

Pengaruh perlakuan sonikasi dan refluks pada karakteristik silika dari abu sekam padi sebagai bahan baku material pulpotomi gigi

Effect of sonication and reflux treatment on silica characteristics of rice husk ash as raw material for dental pulpotomy

Leny Yuliatun¹, Nuryono^{1*}, Eko Sri Kunarti¹ dan Widjijono²

Received 6 September 2022
Accepted 20 November 2022
Published October 2022

¹Chemistry Department, Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta, Indonesia

²Kedokteran Gigi, Universitas Gadjah Mada, Yogyakarta, Indonesia

Abstrak. Penelitian ini bertujuan untuk mengekstraksi dan memurnikan silika dari abu sekam padi (ASP) dan melihat karakteristik silika yang dihasilkan apabila diberi perlakuan sonikasi dan refluks. Metode yang digunakan dalam penelitian ini adalah sol-gel menggunakan pelarut NaOH dan HCl kemudian diberi perlakuan sonikasi dan refluks serta pencucian untuk meminimalisir keberadaan natrium pada silika yang dihasilkan. Berdasarkan penelitian yang dilakukan, presentase silika dari metode sonikasi dan refluks adalah 96,4% dan 93%. Silika yang dihasilkan dari kedua metode mempunyai fase amorf dengan puncak melebar pada (2θ) 22° . Spektra FTIR antara kedua metode tidak menunjukkan perbedaan dengan puncak pada pita serapan 470 cm^{-1} , 802 cm^{-1} , dan 1103 cm^{-1} yaitu vibrasi dari Si-O siloksan ($\equiv\text{Si-O-Si}\equiv$). Pita serapan 3448 cm^{-1} adalah vibrasi ulur -OH dari silanol ($\equiv\text{Si-OH}$). Citra SEM menunjukkan bentuk yang berbeda pada silika yang dimurnikan dengan metode sonikasi dan refluks yaitu agregasi bulat teratur dan tak beraturan. Ukuran partikel dari silika dari metode sonikasi adalah $0,4448\text{ }\mu\text{m}$. Berdasarkan hasil karakterisasi yang dilakukan, dapat disimpulkan bahwa ekstraksi silika sebagai bahan baku pembuatan material pulpotomi dapat efektif dilakukan menggunakan metode sol-gel dan dimurnikan menggunakan sonikasi.

Abstract. This study aims to extract and purify silica from rice husk ash (RHA) and see the characteristics of the silica produced when treated with sonication and reflux. The method used in this study was sol-gel using NaOH and HCl solvents and then treated with sonication and reflux and washing to minimize the presence of sodium in the silica. Based on the research, the percentage of silica from the sonication and reflux method was 96.4% and 93%, respectively. Silica produced by both methods has an amorphous phase with a broad peak at (2θ) 22° . The FTIR spectra between the two methods showed no difference with peaks in the absorption bands of 470 cm^{-1} , 802 cm^{-1} , and 1103 cm^{-1} , namely the vibration of Si-O siloxane ($\equiv\text{Si-O-Si}\equiv$). The absorption band of 3448 cm^{-1} is the -OH stretching vibration of silanol ($\equiv\text{Si-OH}$). SEM images show different shapes of silica purified by sonication and reflux methods, namely regular aggregation, and irregular form. The particle size of silica from the sonication method is $0.4448\text{ }\mu\text{m}$. Based on the results of the characterization carried out, it can be concluded that the extraction of silica as a raw material for the of pulpotomy can be effectively carried out using the sol-gel method and purified using sonication.

Keywords: RHA, Silica, Reflux, Sonication.

Pendahuluan

Silikon sebagai bahan dasar silika biasanya berasal dari batuan kuarsa alami sebagai standar industri. Namun pengolahan batuan kuarsa memerlukan energi yang tinggi sehingga sumber pembuatan silika dapat dialihkan dari bahan alam seperti sekam padi. Rentang kemurnian silikon dari batuan kuarsa sama dengan silikon dari abu sekam padi (Onojah *et al.*, 2012). Hal ini didukung dengan ketersediaan sekam padi yang melimpah di Indonesia dapat digunakan untuk mengembangkan material anorganik yang berasal dari silikon (*siliconous rich tropical plants*) yang mempunyai prospek daya saing global yang tinggi (Karyasa, 2014).

