

Pembuatan granul *monetite* menggunakan metode hidrotermal sebagai kandidat *bone graft* kedokteran gigi

Dyah Rahmawati¹, Sunarso^{1*}, Bambang Irawan¹

¹Departemen Ilmu Material Kedokteran Gigi, Fakultas Kedokteran Gigi Universitas Indonesia, Indonesia

*Korespondensi: sunarso02@ui.ac.id

Submisi: 04 Juli 2021; Penerimaan: 30 Agustus 2021; Publikasi online: 31 Agustus 2021

DOI: [10.24198/jkg.v33i2.34406](https://doi.org/10.24198/jkg.v33i2.34406)

ABSTRAK

Pendahuluan: Kerusakan tulang yang besar membutuhkan prosedur penambahan *bone graft* untuk membantu meregenerasi jaringan tulang. *Monetite* memiliki potensi yang sangat baik sebagai kandidat *bone graft* kedokteran gigi. Hidrotermal banyak digunakan dalam sintesis *bone graft* karena dapat mempercepat reaksi. Tujuan penelitian membuat *monetite* dari granul gipsum sebagai prekursor dengan menggunakan metode hidrotermal sebagai kandidat *bone graft* kedokteran gigi. **Metode:** Jenis penelitian ini merupakan *eksperimental laboratoris*. Granul gipsum dibuat dengan menggerus blok gipsum hasil reaksi setting kalsium sulfat hemihidrat dan aquadest dengan rasio serbuk terhadap liquid sebesar 2,5. Selanjutnya, granul gipsum dikonversi menjadi granul *monetite* dengan direndam di dalam larutan 2 mol/L NaH_2PO_4 pada suhu 150°C dalam kondisi hidrotermal selama 24 jam. **Hasil:** Berdasarkan hasil uji XRD, granul *monetite* dapat terbentuk. Hasil gambar optik granul *monetite* secara makroskopik menunjukkan tidak mengalami perubahan dibandingkan dengan granul gipsum. **Simpulan:** Granul *monetite* sebagai kandidat *bone graft* kedokteran gigi berhasil dibuat dengan metode hidrotermal melalui perendaman granul gipsum dalam larutan 2 mol/L NaH_2PO_4 pada suhu 150°C selama 24 jam.

Kata kunci: *bone graft*; gipsum kedokteran gigi; *monetite*; hidrotermal

Fabrication of monetite granules with the hydrothermal method as a dental bone graft candidate

ABSTRACT

Introduction: Massive bone damage requires a procedure of bone graft addition to helping regenerate the bone tissue. *Monetite* has excellent potential as a dental bone graft candidate. Hydrothermal is widely used in bone graft synthesis due to its catalyst property. The purpose of this research was to fabricate the *monetite* from gypsum granules as a precursor with the hydrothermal method sebagai kandidat *bone graft* kedokteran gigi. **Methods:** This research was an experimental laboratory. Gypsum granules were made by grinding gypsum blocks resulting from the setting reaction of calcium sulfate hemihydrate and aquadest with a powder to liquid ratio of 2.5. Furthermore, the gypsum granules were converted into *monetite* granules by immersing them in a solution of 2 mol/L of NaH_2PO_4 at a temperature of 150°C under hydrothermal conditions for 24 hours. **Results:** Based on the XRD test results, *monetite* granules was able to be formed. The results of the macroscopic optical image of the *monetite* granules showed no change compared to the gypsum granules. **Conclusions:** Granul *monetite* sebagai kandidat *bone graft* kedokteran gigi berhasil dibuat dengan metode hidrotermal melalui perendaman granul gipsum dalam larutan 2 mol/L NaH_2PO_4 pada suhu 150°C selama 24 jam.

