

Alternatif Baru Pengembangan Material Dental Filler Berbahan Baku {CH-CaCO₃-(C-HA)-MMA} Hasil Daur Ulang Limbah Organik

Fanny Leestiana, Yuli Setiyorini, dan Agung Purniawan
Jurusan Teknik Material dan Metalurgi, Fakultas Teknologi Industri, Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS)

Jl. Arief Rahman Hakim, Surabaya 60111 Indonesia
e-mail: yulisetiyorini@yahoo.com

Abstrak— Hampir 72% - 80% penduduk Indonesia dan 60% - 90% penduduk dunia menurut WHO mengalami gigi berlubang. Hal ini memicu meningkatnya permintaan akan jumlah material yang berfungsi untuk tambal gigi. Bertolak dari peluang tersebut, pada penelitian ini mencoba untuk mengembangkan alternatif material tambal gigi yang terbuat dari hasil daur ulang limbah organik berupa *chitosan*, *calcium carbonate*, *carbonate-hydroxyapatite* {CH-CaCO₃-(C-HA)} yang berasal dari limbah kulit udang, kulit telur, dan tulang sapi serta menggunakan MMA (*Methyl Metacrylate*) sebagai matriks pengikat bahan – bahan tersebut. Metodologi yang digunakan adalah dengan mencari pengaruh variasi komposisi dari perbandingan {CH-CaCO₃-(C-HA)-MMA} yang berupa *filler* dan *matrix*. Berdasarkan pengujian untuk mengetahui kemampuan mekanik sample, dilakukan pengujian kekerasan (VHN) dan juga uji kompresi. Hasil pengujian tertinggi dimiliki sample G7525 dengan nilai kekerasan 88,04 VHN. Pengujian antibacterial juga dilakukan untuk mengetahui efek penggunaan *chitosan* sebagai bahan anti bakteri. Hasilnya, dengan menggunakan bakteri *streptococcus mutans* juga menunjukkan hasil yang positif pada semua sample dengan zona hambat sama atau lebih besar dari 1mm. Dari seluruh hasil pengujian yang diperoleh maka material *chitosan*, *calcium carbonate*, *carbonate-hydroxyapatite* {CH-CaCO₃-(C-HA)} yang berasal dari limbah kulit udang, kulit telur, dan tulang sapi serta menggunakan MMA (*Methyl Metacrylate*) berpotensi digunakan sebagai dental filler.

Kata Kunci—*calcium carbonate*, *carbonate-hydroxyapatite*, *chitosan*, *dental filler*, *MMA*.

I. PENDAHULUAN

Amalgam adalah dental filler yang paling dikenal sejak dahulu oleh masyarakat umum. Selain sifatnya yang kuat karena merupakan campuran logam merkuri, perak, tembaga, dan tin harga dari dental filler ini adalah yang paling murah. Namun sayangnya, bahan penyusun amalgam ini dapat menimbulkan reaksi alergi bagi beberapa penggunaannya, oleh karena itu, orang mulai menciptakan dental filler berbahan komposit yang lebih aman dan tidak mengandung logam berat. Namun komposit dental filler tersebut memiliki beberapa kelemahan di samping warnanya yang menyerupai gigi, yaitu mudah aus dan harganya mahal^[8]. Oleh karena permasalahan tersebut, mulai terpikirkan untuk memperbaiki komposit dental filler. Diketahui bahwa gigi tersusun atas enamel dan dentine.

Pada enamel terkandung hampir 95% bahan inorganic, dimana dari komposisi tersebut 90% sampai 92% nya merupakan hydroxyapatite. Pada dentine yang merupakan tulang gigi, mengandung sekitar 75% bahan inorganic yang sebagian besar juga berupa kristalin hydroxyapatite, 20% bahan organic yang hampir (90%)nya berupa collagen dan 5% air. Sehingga dari komposisi penyusun gigi tersebut diketahui bahwa pada gigi alami, memiliki partikel penguat berupa hydroxyapatite^[3].

Apatite (Ca₁₀(PO₄)₆(OH,F,Cl)₂) merupakan salah satu dari jenis kalsium phosphate yang dapat diaplikasikan pada proses penyembuhan tulang dan gigi karena memiliki sifat – sifat, diantaranya adalah biocompatibilitas, komposisi yang sama dengan tulang asli, biodegradable, non-toxic, serta kemampuan mekanis yang bagus. sifat- sifat tersebut menjadikan apatite semakin penting pada bidang hard tissue engineering^[4]. Karena banyak sifat yang dapat diperoleh dari apatite ini maka banyak penelitian dilakukan untuk mensintesa apatite dari alam^[12]. Bentuk apatite konvensional yang tersebar di pasaran sudah banyak yang berukuran mikro dan tersedia dalam berbagai bentuk, diantaranya adalah serbuk, block yang berporous, dan lain-lain^[5].