Komponen silika terdapat dalam abu sekam padi sebanyak 90,50% dan sisanya adalah logam oksida (Todkar *et al.*, 2016). Silika digunakan dalam material pulpotomi dan sangat mempengaruhi kuat tekan, *setting time*, pembentukan kalsium silikat hidrat, pelepasan ion

kalsium pada material. Selain itu, keberadaan silika juga akan menambah kekuatan, struktur mikro, daya tahan hidrasi, mempercepat hidrasi saat sementasi, dan dapat membentuk filler yang mengubah mikrostruktur semen (Reza, 2017; Saghiri, 2015; Akbari *et al.*, 2013).

Keberadaan silika dengan ukuran kecil efektif meningkatkan kuat tekan dengan mengikat rasio air yang lebih tinggi dengan membentuk hidrat dan mempunyai daya tahan yang baik setelah terbentuk semen karena akan menyerap sedikit air (Behzadian dan Shahrajabian, 2019). SiO_2 ukuran 15 nm dalam semen akan merekatkan dan meningkatkan kekuatan ikatan antar muka pasta agregat sehingga mikrostruktur, kuat tekan dan permeabilitas mortar semen (Haruheansapong *et al.*, 2017). Penambahan silika berhasil mengubah kuat tekan sebesar 29,889% pada penambahan 6% silika dengan ukuran 50 nm, sedangkan penambahan 8% silika dengan ukuran 50 nm mengubah

kuat tekan sebesar 22,863% setelah sementasi selama 28 hari (Saleh *et al.*, 2015).

Pembuatan silika pada suhu 600 °C akan menghasilkan silika dengan ukuran 34,72 nm dan silika dalam jumlah kecil $\pm 1-3\%$ sudah dapat memodifikasi sifat komposit semen (Bonardo dan Siburian, 2019). Suhu kalsinasi 700 °C dan 800 °C akan menghasilkan silika sebanyak 98,7% dan 98,9% (Fernandes *et al.*, 2017). Suhu dan lamanya proses pengabuan sekam padi mempengaruhi kristalinitas silika yang dihasilkan. Selain itu, cara pemurnian silika yang dihasilkan juga mempengaruhi persentase dan ukuran partikel silika yang dihasilkan seperti penggunaan sonikasi dan refluks. Pada penelitian sebelumnya, ekstraksi silika hanya menggunakan metode sol-gel tanpa penambahan sonikasi dan refluks. Padahal, metode tersebut efektif untuk membuat ukuran partikel seragam dan lebih kecil sehingga dapat digunakan sebagai bahan baku material gigi. Silika menjadi salah satu material terbaik yang ditambahkan dalam material gigi (Rouhani *et al.*, 2019).

Ekstraksi silika menggunakan basa kuat yang menyisakan ion natrium sehingga harus dihilangkan dengan pencucian. Selain itu ukuran partikel silika diharapkan tidak terlalu besar sehingga dapat meningkatkan karakteristik material yang dibuat. Berdasarkan beberapa alasan tersebut, maka perlu dikaji mengenai perbedaan perlakuan untuk memurnikan dan membuat ukuran silika yang sesuai dengan MTA menggunakan sonikasi dan refluks. Silika diekstraksi bersumber dari abu sekam padi.

Metodologi

Sejumlah limbah kering sekam padi dibakar dan diperoleh arang yang berwarna hitam kemudian dikalsinasi pada 700°C selama 4 jam sehingga didapatkan abu sekam padi (ASP) putih (Yuliatun *et al.*, 2019). ASP ditumbuk dan diayak dengan ukuran 200 mesh dan dikarakterisasi menggunakan XRF, XRD, dan FTIR.

