

KARAKTERISASI *BONE GRAFT* CAMPURAN HIDROKSIAPATIT DAN GELATIN MENGGUNAKAN METODE *SOLVENT CASTING*

*Eko Bagas Saputra¹, Rifky Ismail², Sri Nugroho²

¹Mahasiswa Jurusan Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Diponegoro

²Dosen Jurusan Teknik Mesin, Fakultas Teknik, Universitas Diponegoro

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

*E-mail: ekobgssaputra55@gmail.com

Abstrak

Kerusakan tulang yang diakibatkan fraktur memerlukan tindakan medis tambahan dikarenakan kemampuan alami tubuh untuk memulihkan jaringan tulang tidak memadai. *Bone graft* menjadi salah satu alternatif, *bone graft* dapat meningkatkan stabilitas tulang dan mempercepat proses regenerasi sehingga penyembuhan fraktur dapat berlangsung lebih optimal. Hidroksiapatit (HA) mempunyai sifat bioaktif dan osteokonduktifitas, serta dapat mendukung pembentukan tulang baru, sifat tersebut menjadikan HA sebagai kandidat kuat untuk *bone graft*. HA yang digunakan berasal dari cangkang kerang hijau yang melalui proses kalsinasi dan *microwave* yang memiliki kesamaan struktur dan komposisi dengan mineral utama penyusun tulang manusia. Gelatin mempunyai Biokompatibilitas, biodegradabilitas, dan fleksibilitas menjadikannya sebagai salah satu biomaterial penting untuk berbagai aplikasi biologis. Penambahan gelatin pada HA terbukti mendukung regenerasi tulang. Dikarenakan scaffold campuran HA dan gelatin ini bersifat fleksibel, memiliki permeabilitas tinggi, dan mampu mempercepat proses regenerasi jaringan tulang. Dalam penelitian ini menggunakan komposisi 5% gelatin dan 95% HA metode *solvent casting*. Hasil Karakterisasi menunjukkan gugus fungsi hidroksiapatit PO_4^{3-} , CO_3^{2-} , OH^- , dan gelatin amide I (C=O), amide A (N-H). Densitas sebesar $1,44 \text{ g/cm}^3$, kekerasan $0,78 \text{ kg}$, *swelling* $5,23\%$, dan porositas aktual $51,52\%$.

Kata kunci : cangkang kerang; gelatin; hidroksiapatit (ha); *solvent casting*

Abstract

Bone damage caused by fractures often requires additional medical treatment because the body's natural ability to regenerate bone tissue is sometimes insufficient. Bone grafts are one of the alternative treatments that can enhance bone stability and accelerate the regeneration process, allowing fracture healing to occur more optimally. Hydroxyapatite (HA) possesses bioactive and osteoconductive properties and is capable of supporting new bone formation, making it a strong candidate for bone graft applications. The HA used in this study was derived from green mussel shells through calcination and microwave processes, which produce a material with structural and compositional similarities to the primary mineral component of human bone. Gelatin exhibits biocompatibility, biodegradability, and flexibility, making it an important biomaterial for various biological applications. The addition of gelatin to HA has been shown to support bone regeneration because the HA-gelatin scaffold is flexible, has high permeability, and can accelerate the bone tissue regeneration process. In this study, a composition of 5% gelatin and 95% HA was prepared using the solvent casting method. Characterization results revealed the presence of hydroxyapatite functional groups (PO_4^{3-} , CO_3^{2-} , and OH^-) and gelatin functional groups (amide I (C=O) and amide A (N-H)). The resulting material exhibited a density of 1.44 g/cm^3 , hardness of 0.78 kg , swelling of 5.23% , and an actual porosity of 51.52% .