Keywords: *bone grafting*; dental gypsum; *monetite*; hydrothermal

PENDAHULUAN

Saat ini perkembangan *bone graft* lebih banyak ke arah *alloplast*. *Alloplast* adalah suatu material sintetik yang bisa digunakan sebagai material *bone graft* karena memiliki komposisi yang hampir mirip dengan komposisi tulang.¹ Salah satu biomaterial yang diteliti secara ekstensif sebagai biomaterial untuk regenerasi tulang adalah Kalsium fosfat.² Sebagian besar penelitian kalsium fosfat difokuskan pada penggunaan hidroksiapatit karena kemiripannya dengan komponen mineral tulang.³ Hidroksiapatit memiliki sifat osteokonduktif yang sangat baik, namun memiliki kelemahan yaitu resorpsi *in vivo* dari hidroksiapatit yang lambat.⁴ Kecepatan resorpsi suatu bone graft salah satunya dipengaruhi oleh kristalinitas dan luas permukaan.⁵ Proses pembuatan hidroksiapatit biasanya melalui proses sintering yang menghasilkan kristalinitas yang tinggi dengan luas permukaan yang rendah karena proses densifikasi.⁶

Kalsium fosfat lain yang digunakan sebagai material *bone graft* adalah β -tricalcium Phosphate (β -TCP).⁷ β -TCP ini adalah keramik kalsium fosfat yang bersifat osteokonduktif.⁸ β -TCP memiliki kemampuan diresorpsi yang lebih baik bila dibandingkan dengan hidroksiapatit (HA),⁹ namun β -TCP memiliki kelemahan, yaitu biaya proses pembuatannya yang cukup mahal serta kelarutannya sangat cepat.¹⁰ *Biphasic calcium phosphate* (BCP) adalah produk *bone graft* yang dibuat untuk mengatasi kelemahan HA dan β -TCP. *Bone graft* BCP terdiri dari campuran HA dan β -TCP dengan berbagai rasio.¹¹ Saat ini, BCP menjadi material alternatif selain HA dan β -TCP, namun proses penyimpanan BCP yang cukup sulit serta ketidakpastian rasio (HA dan β -TCP) yang tepat dalam pembuatan *Biphasic kalsium phosphate* (BCP) menjadi kelemahan dari BCP.¹² Terbatasnya pilihan *bone graft* untuk bidang kedokteran gigi, maka diperlukan alternatif kandidat material *bone graft* selain yang sudah beredar.

Saat ini ada ketertarikan yang besar terhadap *dikalsium fosfat anhidrat* (DCPA) yang juga dikenal sebagai *monetite*. *Monetite* memiliki resorbabilitas *in vivo* yang jauh lebih cepat dibandingkan dengan hidroksiapatit.¹³ *Monetite* memiliki kemampuan meregenerasi tulang hampir setara dengan *autograft* yang merupakan *gold standard* pada metode *bone grafting*.¹⁴ Penelitian

yang dilakukan oleh Torres dkk secara *in vivo* pada tulang kranial kelinci menunjukkan bahwa kemampuan meregenerasi tulang antara *monetite* dan *autograft* tidak berbeda secara signifikan.¹⁴

Penelitian Torres dkk¹⁴ juga menyatakan bahwa, *monetite* memiliki sifat lebih mudah diresorpsi oleh osteoklas dan lebih mampu membentuk tulang baru dibanding dengan *bovine hidroksiapatit*. Hal ini membuktikan bahwa *monetite* memiliki potensi yang sangat baik sebagai kandidat *bone graft* kedokteran gigi. Namun, metode pembuatan *monetite* masih sangat terbatas, sehingga perlu dikembangkan metode baru yang mudah dan murah, sehingga pada penelitian ini granula monetite dibuat menggunakan metode transformasi fasa dalam kondisi hidrotermal. Tujuan penelitian membuat *monetite* dari granula gipsum sebagai prekursor dengan menggunakan metode hidrotermal sebagai kandidat *bone graft* kedokteran gigi.

METODE

Jenis penelitian yang dilakukan adalah penelitian eksperimental laboratoris. Proses pembuatan granula *monetite*, diawali dengan membuat pelet gipsum dengan mencampurkan serbuk kalsium sulfat hemihidrat (plaster) dan aquades dengan rasio serbuk terhadap liquid sebesar 2,5. Rasio 2,5 dipilih berdasarkan penelitian sebelumnya (tidak diterbitkan pada jurnal) karena pasta yang terbentuk memiliki kemampuan dapat dicetak yang baik. Semua serbuk diaduk hingga tercampur sempurna, kemudian dimasukkan ke dalam cetakan dengan ukuran diameter 3 mm dan tebal 6mm dan dibiarkan mengeras selama 24 jam. Setelah mengeras, pelet digerus menggunakan lumpang alu *mortar* dan *pestle* dan lalu disaring dengan saringan ukuran 500-1000 μ m sehingga didapatkan granula gipsum. Granula gipsum dan larutan NaH_2PO_4 dimasukkan ke dalam *vessel* hidrotermal pada suhu 150°C selama 24 jam.

