

Analisis Mikrostruktur Partikel Zirkonia-kalsia-silika ($\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$) Dari Pasir Zirkon Alam Indonesia Menggunakan Metode Spray Pyrolysis

Elin Karlina¹, Nina Djustiana¹, I Made Joni², Renny Febrida¹, Camellia Panatarani², Akhyar Dyni Zakyah³

¹Departemen Ilmu dan Teknologi Material Kedokteran Gigi, Fakultas Kedokteran Gigi, Universitas Padjadjaran, Jalan Sekeloa Selatan I, Bandung, Jawa Barat 40132, Indonesia

²Departemen Fisika, Fakultas MIPA, Nanotechnology and Graphene Research Center, Universitas Padjadjaran, Jalan Raya Bandung Sumedang Km 21, Jatinangor, Jawa Barat 45363, Indonesia

Abstrak

Latar Belakang : Pasir zirkon alam Indonesia merupakan sumberdaya alam Indonesia yang mengandung zirkonia, silika, titania, dan alumina. Di bidang Kedokteran Gigi, zirkonia sebagai salah satu kandungan dari pasir zirkon alam berpotensi sebagai bahan untuk *filler* komposit. **Tujuan** : Tujuan penelitian ini adalah untuk menganalisis partikel zirkonia-kalsia-silika ($\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$) hasil sintesis dari pasir zirkon alam Indonesia secara mikrostruktur. **Metode** : Sintesis partikel zirkonia-kalsia-silika ($\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$) dari pasir zirkon alam Indonesia menggunakan metode *spray pyrolysis*. Larutan prekursor yang digunakan terdiri dari zirkonil nitrat ($\text{Zr}(\text{NO}_3)_2$), natrium silikat (Na_2SiO_3), dan kalsium hidroksida ($\text{Ca}(\text{OH})_2$). Variasi suhu reaktor yang digunakan adalah 400°C, 450°C, dan 500°C dengan *feed rate* 6 L/menit dan frekuensi pizoelektrik sebesar 1,7 MHz. **Hasil** : Hasil penelitian menunjukkan kandungan zirkonia-kalsia-silika yang paling baik adalah hasil sintesis pada suhu 450°C berdasarkan hasil EDS, SEM, dan XRD. Komposisi zirkonia-kalsia-silika yang didapat dengan perbandingan 1:14:4 berukuran 500-1000nm, dan memiliki struktur kristal zirkonium silikat tetragonal dan dikalsium silikat monoklinik. **Simpulan** : Dari penelitian ini dapat diambil kesimpulan bahwa hasil sintesis pada suhu 450°C memadai untuk digunakan sebagai *filler* berdasarkan hasil karakterisasi SEM dan XRD.

Kata kunci: pasir zirkon alam Indonesia, zirkonia-kalsia-silika, *spray pyrolysis*

Korespondensi:

Elin Karlina

Fakultas Kedokteran Gigi,
Universitas Padjadjaran,
Jalan Sekeloa Selatan I,
Bandung,
Jawa Barat 40132, Indonesia
marvianza_78@yahoo.com

Abstract

Background. Indonesian Natural Sand, Zircon, is an Indonesia's natural resource that contains zirconia, silica, titania and alumina. In Dentistry, zirconia as one of the content in natural zircon sand, have the potential to be the material for filler composites. **Purpose.** The purpose of this research was to analyze the Zirconia-Calcium-Silicate Particle (ZrO_2 - CaO - SiO_2) synthesized from Indonesia natural sand, zircon, in microstructural way. **Methods:** By synthesizing Zirconia-Calcium-Silicate particle (ZrO_2 - CaO - SiO_2) from Indonesia natural zircon sand, using spray pyrolysis method. A precursor solution that is used consists of zirconil nitrate ($Zr(NO_3)_2$), sodium silicate (Na_2SiO_3), and calcium hydroxide ($Ca(OH)_2$). Variations in the temperature of the reactor that are used were 4000C, 4500C, and 5000C with a feed rate of 6 L / min and a piezoelectric frequency of 1.7 MHz. **Results.** Result showed that the better content in zirconia-calcium-silicate is the one that was synthesized at a temperature of 4500C, based on the results of EDS, SEM and XRD. The composition that is obtained in the zirconia-calcium-silicate particle has a ratio of 1: 14: 4 with the size of 500-1000nm, and has a tetragonal crystal zirconium silicate structure and dicalcium monoclinic silicate. **Conclusion.** From this research it can be concluded that the result that was synthesized at a temperature of 4500C is adequate to use as a filler based on the characterization result of SEM and XRD.

Key words: Indonesia natural zircon sand, zirconia-calcium-silicate, spray pyrolysis

Pendahuluan

Pasir zirkon alam banyak ditemukan di Indonesia, dapat digunakan sebagai bahan dasar dalam pembuatan zirkonia dan silika. Namun, pasir zirkon alam Indonesia sebagian besar langsung diekspor ke luar negeri karena di Indonesia masih kurangnya teknologi pengolahan berupa peleburan dan pemurnian untuk meningkatkan daya guna pasir tersebut.¹ Oleh karena itu, adanya penelitian mengenai pembuatan *filler* komposit dari pasir zirkon alam Indonesia diharapkan dapat meningkatkan daya guna pasir zirkon alam Indonesia.

