

## Sintesis partikel zirkonia-alumina-silika (ZrO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>) dari pasir zirkon alam sebagai bahan pengisi komposit kedokteran gigi

Silmina Susra<sup>1</sup>, Nina Djustiana<sup>1\*</sup>, Renny Febrida<sup>1</sup>, I Made Joni<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Departemen Ilmu, Teknologi Material Kedokteran Gigi, Fakultas Kedokteran Gigi, Universitas Padjajaran

\*Korespondensi: [nina.djustiana@fkg.unpad.ac.id](mailto:nina.djustiana@fkg.unpad.ac.id)

Doi: [10.24198/jkg.v30i2.18537](https://doi.org/10.24198/jkg.v30i2.18537)

### ABSTRAK

**Pendahuluan:** Pasir zirkon (ZrSiO<sub>4</sub>) merupakan mineral alam yang tersusun atas zirkonia (ZrO<sub>2</sub>) dan silika (SiO<sub>2</sub>) yang berikatan dengan stabil. Zirkonia adalah salah satu material keramik kedokteran gigi yang banyak digunakan karena memiliki sifat mekanis dan biokompatibilitas yang tinggi. Zirkonia dapat dikombinasikan dengan silika dan alumina untuk membentuk suatu bahan pengisi komposit dengan sifat mekanis dan estetik yang dapat disesuaikan dengan sifat gigi kodrat. Tujuan dari penelitian ini adalah untuk menghasilkan bahan pengisi komposit alternatif di bidang kedokteran gigi yang berasal dari pasir zirkon alam untuk dijadikan bahan pengisi komposit. **Metode:** Jenis penelitian yang dilakukan adalah eksperimental laboratoris untuk mensintesis dan mengkarakterisasi partikel ZrO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> dari bahan baku alam berupa pasir zirkon dengan reaksi geopolimerisasi dan proses pemanasan suhu tinggi. Aktivator yang digunakan adalah larutan NaOH 3 mol dengan temperatur pemanasan 1100°C pada lama pemanasan 4 jam, 6 jam, dan 8 jam. **Hasil:** Hasil analisis uji X-Ray Diffraction (XRD) menunjukkan jumlah zirkonia berstruktur tetragonal terbesar ada pada sampel pemanasan 8 jam, yaitu 24%. Hasil analisis uji Energy Dispersive Spectroscopy (EDS) menunjukkan rasio komposisi zirkonia-alumina-silika dengan nilai zirkonia tertinggi ada pada sampel pemanasan 8 jam, yaitu 55,7; 23,6; 20,6. Hasil analisis mikroskop Scanning Electron Microscope (SEM) menunjukkan morfologi permukaan dan partikel yang tidak beraturan dan beraglomerasi. **Simpulan:** Sintesis partikel zirkonia-alumina-silika (ZrO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>) dari pasir zirkon alam dengan pemanasan 8 jam ditinjau dari jumlah zirkonia berstruktur tetragonal memadai digunakan sebagai bahan pengisi komposit berdasarkan uji XRD dan EDS, namun pada uji SEM partikel berbentuk tidak beraturan dan beraglomerasi.

**Kata kunci:** Pasir zirkon, zirkonia-alumina-silika, geopolimerisasi, bahan pengisi komposit

### *Synthesis of zirconia-alumina-silica particles (ZrO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>) from natural zircon sand as dental composite fillers*

### ABSTRACT

**Introduction:** Zircon sand (ZrSiO<sub>4</sub>) is natural mineral sand which is composed of zirconia (ZrO<sub>2</sub>) and silica (SiO<sub>2</sub>) that bind in a stable condition. Zirconia is one of a ceramic that is widely used in dentistry because of its high biocompatibility and good mechanical properties. Zirconia can be combined with silica and alumina to form a composite material with its esthetics and mechanical properties that can be adjusted to real tooth properties. **Methods:** This study focuses on a synthesis of zirconia-alumina-silica (ZrO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>) from natural zircon sand using a geopolymerization method and a heat treatment in high temperature. Activator used in this method is 3 mol NaOH solutions. A temperature that is used to heat is 1100° C for 4 hours, 6 hours, and 8 hours. **Results:** Analysis result of X-ray Diffraction (XRD) indicates that a sample with 8 hours heating time has a greatest amount of tetragonal zirconia: 24%. An analysis result of Energy Dispersive Spectroscopy (EDS) indicates that a composition ratio of zirconia-alumina-silica with a highest score in zirconia is present in a sample with 8 hours heating time, with a ratio 55,7 : 23,6 : 20,6. Analysis result of Scanning Electron Microscope (SEM) show irregularities in particles and surface morphology, and agglomerated particles. **Conclusion:** The study concludes that a synthesis of zirconia-alumina-silica (ZrO<sub>2</sub>-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>) particles from natural zircon sand based on the amount of tetragonal structure that is present in zirconia is suitable to be used as composite material based on XRD and EDS characterization tests. But in a SEM test, the particles show irregularities and agglomerations.

