *printing* lebih banyak dikenal di kalangan masyarakat awam dikarenakan prinsip kerja dari proses *additive manufacture* ini dipandang merupakan analogi 3D dari *printer* 2D yang umum dijumpai. Metode 3D *print* banyak digunakan saat ini karena lebih cepat, lebih mudah dan lebih terjangkau daripada teknologi fabrikasi sebelumnya [13].

Ekstrusi adalah pengolahan yang bersifat kontinyu melalui proses mixing, kneading, shearing, cooling, dan shaping dengan cara mendorong bahan mentah yang akan diolah keluar melalui lubang cetakan Lebih dari 66% plastik diproses melalui pencetakan injeksi dan ekstrusi, keuntugan dari proses ekstruder adalah pengisian material pada hopper dapat dilakukan secara kontinyu yang dapat mengkompensasi penyusutan material [14]. Sehingga metode 3D print sangat cocok untuk membuat implan tulang dikarenakan kebutuhan setiap pasien penderita fraktur berbeda beda.

Penelitian ini bertujuan mendapatkan suhu *main heat extruder* yang tepat untuk membentuk filamen biokomposit berbahan PLA dan PCL sebagai biopolimer dan HA yang disintesis dari cangkang rajungan sebagai biokeramik menjadi kandidat implan tulang yang bebas dibentuk sesuai kebutuhan pasien serta memiliki sifat biodegradable yang bagus dan sifat mekanik menyerupai tulang manusia.

2. METODOLOGI PENELITIAN

Pada penelitian ini metodologi yang digunakan merupakan 3D *print* menggunakan metode *fused deposition modelling* (FDM), menggunakan filamen biokomposit berbahan *polylactic acid* (PLA), *polycaprolactone* (PCL), dan hidroksiapatit (HA) cangkang rajungan yang diekstrusi menggunakan mesin *home made single screw extruder* dengan suhu *mainheat* dalam rentang 170°C - 180°C dan variasi suhu *preheat* dalam rentang 150°C - 160°C. Setelah itu filamen diprint menggunakan suhu *bed* 50°C dengan kecepatan 60 mm/s, dengan suhu *nozzle* 205°C. Setelah spesimen berhasil diprint dapat dilakukan karakterisasi menggunakan metode uji densitas, dan uji *biodegradable*.

2.1. Ekstrusi Filamen

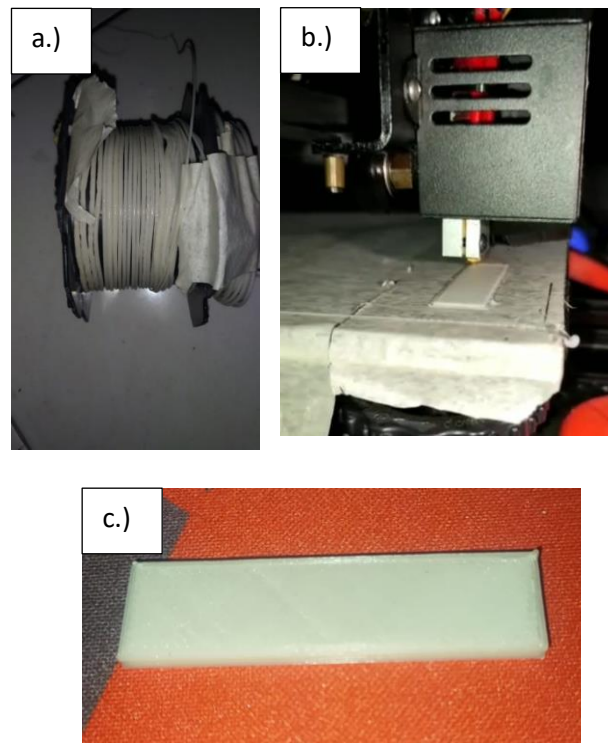
Biokomposit berbahan biopolimer 80-90% PLA, 10-15% PCL, dan 5 wt% HA cangkang rajungan yang sudah dipotong kecil kecil dengan ukuran maksimal 5mm dimasukan kedalam mesin *home made filament extruder*, biokomposit didorong oleh *screw* yang terdapat di dalam *extrude* melewati *nozzle* berdiameter 1,75 mm menjadi bentuk filamen.

2.2 3D Print Spesimen

Filamen yang sudah dihasilkan melalui proses ekstrusi lalu dimasukan ke mesin 3D *printer* melalui *feeder* yang akan mendorong filamen kearah *nozzle*. Selanjutnya spesimen diprint sesuai dimensi ASTM D790. Spesimen diprint menggunakan *pattern rectilinear* dengan suhu *bed* 50°C, kecepatan gerak *nozzle* 60 mm/s, dan *flow* diset sebesar 1,6 mm. Setelah spesimen selesai diprint, spesimen harus didiamkan terlebih dahulu sampai mengeras dan suhunya stabil, hal ini dilakukan untuk menghindari terjadinya deformasi pada proses pengangkatan specimen.