Keywords: green mussel shells; gelatin; hydroxyapatite (ha); *solvent casting*

1. Pendahuluan

1.1 Latar Belakang

Kerusakan tulang yang diakibatkan fraktur kerap memerlukan tindakan medis tambahan karena kemampuan alami tubuh untuk memperbaiki jaringan tulang tidak selalu memadai, terutama pada fraktur dengan kehilangan tulang yang besar atau kasus non-union. Dalam situasi demikian, penerapan bone graft menjadi metode yang banyak digunakan dalam praktik ortopedi. Pendekatan ini terbukti mampu meningkatkan stabilitas tulang dan mempercepat proses regenerasi sehingga penyembuhan fraktur dapat berlangsung lebih optimal [1]. Hidroksiapatit (HA) mempunyai sifat bioaktif dan osteokonduktifitas, serta dapat mendukung pembentukan tulang baru, sifat tersebut menjadikan HA sebagai kandidat kuat untuk bone graft [2]. Hidroksiapatit (HA) memiliki karakteristik mekanik yang kurang memadai, sehingga membatasi penggunaannya pada aplikasi yang menahan beban [3]. Gelatin mempunyai Biokompatibilitas, biodegradabilitas, dan fleksibilitas menjadikannya sebagai salah satu biomaterial penting untuk berbagai aplikasi biologis [4]. Dikarenakan

kemampuan gelatin untuk difungsionalisasi dengan molekul bioaktif dan faktor pertumbuhan, gelatin ini sangat bermanfaat untuk rekayasa jaringan tulang dan tulang rawan [5]. Dilakukan kombinasi dengan material lain dapat merubah mechanical properties dari HA sendiri, yaitu dilakukan penambahan gelatin terbukti mendukung regenerasi tulang. Dikarenakan scaffold campuran HA dan gelatin ini bersifat fleksibel, memiliki permeabilitas tinggi, dan mampu mempercepat proses regenerasi jaringan tulang [6]. Pada penelitian ini meneliti variasi komposisi dari HA dan gelatin, dengan komposisi gelatin/HA yaitu 5%:95%.

2. Bahan dan Metode Penelitian

Penelitian ini berfokus pada pembuatan *bone graft* dengan menggunakan dua bahan utama, yaitu hidroksiapatit dan gelatin. Hidroksiapatit yang dipakai yaitu diperoleh dari CBIOM3S Universitas Diponegoro dengan bahan dasar cangkang kerang hijau yang melalui proses kalsinasi. hidroksiapatit (HAp) yang disintesis dari cangkang kerang hijau merupakan biomaterial berbasis kalsium fosfat dengan rumus kimia $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$ yang memiliki kesamaan struktur dan komposisi dengan mineral utama penyusun tulang manusia [7]. Selain hidroksiapatit, penelitian ini menggunakan gelatin sebagai binder, yang mana gelatin mempunyai sifat biokompatibilitas, biodegradabilitas, dan fleksibilitas. Karakteristiknya dapat disesuaikan melalui modifikasi kimia serta integrasi dengan material tambahan guna mengatasi keterbatasannya dan meningkatkan efektivitasnya dalam bidang rekayasa jaringan serta kedokteran regeneratif [4].

Pada penelitian ini sintesis *bone graft* menggunakan metode *solvent casting*. *Solvent casting* biokomposit melibatkan pembubaran polimer dalam pelarut organik, mencampurnya dengan keramik butiran, dan menuangkan larutan ke dalam cetakan 3-D yang telah ditentukan sebelumnya. Pelarut kemudian dibiarkan menguap [8].