**Keywords:** Zircon sand, zirconia-alumina-silica, composite material

## PENDAHULUAN

Komposit kedokteran gigi merupakan bahan restorasi gigi yang terdiri dari resin monomer dan bahan pengisi inorganik yang terdistribusi di dalam matriks resin.<sup>1</sup> Bahan pengisi berperan sebagai penguat dan umumnya memiliki jenis, bentuk, ukuran dan morfologi yang berbeda-beda. Penelitian dan pengembangan bahan pengisi, yang berperan dalam peningkatan sifat fisis dan mekanis, bertujuan untuk meningkatkan penggunaan klinik dari bahan komposit kedokteran gigi.<sup>2</sup> Karakterisasi mikrostruktur dari bahan memungkinkan dalam membentuk pemahaman hubungan antara struktur dan sifat bahan pada pemakaiannya dan peningkatan desain bahan.<sup>3</sup>

Pasir zirkon alam yang merupakan zirkonium silikat ( $ZrSiO_4$ ) adalah sumber daya alam Indonesia yang mengandung seyawa zirkonia.<sup>4,5</sup> Zirkonia umum digunakan pada aplikasi biomedis, karena zirkonia memiliki sifat biokompatibilitas dan sifat mekanis yang tinggi, sifat optik yang baik, dan radioaktivitas yang rendah.<sup>6,7</sup> Aplikasi zirkonia di kedokteran gigi sebagai material restorasi gigi seperti implan, mahkota pasak, dan bahan pengisi komposit kedokteran gigi.<sup>8-10</sup> Zirkonia memiliki tiga bentuk kristalit, berdasarkan temperturnya, yaitu monoklinik, tetragonal dan kubik. Kristalit tetragonal zirkonia memiliki kemampuan *transformation toughening* yang menjadi sumber kekuatan dari zirkonia dan menjadikan zirkonia banyak digunakan pada area-area yang terkena beban atau gaya.<sup>11</sup>

Pembuatan partikel  $ZrO_2-Al_2O_3-SiO_2$  dari pasir zirkon sebagai bahan pengisi komposit kedokteran gigi telah dilakukan sebelumnya. Namun, metode yang digunakan untuk menghasilkan partikel adalah teknik *spray pyrolysis* yang merupakan teknik sensitif dan memiliki prosedur yang lebih kompleks.<sup>4</sup> Geopolimer merupakan polimer inorganik yang dibuat dari bahan-bahan aluminosilikat dan diketahui dapat digunakan pada sintesis partikel keramik. Penelitian-penelitian sebelumnya menyebutkan metode geopolimer murah dan mudah dalam pengerjaannya.<sup>12</sup> Pada penelitian ini, penulis tertarik untuk meneliti apakah sintesis partikel  $ZrO_2-Al_2O_3-SiO_2$ , dari pasir zirkon alam, menggunakan metode geopolimer memadai untuk digunakan sebagai bahan pengisi komposit. *Scanning Electron Microscope* (SEM) digunakan

untuk mengamati distribusi, ukuran dan bentuk mikrostruktur dari partikel. *Energy Dispersive Spectroscopy* (EDS) digunakan untuk analisis kimia semi kuantitatif dalam mengkarakterisasi mikrostruktur partikel, dan *X-Ray Diffraction* (XRD) untuk mengetahui kristalinitas yang dihasilkan. Tujuan dari penelitian ini adalah untuk menghasilkan bahan bahan pengisi komposit alternatif di bidang kedokteran gigi yang berasal dari pasir zirkon alam untuk dijadikan bahan bahan pengisi komposit

## METODE

Jenis penelitian yang dilakukan pada penelitian ini adalah eksperimental laboratoris. Pasir zirkon ( $ZrSiO_4$ ) dan serbuk alumina yang digunakan pada sintesis partikel  $ZrO_2-Al_2O_3-SiO_2$  diperoleh dari toko keramik Bandung. Akuades dan NaOH digunakan pada proses geopolimer diperoleh dari toko kimia. Prosedur sintesis dimulai dengan melakukan uji karakterisasi EDS, SEM, dan XRD untuk melihat komposisi senyawa, ukuran dan morfologi partikel, dan struktur kristal yang terbentuk pada sampel pasir zirkon alam (tanpa perlakuan). Setelah itu dilakukan perlakuan pada ketiga sampel dengan cara mereaksikan pasir zirkon alam dengan serbuk alumina menggunakan reaksi geopolimerisasi dan memanaskannya pada suhu tinggi. Ketiga sampel yang dihasilkan, dikarakterisasi SEM, EDS, dan XRD untuk melihat perbandingannya dengan hasil uji pada sampel pasir zirkon alam (tanpa perlakuan).

Penelitian dilakukan dari bulan Januari 2014 sampai dengan bulan Mei 2014 di tiga tempat: Pembuatan spesimen dilakukan di Laboratorium Sistem Instrumentasi dan Pemrosesan Material Fungsional Jurusan Fisika Universitas Padjadjaran di Jatinangor. Uji karakterisasi SEM dan EDS dilakukan di Laboratorium Badan Tenaga Nuklir Nasional (BATAN) di Serpong, Tangerang. Uji karakterisasi XRD dilakukan di Laboratorium Badan Tenaga Nuklir Nasional (BATAN) di Bandung.

Variabel-variabel pada penelitian ini yaitu variabel bebas (durasi proses pemanasan geopolimer, variabel terikat yaitu komposisi zirkonia, alumina dan silika, morfologi partikel, ukuran partikel, dan struktur Kristal) dan variabel terikat (alat, bahan, dan prosedur pembuatan sampel, alat dan prosedur karakterisasi sampel).