Sepuluh gram ASP ditambahkan dengan larutan NaOH 2M kemudian dipanaskan 85°C dan diaduk selama 1 jam, sehingga didapatkan larutan kecoklatan setelah penyaringan. Setelah itu residu diekstraksi kembali dengan NaOH 2M. Filtrat pertama dan kedua digabung dan ditetesi dengan HCl sampai pH 7 dan didapatkan endapan putih. Kemudian endapan diberi perlakuan sonikasi dan refluks. Sonikasi dilakukan selama 30 menit dan disaring kemudian endapan dicuci dengan akuades sebanyak 500 mL sehingga silika yang dihasilkan bebas Na. Sedangkan refluks dilakukan menggunakan larutan H₂SO₄ 4M kemudian disaring dan endapan dicuci menggunakan 500 mL akuades.

Endapan yang diperoleh setelah dikeringkan dan dikalsinasi pada suhu 400°C selama 4 jam, sehingga dihasilkan silika (SiO₂) putih kemudian digerus sampai semua silika lolos pada ayakan ukuran 200 mesh. Serbuk silika dari sonikasi dan refluks dikarakterisasi

menggunakan spektrofotometer FTIR, XRF, SEM, dan XRD. Uji PSA juga dilakukan pada metode sonikasi.

Hasil Penelitian

XRF



Gambar 1 Hasil ekstraksi 200 mesh dengan metode sonikasi

Berdasarkan Gambar 1. silika yang dihasilkan dengan metode sonikasi berwarna putih dengan presentase rendemen 65% dari ASP. Untuk mengetahui kandungan senyawa oksida yang terdapat dalam ASP maupun silika hasil ekstraksi menggunakan perlakuan sonikasi dan refluks dilakukan dengan uji XRF. Hasil uji XRF (X-Ray Floresence) dapat dilihat pada Tabel 1.

Tabel 1 Hasil uji XRF ASP dan silika hasil ekstraksi dari asp dengan perbedaan perlakuan

Komponen Senyawa	ASP (%)	SiO ₂ sonikasi (%)	SiO ₂ refluks (%)
SiO ₂	90,10	96,40	93,00
P ₂ O ₅	2,00	-	-
K ₂ O	3,88	1,00	-
CaO	2,76	1,91	1,00
TiO ₂	0,07	-	-
MnO	0,51	0,25	-
Fe ₂ O ₃	0,46	0,2	0,80
CuO	0,06	0,07	0,70
ZnO	0,03	0,02	0,70

Berdasarkan hasil uji XRF pada Tabel 1, silika hasil ekstraksi dengan sonikasi dan pencucian dengan 500 mL telah bebas natrium. SiO₂ bebas natrium dapat digunakan sebagai bahan pembuatan material pulpotomi yang dimungkinkan tidak menyebabkan adanya pori pada material ketika diaplikasikan dan mempunyai biokompatibilitas yang baik karena bebas natrium. Perlakuan sonikasi dianggap lebih menguntungkan dengan persentase hasil ekstraksi silika lebih besar dibandingkan dengan metode refluks.

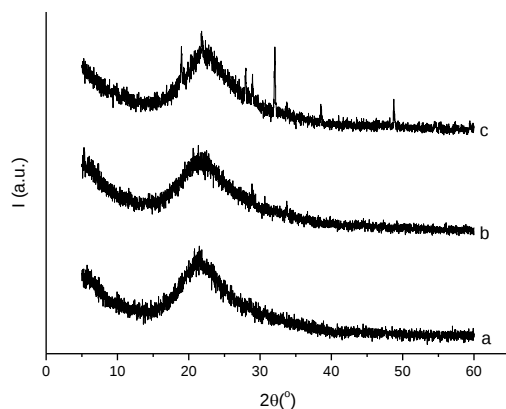
Berdasarkan Tabel 1, kandungan silika dalam ASP (90,10%) akan meningkat lebih tinggi (3,40%) dengan metode sonikasi daripada reflux. Gel silika mulai terbentuk pada pH 6 sampai 7 dan hasil silika biasanya 90% serbuk dengan ukuran 75 mikrometer dan berbentuk seperti batang (A'yuni *et al.*, 2021). Unsur lain yang terdapat dalam ASP adalah kalium, kalsium, mangan, tembaga, seng, bismuth dan besi dimungkinkan

dapat memperkuat fungsi material. Kadar Fe setelah ekstraksi juga mengalami penurunan yang disebabkan oleh larutnya logam Fe dalam HCl setelah terbentuk sluri dari natrium silikat.

