

***Flexural Strength* pada Geopolimer Komposit dengan
Filler Zirconia Alumina dan Nanoselulosa Kristalin**

Ibnu Suryatmojo^{1*}, Melanie S. Djamil², Tien Suwartini³

¹Departemen Konservasi Gigi Universitas Kristen Maranatha

²Departemen Biokimia dan Biologi Molekular Universitas Trisakti

³Departemen Konservasi Gigi Universitas Trisakti

*email: ibnusuryatmojo23@gmail.com

ABSTRAK

Komposit adalah bahan restorasi yang paling umum digunakan dalam kedokteran gigi untuk mengembalikan struktur gigi yang hilang. Komposit yang ada saat ini masih memiliki beberapa kekurangan sifat mekanis. Geopolimer adalah bahan yang mulai berkembang dalam bidang kedokteran gigi, karena memiliki sifat mekanis yang baik sebagai bahan restorasi sehingga bahan ini dapat bermanfaat, selanjutnya penambahan *filler* dapat meningkatkan sifat mekanis suatu komposit. Untuk mengetahui pengaruh zirkonia-alumina ($ZrO_2-Al_2O_3$) dan nanoselulosa kristalin $(C_6H_{10}O_5)_n$ sebagai *filler* tambahan terhadap sifat mekanis komposit berbasis geopolimer. Jenis penelitian ini adalah eksperimental laboratoris dengan desain kontrol *post test only*. Penelitian ini menggunakan 4 kelompok uji. Untuk menguji sifat mekanis yaitu *flexural strength* dari geopolimer komposit yang telah ditambahkan $ZrO_2-Al_2O_3$ dan/tanpa nanoselulosa kristalin. Analisis statistik dilakukan menggunakan program STATA. Hasil uji *flexural strength* kelompok geopolimer komposit- $ZrO_2-Al_2O_3$ dan geopolimer komposit- $ZrO_2-Al_2O_3$ -nanoselulosa kristalin menunjukkan perbedaan yang signifikan ($p=0,000$). Penambahan nanoselulosa kristalin pada geopolimer komposit- $ZrO_2-Al_2O_3$ meningkatkan *flexural strength* secara signifikan..

Kata kunci: komposit geopolimer, nanoselulosa kristalin, *flexural strength*.

ABSTRACT

Composites are the most common restorative materials used in dentistry to restore lost tooth structure. Existing composites still have some shortcomings in mechanical properties. Geopolymer is a material that is starting to develop in the field of dentistry, because it has good mechanical properties as a restorative material so that this material can be useful, then the addition of fillers can improve the mechanical properties of a composite. To determine the effect of zirconia-alumina ($ZrO_2-Al_2O_3$) and crystalline nanocellulose $(C_6H_{10}O_5)_n$ as an additional filler to the mechanical properties of geopolimer-based composites. This type of research is an experimental laboratory with a post test only control design. This study used four test groups. To test

the mechanical properties, namely the flexural strength of the composite geopolymer that has been added $ZrO_2-Al_2O_3$ and/without crystalline nanocellulose. Statistical analysis was performed using the STATA program. The results of the flexural strength test of the composite geopolymer and $ZrO_2-Al_2O_3$ -crystalline nanocellulose composite geopolymer showed a significant difference ($p=0.000$). The addition of crystalline nanocellulose to the $ZrO_2-Al_2O_3$ -composite geopolymer significantly increased the flexural strength.

Keywords: geopolymer composite, crystalline nanocellulose, flexural strength.