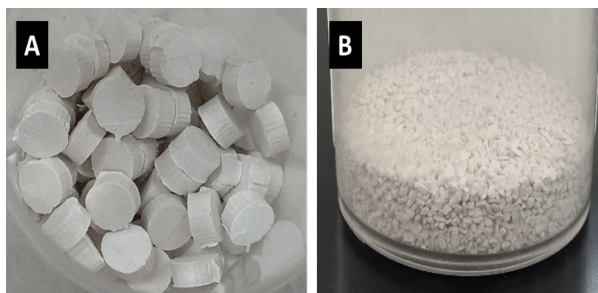
Setelah proses hidrotermal, granula disaring dengan kertas Whatman dan dicuci dengan aquades sebanyak 3 kali. Granula dikeringkan pada suhu 37°C selama 24 jam. Selanjutnya, granula dihaluskan menjadi serbuk dan dikarakterisasi menggunakan difraksi sinar-X (XRD). Karakterisasi XRD dilakukan menggunakan sumber radiasi sinar-X $\text{CuK}\alpha$ (*step size* = 0,0167°, 1 detik per

step). Hasil XRD *monetite* dicocokkan dengan pola referensi *monetite* berdasarkan *Crystallography Open Database* (COD) (No.9007619).

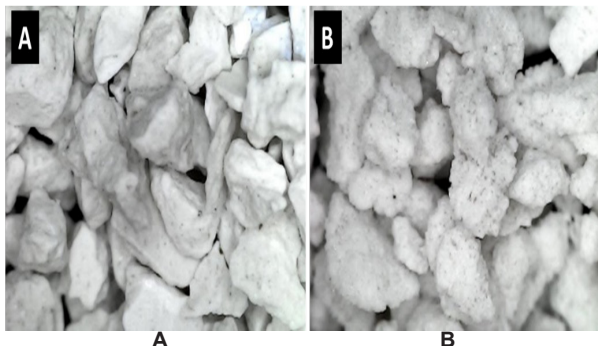
Penelitian dilakukan di Laboratorium Penelitian dan Pengembangan Material Kedokteran Gigi (PPMKG) Fakultas Kedokteran Gigi Universitas Indonesia dan laboratorium UPP-IPD Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Indonesia pada April-Juni 2021.

HASIL

Pembuatan *monetite* dengan metode transformasi fasa pada kondisi hidrotermal telah berhasil dilakukan dengan diawali pembuatan pelet gipsum (Gambar 1A) yang kemudian dihaluskan menjadi granul gipsum berukuran 500-1000 μ m (Gambar 1B). Gambar optik granul gipsum dan granul *monetite* setelah dilakukan metode hidrotermal disajikan pada gambar 2. Gambar 2 menunjukkan gambaran makroskopis yang relatif sama antara granul *monetite* dengan granul gipsum sebagai prekursor.



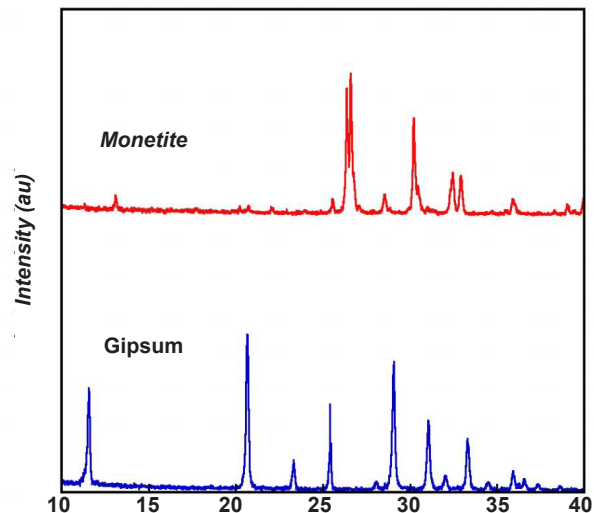
Gambar 1. (A) Pellet gipsum dan (B) granul gipsum ukuran 500-1000 μ m