Komposit adalah bahan restorasi yang banyak digunakan pada saat ini di bidang kedokteran gigi karena bersifat estetik,

mudah diaplikasikan, kuat dan tahan lama.² Kandungan *filler* dalam komposit berfungsi meningkatkan kekuatan dan mengurangi pengerutan polimerisasi. Semakin kecil ukuran *filler* maka kekuatan komposit akan semakin tinggi dan pengerutan akan berkurang. Komposit dengan ukuran *filler* yang kecil adalah komposit *nanofiller* yang mempunyai sifat kuat, tidak mengkerut, dan mudah dipoles.^{2,3}

Terdapat berbagai metode yang dapat digunakan untuk membuat *filler* komposit, diantaranya ialah metode geopolimerisasi, sol-gel, dan *spray pyrolysis*. Metode yang paling sering digunakan untuk menghasilkan *filler* dengan ukuran nanometer, adalah metode *spray pyrolysis*. Metode ini dapat menghasilkan senyawa dengan komposisi

maupun bentuk yang diinginkan melalui pengaturan konsentrasi prekursor, suhu pemanasan maupun laju penguapan.^{4,5,6}

Senyawa logam seperti zirkonia dan alumina sering ditambahkan sebagai *filler* komposit untuk meningkatkan kekuatan, kekerasan, dan daya tahan pemakaian komposit.^{7,8} Tujuan penambahan zirkonia adalah untuk membuat restorasi terlihat lebih sewarna dengan gigi. Zirkonia juga dapat membuat restorasi menjadi lebih radiopak sehingga pada gambaran radiografi akan lebih mudah dalam membedakan antara restorasi dan gigi asli.^{3,9} *Filler* komposit yang mengandung zirkonia memerlukan suatu senyawa yang dapat menstabilkan molekulnya agar dapat digunakan pada suhu kamar seperti yttrium oksida (Y_2O_3), kalsium oksida (CaO)/kalsia dan magnesium oksida (MgO). Salah satu senyawa yang dapat menstabilkan dan sering digunakan adalah kalsium oksida karena harganya yang murah, jumlahnya yang cukup banyak di alam, dan ketahanannya pada suhu tinggi.^{10,11}

Berdasarkan latar belakang yang telah dipaparkan, dilakukan penelitian ini dengan tujuan untuk menganalisis secara mikrostruktur menggunakan EDS, SEM, dan XRD, partikel zirkonia-kalsia-silika ($\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$) hasil sintesis dari pasir zirkon alam Indonesia menggunakan metoda *spray pyrolysis* dalam penggunaannya sebagai *filler* komposit.

Metode Penelitian

Pasir zirkon alam Indonesia yang digunakan berasal dari Kalimantan. Prosedur penelitian yang dilakukan terdiri dari 5 tahap yaitu uji karakterisasi mikrostruktur pasir zirkon alam Indonesia menggunakan EDS, SEM, dan XRD, pemurnian pasir zirkon alam Indonesia, pembuatan larutan prekursor, pembuatan partikel dengan metode *spray pyrolysis* dan uji karakterisasi mikrostruktur partikel hasil sintesis menggunakan EDS, SEM, dan XRD. Sebelum dilakukan EDS, pasir zirkon dihaluskan menjadi berukuran submikron dengan menggunakan alat *ball mill* agar pasir berukuran lebih kecil sehingga lebih

mudah untuk dibersihkan dari pengotor-pengotornya.

Pemurnian dilakukan dengan mencampurkan pasir zirkon alam Indonesia dengan HF 20% kemudian larutan tersebut diletakkan di *magnetic stirrer* dan dipanaskan pada suhu 100°C selama 2 jam dengan kecepatan *stirrer* sebesar 200rpm. Tahap pembuatan larutan prekursor zirkonia dengan cara melarutkan pasir zirkon alam Indonesia yang sudah dimurnikan dalam HNO_3 20% lalu diaduk menggunakan *magnetic stirrer* selama 30 menit tanpa dipanaskan untuk membentuk larutan zirkonil nitrat ($\text{Zr}(\text{NO}_3)_2$) yang larut dalam air. Pembuatan larutan prekursor untuk silika (larutan natrium silikat/ Na_2SiO_3) dengan cara melarutkan residu pasir zirkon alam Indonesia dari proses sebelumnya dengan larutan NaOH 20%. Larutan prekursor untuk kalsia yaitu larutan kalsium hidroksida ($\text{Ca}(\text{OH})_2$), dibuat dengan cara melarutkan padatan kalsium hidroksida kering dicampur dengan aquades dengan perbandingan 1:5.

Pembuatan partikel Zirkonia-kalsia-silika ($\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$) menggunakan larutan prekursor zirkonil nitrat, sodium silikat, dan kalsium hidroksida. Campuran larutan prekursor dimasukkan ke dalam *ultrasonic nebulizer* dengan *feed rate* 3 l/h. Suhu pada *furnace* diatur pada suhu 400°C untuk menghasilkan sampel A, selanjutnya ditunggu sampai partikel keluar pada *electrostatic precipitator*. Langkah-langkah pembuatan partikel Zirkonia-kalsia-silika ($\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$) tersebut diulangi dengan mengubah suhu *furnace* pada suhu 450°C (sampel B) dan 500°C (sampel C).

