

PENGARUH PENAMBAHAN HIDROKSIAPATIT TERHADAP KARAKTERISASI FILAMEN BIOKOMPOSIT (PCL/PLA/HA)

Muhammad Daffa Naufal¹, Athanasius Prihartoyo Bayuseno^{1,2}, Rifky Ismail¹, Deni Fajar Fitriyana^{2,3}

¹Departemen Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Diponegoro

²Centre of Bio Mechanics, Bio Material, Bio Mechatronics, and Bio Signal Processing, Universitas Diponegoro

³Departemen Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Negeri Semarang

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

*E-mail: daffanaufal01@gmail.com

Abstrak

Pembuatan filamen biokomposit berbahan PLA, PCL dan hidroksiapatit cangkang hijau dengan menggunakan alat *single screw extruder* secara keseluruhan berhasil dilakukan. Pembuatan filamen pada penelitian ini menggunakan variasi penambahan HA. Penambahan variasi HA pada proses pembuatan filamen biokomposit berpengaruh pada karakteristik filamen yang dihasilkan. Dengan penambahan variasi HA menghasilkan densitas dan *tensile strenght*, dan *degradation rate* yang bervariasi. Pada penelitian ini filamen dengan variasi penambahan HA 20 wt% memiliki nilai *tensile strength* sebesar 21.674 Mpa, nilai densitas sebesar 1.34 gr/cm³, dan *degradation rate* sebesar 0.217 %. Semakin rendah densitas dari filamen juga berpengaruh pada tingkat biodegradable filamen yang dihasilkan semakin cepat filamen mengalami degradasi saat perendaman dengan campuran larutan NaCl dan aquades.

Kata kunci: filamen; hidroksiapatit (ha); *polycaprolactone* (pcl); *polylactic-acid* (pla)

Abstract

The manufacture of biocomposite filaments made from PLA, PCL and green shell hydroxyapatite using a single screw extruder was overall successful. Making filaments in this research uses variations in the addition of HA. The addition of HA variations to the process of making biocomposite filaments affects the characteristics of the resulting filaments. By adding variations in HA, it produces varying density and tensile strength, and degradation rates. In this study, the filament with variations in the addition of 5 wt% HA had a tensile strength value of 21.674 Mpa, a density value of 1.34 gr/cm³, and a degradation rate of 0.217 %. The lower the density of the filament also affects the biodegradable level of the filament produced, the faster the filament experienced degradation when soaked in a mixture of NaCl solution and distilled water.

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

1. Pendahuluan

Cedera Anterior Cruciate Ligament (ACL) merupakan cedera yang paling umum terjadi, terjadi pada sekitar 85 dari setiap 100.000 orang berusia 16 hingga 39 tahun. ACL berfungsi sebagai penstabil lutut, mencegah translasi tibialis anterior dan rotasi internal yang berlebihan [1]. angka kejadian cedera lutut di Indonesia merupakan tertinggi kedua setelah nyeri punggung, dengan prevalensi sebesar 48 per 1000 pasien dengan persentase 9% adalah cedera ACL. [2]. Cedera ACL menyebabkan rupture ligament lutut yang lebih rentan yang membutuhkan graft fixation menggunakan sekrup interferensi. Autograft yang umum digunakan untuk ACL berasal dari tendon patella, tendon hamstring, tendon paha depan atau allograft dari patel, achilles, semitendinosus, gracilis atau tendon tibialis posterior [3].

Salah satu teknik ortopedi yang paling umum dilakukan di seluruh dunia apabila ACL mengalami robek total yaitu dengan Anterior Cruciate Ligament rekonstruksi. Rekonstruksi ACL dapat dilakukan dengan melakukan cangkok, cangkok harus ditahan dalam ketegangan menggunakan perangkat fiksasi seperti, interference screws, spiked washers. Secara tradisional, interference screws terbuat dari logam yang mengacu pada baja tahan karat (SS), khususnya 316L, dan titanium. Biodegradable screw merupakan alternatif yang dapat ditawarkan untuk dapat menggantikan metallic interference screw yang biasa digunakan dalam upaya cangkok rekonstruksi ACL. Rekonstruksi ACL menggunakan biodegradable screw telah diuji kepada enam puluh subjek yang mendaftarkan diri untuk melakukan rekonstruksi ACL, dan dilihat prosesnya selama satu tahun, dengan hasil bahwa biodegradable screw memiliki tingkat keamanan dan kemanjuran yang baik dalam satu tahun, tidak ada kegagalan fiksasi cangkakan selama jangka waktu tersebut.