Gambar 2. Gambar optik (A) granul gipsum dan (B) granul *monetite*

Grafik puncak-puncak sudut XRD granul gipsum dan granul *monetite* disajikan pada Gambar 3. Analisa puncak-puncak XRD menunjukkan

bahwa gipsum sudah berubah menjadi *monetite* setelah melalui metode hidrotermal. Perubahan pola difraksi gipsum terjadi setelah dilakukan perendaman dalam larutan NaH_2PO_4 pada suhu 150°C dalam metode hidrotermal. Tabel 1 menunjukkan perubahan puncak-puncak sudut difraksi sinar-X dari gipsum menjadi *monetite*. Pola difraksi sinar-X *monetite* sesuai dengan pola difraksi *monetite* referensi (Ref: 96-900-7620) yang ditulis pada tabel 1 dan menunjukkan tidak ada fasa lain selain *monetite* (Gambar 3).



Gambar 3. Pola difraksi sinar-X gipsum dan *monetite*

Tabel 1. Perbandingan sudut-sudut 2θ difraksi sinar-X kelompok granul *monetite* terhadap sudut-sudut 2θ gipsum dan *monetite* referensi. Sudut-sudut 2θ difraksi sinar-X granul *monetite* cocok dengan yang dimiliki oleh referensi *monetite*.

Granul gipsum	Granul <i>monetite</i>	<i>Monetite</i> referensi (Ref: 96-900-7620)
11,70°		
	13,08°	13,09
20,65°		
23,34°		
25,39°		
	25,55°	25,53
	26,36°	26,36
	26,58°	26,55
	28,50°	28,52
29,05°		
	30,19°	30,24
31,03°		
	32,43°	32,46
	32,91°	32,83
33,28°		

PEMBAHASAN

Metode pembuatan *monetite* masih sangat terbatas. Transformasi fasa berdasarkan reaksi disolusi-presipitasi merupakan metode yang sangat baik pada pembuatan biokeramik untuk *bone graft*. Dalam penelitian ini prekursor yang digunakan adalah gipsum. Gipsum dalam bidang kedokteran gigi biasanya digunakan untuk membuat model studi dari rongga mulut dan struktur maksilo fasial, serta sebagai bahan pembuatan protesa gigi pada pekerjaan di laboratorium.¹⁵ Gipsum juga banyak digunakan dalam bidang ortopedi sebagai *bone graft* untuk material pembawa antibiotik dalam penanganan osteomyelitis,¹⁶ oleh karena itu penggunaan gipsum sebagai prekursor dianggap aman. Penelitian ini, menggunakan semen gipsum sebagai bahan baku pembuatan granul *monetite* karena memiliki kekuatan mekanik awal hasil mekanisme pengerasan maka proses kompaksi tidak diperlukan dalam pembuatan granul. Selain itu, penggunaan semen gipsum membuat proses

pembuatan granul *monetite* menjadi sederhana dan murah.

Pembuatan *monetite* pada penelitian ini dengan menggunakan metode transformasi fasa pada kondisi hidrotermal. Metode hidrotermal merupakan reaksi basah yang terjadi pada temperatur dan tekanan tinggi (>100°C, >1atm) dalam sebuah bejana tertutup.¹⁷ Metode hidrotermal dalam transformasi gipsum menjadi *monetite* memiliki keuntungan, yaitu reaksi lebih cepat karena menggunakan suhu dan tekanan lebih tinggi. Keuntungan lain dari metode hidrotermal yaitu mampu menghindari terjadinya fasa kedua yang berasal dari impuritas.¹⁸ Hasil karakterisasi sinar-X menunjukkan gipsum telah sepenuhnya berubah menjadi fasa *monetite* setelah proses hidrotermal dan tidak ditemukan fasa lain, termasuk biproduk yang mungkin terbentuk. Pembuatan *monetite* menggunakan gipsum sebagai prekursor belum pernah dilakukan sebelumnya. Proses transformasi fasa gipsum menjadi *monetite* pada penelitian ini diperkirakan melalui reaksi di bawah ini.



Reaksi gipsum dengan NaH_2PO_4 menghasilkan *monetite* sebagai produk utama dan NaHSO_4 sebagai biproduk. Air juga dihasilkan pada reaksi tersebut. Senyawa NaHSO_4 merupakan garam larut air, sehingga terbuang ketika dilakukan pencucian. Hal ini dibuktikan tidak adanya fasa NaHSO_4 yang terdeteksi pada pola difraksi sinar-X *monetite* (Tabel 1 dan Gambar 3).