Tahap terakhir penelitian ini adalah uji karakteristik mikrostruktur partikel Zirkonia-kalsia-silika ($\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$) hasil sintesis dengan metode *spray pyrolysis* menggunakan alat-alat EDS, SEM, dan XRD. Karakterisasi *Energy Dispersive Spectroscopy* (EDS) untuk mengetahui komposisi yang terkandung dalam sampel dan proporsi relatifnya dalam struktur atomik, berupa komposisi zirkonia, kalsia, dan silika dalam partikel hasil sintesis. Dalam penelitian ini digunakan alat Hitachi TM 3000. Karakterisasi *Scanning Electron*

Microscope (SEM) untuk melihat morfologi dan ukuran partikel kristal yang terbentuk dalam partikel hasil sintesis menggunakan alat yang sama dengan uji EDS, sedangkan karakterisasi *X-Ray Diffraction* untuk mengetahui struktur kristal partikel hasil sintesis. Pada penelitian ini digunakan difraktometer merek Phillips APD 3520 dengan daya sinar 1,5406 Å, sudut θ senilai 5° - 85° dan *software* Match! untuk analisis.

Hasil

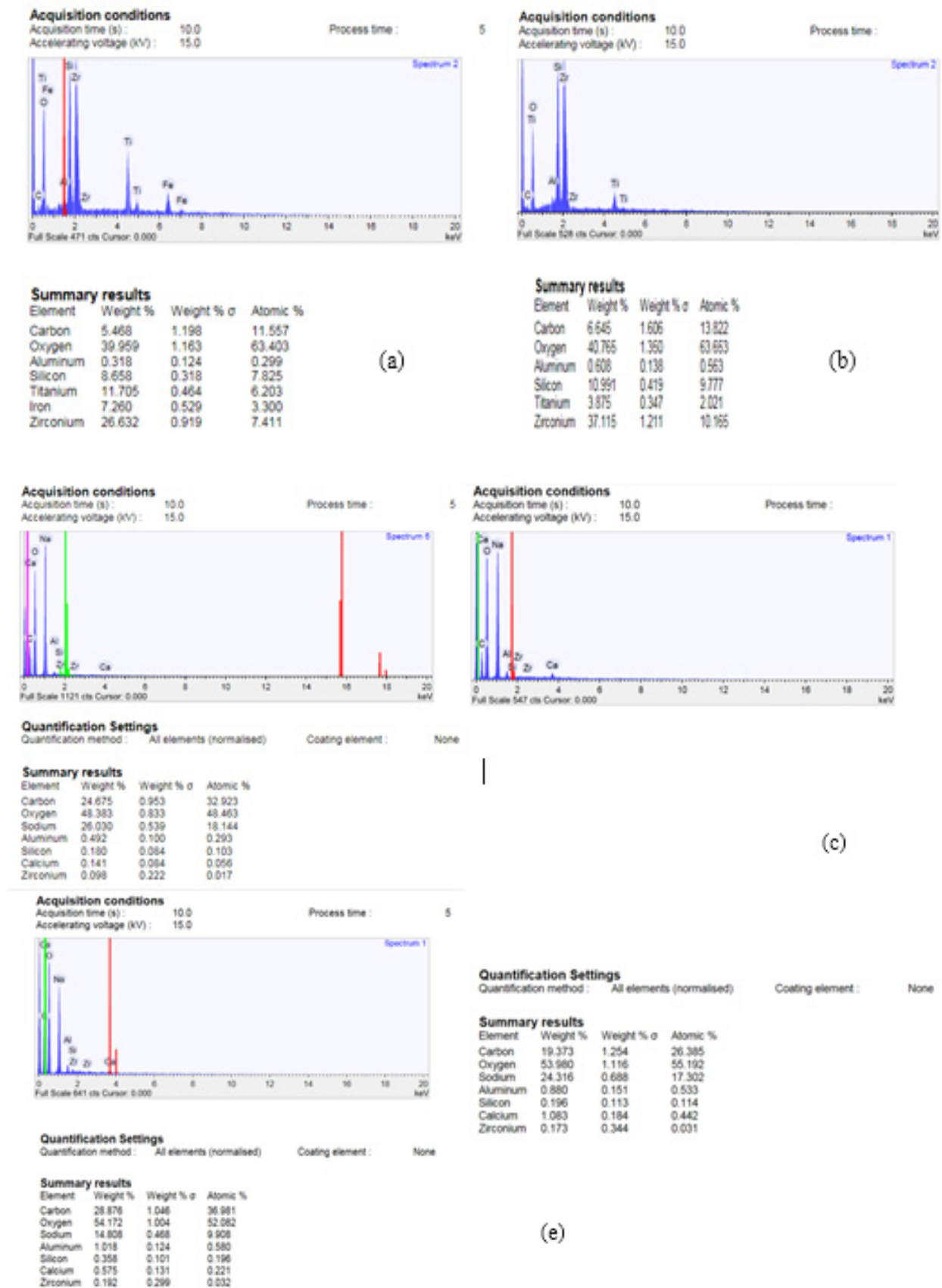
Hasil karakterisasi EDS pasir zirkon alam Indonesia, hasil pemurnian dan hasil sintesis partikel $\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$ untuk sampel A, B dan C dapat dilihat pada gambar 1 dibawah ini.