PENDAHULUAN

Komposit adalah produk yang terdiri dari sedikitnya dua bahan berbeda dibentuk dengan memadukan komponen tersebut yang memiliki struktur dan sifat yang berbeda dengan tujuan untuk menghasilkan bahan yang memiliki sifat yang diinginkan.¹ Komposisi komposit terdiri dari *matriks*, *filler*, dan *coupling agent*. *Matriks* pada komposit secara umum adalah *Bisphenol A-glycidyl methacrylate* (Bis-GMA).² Bis-GMA memiliki kekurangan seperti viskositas yang tinggi, penyerapan air tinggi, penyusutan, dan tidak melekat terhadap struktur gigi. Bahan restorasi harus memiliki sifat mekanis yang baik agar dapat menahan beban kunyah dalam mulut.^{3,4}

Filler pada komposit secara umum terbagi menjadi tiga tipe yaitu *ground quartz*, *colloidal silica*, *glasses* atau keramik yang mengandung logam. Salah satu bahan *filler* yang umum digunakan adalah zirconia (ZrO_2) karena memperbaiki sifat mekanis dari komposit, stabilitas dimensional yang baik, kekerasan dan ketahanan fraktur yang baik. ZrO_2 juga digunakan sebagai bahan material dalam bidang kedokteran gigi terutama sebagai bahan restorasi karena dapat menambah kekuatan, terutama kekerasan dari bahan restorasi.⁵

Sampai saat ini bahan restorasi atau komposit yang beredar di pasaran tidak ada satupun yang diproduksi di Indonesia. Bahan baku pembuatan komposit umumnya diimpor dari negara lain padahal sumber daya alam yang melimpah di Indonesia menjadikan ketersediaan bahan baku pembuatan material kedokteran gigi cukup banyak dan berkualitas baik. Bahan yang dapat dimanfaatkan sebagai bahan restorasi dalam kedokteran gigi adalah geopolimer. Geopolimer menarik perhatian karena sifat mekanisnya yang baik, kekuatan dan daya tahan tinggi, tahan abrasi, durabilitas baik, dan temperatur stabil. Geopolimer tahan terhadap asam karena memiliki kandungan kalsium yang rendah.⁶ Alasan utama geopolimer banyak diteliti dan menarik perhatian karena sumber bahan geopolimer berasal dari limbah pabrik, salah satunya kaolin. Beberapa literatur menganjurkan untuk membuat geopolimer berbahan dasar

metakaolin karena memiliki sifat mekanis yang lebih baik bila dibandingkan dengan geopolimer dari bahan lain seperti *Fly Ash*.⁷

Keuntungan geopolimer yang lainnya yaitu biaya produksi yang murah karena berasal dari limbah dan proses pembuatannya tidak rumit bila dibandingkan dengan dibandingkan *porcelain*.⁷ Bahan baku pembuatan geopolimer sendiri bisa di dapatkan di Indonesia. Untuk bidang kedokteran gigi, geopolimer sudah mulai diteliti untuk digunakan sebagai bahan restorasi. Walaupun belum didapatkan hasil yang diinginkan namun dalam setiap penelitiannya selalu mendapatkan kemajuan, terutama dari sifat mekanisnya. Sumber daya alam Indonesia yang lain yang bisa diolah menjadi bahan yang dapat digunakan di bidang kedokteran gigi adalah ZrO_2 dan alumina (Al_2O_3). $ZrO_2-Al_2O_3$ dapat dimanfaatkan di bidang kedokteran gigi karena memiliki keunggulan, yaitu memiliki stabilitas dimensional yang baik, memiliki kekuatan dan kekerasan yang tinggi, serta biokompatibel.⁸

Palm kernel cake (PKC) atau bungkil inti sawit adalah salah satu hasil sampingan berlimpah yang diperoleh dari industri kelapa sawit dengan kadar selulosa 35,7%; hemiselulosa 30,3%; dan lignin 15,6%. Selulosa merupakan senyawa organik dengan formula $(C_6H_{10}O_5)_n$, suatu polisakarida yang terdiri dari rantai linier beberapa ratus hingga ribuan unit glukosa.⁹