Dalam penelitian kali ini metode pembuatan gelatin/ hidroksiapatit cangkang kerang hijau dengan fraksi berat total 4 gram dengan komposisi 5% gelatin :95% HA, serta dilakukan penambahan air 4,5 ml untuk pelarutan gelatin. Metode yang digunakan pada penelitian ini adalah metode *solvent casting*. Diawali dengan melarutkan gelatin sesuai komposisi dalam 4,5 ml aquades pada suhu 60°C dalam gelas beaker hingga larut sempurna menggunakan *hand mixing* selama 5 menit. Setelah gelatin sudah larut sempurna dengan aquades, tuangkan larutan gelatin ke mortar bersamaan dengan hidroksiapatit sesuai dengan komposisi. Gelatin/ hidroksiapatit yang sudah dituangkan ke mortar, kemudian ditumbuk secara perlahan agar dapat tercampur sempurna. Setelah fasa homogen, kemudian campuran gelatin hidroksiapatit dimasukkan menggunakan spatula ke dalam *molding* yang terbuat dari silikon, *molding* berukuran $6\text{ mm} \times 6\text{ mm}$. Diamkan pada suhu ruang selama 15 menit, kemudian keringkan pada suhu 40°C menggunakan oven selama 24 jam sampai mengeras. Lalu dilakukan beberapa pengujian seperti FTIR, densitas, kekerasan, laju degradasi, dan porositas untuk mengetahui karakteristik gelatin hidroksiapatit yang dihasilkan.



Gambar 1. *Molding solvent casting*

3. Hasil dan Pembahasan

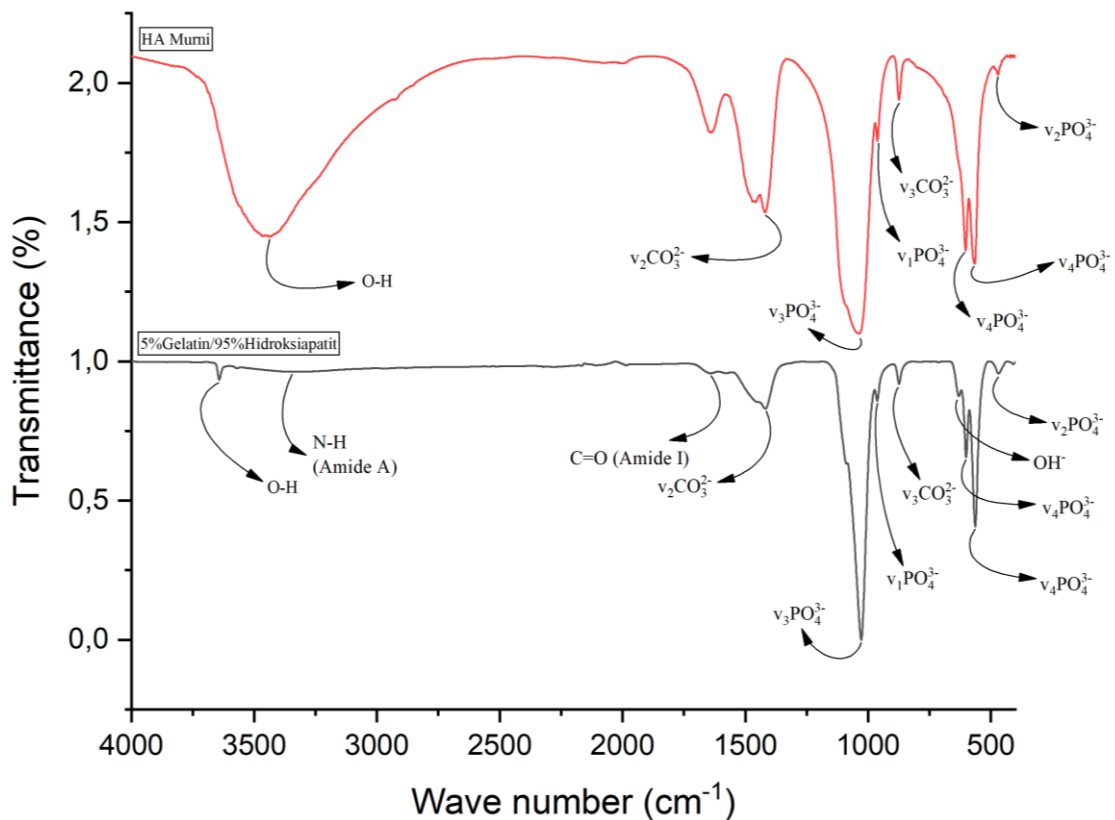
Pada penelitian ini, telah dilakukan pembuatan *bone graft* yang dibuat menggunakan metode *solvent casting*. Variabel yang diteliti dalam penelitian ini adalah komposisi dari hidroksiapatit dan gelatin dengan komposisi 5%:95%. *Bone graft* yang telah berhasil disintesis selanjutnya menjalani serangkaian proses karakterisasi guna mengetahui gugus fungsi, densitas, kekerasan, laju degradasi dan porositas.