biodegradable bone screw yang berbahan dasar biokomposit (PCL/PLA/HA) yang diharapkan dapat bisa menggantikan interference screw berbahan dasar metal, dikarenakan bahannya yang dapat secara otomatis terserap atau terdisintegrasi oleh tubuh, tidak seperti metallic screw. Biomaterial didefinisikan sebagai segala jenis bahan yang bersentuhan dengan sistem biologis manusia atau hewan untuk menjalankan fungsi tertentu. Biomaterial dapat berasal

dari berbagai jenis material yang berbeda, termasuk yang berbentuk padat, cair, atau berbentuk. Biomaterial digunakan dalam komponen yang ditanamkan ke dalam tubuh manusia untuk menggantikan bagian tubuh yang sakit atau rusak. Material-material ini tidak boleh menghasilkan zat beracun dan harus sesuai dengan jaringan tubuh (artinya, tidak boleh menyebabkan reaksi biologis yang merugikan).

Biokomposit merupakan gabungan dari dua atau lebih material yang berbeda menjadi suatu bentuk unit mikroskopik dimana sifat dari ketiga bahan ini memiliki perbedaan satu sama lain, baik itu sifat kimia maupun sifat fisiknya dan tetap terpisah dalam hasil akhir bahan tersebut. Salah satu contoh dari biokomposit adalah yang digunakan dalam penelitian ini. Penelitian ini menggunakan tiga bahan campuran yaitu *Poly lactid-Acid* (PLA), *Polycaprolactone* (PCL), dan hidroksiapatit (HA).

Polycaprolactone (PCL) merupakan polimer semi kristalin yang merupakan homopolimer struktural molekuler berulang yang terdiri dari lima grup metilen non polar dan sebuah grup ester yang bersifat polar (Mukhsin, dkk., 2018). PCL memiliki kelarutan yang baik dengan polimer lain, viskositas yang rendah, dan karakteristik hidrofobik. *Glass transition temperature* (T_g) pada PCL sekitar -60°C sedangkan *melting temperature* (T_m) dari PCL berkisar antara 50°C hingga 60°C . Untuk tingkat kristalinitasnya, PCL memiliki tingkat kristalinitas yang cukup tinggi yaitu berkisar antara 30% hingga 60%. *Poly lactid Acid* (PLA) memiliki kemampuan proses dan mekanik yang tinggi resistensi. Tingkat kristalinitas dari PLA dapat sepenuhnya amorf (non-kristal) hingga 40% kristal. *Melting temperature* (T_m) PLA berkisar antara 130°C hingga 180°C , sedangkan *Glass transition temperature* (T_g) berkisar antara 50°C hingga 80°C . *Polycaprolactone* (PCL) dan *polylactic acid* (PLA) sebagai biopolimer telah banyak digunakan dalam dunia medis. Salah satu alasannya karena PCL dan PLA telah diakui oleh Badan Pengawas Obat dan Makanan Amerika Serikat (USFDA) sebagai *polyesters* yang paling banyak diteliti karena kemudahannya dalam pemrosesan namun tetap memiliki kemampuan mekanis, transisi termal, dan kristalinitas yang baik. PLA adalah bahan rapuh yang terdegradasi dengan cepat dalam cairan tubuh. Oleh karena itu, dilakukannya pencampuran PCL dan PLA untuk memaksimalkan kekuatan strukturnya, memperpanjang waktu degradasi PLA, dan membuat kopolimer yang memiliki sifat biokompatibilitas dan *biodegradable* [4].

Pada penelitian ini biokomposit melalui proses ekstrusi yang akan merubah bentuk biokomposit menjadi filamen. Proses ekstrusi adalah pengolahan yang bersifat kontinyu melalui proses *mixing*, *kneading*, *shearing*, *cooling*, dan *shaping* dengan cara mendorong biokomposit yang telah diolah keluar melalui lubang *nozzle*. Keuntungan dari proses ini adalah pengisian material pada *hopper* dapat dilakukan secara kontinyu yang dapat mengkompensasi penyusutan material [5]. Penelitian ini dilakukan untuk menghasilkan filamen berbahan biokomposit dan untuk mengetahui pengaruh temperatur *preheat* terhadap *mechanical properties* dan *degradation time* dari filamen yang dihasilkan. Filamen ini diharapkan dapat menyamai *mechanical properties* dan *degradation time* dari penelitian yang ada sebelumnya serta mendekati material tulang.