Selulosa bersifat biokompatibel, terbarukan, biodegradable, dan didaur ulang. Sifat uniknya telah mendorong pengembangan selulosa dalam berbagai aplikasi, sebagai contoh pembuatan *smart material* di bidang listrik, makanan, bahan bakar, bahan kimia, tekstil, membran, dan obat-obatan.¹⁰ PKC dapat diolah menjadi selulosa dan olah kembali menjadi nanoselulosa dengan cara mengkonversi dari satuan unit besar misalnya sentimeter unit yang kecil yaitu nano meter dengan menggunakan bantuan bahan kimia seperti hidrolisis asam, yang biasa digunakan untuk mengekstraksi nanoselulosa kristalin dari selulosa murni dengan menghilangkan bagian amorf dan menyisakan struktur kristalin yang tinggi.¹¹ Nanoselulosa kristalin diketahui memiliki banyak manfaat diantaranya dapat digunakan sebagai *filler* bahan restorasi untuk meningkatkan atau memperbaiki sifat mekanisnya.

Metode Penelitian

Penelitian ini adalah eksperimental dengan rancangan penelitian *post test only control design*. Penelitian ini adalah untuk melihat kekerasan dan kekuatan fleksi komposit geopolimer setelah ditambahkan nanoselulosa kristalin dan $ZrO_2-Al_2O_3$. Sampel pada penelitian ini adalah dengan komposit geopolimer *filler* $ZrO_2-Al_2O_3$ dan penambahan nanoselulosa kristalin dari prekursor PKC dan komposit geopolimer *filler* $ZrO_2-Al_2O_3$ tanpa penambahan nanoselulosa kristalin. Sebagai kontrol negatif adalah komposit geopolimer tanpa *filler* dan komposit yang beredar di pasaran. Sampel dibagi menjadi 4 kelompok dimana masing masing kelompok berjumlah 12 sampel.

1. Sintesis Nanoselulosa Kristalin

Bahan PKC disiapkan terlebih dahulu sebelum disintesa dengan cara mencuci dan direndam dalam air selama 2 jam kemudian dikeringkan di bawah sinar matahari hingga kering. Ekstraksi selulosa dari prekursor PKC dengan menambahkan PKC beaker glass, kemudian ditambahkan campuran HNO₃ 3,5% dan NaNO₂ 10mg, lalu dipanaskan di atas *hotplate stirrer* dengan suhu 90 derajat selama 2 jam kemudian saring ampas PKC dan cuci hingga netral. Lakukan pemutihan menggunakan larutan NaOCL 1,75% sebanyak 250 ml pada suhu 90 derajat selama 30 menit, setelah itu disaring dan dicuci hingga netral agar didapatkan selulosa dari PKC.

Setelah didapatkan selulosa dari PKC, larutkan selulosa pada larutan H₂SO₄ 45% sebanyak 500ml pada suhu 45 derajat selama 45 menit. Dinginkan dan tambahkan aquades 500ml, kemudian diamkan selama semalam hingga terbentuk suspensi. Suspensi tersebut kemudian disentrifugasi dengan kecepatan 10.000 rpm selama 10 menit hingga mencapai pH yang netral. Sesudah disentrifugasi, dilakukan ultrasonifikasi selama 10 menit, lalu disaring menggunakan kertas filter untuk mendapatkan nanoselulosa kristalin yang berbentuk gel. Kemudian dikeringkan dalam oven selama 24 jam dalam suhu 100° C hingga kering.

Sampel pertama yang dibuat adalah komposit geopolimer. Komposit geopolimer dibuat dengan cara mencampurkan bahan metakaolin dengan alkali aktivator. Alkali aktivator didapat dengan mencampurkan NaOH dengan *waterglass*. Untuk membuat komposit geopolimer, metakaolin dicampurkan dengan alkali aktivator dengan perbandingan 1:1,4. Selanjutnya 3 g metakaolin di campurkan dengan 4,2 g alkali aktivator. Sampel berikutnya membuat komposit geopolimer dengan zirconia alumina. Sampel dibuat dengan menambahkan komposit geopolimer yang telah dibuat kemudian ditambahkan ZrO₂ dan Al₂O₃. Bahan ZrO₂ ditambahkan sebanyak 0,09% dari berat komposit geopolimer dan alumina di tambahkan 20% dari berat metakaolin sebagai bahan dasar komposit geopolimer.