Gambar 2. Produk *bone graft* gelatin/hidroksiapatit

3.1 Pengujian *Fourier Transform Infrared Spectroscopy* (FTIR)

Hasil analisis spektra FTIR kalsium sulfat hemihidrat/ hidroksiapatit pada rentang bilangan gelombang 4000 – 400 cm^{-1} ditunjukkan pada Gambar 3.



Gambar 3. Grafik perbandingan FTIR HA murni dengan gelatin/HA

Pada Tabel 1 Keberadaan fase mineral hidroksiapatit (HA) dibuktikan dengan munculnya pita serapan fosfat (PO_4^{3-}) pada seluruh sampel, di mana puncak ν_1 teramati konsisten pada rentang 962,52–962,59 cm^{-1} , yang sangat mendekati nilai standar sekitar 960 cm^{-1} . Selain itu, terdeteksinya pita karbonat (ν_2 dan ν_3) pada rentang 1414,02–1418,86 cm^{-1} serta 872,75–873,86 cm^{-1} menunjukkan adanya substitusi karbonat dalam struktur apatit, yang merupakan karakteristik khas tulang biologis alami [9]. Komponen organik gelatin diidentifikasi melalui munculnya puncak Amide I (regangan C=O) pada bilangan gelombang 1640,97 cm^{-1} , khususnya pada spesimen E, yang berada dalam rentang karakteristik 1700–1600 cm^{-1} [10]. Keberadaan amida ini semakin diperkuat dengan munculnya puncak Amida A yang merupakan vibrasi ulur N-H, terdeteksi pada daerah 3315–3366 cm^{-1} [11].

Tabel 1. Jenis ikatan FTIR gelatin/HA [12][13][10][11]

Gugus Fungsi	Bilangan Gelombang		
	Standar	HA Murni	Gel/HA 5%/95%
$\nu_1\text{PO}_4^{3-}$	960	962,02	962,59
$\nu_2\text{PO}_4^{3-}$	460	470,41	468,64
$\nu_3\text{PO}_4^{3-}$	1156-1000	1036,05	1027,9
$\nu_4\text{PO}_4^{3-}$	600-560	566,14	563,25
		602,53	600,46
$\nu_2\text{CO}_3^{2-}$	1418	1418,28	1418,14
$\nu_3\text{CO}_3^{2-}$	875	874,34	873,86
OH ⁻	3700-2600	3435,87	3642.34.00
	630	-	630,21
Amide I (C=O)	1700-1600	-	1640,97
Amide A (N-H)	3270-3370	-	3315,45

3.2 Uji Densitas

Pengujian densitas dilakukan dengan alat *density meter* di Laboratorium Material dan Fisik Universitas Diponegoro. Bone graft komersial menunjukkan nilai densitas sebesar 1,58 g/cm³ yang secara signifikan lebih tinggi dibandingkan seluruh spesimen komposit gelatin/hidroksiapatit yang dibuat menggunakan metode *solvent casting*. Hasil dari pengujian komposisi 5% gelatin dan 95% hidroksiapatit didapatkan 1,44 g/cm³. *Solvent casting* merupakan metode yang efektif untuk menghasilkan *bone graft* berpori, namun secara inheren menghasilkan densitas yang lebih rendah dibandingkan material non-poros, yang justru menguntungkan untuk aplikasi *bone graft* karena mendukung difusi nutrisi dan pertumbuhan jaringan tulang [14].