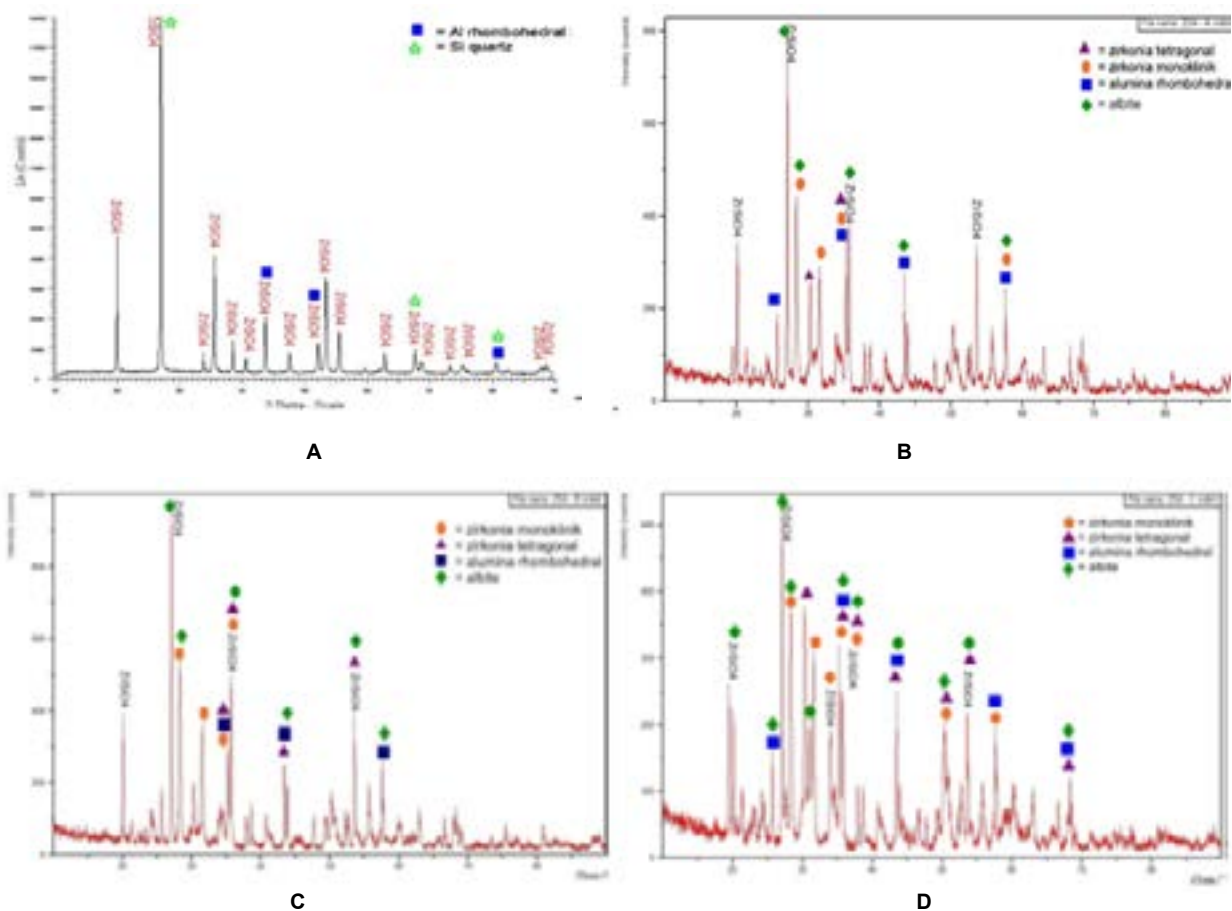
**HASIL**

Hasil XRD berupa sampel pasir zirkon ( $ZrSiO_4$ ) tanpa perlakuan dapat dilihat pada Gambar 1. Hasil difraktogram yang dianalisis menggunakan software *Xpert Highscore* dan *Xpolder*, terlihat tiga fase kristal yang muncul sesuai pola difraksi di atas, yaitu zirkonium silikat ( $ZrSiO_4$ ) dengan struktur kristal tetragonal, silika *quartz*, dan alumina *rhombohedral* (mineral *corundum*). Persentase fraksi berat zirkonium silikat sebesar 92%, silika quartz 5%, dan alumina *rhombohedral* 3%. Puncak-puncak  $ZrSiO_4$  tetragonal teridentifikasi pada hampir seluruh puncak yang ada pada difraktogram di atas, yaitu sebanyak 18 sudut difraksi, sedangkan alumina dan silika teridentifikasi hanya pada tiga puncak. Berdasarkan analisis kuantitatif XRD pada software *Xpolder*, persentase kristalinitas sampel pasir adalah sebesar 95,04%, sisanya dalam bentuk *amorf*.

Hasil XRD sampel A (gambar 1) merupakan geopolimer zirkonia-alumina-silika pada proses

pemanasan suhu  $1100^\circ C$  selama 4 jam. Hasil difraktogram yang dianalisis menggunakan software *Xpert Highscore* dan *Xpolder* menunjukkan ada lima struktur kristal yang muncul, yaitu albite [ $Na(AlSi_3O_8)$ ], zirkonium silikat tetragonal, zirkonia monoklinik, zirkonia tetragonal, dan alumina rhombohedral. Dari hasil analisis software *Xpert Highscore*, kristal yang paling banyak terbentuk pada sampel A adalah albite dengan fraksi berat kristal sebesar 36%, sedangkan yang paling sedikit adalah persentase zirkonia monoklinik yaitu 7%. Persentase fraksi berat kristal zirkonia tetragonal adalah 10%, sedangkan alumina rhombohedral sebesar 13%. Hasil analisis kuantitatif XRD menunjukkan bahwa persentase kristalinitas sampel A adalah 85,8%, sisanya dalam bentuk amorf