2. Metodologi Penelitian

Biomaterial dapat didefinisikan sebagai material sintetik untuk membuat alat kesehatan dan dalam pemakaiannya berinteraksi dengan sistem biologi. Biomaterial dipakai untuk membuat implan dan devices (*surgical implants and devices*) yang menggantikan bagian atau fungsi organ tubuh secara aman dan ekonomis [6]. Biomaterial melingkupi semua jenis material mulai dari logam, keramik, polimer hingga komposit [7]. Kebutuhan bahan biomaterial dalam bidang medis untuk berbagai keperluan terus meningkat dewasa ini. Hal ini antara lain disebabkan oleh tingginya angka kecelakaan serta meningkatnya kasus kebakaran yang menimbulkan luka bakar yang serius pada korban [8]. Biomaterial komposit adalah biomaterial dibuat dengan mengkombinasikan beberapa jenis material untuk mendapatkan sifat-sifat yang diinginkan dalam memenuhi kriteria sebagai biomaterial [9]. Biomaterial komposit memiliki keuntungan dimana kemudahannya dalam mengatur sifat dan karakteristiknya. Namun biomaterial komposit sangat sulit untuk di buat karena sulit untuk memperoleh perbandingan komposisi dari bahan yang di campurkan. Maka dari itu perlu kejelian dan ketepatan dalam menentukan kombinasi material serta dan matriks dan juga metode yang di gunakan agar biomaterial komposit dapat di buat tepat sesuai dengan kebutuhan [10].

Metodel pembuatan filamen yang digunakan dalam penelitian ini adalah melakukan proses ekstrusi biokomposit berbahan PCL, PLA, HA dengan mesin single screw extruder yang sudah di modifikasi. Selanjutnya di lakukan pengujian filament dengan variasi penambahan hidroksiapatit 0 wt%, 5 wt%, 10 wt%, 15 wt%, dan 20 wt%. Pengujian yang dilakukan berupa pengujian densitas, pengujian tarik, dan *biodegradable*.

2.1 Ekstrusi Filamen

Biokomposit berbahan PLA/PCL/HA cangkang kerang hijau yang sudah dihaluskan dimasukan kedalam mesin *filament extruder*, biokomposit didorong oleh *screw* yang terdapat di dalam *extruder* melewati *nozzle* berdiameter 1,75 mm menjadi bentuk filamen.



Gambar 1. Proses ekstrusi filamen

2.2 Karakterisasi Filamen

Karakterisasi spesimen hasil 3D print bertujuan untuk mengetahui sifat yang dimiliki oleh spesimen melalui pengujian densitas, pengujian biodegradable, dan pengujian tarik. Pengujian densitas dan biodegradable dilakukan di Laboratorium Metalurgi Fisik Teknik Mesin Universitas Diponegoro dan pengujian tarik dilakukan di Laboratorium Terpadu Fakultas Kedokteran Gigi Universitas Gajah Mada.

3. Hasil dan Pembahasan

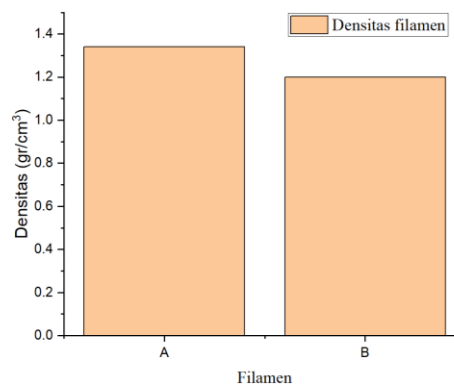
Pada penelitian ini telah dihasilkan filamen biokomposit berbahan *polylactid-acid* (PLA), *polycaprolactone* (PCL), dan hidroksiapatit (HA) hasil sintesis cangkang kerang hijau menggunakan metode ekstrusi. Variabel yang digunakan dalam penelitian ini adalah pengaruh variasi penambahan HA pada proses ekstrusi terhadap karakterisasi biokomposit yang dihasilkan.

Tabel 1. Hasil pengujian filamen biokomposit

Spesimen	Keterangan
A	Filamen yang dihasilkan pada penelitian ini
B	Filamen yang dihasilkan oleh Ramadhanu, dkk (2023)

3.1 Pengujian Densitas

Pengujianl densitas adalah pengujian yang bertujuan untuk mengetahui tingkat kerapatan (massa jenis) dari suatu benda, pada penelitian ini pengujian densitas dilakukan untuk mengetahui pengaruh penambahan HA pada proses ekstrusi terhadap biokomposit berbahan PLA dan PCL dan HA.