Berdasarkan observasi yang dilakukan secara visual, bentuk granul tidak berubah secara makroskopis setelah proses transformasi menjadi *monetite* (Gambar 2). Proses pengubahan granul gipsum menjadi granul *monetite* mungkin saja tidak tercapai jika granul mengalami pecah atau menjadi serbuk. Gambar 2 membuktikan bahwa proses hidrotermal yang digunakan pada penelitian ini berhasil membuat granul *monetite* dari granul gipsum. Hal ini disebabkan karena mekanisme transformasi fasa terjadi melalui prinsip disolusi-presipitasi. Kelebihan disolusi-presipitasi dalam mempertahankan bentuk makroskopis juga dilaporkan sebelumnya.¹⁹

Bone graft berpori (makropori) memungkinkan terjadinya pengangkutan nutrisi, oksigen dan residu metabolisme seluler, sehingga

dapat terjadi proses proliferasi, diferensiasi dan maturasi sel.²⁰ Hasil pengamatan optik pada penelitian ini memperlihatkan bahwa granul *monetite* nampak lebih berpori (mikropori) dibanding dengan granul gipsum. Mikroporositas dilaporkan dapat meningkatkan kecepatan resorpsi dan pembentukan jaringan lunak suatu *bone graft* ketika diimplankan.²¹ Struktur mikropori ini mungkin disebabkan oleh perubahan mikrostruktur granul setelah mengalami transformasi fasa menjadi *monetite*. Namun, pengamatan lebih detail diperlukan menggunakan mikroskop elektron untuk mengamati perubahan ini, termasuk morfologi pori yang terbentuk pada granul *monetite*.

SIMPULAN

Granul *monetite* berhasil dibuat melalui metode transformasi fasa granul gipsum pada kondisi hidrotermal suhu 150°C selama 24 jam. Secara makroskopis, tidak terlihat perubahan granul gipsum menjadi granul *monetite*. Penelitian ini menunjukkan bahwa metode hidrotermal pada pembuatan *monetite* efektif menghasilkan produk granul.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penelitian ini dibiayai oleh Hibah PUTI Q3 Universitas Indonesia No. kontrak: BA-939/UN2. RST/PPM.00.03.01/2021.