Hasil XRD sampel B (Gambar 1) merupakan geopolimer zirkonia-alumina-silika pada proses pemanasan suhu  $1100^\circ C$  selama 6 jam. Hasil analisis software yang serupa dengan sampel sebelumnya, teridentifikasi struktur kristal



Gambar 1. A. Difraktogram xrd sampel pasir zirkonium silikat (zrsio4); B. Difraktogram xrd sampel a; C. Difraktogram xrd sampel b; D. Difraktogram xrd sampel.

yang sama seperti pada sampel A, yaitu albite [Na(AlSi<sub>3</sub>O<sub>8</sub>)], zirkonium silikat, zirkonia monoklinik, zirkonia tetragonal, dan alumina rhombohedral yang menandakan terbentuknya pola difraksi yang kurang lebih sama dengan sampel A. Persentase fraksi berat kristal albite [Na(AlSi<sub>3</sub>O<sub>8</sub>)] tercatat sebesar 37%, zirkonium silikat 37%, alumina rhombohedral 11%, sedangkan zirkonia monoklinik 5%, dan zirkonia tetragonal 10%. Berdasarkan hasil analisis kuantitatif, persentase kristalinitas sampel B adalah 87,7%, sisanya dalam bentuk amorf.

Hasil XRD sampel C (gambar 1) merupakan geopolimer zirkonia-alumina-silika pada proses pemanasan suhu 1100° C selama 8 jam. Data difraktogram di atas menunjukkan bahwa struktur kristal yang sama dengan sampel A dan B, yaitu albite [Na(AlSi<sub>3</sub>O<sub>8</sub>)], zirkonium silikat, zirkonia monoklinik, zirkonia tetragonal, dan alumina rhombohedral. Dari hasil analisis software Xpert Highscore dan Xpowder, persentase fraksi berat kristal albite adalah 35%, merupakan jumlah kristal yang paling banyak terbentuk pada sampel ini. Zirkonia tetragonal pada sampel ini sebesar 24%, zirkonia monoklinik 22%, alumina rhombohedral sebesar 12%, dan yang paling kecil adalah zirkonium silikat dengan persentase fraksi berat kristal 7%. Persentase kristalinitas sampel C adalah 81,4%, sedangkan sisanya (18,6%) dalam bentuk amorf.

Analisis EDS yang dilakukan pada penelitian ini menggunakan software JED-2300 dengan mesin JEOL yang dapat menghasilkan analisis kuantitatif berupa persentase massa elemen dan persentase massa komponen, namun hanya dalam komponen oksida, misalnya Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ZrO<sub>2</sub>, dan SiO<sub>2</sub>. Proses pengujian EDS dilakukan dengan menetapkan tiga titik spektrum pada sampel. Hasil analisis EDS Pasir Zirkon menggunakan software JED-2300 ditunjukkan pada Tabel 1

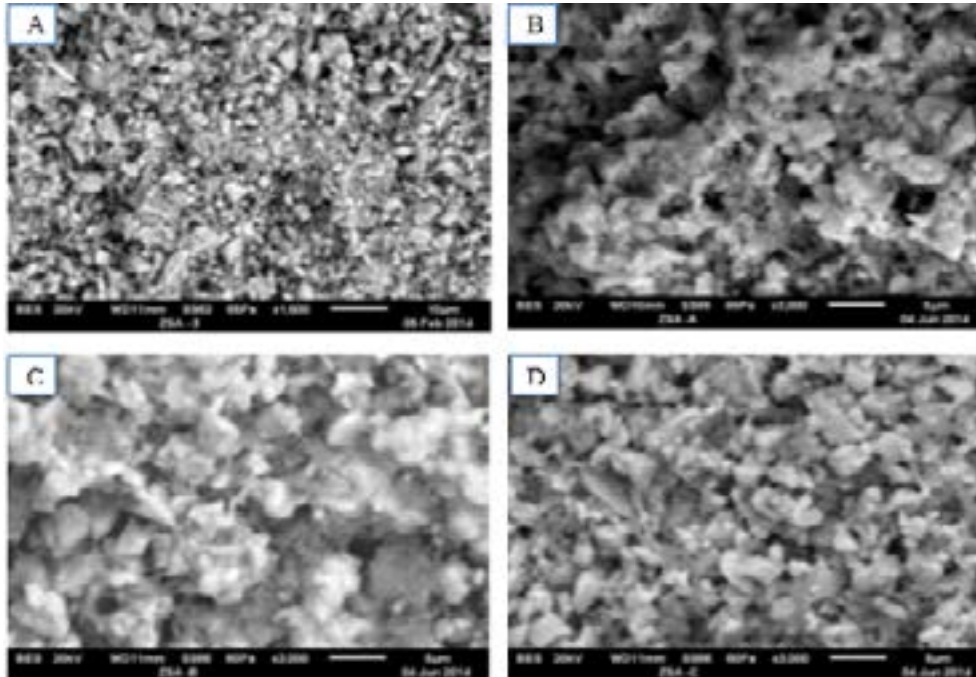
Hasil EDS pada Tabel 1, terlihat adanya empat komponen yang terkandung pada sampel pasir, yaitu unsur karbon (C), alumina (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), silika (SiO<sub>2</sub>), dan zirkonia (ZrO<sub>2</sub>). Persentase kandungan terbesar ada pada unsur karbon (39,1%). Sedangkan kandungan terbesar kedua adalah zirkonia sebesar 38,6%, silika sebesar 21,13%, dan alumina sebesar 1,16%. Hasil EDS Sampel A yang merupakan geopolimer zirkonia-alumina-silika pada proses pemanasan 1100°C selama 4 jam ditunjukkan pada Tabel 2. Proses