2.3 Karakterisasi Hasil 3D Print

Karakterisasi spesimen hasil 3D *print* bertujuan untuk mengetahui sifat yang dimiliki oleh spesimen melalui pengujian densitas, dan pengujian *biodegradable*. Pengujian dilakukan di Laboratorium Metalurgi Fisik Teknik Mesin Universitas Diponegoro.



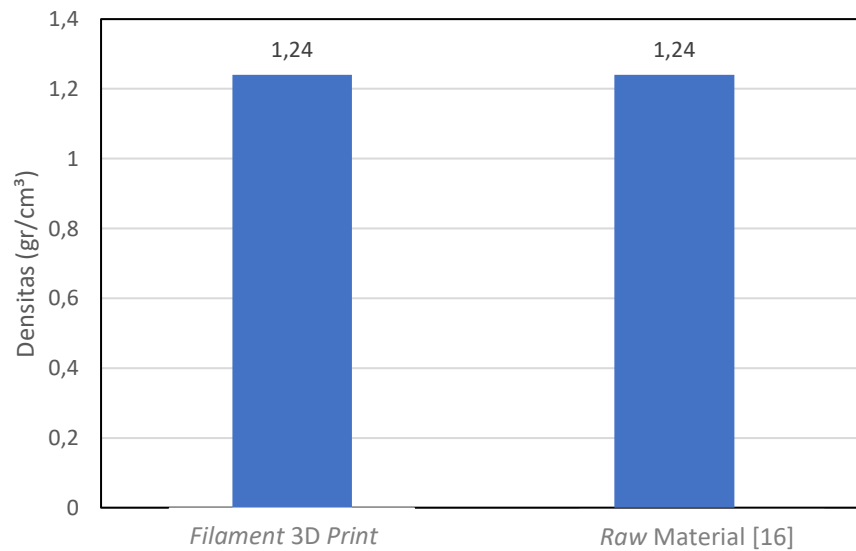
Gambar 1. a.) *Filament* yang dihasilkan, b.) Proses 3d *print* spesimen dari *filament* yang dihasilkan, dan c.) Spesimen setelah melalui proses 3D *print*

3. HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada penelitian ini telah dihasilkan biokomposit berbahan *polylactid-acid* (PLA), *polycaprolactone* (PCL), dan hidroksiapatit hasil sintesis cangkang rajungan menggunakan metode 3D *print*. Variabel yang digunakan dalam penelitian ini adalah pengaruh variasi suhu pada proses ekstrusi terhadap karakterisasi biokomposit yang dihasilkan.

3.1 Pengujian Densitas

Pengujian densitas umumnya dilakukan untuk mengetahui tingkat kerapatan dari suatu benda, pada penelitian ini pengujian densitas dilakukan untuk mengetahui pengaruh proses 3D *print* terhadap biokomposit berbahan *biopolymer* PLA dan PCL serta biokeramik HA.

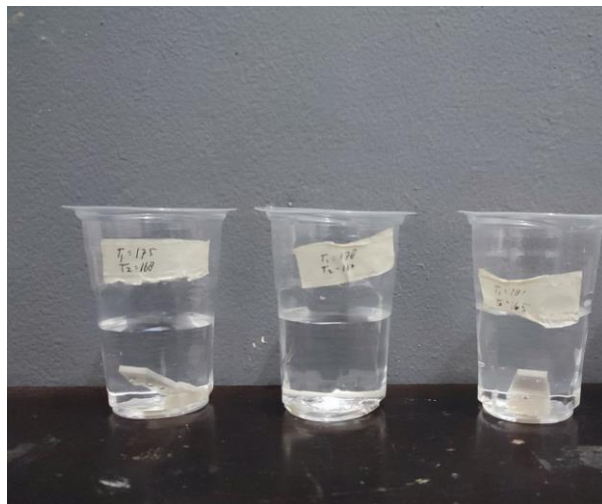


Gambar 2. Grafik hasil pengujian densitas antara *Filament 3D print* Raw Material