DAFTAR PUSTAKA

1. Thukral H. Alloplastic Bone Grafts: LAP Lambert Academic Publishing, Omniscriptum GmbH & Co. Kg.; 2015. p. 4-36
2. Jeong J, Kim JH, Shim JH, Hwang NS, Heo CY. Bioactive calcium phosphate materials and applications in bone regeneration. *Biomaterials Research* 2019;23(1):4. DOI: [10.1186/s40824-018-0149-3](https://doi.org/10.1186/s40824-018-0149-3).
3. Von Euw S, Wang Y, Laurent G, Drouet C, Babonneau F, Nassif N, et al. Bone mineral: new insights into its chemical composition. *Scientific Reports* 2019;9(1):8456. DOI: [10.1038/s41598-019-44620-6](https://doi.org/10.1038/s41598-019-44620-6).
4. Prakasam M, Locs J, Salma-Ancane K, Loca D, Largeteau A, Berzina Cimdina L. Fabrication, Properties and Applications of Dense Hydroxyapatite: A Review. *J Funct Biomater* 2015;6(4):1099-140. DOI: [10.3390/jfb6041099](https://doi.org/10.3390/jfb6041099).
5. Hannink G, Arts JJC. Bioresorbability, porosity and mechanical strength of bone substitutes: What is optimal for bone regeneration? *Injury* 2011;42:S22-5. DOI: [10.1016/j.injury.2011.06.008](https://doi.org/10.1016/j.injury.2011.06.008).
6. Champion E. Sintering of calcium phosphate bioceramics. *Acta Biomater* 2013;9(4):5855-75. DOI: [10.1016/j.actbio.2012.11.029](https://doi.org/10.1016/j.actbio.2012.11.029).
7. Dorozhkin SV. Calcium Phosphates. In: Antoniac IV, editor. *Handbook of Bioceramics and Biocomposites*. Cham: Springer International Publishing; 2014. p. 1-22.
8. Sohn HS, Oh JK. Review of bone graft and bone substitutes with an emphasis on fracture surgeries. *Biomater Res* 2019;23:9. DOI: [10.1186/s40824-019-0157-y](https://doi.org/10.1186/s40824-019-0157-y)
9. Xidaki D, Agrafioti P, Diomatari D, Kaminari A, Tsalavoutas-Psarras E, Alexiou P, et al. Synthesis of Hydroxyapatite, beta-Tricalcium Phosphate and Biphasic Calcium Phosphate Particles to Act as Local Delivery Carriers of Curcumin: Loading, Release and In Vitro Studies. *Materials (Basel)* 2018;11(4):595. DOI: [10.3390/ma11040595](https://doi.org/10.3390/ma11040595).
10. Ratnasari A, Sofiyansih N, Nizar MS, Hernawan H. Synthesis of TCP by Wet Precipitation Method from Natural Lime. *Jurnal Keramik dan Gelas Indonesia* 2020;29(2):101-08. DOI: [10.32537/jkgi.v29i2.6711](https://doi.org/10.32537/jkgi.v29i2.6711).
11. Garrido CA, Lobo SE, Turibio FM, Legeros RZ. Biphasic calcium phosphate bioceramics for orthopaedic reconstructions: clinical outcomes. *Int J Biomater* 2011;2011:129727. DOI: [10.1155/2011/129727](https://doi.org/10.1155/2011/129727)
12. Ebrahimi M, Botelho MG, Dorozhkin SV. Biphasic calcium phosphates bioceramics (HA/TCP): Concept, physicochemical properties and the impact of standardization of study protocols in biomaterials research. *Materials Science and Engineering: C* 2017;71:1293-312. DOI: [10.1016/j.msec.2016.11.039](https://doi.org/10.1016/j.msec.2016.11.039).
13. Tamimi F, Sheikh Z, Barralet J. Dicalcium phosphate cements: Brushite and monetite. *Acta biomaterialia* 2012;8(2):474-87. DOI: [10.1016/j.actbio.2011.08.005](https://doi.org/10.1016/j.actbio.2011.08.005).
14. Torres J, Tamimi I, Cabrejos-Azama J, et al. Monetite granules versus particulate autologous bone in bone regeneration. *Ann Anat* 2015;200:126-33. DOI: [10.1016/j.aanat.2015.03.008](https://doi.org/10.1016/j.aanat.2015.03.008).
15. Anusavice KJ, Shen C, Rawls HR. *Phillips' Science of Dental Materials-E-Book*: Elsevier Health Sciences; 2014. p. 182
16. Birt MC, Anderson DW, Bruce Toby E, Wang J. Osteomyelitis: Recent advances in pathophysiology and therapeutic strategies. *J Orthop* 2017;14(1):45-52. DOI: [10.1016/j.jor.2016.10.004](https://doi.org/10.1016/j.jor.2016.10.004)
17. Byrappa K, Yoshimura M. 1 - Hydrothermal Technology—Principles and Applications. In: Byrappa K, Yoshimura M, editors. *Handbook of Hydrothermal Technology (Second Edition)*. Oxford: William Andrew Publishing; 2013. p. 1-49.
18. Bingöl OR, Durucan C. Hydrothermal synthesis of hydroxyapatite from calcium sulfate hemihydrate. *Am. J. Biomed. Sci* 2012;4(1):50-59. DOI: [10.5099/aj120100050](https://doi.org/10.5099/aj120100050)
19. Arsista D, Eriwati YK, Triaminingsih S, Sunarso S. Fabrication of porous carbonate apatite based on the dissolution-precipitation of calcium sulfate hemihydrate. *Dentino: J Ked Gi* 2019;4(2):205-09. DOI: [10.20527/dentino](https://doi.org/10.20527/dentino).

[v4i2.7055](#)

20. Le X, Poinern GEJ, Ali N, Berry CM, Fawcett D. Engineering a Biocompatible Scaffold with Either Micrometre or Nanometre Scale Surface Topography for Promoting Protein Adsorption and Cellular Response. *International Journal of Biomaterials* 2013;782549:16. DOI:

[10.1155/2013/782549](#)

21. Lapczynska H, Wüst GLS, Bohner M, Jerban S, Sweedy A, Doebelin N, et al. Effect of grain size and microporosity on the in vivo behaviour of b-tricalcium phosphate scaffolds. *European Cells and Materials (ECM)* 2014;28:299-319. DOI: [10.22203/ecm.v028a21](#).