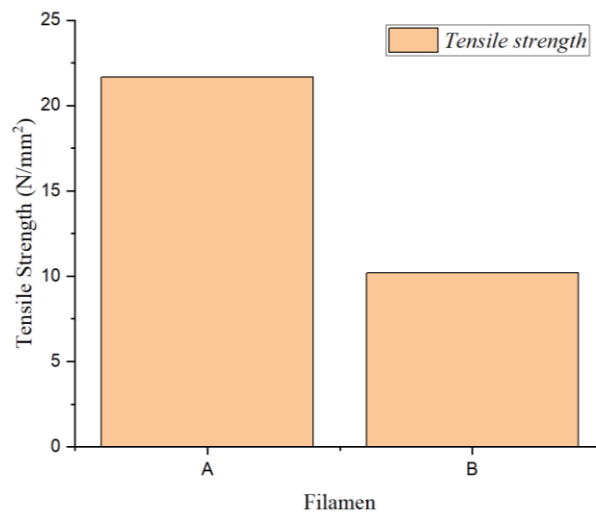


Gambar 3. Grafik hasil pengujian densitas filamen biokomposit

Dapat disimpulkan variasi penambahan HA pada proses ekstrusi akan mempengaruhi densitas dari biokomposit yang dihasilkan, didapatkan densitas dari filamen pada penambahan HA 20 wt% sebesar 1.34 gr/cm^3 .

3.2 Pengujian Tarik

Pengujian tarik adalah pengujian yang bertujuan untuk mengetahui *mechanical properties* dari suatu material. Pada penelitian ini pengujian tarik bertujuan untuk mengetahui pengaruh variasi penambahan HA pada proses ekstrusi filamen biokomposit berbahan PCL/PLA/HA terhadap *mechanical properties* dari filamen yang di hasilkan. Pada pengujian tarik penelitian ini menggunakan ASTM D2256.

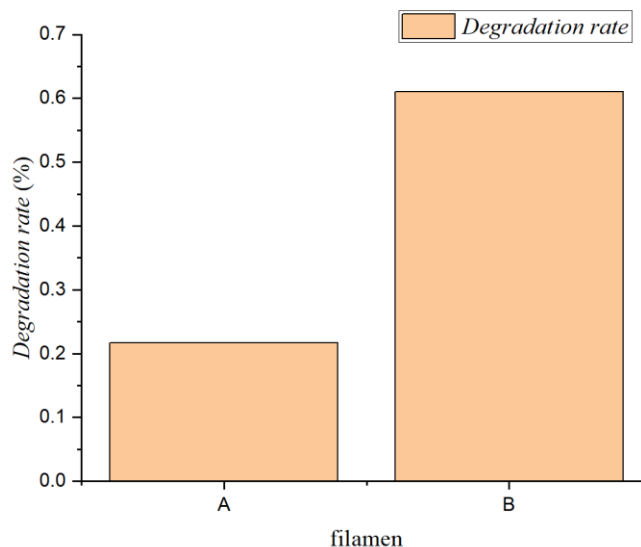


Gambar 4. Grafik hasil pengujian tarik filamen biokomposit

didapatkan hasil pengujian tarik filamen biokomposit. Filamen dengan *mechanical properties* terbesar didapatkan dengan HA sebesar 20 wt% dengan *ultimate tensile strength* sebesar 21.674 N/mm^2 . Pada penelitian ini didapatkan nilai *ultimate tensile strength* yang berbanding terbalik dengan nilai densitas. Semakin tinggi nilai densitas maka semakin rendah juga nilai *ultimate tensile strength*.

3.3 Pengujian Biodegradable

Pengujian biodegradable adalah pengujian yang bertujuan untuk mengetahui laju biodegradasi dari biokomposit. Hasil pengujian *biodegradable* didapatkan dari berat biokomposit setelah direndam dalam campuran larutan NaCl dan aquades



Gambar 5. Hasil pengujian *biodegradable*

Gambar 5 menunjukkan *degradation rate* dari filamen biokomposit yang sudah direndam menggunakan campuran larutan NaCl dan aquades. Dapat dilihat spesimen dengan lama perendaman selama 21 hari memiliki nilai *degradation rate* terbesar, sedangkan spesimen dengan lama perendaman selama 7 hari memiliki nilai *degradation rate* terkecil.

Melihat hasil pengujian *biodegradable*, maka dapat disimpulkan nilai *degradation rate* dipengaruhi oleh nilai densitas. Hal ini dapat disebabkan karena semakin kecil nilai densitas dari spesimen tersebut maka akan lebih besar pori yang terdapat pada setiap *layer* spesimen filamen, sehingga kontak dengan campuran larutan NaCl dan aquades lebih mudah terjadi pada spesimen tersebut.