Chitosan banyak dipilih untuk dimanfaatkan karena seperti kolagen, chitosan memiliki sifat dapat diserap tubuh, mudah diperoleh dari alam, dan dapat membantu proses penyembuhan (wound-healing)^[6]. Selain itu chitosan juga memiliki sifat antibacterial yang baik^[13]. Aplikasi chitin dan chitosan dalam bidang dental sudah lumayan banyak dilakukan, diantaranya membuat semen gigi komposit kalsium fosfat chitosan^[10], dimana chitosan dipilih karena dapat memperbaiki sifat elastisitas dari keramik yang digunakan sebagai bahan tambal gigi. Bioaktif β-chitin hydrogel/nBGC composite dapat digunakan sebagai material pengisi tulang dan material coating untuk dental implant, karena menurut hasil penelitian tersebut dapat menghasilkan material yang memiliki karakteristik ideal sebagai *tissue engineering*, dimana sel dapat melekat dan berproliferasi dengan baik^[11].

Setelah mengetahui potensi dari *chitosan*, *calcium carbonate*, dan *carbonate-hydroxyapatite*, maka diketahui bahwa masing – masing dari bahan tersebut memiliki potensi yang besar yang dapat dimanfaatkan di bidang *tissue engineering* maupun *dental material*. Penelitian yang sudah pernah dilakukan diantaranya adalah *chitosan fibers* yang dimodifikasi dengan *Hap/β-TCP* nanopartikel^[9], *chitosan*

starch composite yang diisi dengan serbuk *hydroxyapatite* berukuran mikro dan nano untuk *hard tissue engineering*^[4]. Hal ini dapat dimanfaatkan lebih lanjut karena dari begitu banyaknya jenis material sebagai bahan *dental filler*, ternyata masih belum cukup untuk memenuhi kebutuhan serta permintaan pasar, yang semakin hari semakin meningkat karena masyarakat semakin sadar akan pentingnya kesehatan mulut serta gigi. Dari berbagai bahan *dental filler* tersebut, dalam proses sintesa dan manufakturnya masih menggunakan beragam jenis bahan kimia, sehingga masih belum memenuhi kriteria sebagai material yang bersifat ramah lingkungan dan masih mungkin berbahaya bagi tubuh.

Berakar dari kebutuhan tersebut, dan didukung oleh propertis yang dimiliki oleh *chitosan*, *calcium carbonate*, dan *carbonate-hydroxyapatite* seperti penjabaran sebelumnya, maka campuran antara *chitosan*, *calcium carbonate*, dan *carbonate-hydroxyapatite* sangat berpeluang besar untuk menjadi material alternative dalam bidang *dental filler*.

II. METODOLOGI

A. Bahan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini terdiri dari powder filler yang terdiri dari serbuk *carbonate-hydroxyapatite* (CHA), *homemade* dengan kemurnian 97% dan rasio Ca/P 1.68, serbuk *calcium carbonate* (CC), *homemade* dengan kemurnian 99% dan rasio Ca:C:O = 1:1:3, serta serbuk *chitosan* (C), *homemade* yang memiliki densitas 1.314 gr/cm³, molecular weight 38.91 gr/mol, dan DD 78,5 dan juga resin monomer.

Resin monomer yang digunakan adalah MMA (*methyl methacrylate*) yang memiliki molecular weight 100.12gr/mol dan densitas 0.936 g/cm³ pada 25 °C, mengandung MEHQ kurang dari 30ppm sebagai inhibitor. Matriks BisGMA (*Bisphenol A – Glycidylmethacrylate*) dengan molecular weight 364.43 gr/mol. Inisiator yang digunakan BPO (*Benzoyl peroxide*), molecular weight 242.23, konsentrasi 60-100%, yang berfungsi sebagai *crosslinker* adalah EGDMA (*Ethylene Glycol Dimethacrylate*) yang memiliki molecular weight 198.22, dengan konsentrasi 98%, dan *4,N,N-Trimethylaniline* yang memiliki molecular weight 135.21 dan kemurnian >98.5% sebagai *activator*. Seluruh produk merupakan buatan Sigma Aldrich Singapura.