Pencucian pada silika hasil ekstraksi dapat menghilangkan pengotor dan beberapa logam yang kemudian larut dalam air sehingga kadar dari silika menjadi meningkat. Hal ini juga sesuai dengan penelitian (Shelke *et al.*, 2010) yang menyatakan bahwa cara memurnikan silika dan menghilangkan ion natrium adalah dengan pencucian menggunakan air demineralisasi kemudian dikeringkan sehingga diperoleh kemurnian silika mencapai 96,4%. Berdasarkan hal tersebut dapat disimpulkan bahwa air akan memurnikan silika dari natrium dengan cara pencucian.

XRD

Karakteristik kristalinitas silika menggunakan metode sonikasi dan refluks dilakukan dengan menggunakan instrument XRD. Hasil XRD (diffractogram dapat dilihat pada Gambar 2.



Gambar 2 Diffraktogram (a) ASP (b) silika ASP sonikasi (c) silika refluks

Berdasarkan grafik hasil uji pada Gambar 2. ASP maupun silika hasil ekstraksi mempunyai struktur tidak kristalin yaitu fase amorf (sistem kristal trigonal atau heksagonal) yang ditandai dengan puncak landai (melebar) pada 2θ 22° . Trivana (2015) menjelaskan bahwa kristalinitas silika dipengaruhi oleh suhu pengabuan dan pada suhu 700°C merupakan suhu peralihan dari fase amorf menuju kristalin pada sekam padi ditandai dengan puncak curam pada XRD. Apabila silika mempunyai fase kristalin, maka dapat mempunyai bentuk kristobalit (sistem kristal monoklinik) dan tridimit (sistem kristal monoklinik). selain itu, zat anorganik lain dalam abu sekam padi dimungkinkan mengkatalisis terjadinya perubahan silika dari amorf menjadi kristalin. Pada 2θ 22° merupakan modifikasi dari bentuk kristobalit yang disebabkan karena suhu pemanasan 570 - 870°C (Ginjar *et al.* (2014).

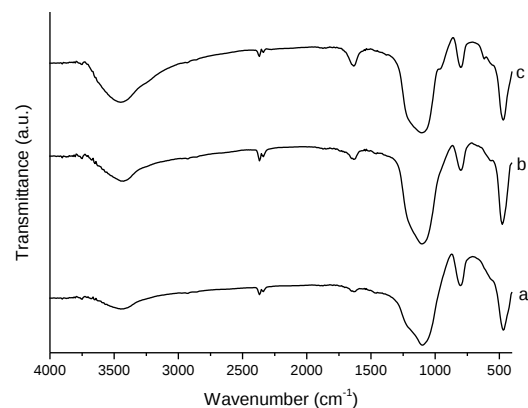
Ismail *et al.* (2014) juga menjelaskan bahwa pada suhu pengabuan 700°C dan 800°C dihasilkan silika berbentuk amorf, sedangkan fasa kristalin dimulai dari

suhu 900°C dan diperoleh pada suhu 1100°C . Pada suhu pengabuan $<570^\circ\text{C}$ berbentuk kuarsa rendah atau kristalin, 570 - 870°C berbentuk kuarsa tipe kristal kristobalit dan tridimit, 870 - 1470°C berbentuk kristobalit, sedangkan 1723°C berbentuk silika cair (Smallman dan Bishop, 2000). Ekstraksi silika dari sekam padi sebagai sumber alami silika dapat dilakukan mulai suhu 400 - 700°C dan pada saat 400°C terjadi oksidasi karbon (Ananthi *et al.*, 2016).