3.3 Uji Kekerasan

Pengujian kekerasan (breaking force) merupakan metode yang digunakan untuk mengukur gaya atau beban yang dibutuhkan agar suatu bone graft retak atau pecah. Pengujian dilakukan di Laboratorium Farmasi Universitas Islam Agung menggunakan alat uji kekerasan tablet *Copley TBF 1000*, hasil pengujian ini adalah kg. Hasil uji kekerasan rata-rata, bone graft komersial menunjukkan nilai kekerasan tertinggi sebesar 3,51 kg, yang secara signifikan lebih tinggi dibandingkan seluruh spesimen komposit gelatin/hidroksiapatit yang dibuat menggunakan metode *solvent casting* dengan nilai kekerasan 0,78 kg. Karakteristik metode *solvent casting* yang melibatkan proses penguapan pelarut cenderung menghasilkan struktur material berpori dan mikrostruktur yang kurang homogen, sehingga berkontribusi terhadap nilai kekerasan yang lebih rendah dibandingkan material komersial yang memiliki struktur lebih padat dan homogen [14][15].

3.4 Uji Laju Degradasi

Pada penelitian ini, uji degradasi dilakukan dengan merendam spesimen dalam larutan phosphate-buffered saline (PBS) pada suhu 37 °C dalam waktu 7 hari, yang merepresentasikan kondisi suhu tubuh, sehingga dapat memberikan gambaran mengenai kemampuan material mempertahankan integritas massa dan struktur selama periode perendaman. Pada produk *bone graft* komersial mengalami degradasi di angka 34,67%, sedangkan produk bone graft gelatin/hidroksiapatit mengalami swelling 5,23%. Fenomena ini sejalan dengan penelitian yang melaporkan bahwa gelatin memiliki sifat hidrofilik yang dapat meningkatkan kemampuan penyerapan cairan pada scaffold biomaterial, namun peningkatan konsentrasi gelatin yang terlalu tinggi dapat menyebabkan densitas struktur meningkat sehingga menurunkan kemampuan swelling material [16].

3.5 Uji Porositas

Pengujian porositas pada komposit hidroksiapatit–gelatin dilakukan untuk mengevaluasi pengaruh variasi komposisi terhadap struktur internal dan karakteristik fungsional bone graft. Pengujian porositas menggunakan metode ASTM C20, yaitu menggunakan media alkohol sebagai perendaman. Hasil uji porositas ASTM C20 dengan perhitungan teoritis, yaitu pada pengujian aktual didapatkan porositas sebesar 51,52% dan perhitungan teoritis didapatkan porositas sebesar 52,32%.

Perbedaan ini menunjukkan bahwa secara matematis fraksi volume pori yang dihitung berdasarkan densitas mengasumsikan distribusi pori yang homogen dan seluruh pori bersifat terbuka, sedangkan pada kondisi nyata kemungkinan terdapat pori tertutup (closed pores) atau pori mikro yang tidak sepenuhnya terisi fluida saat pengujian perendaman. Struktur pori yang cukup tinggi dan saling terhubung sehingga memungkinkan difusi nutrisi serta pertumbuhan sel pada jaringan tulang. Nilai porositas yang diperoleh pada penelitian tersebut menunjukkan bahwa scaffold dengan porositas tinggi mampu meningkatkan interaksi biologis dan mendukung proses regenerasi tulang [17].

4. Kesimpulan

Penelitian ini kelanjutan dari penelitian sebelumnya dalam pengembangan bone graft berbasis kalsium sulfat hemihidrat dan hidroksiapatit dengan tujuan melengkapi rangkaian penelitian terdahulu. Beberapa studi sebelumnya telah melaporkan sintesis hidroksiapatit yang berasal dari limbah cangkang hijau menggunakan metode microwave [7]. Selain itu, pembuatan *bone graft* kalsium sulfat/hidroksiapatit dengan metode *solvent casting* [18]. Di samping itu, hidroksiapatit berpori yang berasal dari cangkang kerang hijau juga telah berhasil disintesis menggunakan metode polyurethane sponge replication dengan variasi temperatur sintering [17].