B. Pembuatan Dental Filler

Persiapan pembuatan dental filler adalah mencampur antara monomer MMA (*methyl methacrylate*) dengan *crosslinker* EGDMA (*Ethylene Glycol Dimethacrylate*), lalu pada larutan tersebut di tambahkan serbuk matriks BisGMA (*Bisphenol A – Glycidylmethacrylate*). Pencampuran ketiga jenis bahan tersebut dengan perbandingan 1wt% : 1wt% : 1wt%. Setelah itu ditambahkan inisiator BPO (*Benzoyl peroxide*) 0,1 wt%. setelah larutan tersebut siap, larutan tersebut di campur dengan powder *carbonate-hydroxyapatite*, *calcium carbonate*, dan *chitosan* sesuai dengan komposisi. Setelah campuran berbentuk pasta, di letakkan dalam cetakan kemudian ditetesi dengan *4,N,N-Trimethylaniline* sebanyak 1-2 tetes yang

berperan sebagai *activator* dan menyebabkan pasta yang telah terbentuk tadi mengeras setelah 60 detik. Pencampuran yang dilakukan tersebut sesuai dengan komposisi yang telah ditentukan pada tabel 1.

Tabel 1. Komposisi Kimia

Kode	komposisi			
	C	CHA	CC	MMA
C	50wt%	-	-	
CC	-	-	50wt%	
CHA	-	50wt%	-	50wt%
G2575	10wt%	10wt%	30wt%	
G5050	10wt%	20wt%	20wt%	
G7525	10wt%	30wt%	10wt%	

C. Karakterisasi Sample

Pengujian kekerasan dengan menggunakan standar micro Vickers menggunakan mesin uji hardness Mitutoyo, HM 200 series japan. Beban indentasi yang digunakan 300gr dengan waktu total persiapan indentasi, indentasi dan pengukuran kekerasan 12 detik^[1]. Pengujian kompresi dilakukan dengan beban 100kN, dan *crosshead speed* 10mm/min, akan menghasilkan force yang dibutuhkan untuk menekan sample hingga pecah. Untuk mencari kekuatan kompresinya, maka menggunakan persamaan ... (1)^[15].

$$Rc = F \times \frac{9,807}{A} \dots (1)$$

Dimana Rc merupakan kekuatan tekan (MPa),

F adalah beban (kgf), dan

A adalah luas penampang sample (mm²)

Pada sample yang diuji (G2575, G5050, dan G7525) berbentuk silinder yang memiliki dimensi tinggi 5mm dan diameter 5mm. sehingga luas penampangnya adalah

$$A = \pi r^2 \\ = 19,63496 \text{ mm}^2.$$

D. Antibacterial Testing

Pengujian anti bacterial dilakukan dengan metode difusi dengan menggunakan bakteri *streptococcus mutans* penyebab secondary caries yang dibiakkan dimedia NA (Nutrien Agar) atau *Blood Agar Plate* selama 18-24 jam bersama dengan sample yang akan diuji. Setelah 18-24 jam dilakukan pengukuran zona hambat yang terbentuk disekeliling sample dengan menggunakan jangka sorong. Zona hambat diukur dengan persamaan ... (2)

$$\text{Zona hambat} = \frac{(\text{diameter terbesar} + \text{diameter terkecil})}{2} \dots (2)$$

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

A. Kemampuan Mekanik

Pada tabel 2, perbandingan kekerasan dental filler dapat diketahui. Dalam tabel 2 tersebut nilai kekerasan dari sample G2575 adalah 33,6 VHN, pada sample G5050 adalah 64,78 VHN, dan pada sample G7525 sebesar 88,04 VHN sehingga nilai kekerasan ketiga sample, G2575, G5050, dan G7525

masih kurang jika dibandingkan dengan kekerasan pada enamel gigi yang nilainya bisa mencapai 274,8 VHN. Walaupun begitu nilai tersebut sudah melebihi dari kekerasan dentine yang hanya 65,6 VHN. Untuk mengetahui sejauh mana kemampuan ketiga jenis sample tersebut maka nilai kekerasan tersebut dibandingkan dengan produk komersial yang telah ada di pasaran yaitu Belleglass dan Solidex. Bila dibandingkan dengan produk dental filler komersial yang sudah ada dipasaran tersebut, nilai kekerasan pada sample G5050 dan G7525 lebih baik. Kekerasan yang dimiliki oleh produk komersial belleglass dan solidex masing – masing memiliki nilai kekerasan 72 VHN dan 43 VHN. Sehingga dengan demikian nilai kekerasan dari produk penelitian ini lebih baik dibandingkan dengan produk komersial. Bila dilihat tren hasil pengujian kekerasan pada tabel 2, terlihat bahwa semakin banyak komposisi *carbonate-hydroxyapatite* maka nilai kekerasannya juga akan meningkat.