Dari gambar 1(a) dapat dilihat bahwa pasir zirkon alam Indonesia yang digunakan dalam penelitian ini mengandung senyawa zirkonium sebesar 7,411% dan silikon sebesar 7,825% dalam persentase atomik. Terdapat pula senyawa pengotor seperti aluminium, titanium, dan besi masing-masing sebanyak 0,299%, 6,203%, dan 3,300% atomik yang dihilangkan dalam proses pemurnian pasir zirkon alam Indonesia. Hasil pemurnian pasir zirkon alam Indonesia (gambar 1(b)) masih mengandung titanium, akan tetapi hal ini tidak akan menjadi masalah karena pada pembuatan larutan prekursor, titanium tidak akan larut dalam HNO_3 sehingga tidak akan mempengaruhi hasil akhir penelitian. Hasil EDS sampel A (gambar 1(c)) menunjukkan bahwa komponen utamanya adalah natrium sebanyak 18,144% persentase atomik. Kandungan lain yaitu zirkonia, kalsia, dan silika dengan masing-masing persentase atomik sebesar 0,017%, 0,056%, dan 0,103%, setara dengan 1:3:6. Pada sampel A juga terdapat aluminium (Al) dalam jumlah atomik 0,293%. Komponen utama yang terkandung dalam sampel B (gambar 1 (d)) adalah natrium sebanyak 17,302%, atomik. zirkonia, kalsia, dan silika yang jumlahnya lebih banyak dibandingkan sampel A. Persentase atomik zirkonia sebesar 0,031%, kalsia sebesar 0,442%, dan

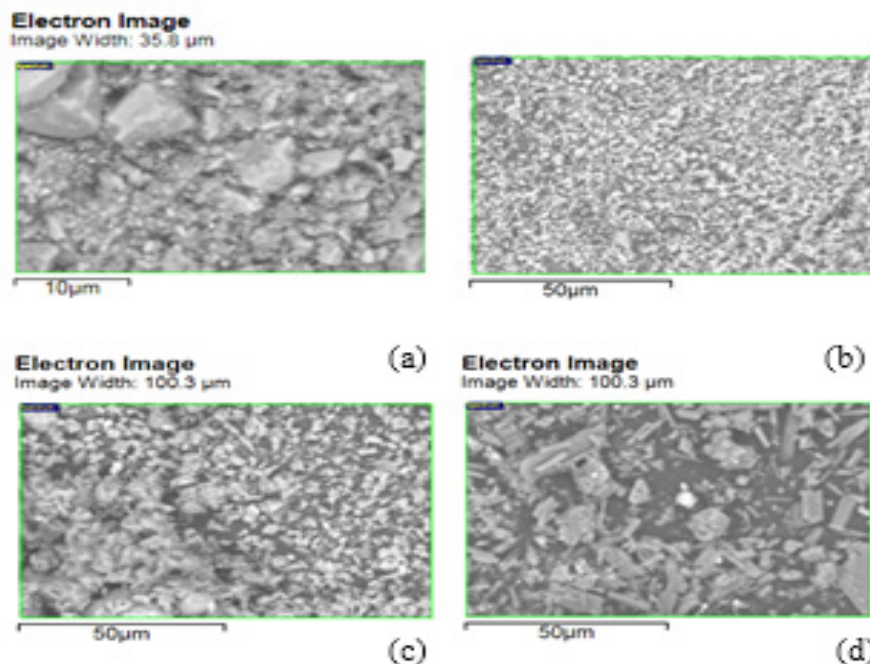
silika sebesar 0,114% setara dengan 1:14:4. Pada sampel B juga terdapat aluminium (Al) dalam jumlah atomik 0,533%. Komponen utama pada sampel C (gambar 1 (e)) adalah natrium sebanyak 9,908% atomik, jumlah yang lebih sedikit dibandingkan dengan dua sampel sebelumnya. Sampel C mengandung persentase atomik zirkonia, kalsia, dan silika sebesar 0,032%, 0,221%, dan 0,196% atau 1:7:6. Persentase zirkonia-kalsia-silika paling banyak terdapat pada sampel C. Pada sampel C juga terdapat aluminium (Al) dalam persentase atomik 0,580%.

Hasil karakterisasi SEM pasir zirkon alam Indonesia dan hasil sintesis partikel $\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$ untuk sampel A, B dan C dapat dilihat pada gambar 2 dibawah ini.