Keberadaan ion natrium dalam silika hasil ekstraksi dapat dilihat pada (2θ) 30° . Hasil pengujian menunjukkan bahwa silika hasil ekstraksi menggunakan sonikasi mempunyai puncak lebih kecil daripada reluks yang disebabkan keberadaan natrium banyak yang hilang karena proses pencucian dengan 500 mL air. Berdasarkan pengujian, dapat disimpulkan bahwa silika dapat diekstraksi dari abu sekam padi tanpa atau terdapat sedikit natrium dan fasa amorf menggunakan metode sonikasi.

FTIR

Untuk mengetahui gugus fungsi ASP dan silika hasil ekstraksi dari ASP digunakan FTIR. Hasil uji FTIR dapat dilihat pada Gambar 3.



Gambar 3 Spektra FTIR (a) ASP, (b) silika ASP sonikasi, (c) silika refluks

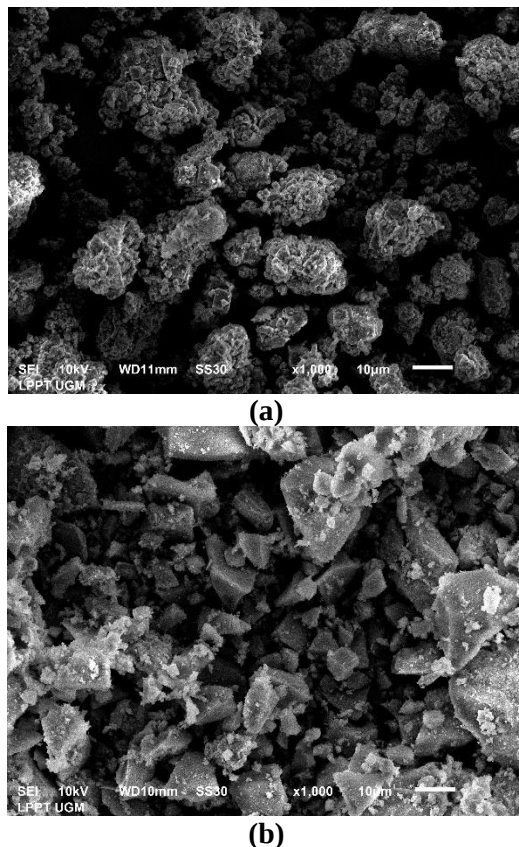
Berdasarkan hasil uji FTIR pada Gambar 3. dapat diketahui ASP, Silika sonikasi, dan silika reluks mempunyai bilangan gelombang 470 cm^{-1} yaitu vibrasi tekuk $\equiv\text{Si-O-Si}\equiv$, 802 cm^{-1} vibrasi ulur simetri Si-O dari $\equiv\text{Si-O-Si}\equiv$, 1103 cm^{-1} vibrasi ulur asimetri Si-O dari $\equiv\text{Si-O-Si}\equiv$, 1635 cm^{-1} vibrasi tekuk $-\text{OH}$ dari H_2O , 3448 cm^{-1} vibrasi ulur $-\text{OH}$ dari $\equiv\text{Si-OH}$, dan 3873 cm^{-1} adalah vibrasi ulur $-\text{OH}$ dari H_2O . Hal ini sesuai dengan penelitian dari Syukri *et al.* (2017).

Selain itu, menurut Trivana *et al.* (2015) dan Rosalia *et al.* (2016) menyebutkan bahwa pada bilangan gelombang 439 cm^{-1} merupakan vibrasi tekuk dari $\equiv\text{Si-O-Si}\equiv$ (siloksan). Berdasarkan Gambar 3, bilangan gelombang 1103 cm^{-1} pada silika sonikasi mempunyai intensitas dan ketajaman yang lebih tinggi daripada refluks. Hal ini menunjukkan bahwa silika sonikasi

mempunyai kandungan silika lebih besar dengan kemurnian yang lebih tinggi. Hasil spectra FTIR sudah sesuai dengan hasil XRF, sehingga metode sonikasi dianggap lebih efektif dalam memurnikan silika hasil ekstraksi ASP.