Hasil yang didapat adalah 3 g metakaolin ditambahkan 0,6 g alumina dan 0,09 g ZrO₂ kemudian dicampurkan dengan 4,2 g alkali aktivator. Untuk pembuatan sampel komposit geopolimer dengan penambahan nanoselulosa kristalin, 3 g metakaolin ditambahkan 0,6 g alumina dan 0,09 ditambahkan 0,15 g nanoselulosa kristalin dari PKC, kemudian dicampurkan dengan alkali aktivator. Sampel dimasukan kedalam cetakan logam berbentuk bulat. Kemudian dimasukan kedalam oven bersuhu 45° C selama 12 jam. Sedangkan untuk pengujian *three point bending* menggunakan ukuran berbentuk persegi panjang dengan ukuransesuai standar American Dental Association (ADA) no. 27

2. Uji Kekuatan Fleksi

Uji kekuatan fleksi dilakukan memberikan beban terhadap spesimen sebesar 1 kN dan *cross head speed* sebesar 1 mm/min dengan diameter tumpuan sebesar 2 mm, jarak antar tumpuan 20 mm dan diameter loading piston sebesar 2 mm menggunakan mesin Shimadzu Autograph AGS-5kNx di Fakultas Kedokteran Gigi, Univeritas Kristen Maranatha. Untuk mengetahui kekuatan bending suatu material dapat dilakukan dengan pengujian bending terhadap material komposit tersebut.

Kekuatan bending atau kekuatan lengkung adalah tegangan bending terbesar yang dapat diterima akibat pembebanan luar tanpa mengalami deformasi yang besar atau kegagalan. Besar kekuatan bending tergantung pada jenis material dan pembebanan. Akibat pengujian bending, bagian atas spesimen mengalami tekanan, sedangkan bagian bawah akan mengalami tegangan tarik. Dalam material komposit kekuatan tekannya lebih tinggi dari pada kekuatan tariknya. Karena tidak mampu menahan tegangan tarik yang diterima, spesimen tersebut akan patah, hal tersebut mengakibatkan kegagalan pada pengujian komposit. Kekuatan bending pada sisi bagian atas sama nilai dengan kekuatan bending pada sisi bagian bawah.

Hasil Penelitian

Pengujian kekuatan fleksi dilakukan dengan menggunakan universal testing machine kemudian dihitung dengan analisis statistik. Pengujian yang dilakukan adalah pengujian Kruskal –Wallis karena pada tes normalitas, distribusi data tidak normal. Dilanjutkan dengan uji post-hoc Mann-Whitney untuk melihat perbedaan antar kelompok.

Tabel 1. Pengujian kekuatan fleksi

Sampel	Jumlah	Rerata \pm SD	signifikansi
Geopolimer	12	6.50 \pm 1,02	0,000
GeopolimerZrO ₂ -Al ₂ O ₃	12	18.58 \pm 0,62	
GeopolimerZrO ₂ -Al ₂ O ₃ +N	12	30.42 \pm 1,14	
Komposit	12	42.50 \pm 7,65	

* Kruskal -Wallis $p \leq 0,05$; N: Nanoselulosa kristalin

Tabel 2. Nilai kemaknaan antar kelompok

Sampel	Geopolimer	G+ZrO ₂ Al ₂ O ₃	G+ZrO ₂ Al ₂ O ₃ +N	Komp
Geopolimer	x	0,000*	0,000*	0.000*
Geopolimer ZrO ₂ -Al ₂ O ₃	0,000*	x	0,000*	0,000*
Geopolimer ZrO ₂ -Al ₂ O ₃ +N	0,000*	0,000*	x	0,000*
Komposit	0.000*	0,000*	0,000*	x

*Uji *Post-hoc* Mann-Whitney $p \leq 0,05$; N: Nanoselulosa kristalin

Pada uji kekuatan fleksi terdapat perbedaan bermakna antara komposit geopolimer yang di tambahkan nanoselulosa dengan nanokomposit geopolimer yang tidak di tambahkan nanoselulosa. Penambahan nanoselulosa meningkatkan nilai kekuatan fleksi dari nanokomposit geopolimer walaupun nilai pada komposit kontrol masih jauh lebih tinggi.