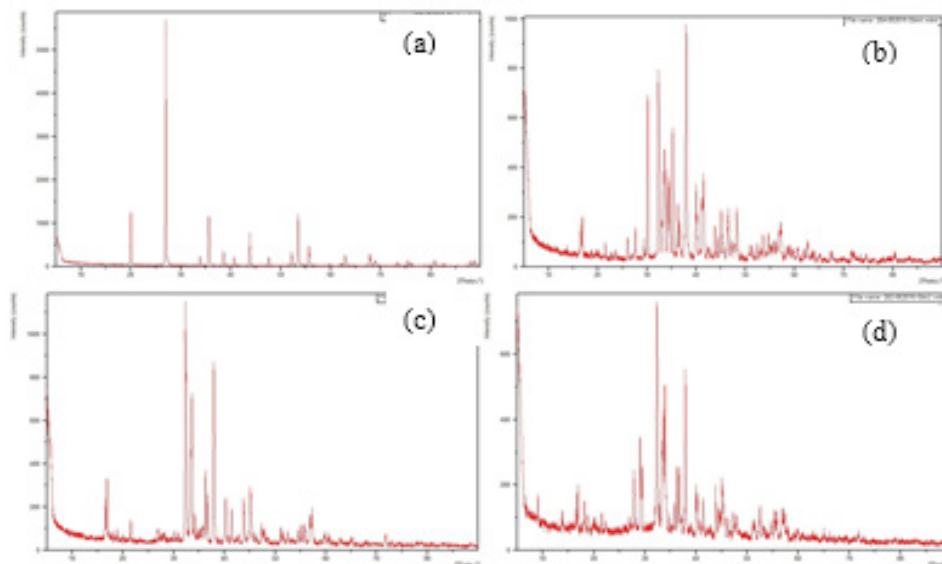
Dari Gambar 2(a) dapat diperkirakan bahwa pasir zirkon alam Indonesia berukuran sekitar 8 μm . Ukuran partikel yang semakin kecil membuat proses *leaching* maupun sintesis partikel menjadi lebih mudah dan akurat untuk dilakukan. Untuk sampel A (gambar 2(b)), skala yang digunakan sebesar 50 μm . Tampak morfologi partikel berbentuk bulat beraturan sehingga dapat dikatakan tidak terjadinya aglomerasi. Perhitungan partikel dilakukan dengan cara manual dan ukuran yang didapat sekitar 100-500nm. Pada sampel B (gambar 2(c)), skala yang digunakan juga sebesar 50 μm . Tampak ukuran partikel tidak seragam, tidak homogen, dan partikel berbentuk amorf tidak beraturan yang menunjukkan dugaan aglomerasi. Ukuran partikel yang didapat berukuran 500-1000nm. Saat dilakukan karakterisasi, terjadi penumpukan partikel pada *template* karakterisasi. Penghitungan ukuran partikel yang lebih akurat dapat dilakukan dengan gambar hasil SEM yang lebih diperbesar dan diperjelas. Sampel C (gambar 2(d)) menggunakan skala sebesar 50 μm juga. Telihat morfologi partikel yang tidak seragam. Ukuran partikel tidak seragam, tidak homogen, dan partikel berbentuk amorf tidak beraturan yang menunjukkan dugaan adanya aglomerasi. Ukuran partikel yang didapat sekitar 1000-1500nm.



Gambar 1. Hasil uji EDS sampel pasir zirkon alam Indonesia (a), hasil pemurnian (b), hasil sintesis partikel $\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$ untuk sampel A (c), sampel B (d) dan sampel C (e)



Gambar 2. Hasil uji SEM pasir zirkon alam Indonesia (a), hasil sintesis partikel $\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$ untuk sampel A (b). sampel B (c) dan sampel C (d)



Gambar 3. Hasil uji XRD sampel pasir zirkon alam Indonesia (a), hasil sintesis partikel $\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$ untuk sampel A (b). sampel B (c) dan sampel C (d)

Hasil karakterisasi XRD pasir zirkon alam Indonesia dan hasil sintesis partikel $\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$ untuk sampel A, B dan C dapat dilihat pada gambar 3. Persentase fraksi berat Kristal pasir zirkon alam Indonesia dan hasil sintesis partikel $\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$ untuk sampel A, B dan C dapat dilihat pada tabel 1. Hasil analisis pola difraksi untuk pasir zirkon alam

Indonesia dan hasil sintesis partikel $\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$ untuk sampel A, B dan C dapat dilihat pada gambar 4 dibawah ini.

Gambar 3(a) menunjukkan pola difraksi pasir zirkon alam Indonesia. Tabel 1(a) menjelaskan bahwa kristal zirkonium silikat kristal tetragonal yang jumlahnya 66,3% (fraksi berat) mendominasi fraksi lain.

Tabel 1. Persentase fraksi berat kristal pasir zirkon alam Indonesia (a) dan hasil sintesis partikel $\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$ untuk sampel A (b), B (c) dan C (d)

Index	Amount (%)	Name	Formula sum	Phase
B	66.3	Zircon	ZrSiO_4	Tetragonal
A	30.8	Quartz	SiO_2	Trigonal
C	1.8	Aluminium oxide Corundum	Al_2O_3	Trigonal
D	1.1	Calciumtitanate Perovskite	CaTiO_3	Orthorhombic
	73.3	Unidentified peak area		

(a)

Index	Amount (%)	Name	Formula sum	Crystal structure
A	55.0	Dicalcium silicate	Ca_2SiO_4	Monoclinic
B	28.1	Aluminium oxide	Al_2O_3	Trigonal
C	11.2	Zirconium	Zr	Hexagonal
D	2.9	Sodium Silicide	$\text{Na}_{5.1}\text{Si}_{136}$	Cubic
E	2.8	Zirconium silicate Zircon	ZrSiO_4	Tetragonal
	76.1	Unidentified peak area		