SEM

Uji SEM digunakan untuk mengetahui bentuk partikel dan morfologi permukaan dari silika. Hasil uji SEM dapat dilihat pada Gambar 4.



Gambar 4. SEM silika perbesaran 1000x perlakuan (a) sonikasi (b) refluks

Berdasarkan Gambar 4, dapat dilihat karakteristik silika dengan sonikasi menghasilkan silika dengan aglomerasi dari 13-17 μm . Bentuk partikel dari silika hasil sonikasi lebih seragam dan teratur jika dibanding dengan silika menggunakan metode refluks. Pada metode refluks, ukuran dan bentuk partikel tidak seragam dan tidak teratur. Ukuran dan keteraturan bentuk akan mempengaruhi sifat material mekanik material apabila digunakan sebagai bahan material pulpotomi terutama kuat tekan. Partikel yang kecil dapat mengisi celah dalam material sehingga dapat meningkatkan kuat tekan dan kekerasan material.

Berdasarkan hasil pengujian menggunakan particle size analyzer (PSA), silika hasil ekstraksi dengan metode sonikasi mempunyai rata-rata ukuran 0,4448 μm atau 444,8 nm. Silika dapat terbentuk pada suhu 700 $^{\circ}\text{C}$ dengan ukuran partikel 75 μm dan berbentuk seperti batang (A'yuni et al., 2021). Sonikasi digunakan untuk memperkecil ukuran partikel dan membuat ukuran

partikel menjadi homogen atau lebih seragam. Partikel silika dari abu sekam padi biasanya mengalami aglomerasi kurang dari 10 μm (Fernandes et al., 2017). Berdasarkan hasil pengujian SEM dapat disimpulkan bahwa metode sonikasi lebih efektif daripada metode refluks dalam hal keteraturan dan homogenitas partikel.

Kesimpulan

Silika dari abu sekam padi lebih efektif dimurnikan dengan metode sonikasi karena mempunyai kadar yang lebih tinggi 3,4% daripada metode refluks. Silika yang dihasilkan dari kedua perlakuan mempunyai fase amorf. Silika yang diberi perlakuan sonikasi mempunyai ukuran partikel lebih seragam dan tertata dari pada menggunakan perlakuan refluks dengan ukuran partikel 0,4448 μm . Pemurnian silika menggunakan metode sonikasi lebih sesuai digunakan untuk memperoleh silika sebagai bahan baku material pulpotomi.

Ucapan Terima Kasih

Penulis mengucapkan terima kasih kepada LPDP RI yang telah membiayai penelitian dengan Fund Request number FR312022277382.

Referensi

- Akbari, M., Zebarjad, S., Nategh, B., & Roubani, A. (2013) Effect of Nanosilica on Setting Time and Physical Properties of Mineral Trioxide Aggregate. *J. Endod. (JOE)*. **39**(11): 1448-1451.
- Ananthi, A., Geetha, D., & Reamesh, P. (2016) Preparation and Characterization of Silica Material from Rice Husk Ash-An Economically Viable Method. *Chemistry. Material Research*. **8**(6): 1-7.
- A'yuni, D., Djaeni, M., & Subagio, A. (2021) Characterization of Ultrafine Silica Prepared from Rice Husk Ash by Sol-Gel Method. *IOP Conf. Series: Mater. Sci. Eng.* **1053**: 012072.
- Behzadian, R., & Shahrajabian, H. (2019) Experimental Study of the Effect of Nano-silica on the Mechanical Properties of Concrete/PET Composites. *KSCE J. Civil Eng.* **23**(8): 3660-3668.
- Bonardo, D., & Siburian, R. (2019) Analisis Struktur Nano Partikel Silika Dari Abu Ampas Tebu Menggunakan Metode XRD. *Jurnal Hasil Penelitian Bidang Fisika*. **9**(1): 13-20.
- Fernandes, I. J., Calheiro, D., Sánchez, F. A. L., Camacho, A. L. D., De Campos Rocha, T. L. A., Moraes, C. A. M., & De Sousa, V. C. (2017) Characterization of Silica Produced From Rice Husk Ash: Comparison of Purification and Processing Methods. *Journal of Materials*. **20**(2): 519-525.
- Ginanjari, R. R., Mulyadi, A. H., Biologi, F., & Soedirman, U. J. (2014). Ekstraksi Silika Dari Abu Sekam Padi Menggunakan Pelarut NaOH. *Prosiding Seminar Nasional Hasil-hasil Penelitian dan Pengabdian UMP 2014*. **3**: 306-312.
- Haruheansapong, S., Pulngern, T., & Chucheeepsakul, S. (2017) Effect of Nanosilica Particle Size on The Water Permeability, Abrasion Resistance, Drying Shrinkage, and Repair Work Properties of Cement Mortar Containing Nano-SiO₂. *Advances in Materials Science and*