Pembahasan

Pemilihan bahan kaolin sebagai bahan dasar pembuatan geopolimer komposit didasarkan pada beberapa penelitian geopolimer sebelumnya yang menyebutkan bahwa metakaolin menghasilkan kekuatan mekanis yang unggul. Metakaolin adalah material yang didapat dari kalsinasi kaolin pada temperatur antara 500-800°C dan mengandung silika dan Al_2O_3 lebih dari 85%. Geopolimer berbahan dasar metakaolin sudah diteliti dan menghasilkan geopolimerisasi yang sangat baik disebabkan kandungan silika dan alumina yang sangat tinggi, partikel berbentuk serpihan, sifat amorf yang mendukung reaktifitas, dan pengotor yang sangat sedikit. Berbagai kelebihan ini yang dapat mengakibatkan unggulnya sifat mekanis dan ketahanan kimia dari geopolimer berbahan metakaolin.¹² Selain itu kaolin mudah didapat dan harganya murah.

Limbah kelapa sawit PKC dipilih sebagai prekursor bahan nanoselulosa karena dapat menghasilkan selulosa dengan jumlah yang cukup banyak. Selulosa yang didapat dari PKC bisa mencapai 37% dari keseluruhan PKC.¹³ Bahan ini juga dapat menghasilkan bentuk nanoselulosa dengan bentuk *whisker*. Bentuk ini memiliki sifat mekanis yang lebih baik bila dibandingkan dengan bentuk lain seperti misalnya bentuk fiber.¹⁴

Material $ZrO_2-Al_2O_3$ dapat memberikan kekuatan pada komposit geopolimer. Penambahan ZrO_2 sebanyak 3% dari berat keseluruhan prekursor geopolimer yaitu metakaolin merupakan nilai optimal dari penambahan ZrO_2 sebagai bahan penguat. Penambahan lebih dari 3% dari jumlah keseluruhan metakaolin akan melemahkan kekuatan kekerasan komposit geopolimer karena sifat ZrO_2 sendiri yang sulit untuk mengeras. Material ZrO_2 menambah kekerasan dan *fracture toughness* dari komposit, tetapi sifat ZrO_2 sendiri sulit untuk keras bila berdiri sendiri. Jumlah 3% menurut penelitian sebelumnya adalah jumlah optimal untuk penambahan pada komposit geopolimer.¹⁵ Sifat sebagai penguat dimiliki yang baik Al_2O_3 pada komposit geopolimer. Material Al_2O_3 menambah kekerasan dan kekuatan fleksi dari komposit geopolimer. Pada penelitian sebelumnya di sebutkan penambahan optimal dari pada Al_2O_3 geopolimer komposit adalah 20%.¹⁶ Penambahan lebih dari jumlah tersebut akan melemahkan sifat mekanis dari komposit geopolimer.

Pengujian kekuatan fleksi menunjukkan hasil yang perbedaan signifikan secara statistik dari masing masing kelompok. Kelompok komposit geopolimer dengan *filler* $ZrO_2-Al_2O_3$ dan nanoselulosa kristalin memiliki nilai kekuatan fleksi yang lebih tinggi dibandingkan kelompok geopolimer dan kelompok komposit geopolimer hanya dengan *filler* $ZrO_2-Al_2O_3$, tetapi nilai kekuatan fleksi ini masih jauh bila di bandingkan dengan nilai kekuatan fleksi resin komposit. Bahan kramik memiliki kekerasan lebih tinggi dibandingkan dengan resin, tetapi memiliki nilai kekuatan fleksi yang lebih rendah. Penambahan nanoselulosa kristalin secara statistik meningkatkan kekuatan fleksi dari komposit geopolimer. Hal ini disebabkan karena penambahan zat organik pada zat anorganik akan merubah sifat mekanisnya. Dalam hal ini terjadi peningkatan nilai fleksi nya. Pengujian ini menunjukkan bahwa penambahan nanoselulosa kristalin mempengaruhi sifat mekanis kekuatan fleksi dari komposit geopolimer.

