

## MODIFIKASI MINERAL TRIOKSIDA AGREGAT DARI SILIKA ABU SEKAM PADI DAN KALSIUM KARBONAT CANGKANG TELUR DENGAN ZnO DAN KITOSAN SEBAGAI KANDIDAT MATERIAL ENDODONTIK

Mariyam

20/468185/SPA/00751

### INTISARI

Mineral trioksida agregat (MTA) adalah serbuk hidrofilik yang terdiri dari trikalsium silikat ( $\text{Ca}_3\text{SiO}_5$ ), dikalsium silikat ( $\text{Ca}_2\text{SiO}_4$ ), dan trikalsium aluminat ( $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6$ ). Walaupun biokompatibel, MTA memiliki beberapa kelemahan seperti harga jual yang tinggi, kemampuan penutupan (*sealing*) dan antibakteri yang rendah serta pembentukan pori saat hidrasi yang menurunkan kekerasan semen. Dalam penelitian ini telah disintesis MTA yang dimodifikasi dengan ZnO dan dihidrasi menggunakan larutan kitosan. MTA disintesis menggunakan prekursor murni/komersial dan dari bahan alam yaitu cangkang telur (CT) sebagai sumber kalsium karbonat terendap (*precipitated calcium carbonate*, PCC) dan silika ( $\text{SiO}_2$ ) dari abu sekam padi (ASP). Modifikasi MTA dengan ZnO dilakukan dengan memvariasikan komposisi (b/b) ZnO ( $x=5\%$ ,  $10\%$ , dan  $15\%$ ) dan  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  ( $18-x\%$ ), sedangkan persentase komponen lain konstan (CaO 60%,  $\text{SiO}_2$  20%, dan  $\text{Al}_2\text{O}_3$  2%). ZnO ditambahkan bersamaan dengan pembuatan MTA diawali dengan metode sol-gel dan dilanjutkan dengan kalsinasi pada suhu  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  selama 3 jam. Fasa cair yang digunakan untuk hidrasi MTA adalah larutan kitosan 2%, 4% dan 6%. MTA terhidrasi diuji karakteristiknya melalui uji sifat adhesi (kerekatan antarmuka dentin-MTA), kuat tekan, radiopasitas, waktu ikat semen, pelepasan  $\text{Ca}^{2+}$  dan  $\text{Zn}^{2+}$ , pH, % pengurangan massa, antibakteri dan sitotoksitas.

Keberhasilan sintesis MTA ditunjukkan oleh keberadaan mineral trikalsium silikat ( $\text{Ca}_3\text{SiO}_5$ ), dikalsium silikat ( $\text{Ca}_2\text{SiO}_4$ ), dan trikalsium aluminat ( $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6$ ) oleh data FTIR, XRD, XRF dan SEM-EDX. Keberhasilan modifikasi MTA dengan ZnO diketahui dari kemunculan karakteristik puncak ZnO dan seng silikat ( $\text{Zn}_2\text{SiO}_4$ ) pada data XRD. MTA dari bahan komersial (kMTA) dan MTA dari bahan alam (nMTA) yang dimodifikasi dengan ZnO 10% dan dihidrasi dengan larutan kitosan 4% meningkatkan nilai kuat tekan masing-masing menjadi 28,29 MPa (naik 61,4%) dan 35,75 MPa (naik 103%) setelah 14 hari hidrasi. Penggunaan larutan kitosan 4% untuk hidrasi memperkecil celah antarmuka dentin-MTA. Hasil uji radiopasitas nMTA yang dimodifikasi ZnO 10% dan kitosan 4% (nMTA-Zn10/Ch4) memenuhi standard ISO sebagai material endodontik. Uji antibakteri nMTA-Zn10/Ch4 menunjukkan zona hambat sebesar  $11,19 \pm 0,43$  mm (kategori kuat) dan  $8,89 \pm 0,92$  mm (kategori sedang) masing-masing terhadap *P. aeruginosa* dan *E. faecalis*. Berdasarkan nilai  $\text{IC}_{50}$  ( $1170\text{ }\mu\text{g/mL}$ ), nMTA-Zn10/Ch4 tergolong pada material yang bersifat nontoksik.