4. Kesimpulan

Pembuatan filamen biokomposit berbahan PCL, PLA, dan HA dengan metode *single screw extruder* berhasil dilakukan. Filamen yang dihasilkan dari suhu preheat memiliki nilai *mechanical properties*. Filamen dengan penambahan HA 20 gr memiliki densitas sebesar yaitu 1,34 gr/cm³. *Tensile strength* yang dihasilkan pada penelitian ini adalah sebesar 21.674 MPa dengan variasi Ha 20 wt%. Perbedaan nilai *tensile strength* dipengaruhi oleh nilai densitas filamen, semakin tinggi nilai densitas maka semakin rendah nilai *tensile strength* yang dihasilkan. *Mechanical properties* diidentifikasi dengan melakukan pengujian tarik. Nilai *degradation rate* pada penelitian ini adalah 0.217 % dengan variasi HA 20 wt% dan lama perendaman dalam larutan NaCl dan aquades selama 21 hari. Hal ini dikarenakan nilai *degradation rate* dipengaruhi oleh densitas filamen. Semakin rendah densitas filamen, maka semakin tinggi porositas yang menyebabkan filamen lebih mudah mengandung larutan dan proses degradasi lebih cepat terjadi.

5. Daftar Pustaka

- [1] Ramadanu GA, Ismail R, Bayuseno B. PENGARUH RPM PADA PROSES PEMBUATAN FILAMEN BIOKOMPOSIT BERBAHAN PCL, PLA, DAN HIDROKSIAPATIT DARI CANGKANG RAJUNGAN TERHADAP SIFAT MEKANIK DAN KARAKTERISASI FILAMEN. JURNAL TEKNIK MESIN. 2023 Apr 14;11(2):1-6.
- [2] Bagaskara IF, Bayuseno AP, Ismail R. PENGUJIAN DENSITAS DAN BIODEGREDEABLE MATERIAL FILAMENT 3D PRINT BIO-KOMPOSIT BERBAHAN PCL, PLA DAN HIDROKSIAPATIT CANGKANG RAJUNGAN. JURNAL TEKNIK MESIN. 2022 Jan 14;10(1):13-8.
- [3] Athallah MD, Sugiyanto S, Ismail R. PENGARUH TEMPERATUR NOZZLE 3D PRINT TERHADAP FLEXURAL STRENGTH BIOKOMPOSIT BERBAHAN PLA, PCL, DAN HIDROKSIAPATIT DARI CANGKANG RAJUNGAN. JURNAL TEKNIK MESIN. 2022 Apr 28;10(2):249-54.
- [4] Ismail, R., Cionita, T., Lai, Y. L., Fitriyana, D. F., Siregar, J. P., Bayuseno, A. P., ... & Hadi, A. E. (2022). Characterization of PLA/PCL/Green Mussel Shells Hydroxyapatite (HA) Biocomposites Prepared by Chemical Blending Methods. *Materials*, 15(23), 8641.
- [5] Mubarak MH, Bayuseno AP, Ismail R. PENGARUH SUHU EKSTRUSI TERHADAP DENSITAS DAN LAJU DEGRADASI PADA FILAMEN 3D PRINT BERBAHAN PLA, PCL, DAN HA. JURNAL TEKNIK MESIN. 2022 Jan 14;10(1):53-8.
- [6] Sukmana I, Risano AY, Wicaksono MA, Saputra RA. Perkembangan dan Aplikasi Biomaterial dalam Bidang Kedokteran Modern: A Review. *INSOLOGI: Jurnal Sains dan Teknologi*. 2022 Oct 29;1(5):635-46.
- [7] Hermawan, H. (2019) "Pengenalan pada biomaterial" *INA-Rxiv Papers*, hal. 1-8. doi: 10.31227/osf.io/v3z5t.1/8.
- [8] Putra G, Tontowi AE. Analisis Ukuran Pori Biokomposit (Sericin-Bioplastik) pada Berbagai Suhu Pembekuan Awal dengan Metode Taguchi. *Jurnal Teknik Industri*. 2019 Dec 1;9(3):145-53.
- [9] Nugraha, F. W., Bayuseno, A. P. dan Ismail, R. (2021) "Sintesis dan karakterisasi biokomposit berbahan pla, pcl, dan hidroksiapatit dari cangkang kerang hijau sebagai kandidat biomaterial," *Jurnal Teknik Mesin S-1*, hal. 1–11.
- [10] Kartikasari, N., Yuliati, A., & Kriswandini, I. L. (2016). Compressive strength and porosity tests on bovine hydroxyapatite-gelatin-chitosan scaffolds. *Dental Journal*, 49(3), 153–157. <https://doi.org/10.20473/j.djmg.v49.i3.p153-157>