Tabel 1. Persentase kandungan sampel pasir zirkon (zrsio4)

No.	Spektrum	Kandungan (%)			
		C	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	ZrO <sub>2</sub>
1	1	44,07	1,37	19,6	34,97
2	2	37,05	1,07	21,76	40,12
3	3	36,2	1,03	22,03	40,73
		39,1	1,16	21,13	38,6

Tabel 2. Persentase kandungan sampel B

Spektrum	C	Kandungan (%)			
		Na <sub>2</sub> O	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	SiO <sub>2</sub>	ZrO <sub>2</sub>
<b>Persentase kandungan sampel A</b>					
1	7,89	5,43	28,97	16,46	41,25
2	10,54	5,15	29,24	15,91	39,16
3	12,9	5,56	27,77	16,44	37,32
	<b>10,45</b>	<b>5,38</b>	<b>28,66</b>	<b>16,27</b>	<b>39,24</b>
<b>Persentase kandungan sampel B</b>					
1	9,86	5,06	21,33	18,13	45,62
2	9,91	3,79	44,35	14,48	27,47
3	12,42	4,62	30,58	16,26	36,12
<b>Rata-rata</b>	<b>10,73</b>	<b>4,49</b>	<b>32,09</b>	<b>16,29</b>	<b>36,4</b>
<b>Persentase kandungan sampel C</b>					
	1	7,26	5,99	15,93	15,9
	2	7,99	8,3	22,75	19,09
	3	11,39	7,43	20,73	17
<b>Rata-rata</b>	<b>8,88</b>	<b>7,24</b>	<b>19,8</b>	<b>17,33</b>	<b>46,75</b>



Gambar 2. A. Hasil sem sampel pasir zirkonium silikat (zrsio4); B. Hasil sem sampel a perbesaran 3000x; C. Hasil sem sampel b perbesaran 3000x; D. Hasil sem sampel c perbesaran 3000x.

Tabel 3. Persentase fraksi berat pada sampel

No	Sampel	Persentase fraksi berat kristal(%)					
		Na (AlSi3O8)	ZrSiO4 t	ZrO2 m	ZrO2 t	Al2O3 r	SiO2 q
1	Pasir	-	92	-	-	3	5
2	A	36	34	7	10	13	-
3	B	37	37	5	10	11	-
4	C	35	7	22	24	12	-

EDS dilakukan dengan mengambil tiga titik spektrum pada sampel, terlihat ada lima komponen oksida yang terkandung, yaitu karbon (C), natrium oksida (Na<sub>2</sub>O), alumina (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), silika (SiO<sub>2</sub>), dan zirkonia (ZrO<sub>2</sub>). Komponen yang ada pada sampel A sedikit berbeda dengan sampel pasir zirkon. Analisis kuantitatif oksida menunjukkan bahwa persentase terbesar yaitu zirkonia 39,24%, sedangkan persentase terkecil adalah natrium oksida 5,38%. Hasil EDS Sampel B yang berupa geopolimer zirkonia-alumina-silika pada proses pemanasan 1100°C selama 6 jam ditunjukkan pada Tabel 2.

Hasil EDS pada Tabel 1, terlihat adanya empat komponen yang terkandung pada sampel pasir, yaitu unsur karbon (C), alumina (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), silika (SiO<sub>2</sub>), dan zirkonia (ZrO<sub>2</sub>). Persentase kandungan terbesar ada pada unsur karbon (39,1%). Sedangkan kandungan terbesar kedua

adalah zirkonia sebesar 38,6%, silika sebesar 21,13%, dan alumina sebesar 1,16%.

Hasil EDS Sampel A yang merupakan geopolimer zirkonia-alumina-silika pada proses pemanasan 1100°C selama 4 jam ditunjukkan pada Tabel 2. Proses EDS dilakukan dengan mengambil tiga titik spektrum pada sampel, terlihat ada lima komponen oksida yang terkandung, yaitu karbon (C), natrium oksida (Na<sub>2</sub>O), alumina (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), silika (SiO<sub>2</sub>), dan zirkonia (ZrO<sub>2</sub>). Komponen yang ada pada sampel A sedikit berbeda dengan sampel pasir zirkon. Analisis kuantitatif oksida menunjukkan bahwa persentase terbesar yaitu zirkonia 39,24%, sedangkan persentase terkecil adalah natrium oksida 5,38%.

Hasil EDS Sampel B yang berupa geopolimer zirkonia-alumina-silika pada proses pemanasan 1100°C selama 6 jam ditunjukkan pada Tabel 2. Proses pengambilan data menggunakan tiga

titik spektrum pada sampel, sama seperti sampel A. Hasil EDS sampel B, menunjukkan adanya lima komponen yang terkandung pada sampel, yaitu karbon (C), natrium oksida (Na<sub>2</sub>O), alumina (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), silika (SiO<sub>2</sub>), dan zirkonia (ZrO<sub>2</sub>). Komponen yang ada pada sampel B sama seperti sampel A. Berdasarkan analisis kuantitatif oksida, persentase terbesar adalah zirkonia 36,4%, sedangkan yang terkecil adalah natrium oksida 4,49%.