**Kata kunci:** mineral trioksida agregat, silika,  $\text{CaCO}_3$ , kitosan, ZnO, antibakteri.

## MODIFICATION OF MINERAL TRIOXIDE AGGREGATE FROM RICE HUSK ASH SILICA AND EGGSHELL CALCIUM CARBONATE WITH ZnO AND CHITOSAN AS CANDIDATE ENDODONTIC MATERIAL

Mariyam

20/468185/SPA/00751

### ABSTRACT

Mineral trioxide aggregate (MTA) is a hydrophilic powder consisting of tricalcium silicate ( $\text{Ca}_3\text{SiO}_5$ ), dicalcium silicate ( $\text{Ca}_2\text{SiO}_4$ ), and tricalcium aluminate ( $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6$ ). While MTA exhibits biocompatibility, it is associated with certain limitations, including high cost, low sealing and antibacterial properties, and the formation of pores during the hydration process, which can adversely affect the cement's hardness. This research investigated the synthesis of MTA and its modification with ZnO and chitosan. MTA was synthesized using pure commercial precursors as well as natural materials, specifically eggshells as a source of precipitated calcium carbonate and silica derived from rice husk ash. The modification of MTA with zinc oxide (ZnO) was carried out by varying the weight-to-weight (w/w) composition of ZnO ( $x = 5\%$ ,  $10\%$ , and  $15\%$ ) and  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  ( $18-x\%$ ). The proportions of the other components were maintained constant with  $60\%$  CaO,  $20\%$   $\text{SiO}_2$ , and  $2\%$   $\text{Al}_2\text{O}_3$ . The modification was conducted simultaneously with the synthesis of MTA via the sol-gel method, followed by calcination at  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  for 3 hours. The liquid phase used for MTA hydration was a chitosan solution with concentrations of  $2\%$ ,  $4\%$ , and  $6\%$ . The properties of hydrated materials were evaluated, including the dentin-MTA interface, mechanical strength, radiopacity, setting time,  $\text{Ca}^{2+}$  and  $\text{Zn}^{2+}$  ion release, pH, weight loss, antibacterial properties, and cytotoxicity.

The successful synthesis of MTA was confirmed by the formation of  $\text{Ca}_3\text{SiO}_5$ ,  $\text{Ca}_2\text{SiO}_4$ , and  $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6$  phases confirmed by FTIR, XRD, XRF dan SEM-EDX data. The effective modification of MTA with ZnO was verified by the appearance of ZnO and zinc silicate ( $\text{Zn}_2\text{SiO}_4$ ) in the XRD data. MTA synthesized from commercial precursors (kMTA) and natural materials (nMTA) modified with  $10\%$  ZnO and hydrated with  $4\%$  chitosan exhibited increased compressive strength values of  $28.29\text{ MPa}$  (a  $61.4\%$  increase) and  $35.75\text{ MPa}$  (a  $103\%$  increase), respectively, after 14 days of hydration. Hydration with a  $4\%$  chitosan solution reduced dentin-MTA gap formation. The radiopacity test results of nMTA modified with  $10\%$  ZnO and  $4\%$  chitosan (nMTA-Zn10/Ch4) complied with ISO standards for an endodontic material. The antibacterial activity of nMTA-Zn10/Ch4 showed an inhibition zone of  $11.19\pm 0.43\text{ mm}$  (strong) and  $8.89\pm 0.92\text{ mm}$  (medium) against *P. aeruginosa* and *E. faecalis*, respectively. Based on the  $\text{IC}_{50}$  value ( $1169.77\text{ }\mu\text{g/mL}$ ), nMTA-Zn10/Ch4 is a non-toxic material.

Keywords: mineral trioxide aggregate, silica,  $\text{CaCO}_3$ , chitosan, ZnO, antibacterial.