Pada penelitian ini, telah berhasil membuat *bone graft* gelatin/HA dengan komposisi 5%/95% menggunakan metode *solvent casting*. Karakterisasi yang dilakukan yaitu FTIR, densitas, kekerasan, laju degradasi, dan uji porositas. Hasil Karakterisasi menunjukkan gugus fungsi hidroksiapatit PO₄³⁻, CO₃²⁻, OH⁻, dan gelatin amide I (C=O), amide A (N-H). Densitas sebesar 1,44 g/cm³, kekerasan 0,78 kg, swelling 5,23%, dan porositas aktual 51,52%. Nilai dari densitas dan kekerasan didapatkan lebih rendah produk komersial. *Bone graft* gelatin/hidroksiapatit baik untuk penahanan di dalam tulang karna dapat bertahan dalam waktu 7 hari, hal ini berdasarkan uji laju degradasi.

5. Daftar Pustaka

- [1] Sohn, H.-S. and Oh, J.-K. (2019). Review of bone graft and bone substitutes with an emphasis on fracture surgeries. *Biomaterials Research*, 23(1). doi:<https://doi.org/10.1186/s40824-019-0157-y>.
- [2] Kazimierzczak, P., Wessely-Szponder, J., Palka, K., Barylyak, A., Zinchenko, V. and Przekora, A. (2023). Hydroxyapatite or Fluorapatite—Which Bioceramic Is Better as a Base for the Production of Bone Scaffold?—A Comprehensive Comparative Study. *International Journal of Molecular Sciences*, [online] 24(6), p.5576. doi:<https://doi.org/10.3390/ijms24065576>.
- [3] Anuradha Mahanty and Deep Shikha (2021). Calcium substituted with magnesium, silver and zinc in hydroxyapatite: a review. *International Journal of Materials Research (formerly Zeitschrift fuer Metallkunde)*, 112(11), pp.922–930. doi:<https://doi.org/10.1515/ijmr-2020-8181>.
- [4] Milano, F., Masi, A., Madaghiele, M., Sannino, A., Salvatore, L. and Gallo, N. (2023). Current Trends in Gelatin-Based Drug Delivery Systems. *Pharmaceutics*, [online] 15(5), p.1499. doi:<https://doi.org/10.3390/pharmaceutics15051499>.
- [5] Shubham Sonwane, Bonde, S., Bonde, C. and Chandani Chandarana (2025). Advances in Gelatin-based Scaffolds for Tissue Engineering Applications: A Review. *Journal of Drug Delivery Science and Technology*, pp.106789–106789. doi:<https://doi.org/10.1016/j.jddst.2025.106789>.
- [6] Qing, J., Tan, J.-W., Xiao, T., He, J., Yu, J., Fu, Z.-L. and Yan, T. (2025). Directional extrusion preparation and properties of ordered porous gelatin/nano-hydroxyapatite bone tissue engineering scaffolds. *Materials Letters*, 389, p.138351. doi:<https://doi.org/10.1016/j.matlet.2025.138351>.
- [7] Prasetyo, A., Ismail, R., Bayuseno, A.P., Anis, S., Fitriyana, D., Afrizal, M. and Siregar, J. (2025). Synthesis of Hydroxyapatite from Green Mussel Shells Using Micro-wave Method Through Ultrasonic Mixing Process and Magnetic Stirrer Stirring. *Jurnal Bahan Alam Terbarukan*, 14(1), pp.9–14. doi:<https://doi.org/10.15294/jbat.v14i1.25497>.
- [8] Prasad, K., Bazaka, O., Chua, M., Rochford, M., Fedrick, L., Spoor, J., Symes, R., Tieppo, M., Collins, C., Cao, A., Markwell, D., Ostrikov, K. (Ken), & Bazaka, K. (2017). Metallic Biomaterials: Current Challenges and Opportunities. *Materials*, 10(8), 884. <https://doi.org/10.3390/ma10080884>.
- [9] Gómez-Guillén, M.C., Giménez, B., López-Caballero, M.E. and Montero, M.P. (2011). Functional and bioactive properties of collagen and gelatin from alternative sources: A review. *Food Hydrocolloids*, [online] 25(8), pp.1813–1827. doi:<https://doi.org/10.1016/j.foodhyd.2011.02.007>.
- [10] Muyonga, J.H., Cole, C.G.B. and Duodu, K.G. (2004). Fourier transform infrared (FTIR) spectroscopic study of acid soluble collagen and gelatin from skins and bones of young and adult Nile perch (*Lates niloticus*). *Food Chemistry*, 86(3), pp.325–332. doi:<https://doi.org/10.1016/j.foodchem.2003.09.038>.
- [11] Mehdi, K.N. (2006). Fabrication of Porous Hydroxyapatite-Gelatin Composite Scaffolds for Bone Tissue Engineering. *Iranian Biomedical Journal*, [online] 10(4), pp.215–223. Available at: <https://ibj.pasteur.ac.ir/article-1-358-fa.html>.
- [12] Berzina-Cimdina, L., Borodajenko, N., 2012. Research of Calcium Phosphates Using Fourier Transform Infrared Spectroscopy. In: *Infrared Spectroscopy - Materials Science, Engineering and Technology*. pp. 123–147.
- [13] Salma, K., Berzina-Cimdina, L., Borodajenko, N., 2010. Calcium phosphate bioceramics prepared from wet chemically precipitated powders. *Process. Appl. Ceram.* 4, 45–51.
- [14] Bayram, C., Ozturk, S., Beren Karaosmanoglu, Merve Gultekinoglu, Taskiran, E.Z., Kezban Ulubayram, Majd, H., Ahmed, J. and Mohan Edirisinghe (2024). Microfluidic Fabrication of Gelatin-Nano Hydroxyapatite Scaffolds for Enhanced Control of Pore Size Distribution and Osteogenic Differentiation of Dental Pulp Stem Cells. *Macromolecular Bioscience*. doi:<https://doi.org/10.1002/mabi.202400279>.