Hasil EDS Sampel C yang berupa geopolimer zirkonia-alumina-silika pada proses pemanasan 1100°C selama 8 jam dapat dilihat pada Tabel 2. Proses pengambilan data sama seperti sampel A dan B, yaitu menggunakan tiga titik spektrum yang berbeda. Hasil EDS pada Tabel 2 menunjukkan adanya jenis komponen yang sama seperti sampel A dan B, yaitu karbon (C), natrium oksida (Na<sub>2</sub>O), alumina (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), silika (SiO<sub>2</sub>), dan zirkonia (ZrO<sub>2</sub>). Berdasarkan analisis kuantitatif oksida, kandungan terbesar sama seperti sampel A dan B, yaitu zirkonia sebesar 46,75%.

Hasil SEM berupa mikrograf pada pasir zirkon (ZrSiO<sub>4</sub>) ditunjukkan pada Gambar 2. Gambar 2 menunjukkan bahwa skala yang dipakai yaitu sebesar 10 µm dengan perbesaran 1,500x. Distribusi ukuran partikel terlihat tidak seragam dan tidak homogen. Perhitungan ukuran partikel

dilakukan dengan menarik garis diameter pada salah satu partikel yang berbentuk bulat, sehingga didapat panjang garis sebesar 0,5 cm. Skala pada gambar adalah 10 µmeter = 0,9 cm. Jadi, ukuran partikel yang dihitung adalah 5,55 µm. Namun, ukuran tersebut belum dapat dijadikan patokan karena bentuk dan ukuran partikel yang tidak seragam.

Hasil SEM (Gambar 2B) berupa mikrograf pada sampel A yang merupakan geopolimer zirkonia-alumina silika pada proses pemanasan dengan suhu 1100°C selama 4 jam ditunjukkan pada. Gambar menunjukkan adanya bulir yang berbentuk seperti batu yang lonjong dengan ukuran yang tidak beraturan. Skala yang dipakai yaitu sebesar 50 µm dengan perbesaran 2000x. Perhitungan ukuran bulir dapat dilakukan dengan menarik garis diameter pada gambar salah satu bulir yang berbentuk bulat, sehingga didapat panjang garis sebesar 1,7 cm. Skala pada gambar

Tabel 4. Derajat kristalinitas (%) pada sampel

No	Sampel	Derajat Kristalinitas (%)
1	Pasir	95,04
2	A	85,8
3	B	87,7
4	C	81,4

Tabel 5. Persentase kandungan sampel

Spektrum	Kandungan(%)				
	C	Na <sub>2</sub> o	Al <sub>2</sub> o <sub>3</sub>	Sio <sub>2</sub>	Zro <sub>2</sub>
<b>Persentase kandungan sampel (Oksida)</b>					
Pasir	39,1	-	1,16	21,13	38,6
A	10,45	5,38	28,66	16,27	39,24
B	10,73	4,49	32,09	16,29	36,4
C	8,88	7,24	19,8	17,33	46,75
<b>Persentase kandungan sampel (oksida) tanpaunsur C</b>					
A	-6,007		32,004	18,168	43,819
B	-5,029		35,947	18,248	40,775
C	-7,945		21,729	19,018	51,305

Tabel 6. Rasio komposisi zr-al-si pada sampel

	Rasio komposit (%) sampel		
	Al <sub>2</sub> o <sub>3</sub>	Sio <sub>2</sub>	Zro <sub>2</sub>
A	34,05	19,32	46,62
B	37,85	19,21	42,93
C	23,6	20,66	55,73

= 0,9 cm = 50  $\mu\text{m}$ . jadi, ukuran bulir yang diambil adalah 94,4  $\mu\text{m}$ . Namun, bulir yang diukur tersebut belum bisa mewakili ukuran bulir seluruh sampel karena beberapa bulir terlihat terpotong pada gambar.

Hasil SEM pada sampel B (gambar 2C) merupakan geopolimer zirkonia-alumina silika pada proses pemanasan suhu 1100°C selama 6 jam. Gambar tersebut memperlihatkan morfologi permukaan sampel yang partikel-partikelnya beraglomerasi dan membentuk porus tidak beraturan, sehingga ukuran partikel sulit untuk diukur.

Hasil SEM pada sampel C (Gambar 2D) merupakan geopolimer zirkonia-alumina silika pada proses pemanasan suhu 1100°C selama 8 jam. Gambar tersebut memperlihatkan morfologi permukaan sampel yang bentuknya sama dengan sampel A dan B, yaitu adanya partikel yang beraglomerasi dan berporus dengan bentuk yang tidak beraturan.

Hasil analisis kuantitatif XRD dengan bantuan software Xpert Highscore dan Xpowder pada sampel A, B, dan C diperlihatkan pada Tabel 3.

Tabel 3 menunjukkan adanya penurunan yang signifikan pada jumlah komponen  $\text{ZrSiO}_4$  dari sampel B ke sampel C, sedangkan zirkonia (tetragonal dan monoklinik) justru mengalami peningkatan yang signifikan dari sampel B ke sampel C.

Untuk membentuk kristal yang baik, proses penurunan suhu harus dilakukan perlahan agar struktur kristal yang terbentuk tidak rusak. Derajat kristalisasi karena penurunan suhu disajikan pada tabel 4. Hasil analisis kuantitatif EDS pada pasir zirkon dan ketiga sampel perlakuan ditunjukkan pada Tabel 5.