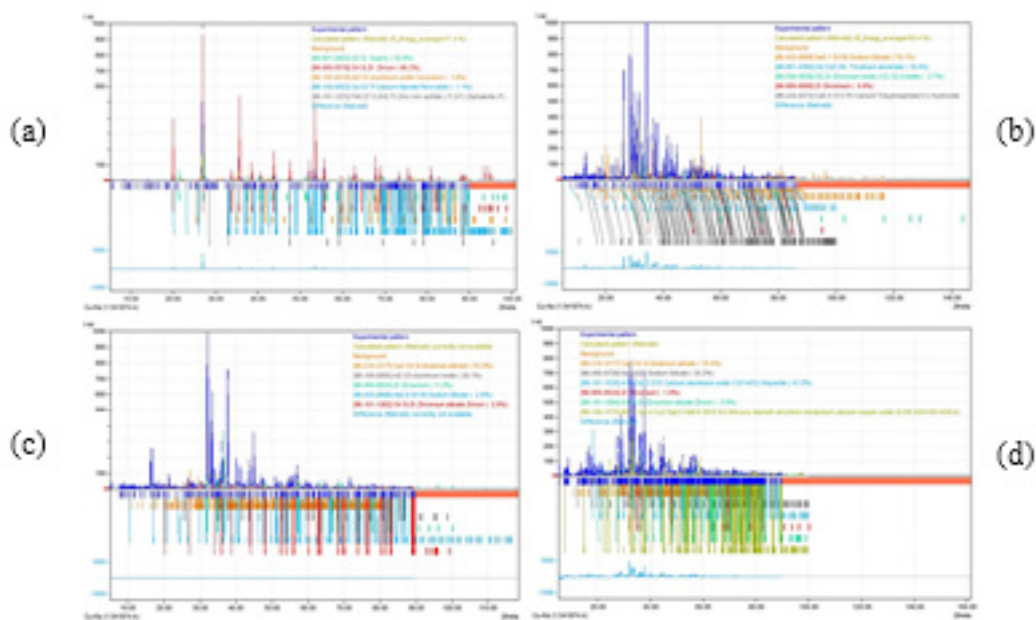
(c)

Index	Amount (%)	Name	Formula sum	Crystal structure
A	78.1	Sodium Silicide	$\text{Na}_{5.1}\text{Si}_{136}$	Cubic
B	18.4	Tricalcium aluminate	$\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6$	Cubic
C	2.7	Zirconium oxide (1/2,12) Arkelite	ZrO_2	Cubic
D	0.8	Zirconium	Zr	Cubic
	98.8	Unidentified peak area		

(b)

Index	Amount (%)	Name	Formula sum	Crystal structure
C	41.5	Calcium aluminium oxide (12/14/33) Mayenite	$\text{Ca}_{12}\text{Al}_{14}\text{O}_{33}$	Cubic
B	35.3	Sodium Silicide	$\text{Na}_5\text{Si}_{13}$	Cubic
A	19.4	Dicalcium silicate	Ca_2SiO_4	Monoclinic
E	2.0	Zirconium silicate Zircon	ZrSiO_4	Tetragonal
D	1.8	Zirconium	Zr	Hexagonal
	106.9	Unidentified peak area		

(d)



Gambar 4. Hasil analisis pola difraksi dengan software Match! pasir zirkon alam Indonesia (a) dan hasil sintesis partikel $\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$ untuk sampel A (b), B (c) dan C (d)

Gambar 4(a) menunjukkan adanya empat struktur kristal utama yang terkandung dalam pasir zirkon alam Indonesia, yaitu zirkonia silikat (ZrSiO_4) terbanyak sebanyak 66,3% ,dalam bentuk tetragonal,kuarsa (SiO_2), aluminium oksida/corundum (Al_2O_3), dan kalsium titanat/perovskite (CaTiO_3). Pada gambar 3(b) terlihat bahwa sampel A mengandung empat bentuk kristal yang

jumlahnya paling mendominasi (intensitas 1000, 800, 700, dan 500).

Tabel 1(b) menjelaskan jenis kristal-kristal tersebut. Gambar 4(b) merupakan hasil analisis sampel A dengan software Match!.yang menunjukkan adanya empat struktur kristal utama yang muncul, yaitu sodium silikat ($\text{Na}_{5.1}\text{Si}_{136}$), trikalsiumaluminat ($\text{Al}_2\text{Ca}_3\text{O}_6$), zirkonium oksida/arkelit (ZrO_2),

dan zirkonium (Zr). Kristal yang paling banyak terbentuk adalah sodium silikat sebanyak 78,1% dalam bentuk kubik. Gambar 3(c) menunjukkan pola difraksi sampel B. Terlihat bahwa sampel B mengandung tiga bentuk kristal yang jumlahnya paling mendominasi (intensitas 1200, 900, dan 700). Tabel 1(c) menjelaskan jenis kristal-kristal tersebut. Hasil analisis pola difraksi sampel B (gambar 4(c)) menunjukkan adanya lima struktur kristal utama yang muncul, yaitu dikalsiumsilikat (Ca_2SiO_4), aluminium oksida (Al_2O_3), zirkonium (Zr), sodium silikat ($\text{Na}_{2,9}\text{Si}_{136}$), dan zirkonium silikat (ZrSiO_4). Kristal yang paling banyak terbentuk adalah dikalsium silikat sebanyak 55,0% dalam bentuk monoklinik. Gambar 3(d) menunjukkan pola difraksi sampel C. Terlihat bahwa sampel C mengandung tiga bentuk kristal yang jumlahnya paling mendominasi (intensitas 800, 550, dan 500). Tabel 1(d) menjelaskan jenis kristal-kristal tersebut. Hasil analisis pola difraksi sampel C (gambar 4(d)) menunjukkan adanya lima struktur kristal utama yang muncul, yaitu dikalsiumsilikat (Ca_2SiO_4), sodium silikat ($\text{Na}_4\text{Si}_{23}$), kalsium aluminium oksida/mayenit ($\text{Ca}_{12}\text{Al}_{14}\text{O}_{33}$), zirkonium (Zr), dan zirkonium silikat (ZrSiO_4). Kristal yang paling banyak terbentuk adalah kalsium aluminium oksida sebanyak 41,5% dalam bentuk kubik.