-
- [15] Kim, H., Hwangbo, H., Koo, Y. and Kim, G. (2020). Fabrication of Mechanically Reinforced Gelatin/Hydroxyapatite Bio-Composite Scaffolds by Core/Shell Nozzle Printing for Bone Tissue Engineering. *International Journal of Molecular Sciences*, 21(9), p.3401. doi:<https://doi.org/10.3390/ijms21093401>.
- [16] Raucci, M.G., Demitri, C., Soriente, A., Fasolino, I., Sannino, A. and Ambrosio, L. (2018). Gelatin/nano-hydroxyapatite hydrogel scaffold prepared by sol-gel technology as filler to repair bone defects. *Journal of biomedical materials research. Part A*, [online] 106(7), pp.2007–2019. doi:<https://doi.org/10.1002/jbm.a.36395>.
- [17] Wang, M.-B., Li, Y., Wu, J., Xu, F.-L., Zuo, Y. and Jansen, J.A. (2008). In vitro and in vivo study to the biocompatibility and biodegradation of hydroxyapatite/poly(vinyl alcohol)/gelatin composite. *85A(2)*, pp.418–426. doi:<https://doi.org/10.1002/jbm.a.31585>.
- [18] Sari, D., Ismail, R. and Priharyoto Bayuseno, A. (n.d.). UJI KARAKTERISTIK BONE GRAFT HIDROKSIAPATIT KERANG HIJAU DAN KALSIUM SULFAT HEMIhidrat DENGAN METODE SOLVENT CASTING. *Jurnal Teknik Mesin S-1*, 13(3), pp.1–6.
- [19] N. Hasnil, R. Ismail, and A. Priharyoto Bayuseno, “Pengaruh Temperatur Sintering Terhadap Karakterisasi Porous Hidroksiapatit Cangkang Kerang Hijau Yang Dibuat Menggunakan Metode Polyurethane Sponge Replication,” *J. Tek. Mesin S-1 Univ. Diponegoro*, vol. 11, no. 4, pp. 273–278, 2023.