- Engineering*. **2017**: 4213690.
- Ismail, N. A. A., Azmi, M. A., Ahmad, S., & Taib, H. (2015) Effect of Rice Husk Firing Temperature on Synthesis of Silica (SiO₂). *Advances Material Research*. **20**: 470–474.
- Karyasa, I. (2014) Pembuatan UFAS dari Jerami dan Sekam Padi. *Jurnal Sains dan Teknologi*. **3**(1), 263-274.
- Onojah, A & Amah, A. (2012) Comparative Studies of Silicon from Rice Husk Ash and Natural Quartz. *American Journal of Scientific and Industrial Research*. **3**(3): 146-149.
- Reza, M. (2017) Effect of Colloidal nano-silica on Setting time, Radiopacity and Physical Properties of a Nano Cement Based Compound for Endodontic Applications. *Research and Development*. **8**(1) :1-3.
- Rosalia, R., Asmi, D., & Ginting, E. (2016) Preparasi dan Karakterisasi Keramik Silika (SiO₂) Sekam Padi dengan Suhu Kalsinasi 800°C- 1000°C. *Jurnal Teori dan Aplikasi Fisika*. **4**(1): 101-106.
- Rouhani, A., Azimi, N., Akbari, M., Ahmadpour, A., & Ashrafpour, E. (2019) Effect of Adding Nano Size Silica on Setting Time and Porosity of Mineral Trioxide Aggregate. *Iranian Endodontic Journal*. **14**(3): 197-201.
- Saghiri, M., Asgar, K., Lotfi, M., & Garcia, F. (2012) Nanomodification of Mineral Trioxide Aggregate for Enhanced Physiochemical Properties. *International Endodontic Journal*. **45**: 979-988.
- Saleh, N., Ibrahim, R., & Salman, A. (2015) Characterization of Nano-silica Prepared from Local Silica Sand and Its Application in Cement Mortar Using Optimization Technique. *Advanced Powder Technology*. **26**: 1123-1133.
- Smallman, R.E and Bishop, R.J. (2000). *Mod Phys Metall Mater Eng*. Hill International Book Company: NewYork.
- Shelke, V. R., Bhagade, S. S., & Mandavgane, S. (2010) Mesoporous Silica from Rice Husk Ash. *Bulletin of Chemical Reaction Engi-Neering & Catalysis*. **5**(2): 63–67.
- Syukri, I., Hindryawati, N., & Subagyono, R. (2017) Sintesis Silika dari Abu Sekam Padi Termodifikasi 2-Merkaptobenzotiazol untuk Adsorpsi Ion Logam Cd²⁺ dan Cr⁶⁺. *Journal of Atomic*. **2**(2): 221-226
- Trivana, L., Sugiarti, S., & Rohaeti, E. (2015) Sintesis dan Karakterisasi Natrium Silikat (Na₂SiO₃). *Jurnal Sains dan Teknologi Lingkungan*. **7**(2): 66–75.
- Yuliatun, L., Riyawati, & A., Nuryono. (2019) Silika Bebas Natrium dari Limbah Sekam Padi sebagai Bahan Dasar Pembuatan Mineral Trioxide Aggregate. *Jurnal Pengendalian Pencemaran Lingkungan (JPPL)*. **1**(1): 1-7.