## **PEMBAHASAN**

Penelitian ini terdiri dari satu sampel awal yang merupakan pasir zirkonium silikat ( $\text{ZrSiO}_4$ ) tanpa perlakuan dan tiga sampel berupa geopolimer zirkonia-alumina-silika dengan variasi durasi pemanasan 4 jam, 6 jam, dan 8 jam. Sampel pasir  $\text{ZrSiO}_4$  tanpa perlakuan, fase kristal yang terbentuk sebagian besar (92%) masih berbentuk kristal zirkonium silikat dengan sistem struktur tetragonal. Sisanya adalah kristal quartz

(silika) dan corundum (alumina). Sedangkan pada ketiga sampel yang dibuat dengan variasi durasi pemanasan 4 jam, 6 jam, dan 8 jam, terlihat adanya kesamaan, yaitu terbentuknya lima fase kristal: albite [ $\text{Na}(\text{AlSi}_3\text{O}_8)$ ], zirkonium silikat tetragonal, zirkonia monoklinik, zirkonia tetragonal, dan alumina rhombohedral. Hal ini membuktikan bahwa dengan adanya reaksi geopolimerisasi dan proses pemanasan, maka terbentuk kristal albite yang merupakan geopolimer hasil dari adanya ikatan antara Na-Al-Si. Selain itu, terbentuk pula beberapa kristal dari komponen tunggal yang terkandung, kecuali silika ( $\text{SiO}_2$ ) yang telah habis berikatan dengan Na dan Al membentuk albite.

Hasil analisis kuantitatif yang dilakukan pada keempat sampel menunjukkan persentase kristalinitas yang berbeda-beda, yaitu sebesar 95,04% pada sampel awal pasir zirkon, 85,8% pada sampel A, 87,7% pada sampel B, dan 81,4% pada sampel C (dapat dilihat pada Tabel 3. Sampel B yang dipanaskan selama 6 jam memiliki persentase kristalinitas lebih besar dibandingkan dengan sampel A yang dipanaskan selama 4 jam, tetapi lebih kecil jika dibandingkan dengan sampel C yang dipanaskan selama 8 jam. Semakin lama pemanasan sampel pada penelitian ini, persentase kristalinitas akan semakin tinggi, menandakan jumlah kristal yang terbentuk semakin banyak. Tetapi beberapa faktor dapat mempengaruhi kristalinitas saat proses pemanasan, salah satunya adalah proses penurunan suhu dari suhu tinggi ke suhu rendah (suhu ruangan).

Tabel 3 merupakan persentase kandungan pada pasir dan ketiga sampel (A, B, dan C) yang berupa geopolimer zirkonia-alumina-silika setelah dipanaskan pada suhu 1100° C dengan variasi durasi 4 jam, 6 jam, dan 8 jam. Pada data EDS tersebut, persentase karbon yang tercantum dapat dikatakan tidak valid. Adanya unsur karbon pada sampel kemungkinan disebabkan oleh alas preparat uji EDS berbahan karbon (kertas) yang ikut terdeteksi saat uji EDS beroperasi. Hal ini diperkuat oleh data kualitatif XRD yang tidak menunjukkan adanya keberadaan unsur karbon pada tiap sampel. Adanya proses pemanasan di atas suhu 700° C seharusnya dapat menghilangkan seluruh mineral karbon yang ada pada sampel. Tabel persentase kandungan sampel yang telah dihitung kembali tanpa unsur karbon diperlihatkan pada Tabel 3.



Tabel 4 menunjukkan derajat kristalinitas pada sampel. Sifat mekanis suatu keramik kedokteran gigi berpengaruh pada derajat kristalinitasnya. Semakin tinggi derajat kristalinitas, sifat mekanis akan semakin baik. Pada material restorasi berbahan keramik yang dijual di pasaran, derajat kristalinitas berkisar antara 30-68%, beberapa produk ada yang berkisar antara 15-25%, atau bahkan lebih dari 68% (kristalinitas berderajat tinggi).<sup>9</sup> Berdasarkan derajat kristalinitas pada keempat sampel yang dikarakterisasi XRD, dapat diperkirakan bahwa sampel tersebut memadai untuk digunakan sebagai material kedokteran gigi.

Data pada tabel 3 menunjukkan sampel perlakuan menunjukkan adanya komponen baru, yaitu  $Na_2O$  yang berperan sebagai reaktan pada suatu geopolimer.  $Na_2O$  dihasilkan dari adanya reaksi penambahan larutan  $NaOH$  (aktivator) dengan sumber aluminosilikat padat berupa campuran pasir zirkon dan serbuk alumina.  $Na_2O$  berfungsi mengikat  $Al_2O_3$  dan  $SiO_2$  pada sampel untuk membentuk geopolimer albite [ $Na(AlSi_3O_8)$ ] dengan struktur  $-Si-O-Si-O-Al(Na)-O-Si-$  seperti terlihat pada Gambar 9:

Sampel A, B, dan C menunjukkan komponen silika mengalami peningkatan namun dengan persentase yang kecil. Silika dapat dikatakan stabil dengan ikatannya yang membentuk geopolimer, sebagian lagi masih terikat pada  $ZrSiO_4$ . Sedangkan pada sampel A dan B yang masing-masing dipanaskan selama 4 jam dan 6 jam, terdapat penurunan persentase yang cukup signifikan pada zirkonia yang menyebabkan alumina meningkat. Penurunan persentase ini membuktikan bahwa pada lama pemanasan 6 jam, ion Na belum bekerja secara optimal dalam mengikat ion Al dari  $Al_2O_3$  dan ion Si dari  $ZrSiO_4$ , sedangkan pada sampel B dan sampel C yang masing-masing dipanaskan selama 6 jam dan 8 jam, zirkonia mengalami peningkatan yang signifikan sehingga menyebabkan alumina menurun secara signifikan. Penurunan alumina tersebut karena ion Na menarik ion Al dan Si dari  $Al_2O_3$  dan  $ZrSiO_4$  dengan optimal sehingga  $Al_2O_3$  berkurang dan  $ZrO_2$  yang terlepas dari  $ZrSiO_4$  meningkat secara signifikan. Berdasarkan data di atas, dapat dihitung rasio komposisi Zr : Al : Si pada ketiga sampel (dengan mengabaikan komponen  $Na_2O$ ) seperti pada Tabel 6.