Pembahasan

Berdasarkan hasil EDS, kandungan zirkonium meningkat seiring suhu pemanasan yang meningkat, sama halnya dengan silika. Jumlah kalsia mencapai titik tertinggi pada sampel B (0,442%) kemudian menurun pada sampel C (0,221%) sehingga diduga suhu optimal untuk mensintesis zirkonia-kalsia-silika untuk mendapatkan hasil kalsiaterbanyak berada pada suhu 450°C. Sedikitnya jumlah zirkonia, kalsia, dan silika yang tercatat pada karakterisasi ini diduga akibat tingginya kandungan natrium. Seandainya natrium pada sampel dihilangkan, maka kemungkinan komposisi zirkonia, kalsia, dan silika bisa dikonstruksi kembali menjadi lebih tinggi. Setiap

senyawa mempunyai suhu dekomposisi dan suhu penguapan yang berbeda sehingga mempengaruhi hasil sintesis. Diduga suhu 450°C dan 500°C merupakan suhu penguapan bagi natrium sehingga jumlahnya berkurang pada sampel B dan C. Alumina, zirkonium silikat, dan kalsia yang belum terdekomposisi pada suhu 400°C mulai membentuk senyawa baru pada suhu 450°C dan 500°C.

Berdasarkan karakterisasi SEM, ukuran partikel yang dihasilkan pada semua sampel adalah nanometer. Hasil ini menunjukkan bahwa pada seluruh sampel telah terjadi proses *spray pyrolysis*. Ukuran partikel menjadi semakin besar seiring dengan kenaikan suhu pemanasan. Padahal, seharusnya partikel berukuran semakin kecil seiring peningkatan suhu pemanasan.¹² Hal ini diduga karena peningkatan suhu pemanasan memicu aglomerasi. Sampel A dan B merupakan hasil penelitian yang mengandung ukuran partikel yang sesuai dengan desain penelitian berdasarkan hasil SEM.

Dari ketiga hasil XRD yang didapat terlihat adanya kesamaan yaitu terbentuknya struktur kristal sodium silikat, dikalsium silikat, zirkonium, dan zirkonium silikat. Pada suhu 400°C, kandungan natrium ($\text{Na}_{5,1}\text{Si}_{136}$) masih sangat tinggi dan masih menyerupai prekursoranya (Na_2SiO_3). Struktur kristal yang terbentuk sebagian besar berbentuk kubik yang menunjukkan proses dekomposisi dan sintesis belum terjadi dengan baik pada suhu tersebut. Kandungan terbesar kedua adalah trikalsium aluminat sebesar 18,4% berbentuk kubik. Hal ini menunjukkan terjadinya dekomposisi $\text{Ca}(\text{OH})_2$ dan Al_2NO_3 pada suhu 400°C yang menghasilkan $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6$. Persentase kristal zirkonium oksida dan zirkonium masih sangat rendah.

Sampel B mengandung struktur kristal dikalsium silikat berbentuk monoklinik sebanyak 55%, paling banyak dibandingkan dengan dua sampel lain. Sampel B juga mengandung zirkonium berbentuk heksagonal sebanyak 11,2% dan zirkonium silikat berbentuk tetragonal sebanyak 2,8% (terbanyak). Banyaknya kandungan kalsium pada sampel B diduga karena suhu 450°C

merupakan suhu optimal untuk sintesis kalsium menggunakan metode *spray pyrolysis*. Dengan tingginya kandungan zirkonia-kalsia-silika pada sampel B, sampel ini dianggap memiliki persentase fraksi berat kristal yang paling mendekati desain penelitian berdasarkan karakterisasi XRD. Kandungan senyawa paling banyak pada sampel C adalah kalsium aluminium oksida berbentuk kubik yang terbanyak (41,5%) diikuti natrium silikat kubik (35,3%), dikalsium silikat moniklinik (19,4%), zirkonium silikat tetragonal (2%), dan zirkonium heksagonal (1,8%).