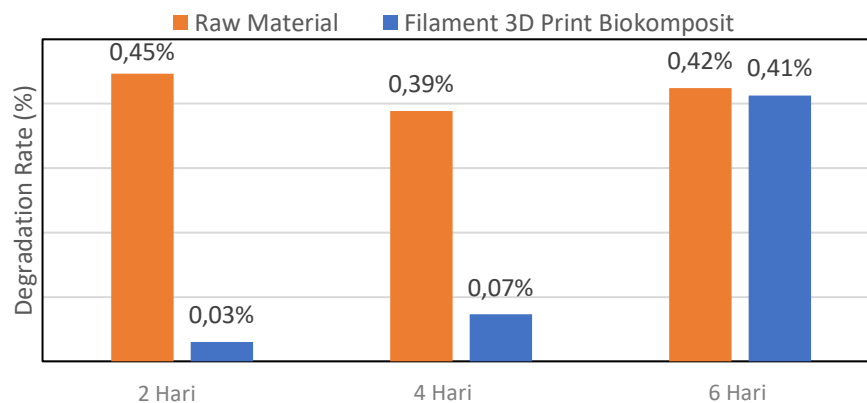
Dapat disimpulkan bahwa perbandingan antara *Raw Material* dengan *Filament 3D Print* tidak ada perubahan, walaupun sudah melalui proses pemanasan saat pembuatan *filament* maupun proses *3D Print*. *Raw Material* didapatkan dari penelitian sebelumnya [18].

3.2 Pengujian *Biodegradable*

Hasil pengamatan tingkat *biodegradable* dari biokomposit dapat dilihat dari berkurangnya berat biokomposit setelah direndam dalam larutan NaCl, pengurangan berat spesimen dihitung dari selisih hasil penimbangan spesimen sebelum perendaman dan setelah perendaman.



Gambar 3. Proses perendaman spesimen menggunakan NaCl



Gambar 4. Grafik hasil pengujian *biodegradable* biokomposit hasil 3D print

Degradation rate dari filamen biokomposit yang sudah direndam menggunakan larutan NaCl. Dimana spesimen yang direndam lebih lama akan memiliki *degradation rate* lebih besar dibandingkan dengan spesimen lainnya [21]. Data yang terdapat pada gambar grafik 4, merupakan perbandingan antara *Raw Material* dengan *filament 3D Print Biokomposit* yang telah diteliti oleh peneliti sebelumnya [18].

4. KESIMPULAN

Filamen yang dihasilkan sudah termasuk kriteria tulang kortikal dan memiliki nilai densitas sebesar $1,24 \text{ gr/cm}^3$ yang sudah termasuk dalam kriteria tulang kortikal manusia. Pada proses pembuatan filamen biokomposit berpengaruh pada *degradation rate* yang dihasilkan.

Pada penelitian ini telah dihasilkan filamen biokomposit berbahan *polylactid-acid* (PLA), *polycaprolactone* (PCL), dan hidroksiapatit hasil sintesis cangkang rajungan dan dapat dicetak dengan menggunakan metode 3D print. Dilihat dari pengujian densitas tidak berpengaruh pada karakteristik material tersebut, yang dimana pada *raw material* memiliki nilai densitas sebesar $1,24 \text{ gr/cm}^3$, setelah melalui proses pembuatan *filament* dan proses 3D print tidak merubah nilai densitas dari material tersebut.

Dari hasil pengujian *biodegradable* dapat disimpulkan nilai *degradation rate* dari setiap spesimen dipengaruhi oleh densitas dari spesimen tersebut. Hal ini dapat terjadi dikarenakan semakin kecil nilai densitas dari spesimen tersebut maka akan lebih besar pori yang terdapat pada setiap *layer* spesimen hasil 3D print, sehingga kontak dengan larutan NaCl lebih mudah terjadi pada spesimen tersebut.

5. REFERENSI

- [1] Nazarina, Bahri, T.S., 2018, Status Fungsional Paska Orif Fraktur Ekstermitas, JIM FKep Volume IV No. 1 Hal : 19-25.
- [2] Bekmurzayeva A, Duncanson WJ, Azevedo HS, Kanayeva D. *Surface modification of stainless steel for biomedical applications: Revisiting a century-old material. Materials Science and Engineering C.* 2018;93:1073–89.
- [3] Fernandes Cota, L., Licona, K. P. M., Lunz, J. D. N., Ribeiro, A. A., Alonso, L. M., de Oliveira, M. V., & Pereira, L. C. (2016). *Hydroxyapatite nanoparticles: synthesis by sonochemical method and assessment of processing parameters via experimental design. In Materials Science Forum* (Vol. 869, pp. 896-901). Trans Tech Publications Ltd.
- [4] Lin, K. dan Chang, J. (2015) ‘*Structure and properties of hydroxyapatite for biomedical applications*’, in *Hydroxyapatite (HAp) for Biomedical Applications*, pp. 3–19. doi: 10.1016/B97817824203300001-8.
- [5] Rahman A, Nurhidayat S, Bayuseno AP, Ismail R, Taqriban RB. Review of the temperature and holding time effects on hydroxyapatite fabrication from the natural sources. *Journal of Biomedical Science and Bioengineering.* 2021;1:27–31.
- [6] M. Ibadi, Y. Whulanza, and H. Purnomo, "Experimental and Numerical Evaluation of Mechanical Properties for Carbon Fiber Reinforced Epoxy LY5052 Composite for Prosthesis Structures," *Journal of Biomedical Science and Bioengineering*, vol. 2, no. 1, Nov. 2022. <https://doi.org/10.14710/jbiomes.2022.v2i1.%p>
- [7] Singh S.K. *Understanding The Effect Of Extrusion Processing Parameters On Physical, Nutritional and Rheological Properties Of Soy White Flakes Based Aquafeed In a Single Screw Extruder.* 2016.