Tabel 6 menunjukkan bahwa rasio komposisi yang memadai untuk digunakan sebagai bahan pengisi komposit adalah pada sampel C, yaitu Zr-Al-Si dengan rasio 55,73 : 23,6 : 20,66. Pada rasio ini, zirkonia hampir mencapai angka 60. Rasio ini memiliki sifat mekanis yang lebih baik.

Ketiga sampel yang merupakan geopolimer zirkonia-alumina-silika pada proses pemanasan  $1100^\circ C$ , terlihat adanya kesamaan yaitu morfologi partikel yang beraglomerasi dan berporus. Aglomerasi partikel terjadi karena adanya reaksi pengikatan ion Na terhadap ion Si dan Al sehingga terbentuk network skeleton yang disebut geopolimer. Sedangkan porositas yang terbentuk pada permukaan sampel dapat disebabkan oleh partikel-partikel zirkon yang larut dan membentuk rongga. Selain itu, porositas dapat pula disebabkan oleh adanya pertumbuhan network skeleton yang berbeda-beda sehingga membentuk suatu rongga. Rasio padatan dan larutan mempengaruhi porositas yang secara langsung mempengaruhi kekuatan dari geopolimer.<sup>10</sup>

Morfologi bulir ketiga sampel yang terlihat pada hasil SEM dengan perbesaran 300x tidak memperlihatkan perbedaan yang begitu signifikan. Namun pada sampel B, dapat terlihat bentuk bulir yang lebih membulat dan kecil dibandingkan dengan sampel A yang bentuk bulirnya cenderung lonjong dan besar. Pada sampel C, bentuk bulir juga berbentuk sedikit membulat, hampir sama dengan bentuk bulir pada sampel B. Hal ini membuktikan bahwa adanya proses pemanasan dengan durasi yang semakin meningkat mempengaruhi morfologi bulir pada sampel, walaupun tidak terlalu signifikan. Hal tersebut sejalan dengan proses geopolimerisasi yang semakin optimal apabila durasi pemanasan meningkat.

## SIMPULAN

Sintesis partikel bahan pengisi zirkonia-alumina-silika ( $ZrO_2-Al_2O_3-SiO_2$ ) dari pasir zirkon alam dengan proses pemanasan 8 jam ditinjau dari jumlah zirkonia berstruktur tetragonal yang terbentuk, memadai untuk digunakan sebagai bahan pengisi komposit berdasarkan uji karakterisasi XRD dan EDS. Namun ditinjau dari hasil analisis SEM, ukuran partikel masih berukuran mikron (94–150  $\mu m$ ) karena adanya



partikel yang beraglomerasi dengan bentuk yang tidak beraturan.

#### DAFTAR PUSTAKA

1. Maria MK, Iridi DS. *Synthesis and study of properties of dental resin composite with different nanosilica particle size*. Dent Mater 2011;2:825-35.
2. Sinval SR, Susanne SS, Jack LF. *Microstruktural charecterization and fracture behavior of microhybrid and nanofill composite*. Dent Mater 2008;24:1281-8.
3. Della BA, Donassollo TA, Demarco FF, Barrett AA, Mecholsky Jr JJ. *Charecterization and surface treatment effect on topography of a glass-infiltrated alumina/zirconia reinforced ceramic*. Dent Mater 2007;23:769-75.
4. Djustiana N, Febrida R, Panatarani C, Imarundha Y, Karlina E, Joni IM. *Microstruktural analysis of zirconia-alumina-silica particles made from Indonesia natural sand synthesized using sprays pyrolysis method*. Key Eng Mater 2017; 2017:285-9.
5. Slamet P, Erfin YF. *Pemurnian serbuk zirkonium dari zirkon*. J Ilmu Pengetahuan tek 2012;30(1):1-6.
6. Guazzato M, Albakry M, Ringer SP, Swain MV. *Strength, Fracture Toughness and Microstructure of a Selection of All-Ceramic Materials*. Part II. Zirconia-Based Dental Ceramics. J Dent Mater 2004 Jun;20(5):449-56.
7. Vagkopoulou, Koutayas SO, Koidis P, Strub JR. *Zirconia in dentistry: part 1 discovering the nature of an upcoming bioceramic*. Eur J Esthet Dent 2009 Summer;4(2):130-51.
8. Anusavice KJ. *Phillips's science of dental materials*. 10<sup>th</sup> ed. USA: W.B. Saunders Co; 2003.
9. Powers JM, Sakaguchi RL. *Craig's restorative dental materials*. 12<sup>th</sup> ed. St. Louis: Mosby Inc. 2006.
10. Van Noort R. *Introduction to dental materials*. 3<sup>rd</sup> ed. USA: Mosby Elsevier. 2007.
11. Faza Y, Hasratiningsih Z, Harmaji A, Joni I M. *Preparation and characterization of zirconia-alumina system via solution and solid phase mixing method*. AIP Conf Proc. 2018; 1927:030030
12. Komnitsas K, Zaharaki D. *Geopolymerisation: A review and prospects for the minerals industry*. Mineral Engineering. 2007;20:1261-77.