Usaha yang dapat dilakukan untuk mendapatkan komposisi hasil sintesis zirkonia-kalsia-silika yang lebih baik diantaranya ialah dengan cara *sintering* partikel pada suhu tinggi untuk menghilangkan kandungan natrium. Penelitian yang dilakukan dengan menggunakan teknik *microwave* pada suhu 1300°C berhasil menghilangkan kandungan natrium dari hasil sintesis zirkonia dan kalsia.¹³ Adanya alumina pada sintesis partikel zirkonia, kalsia, dan silika mengakibatkan timbul aglomerasi atau agregasi. Hal ini terlihat pada sampel B dan C (antara CaO dan Al_2O_3 membentuk $\text{Ca}_{12}\text{Al}_{14}\text{O}_{33}$) sehingga partikel yang didapat terlihat berukuran lebih besar dan tidak homogen. Aglomerasi dan agregasi yang timbul dapat dicegah dengan menambahkan suatu senyawa ke dalam larutan prekursor berupa *polyethylene glycol* (PEG).¹⁴ Senyawa ini bertujuan untuk membungkus partikel kalsium dan aluminium agar tidak saling menempel. Setelah dilakukan proses sintesis, partikel hasil sintesis dapat dicuci dengan air untuk menghilangkan kandungan PEG tersebut.

Simpulan

Dari hasil penelitian yang dilakukan dapat disimpulkan bahwa sintesis partikel zirkonia-kalsia-silika ($\text{ZrO}_2\text{-CaO-SiO}_2$) dari pasir zirkon alam Indonesia menggunakan metode *spray pyrolysis* dengan suhu pemanas 450°C (sampel B) merupakan hasil yang paling memadai untuk digunakan sebagai

filler komposit berdasarkan karakterisasi SEM karena berukuran 500-1000nm dan karakterisasi XRD yang menunjukkan adadan banyaknya struktur kristal zirkonium silikat berbentuk tetragonal.

DAFTAR PUSTAKA

1. Poernomo, H. 2012. 'Informasi Umum Zirkon', *Makalah*, Badan Tenaga Nuklir Nasional Pusat Teknologi Akselerator dan Proses Bahan, Jogjakarta, pp. 18-20.
2. McCabe, J.F., and Walls, A.W.G. 2008. *Applied Dental Materials*, 9th ed., Singapore: Blackwell Publishing, pp. 196-197.
3. Garcia, A.H., Lozano, M.A.M., Vila, J.C., Escribano, A.B., and Galve P.F. 2006. 'Composite Resins. A Review of The Materials and Clinical Indications', *Med Oral Patol Oral Cir Bucal*, vol 11, pp.215-220.
4. Bogovich, J., Stopic, S., and Friedrich, B. 2011. 'Nanosized Metallic Oxide Produced by Ultrasonic *Spray pyrolysis*', *Conference Proceedings, Europe Metallurgical Conference 2011*, Düsseldorf, pp 1-12.
5. Nuryadin, B.W., Marully, A.R., Khairuddin, Abdullah, M., dan Khairurrijal 2009. 'Pengembangan Reaktor *Spray pyrolysis* dan *Spray Drying* untuk Sintesis Partikel Oksida dan Partikel komposit Berbentuk Bulat dan Berukuran Mikrometer', *Jurnal Nanosains dan Nanoteknologi*, vol. 2 (2), pp. 52-55.
6. Markovic, J.P., et al. 2007. 'Nanostructured ZrO_2 Powder Synthesized By Ultrasonic *Spray pyrolysis*', *Surface Review and Letters*, vol. 14 (5), pp. 915-919
7. Skovgaard, M., Almdal, K., Sørensen, B.F., Linderorth, S., and van Lelieveld, A. 2011. 'Shrinkage Reduction of Dental Composites by Addition of Expandable Zirconia Filler', *Journal of Composites Materials*, vol. 45 (26), pp. 2817-2822.
8. Liang, Y., Xie, Y., Ji, H., Huang, J., and Zheng, X. 2010. 'Chemical Stability and Biological Properties of Plasma-Sprayed $\text{CaO-SiO}_2\text{-ZrO}_2$ Coatings', *Journal of Thermal Spray Technology*, vol. 19(6), pp. 1171-1180.

9. Sakaguchi, R.L., and Powers, J.M., 2012. *Craig's Restorative Dental Material*, 13th ed., Philadelphia: Elsevier Mosby, pp. 163-182.
10. Volpato, C.A.M., et al. 2010. *Advances in Ceramics –Electric and Magnetic Ceramics, Bioceramics, Ceramics and Environment*, 1st ed., Croatia: Intech, pp. 110-115.
11. Garvie, R.C. 2014. 'A Personal History of The Development of Transformation Toughened PSZ Ceramics', *Journal of The Australian Ceramic Society*, vol. 51 (1), pp. 15-22.
12. Song, Y.L., et al. 2004. 'Ultrasonic Spray Pyrolysis for Synthesis of Spherical Zirconia Particles', *Journal of American Ceramic Society*, vol. 87 (10), pp. 1864-1871.
13. Rizzuti, A., Corradi, A., Leonelli, C., Rosa, R., Pielaszek, R., and Lojkowski, W. 2010. 'Microwave technique applied to the hydrothermal synthesis and sintering of calcia stabilized zirconia nanoparticles', *Journal of Nanoparticle Restoratives*, vol. 12, pp. 327-335.
14. Sadowski, Z., Polowczyk, I., Frakowiak, A., Chibowski, S., Bioinspired Synthesis of Calcium Carbonate Colloid Particles. *Fizykochemiczne Problemy Mineralurgii - Physicochemical Problems of Mineral Processing* 44:205-214