- [8] Mochane MJ, Motsoeneng TS, Sadiku ER, Mokhena TC, Sefadi JS. *Morphology and properties of electrospun PCL and its composites for medical applications: A mini review. Applied Sciences* (Switzerland). 2019;9.
- [9] Azzaoui K, Mejdoubi E, Lamhamdi A, Hammouti B, Akartasse N, Berrabah M, et al. *Novel Tricomponets composites Films From Polylactic Acid/ Hydroxyapatite/ Poly-Caprolactone Suitable For Biomedical Applications. J Mater Environ Sci.* 2016;7:761–9.
- [10] Fernandes Cóta L, Licona KPM, Lunz J do N, Antunes Ribeiro A, Morejón L, de Oliveira MV, et al. *Hydroxyapatite nanoparticles: Synthesis by sonochemical method and assessment of processing parameters via experimental design. In: Materials Science Forum. Trans Tech Publications Ltd; 2016. p. 896–901.*
- [11] L. Fernandes Cóta et al., “Hydroxyapatite nanoparticles: Synthesis by sonochemical method and assessment of processing parameters via experimental design” *Mater. Sci. Forum*, vol. 869, no. September, pp. 896–901, 2016, doi: 10.4028/www.scientific.net/MSF.869.896.
- [12] Amalia H. Y, Taufiq A, Sunaryono S. Sintesis, Karakterisasi Struktur dan Sifat Optik Nanopartikel Hidroksiapatit/Magnetit. *JPSE (Journal of Physical Science and Engineering)*. 2018;3:16–24.
- [13] Pristiansyah, Hasdiansah, Sugiyarto. Optimasi Parameter Proses 3D Printing FDM Terhadap Akurasi Dimensi Menggunakan Filament Eflex. *Jurnal Teknologi Manufaktur*. 2019;11.
- [14] Ekstrusi M, Konsistensi T, Filamen P, Faisal RA. Analisis Pengaruh Parameter Operasional.
- [15] Benwood C, Anstey A, Andrzejewski J, Misra M, Mohanty AK. *Improving the Impact Strength and Heat Resistance of 3D Printed Models: Structure, Property, and Processing Correlations during Fused Deposition Modeling (FDM) of Poly(Lactic Acid)*. *ACS Omega*. 2018;3:4400–11.
- [16] Lu Y, Chen YC, Zhang PH. *Preparation and characterisation of polylactic acid (PLA)/polycaprolactone (PCL) composite microfibre membranes. Fibres and Textiles in Eastern Europe.* 2016;24:17–25.
- [17] Mystiridou E, Patsidis AC, Bouropoulos N. *Development and characterization of 3D printed multifunctional bioscaffolds based on PLA/PCL/HAp/BaTiO3 composites. Applied Sciences* (Switzerland). 2021;11.
- [18] F. W. Nugraha, A. P. Bayuseno, Rifky Ismail. Sintesis dan Karakterisasi Biokomposit berbahan PLA, PCL, dan Hidroksiapatit Cangkang Kerang Hijau Sebagai Kandidat Biomaterial. *Jurnal Teknik Mesin S-1, Vol. 10, N0.2, Tahun2021*.
- [19] Li D, Zhou L, Wang X, He L, Yang X. *Effect of Crystallinity of Polyethylene with Different Densities on Breakdown and Strength.* 2019.
- [20] Pitjamit S, Thunsiri K, Nakkiew W, Wongwichai T, Pothacharoen P, Wattanutchariya W. *The possibility of interlocking nail fabrication from FFF 3D printing PLA/PCL/HA composites coated by local silk fibroin for canine bone fracture treatment. Materials.* 2020;13.
- [21] Pitjamit, S., Thunsiri, K., Nakkiew, W., Wongwichai, T., Pothacharoen, P., & Wattanutchariya, W. (2020). *The Possibility of Interlocking Nail Fabrication from FFF 3D Printing PLA/PCL/HA Composites Coated by. Materials, 13*(1564). <https://doi.org/10.3390/ma13071564>.