Kesimpulan

Nilai kekuatan fleksi komposit geopolimer dengan *filler* $ZrO_2-Al_2O_3$ dengan penambahan nanoselulosa kristalin lebih baik apabila di bandingkan dengan komposit geopolimer dengan *filler* $ZrO_2-Al_2O_3$ tanpa penambahan nanoselulosa. Namun nilainya masih jauh di bawah nilai flexural strength resin komposit.

Daftar Pustaka

1. McCabe J.F., Walls A.W.G. Applied dental materials. 9th ed. Oxford: Blackwell Publishing Ltd; 2008.
2. Manapallil J. Basic dental material. 2nd ed. New Delhi: Jaypee Brothers Medical Publishers (P) LTD; 2003
3. Peter J. Restorative dental materials: an integrated approach. 2nd ed. Oxford: Blackwell Publishing Ltd; 2008
4. Anusavice, KJ. Phillip's science of dental materials. 12th ed. St. Louis: Elsevier Science; 2003.
5. Özkurt Z, Iseri U, Kazazoglu E. Zirconia ceramic post system: a literature review and a case report. Dent Mater J. 2010; 29(3): 233-245.
6. Ferone C, Colangelo F, Roviello G, Asprone D, Menna C, Balsamo A, et al. Application-oriented chemical optimization for a metakaolin based geopolimer. Materials (Basel). 2013; 6(5): 1920-1939.
7. Hamidi RM, Man Z, Azizli KA. Concentration of NaOH and the effect on the properties of fly ash based geopolimer. Procedia Engineering; 2016; 14(8): 189-193
8. Ravikumar K, Sarkar J. ZrO₂-toughened Al₂O₃ composites with better fracture and wear resistance properties. J Biomater Appl. 2018; 32 (9): 1174-1186.

9. Peng BL, Dhar N, Liu HL, Tam KC. Chemistry and Applications of Nanocrystalline Cellulose and its Derivates: A Nanotechnology Perspective. CJChE; 2011; 10(6):124-128
10. Tiurma P. Upaya Meningkatkan Kualitas Bungkil Inti Sawit melalui Teknologi Fermentasi dan Penambahan Enzim untuk Unggas. WARTAZOA 2018; 28(3): 119-128
11. Shino Sj. Oil palm fiber (OPF) and its composites, Ind. Crops Prod., 33. 2011: 7–22.
12. Saka, S., Munusamy, M.V., Shibata, M., Tono, Y., Miyafuji, H.: Chemical Constituents of The Different Anatomical Parts of The Oil Palm (*Elaeis guineensis*) for Their Sustainable Utilization, JSPS-VCC Group Seminar, Natural Resources and Energy Environment 2008
13. Ngadi, N., & Lani, N. S. Extraction and Characterization of Cellulose Acetate from Empty Friut Bunch (EFB) Fiber. Jurnal Teknologi 2014, 4(12); 35-36.
14. Mikaela E. Börjesson C. Gunnar W Crystalline Nanocellulose Preparation, Modification, and Properties Published 2015 available at <https://www.semanticscholar.org>
15. Wongmaneerung.R. Effect of ZrO₂ and MgO Addition on Structure, Mechanical and Thermal Properties of Metakaolin-Based Geopolymer Composite. Key Eng Materials. 2019; 79(8): 298-303.
16. Tcakoute.H. Elimbi A. The effect of adding alumina-oxide to metakaolin and volcanic ash on geopolymer products: A comparative study, Construction and Building Materials. 35, 2012; 960-969.