Tabel 2. Hasil uji kekerasan

Mechanica l Poperties	Enam el [1]	Denti ne [1]	G25 75	G50 50	G7 52	BEL LEG LAS S [2]	SOLI DEX [2]
Hardness (VHN)	274,8	65,6	33,3 6	64,7 8	88, 04	72	43

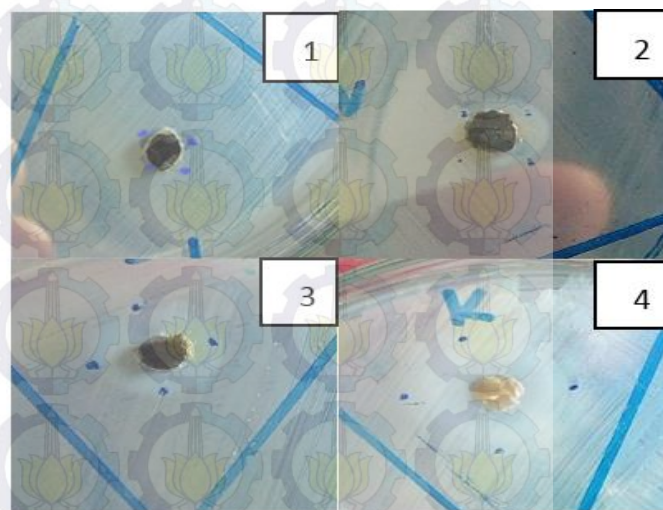
Tabel 3. Hasil uji tekan

Mechanical Poperties	Enam el [1]	Denti ne [1]	G25 75	G50 50	G75 25	BEL LEG LAS S [2]	SOLI DEX [2]
Kekuatan kompresi (MPa)	62,2	193,7	31,6 329	25,9 723	23,6 41	540	314

Dari hasil pengujian tekan diperoleh data nilai compression strength dari masing masing sample yaitu sample G2575 sebesar 31,6329 MPa, sample G5050 sebesar 25,9723 MPa, dan sample G7525 yang terendah bernilai 23,641 MPa. Dari hasil tersebut bila dibandingkan dengan nilai pada enamel masih jauh. Nilai uji tekan terbesar yang dimiliki sample G2575 hanya mencapai setengah dari nilai kemampuan tekan enamel. Dari data pada tabel 3, terlihat bahwa semakin banyaknya kandungan *carbonate-hydroxyapatite* akan menurunkan ketahanan tekannya. Bila hasil tersebut dibandingkan dengan produk komersial Belleglass dan Solidex maka selisihnya akan lebih jauh lagi. Seperti yang tersaji di dalam tabel 3, nilai kekuatan tekan terendah produk komersial yang dimiliki oleh produk Solidex yaitu 314 MPa jauh melebihi dari kemampuan tekan enamel. Nilai ini mencapai hampir lima kali lipat. Hal ini dimungkinkan karena perbedaan propertis atau sifat dari material penyusun bahan tersebut. Perbedaan hasil nilai kekerasan yang dimiliki oleh sample ini jauh berbeda dibandingkan dengan enamel bias dimungkinkan karena adanya perbedaan standar pengujian yang dilakukan. Dimana standar yang digunakan sesuai dengan ADA

(American Dental Association) 27 [8], yaitu benda uji berbentuk silinder dengan diameter 3mm dan tinggi 6mm. *crosshead speed* pada mesin uji universal sebesar 1mm/min.

B. Uji Antibacterial



Gambar. 1. Hasil Uji Antibacterial pada 1) G2575, 2) G5050, 3) G7525, dan 4) chitosan sebagai kontrol

Tabel 4. Hasil uji anti bakteri

Sample	Zona hambat (mm)
G2575	6,0
G5050	8,058
G7525	9,258
CHITOSAN (Kontrol)	14,967

Dari hasil uji anti bakteri ini, yang dapat diukur adalah zona hambat yang dihasilkan oleh sample. Kontrol yang digunakan adalah resin yang diberi filler chitosan murni. Karena pada semua sample terdapat chitosan, maka seluruh sample menunjukkan sifat antibacterial. Sifat tersebut ditunjukkan dengan terbentuknya zona hambat disekeliling sample. Besarnya zona hambat tersebut terangkum dalam tabel 4. Dari pengamatan visual yang ditunjukkan gambar 1, zona hambat tersebut nampak seperti lingkaran jernih disekeliling sample yang menjadi daerah resistensi sample terhadap bakteri, atau dengan kata lain sample menunjukkan sifat antibacterialnya sehingga bakteri tidak dapat hidup di daerah tersebut. Semakin besar zona hambat yang dihasilkan, maka sifat antibacterialnya makin kuat, karena sifat antibacterial dapat dikatakan baik bila zona hambat yang terbentuk lebih besar atau sama dengan 1mm [7].

IV. KESIMPULAN

Kesimpulan dari penelitian ini adalah material Calcium carbonate, carbonate-hydroxyapatite, dan chitosan memiliki potensi untuk dijadikan material dental filler karena memiliki kemampuan mekanis dan sifat antibakteri yang baik. Semakin banyak komposisi *carbonate-hydroxyapatite* akan

meningkatkan nilai kekerasan dari dental filler. Komposisi yang memiliki sifat mendekati enamel adalah dengan kode sample G5050 dan G7525.

V. DAFTAR PUSTAKA

- [1] Chun,K.J., Choi, HH., and Lee, JY. Comparison of Mechanical property and role between enamel and dentine in the human teeth. *Journal of Dental Biomechanics* 5 178736014520809. 2014.
- [2] Shimane, T., Endo, K., Zheng, JH., Yanagi, T., and Ohno, H. Wear of Opposing Teeth by Posterior Composite Resin-Evaluation of Newly Developed Wear Test Methods. *Dental Materials Journal* 2010; 29 (6) :713-720.
- [3] Philips, Ralph W. 1997. *Science of Dental Material*. China: Elsevier.
- [4] Ai, Jafar., Rezaei-Tavirani, Mostafa., Biazar, Esmail., Heidari K, Saeed., and Jahandideh, Rahim. 2011. Mechanical Properties of Chitosan-Starch Composite Filled Hydroxyapatite Micro-and Nanopowders. *Hindawi Publishing, Journal of Nanomaterials*, vol 2011, Article ID 391596.
- [5] Davidenko, Natalia., G. Carrodegua, Raul., Peniche, Carlos., Solis, Yaimara., E. Cameron, Ruth. Chitosan/apatite composite bead prepared by in situ generation of apatite or Si-apatite nanocrystals. *Acta Biomaterialia* 6 (2010) 466-476
- [6] Ito, M. In vitro properties of a chitosan-bonded hydroxyapatite bone-filling paste. *Biomaterials* 1991, vol.12, januari.
- [7] Miola, M., Bruno, M., Maina, G., Fucale, G., Lucchetta, G, and Verne, E. Antibiotic – free Composite Bone Cements With Antibacterial and Bioactive Properties. A preliminary Study. *Materials Science and Engineering C* 43 (2014) 65-75.
- [8] American Dental Association. 2012. Dental Filling Facts. www.ada.org. Diakses pada tanggal 7 Mei 2014 pukul 19.00 WIB.
- [9] Dahlan, Kiagus., Dewi, Setia Utami., Solihat, Rahmi., Penggunaan hidroksiapatit dari cangkang telur sebagai material penambal gigi. *Seminar Hasil Penelitian IPB, Bogor*, 13-14 Desember 2010.
- [10] Siswanto., Adi, Jan., Nugraheni, Pipit Dewi. Sintesis dan Karakterisasi Semen Gigi Komposit Kalsium fosfat-kitosan. *Prosiding Seminar Nasional Fisika Terapan III Departemen Fisika, FST, Universitas Airlangga Surabaya*, 15 September 2012.
- [11] Sowmya, P., Kumar, P. T. Sudheshh., Chennazhi, K. P., Nair, S. V., Tamura, H., Jayakumar, R. Biocompatible β -chitin Hydrogel/nanobioactive Glass Ceramic Nanocomposites Scaffolds for Periodontal Bone Regeneration. *Trends Biomater. Artif. Organs*, 25(1), 1-11 (2011).
- [12] Jaffe, Elizabeth B. 1951. *Abstracts of the literature on synthesis of apatites and some related phosphates*. Washington D.C. : United States Departement of The Interior.
- [13] Dutta, Pradip Kumar., Duta, Joydeep., Tripathi, V.S. Chitin and Chitosan : Chemistry, properties, & applications. *Journal of Scientific & Industrial Research*. Vol. 63, Januari 2004, pp 20-31.
- [14] Klymus, M.E., Shinkai, R.S.A., Mota, E.G., Oshima, H.M.S., Spohr, A.M., and Burnett Jr, L.H. Influence of the mechanical properties of composites for indirect dental restorations on pattern failure. *Stomatologija, Baltic Dental and Maxillofacial Journal*, 9:56-60, 2007