BAB IV

HASIL DAN PEMBAHASAN

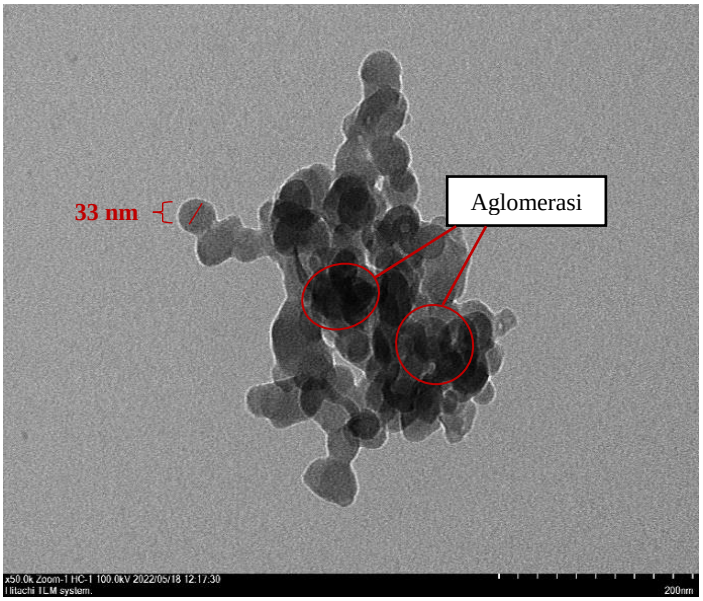
4.1 Hasil Penelitian

4.1.1 Hasil determinasi sekam padi

Proses determinasi sekam padi pada penelitian ini dilakukan di Laboratorium Lingkungan, Fakultas Biologi, Universitas Jenderal Soedirman. Pada uji ini, identitas sampel yang digunakan adalah tanaman padi dengan parameter yaitu determinasi tumbuhan makroskopis. Bagian tanaman padi yang digunakan untuk uji meliputi satu tanaman utuh yang terdiri dari akar, batang, daun dan biji padi. Hasil determinasi menunjukkan bahwa tanaman yang digunakan pada penelitian ini adalah tanaman padi dengan taksonomi yaitu famili *Poaceae*, genus *Oryza*, dan spesies *Oryza sativa* L dengan referensi Sp.P1. 1: 333 (1753).

4.1.2 Hasil Uji *Transmission Electron Microscope* (TEM)

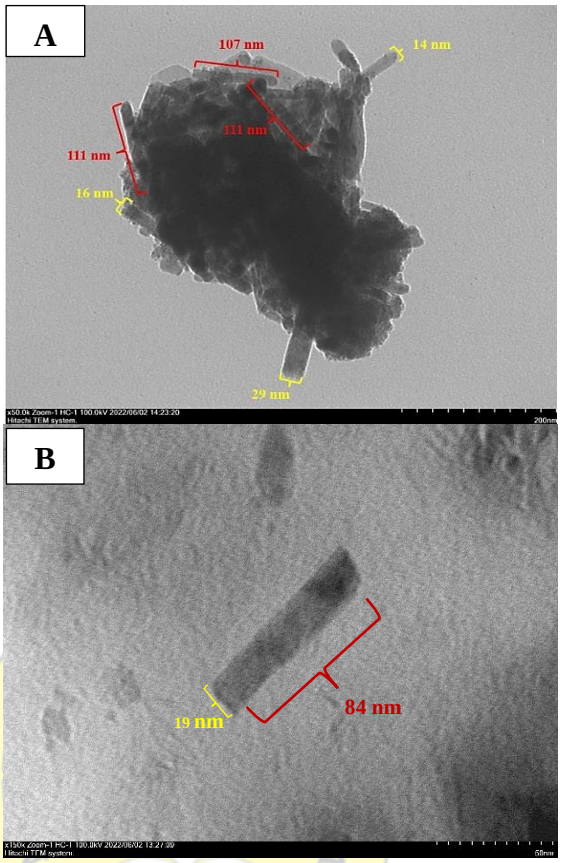
Uji karakterisasi *Transmission Electron Microscope* (TEM) nanoselulosa sekam padi (*O. sativa* L.) pada penelitian ini dilakukan di Lembaga Pusat Penelitian Nanosains dan Nanoteknologi (LPNN) Institut Teknologi Bandung menggunakan alat TEM HT7700. Uji karakterisasi TEM dilakukan untuk mengetahui morfologi bentuk dan ukuran partikel nanoselulosa sekam padi (*O. sativa* L.) yang telah berhasil diisolasi dalam ukuran nanometer (nm). Pada penelitian ini, uji TEM dilakukan sebanyak dua kali. Hasil uji karakterisasi TEM nanoselulosa pertama dapat dilihat pada Gambar 4.1 berikut:



Gambar 4.1 Hasil uji TEM nanoselulosa yang pertama perbesaran 50.000x dengan skala 200 nm.

Hasil karakterisasi TEM nanoselulosa yang pertama menunjukkan morfologi bentuk partikel nanoselulosa sekam padi (*O. sativa* L.) adalah *spherical* atau bulat yang saling menyatu, memanjang *(nanosphere)* dan cenderung mengalami aglomerasi. Ukuran partikel nanoselulosa diukur menggunakan *software imageJ*. Perbesaran yang digunakan adalah 50.000x dengan skala 200 nm. Pengukuran diameter *nanosphere* ditandai dengan warna merah pada gambar 4.1. Berdasarkan hasil pengukuran tersebut didapatkan bahwa nanoselulosa sekam padi (*O. sativa* L.) yang diperoleh pertama kali memiliki diameter partikel mulai dari 29 nm hingga 36 nm dengan diameter rata-rata adalah 33 nm. Lingkaran merah pada Gambar 4.1 menunjukkan agglomerasi *nanosphere* yang terjadi pada nanoselulosa yang telah diisolasi pertama kali. Nanopartikel bentuk ini bukanlah nanopartikel yang diinginkan dan digunakan pada penelitian.

Hasil uji karakterisasi TEM nanoselulosa yang kedua dapat dilihat pada Gambar 4.2 berikut:



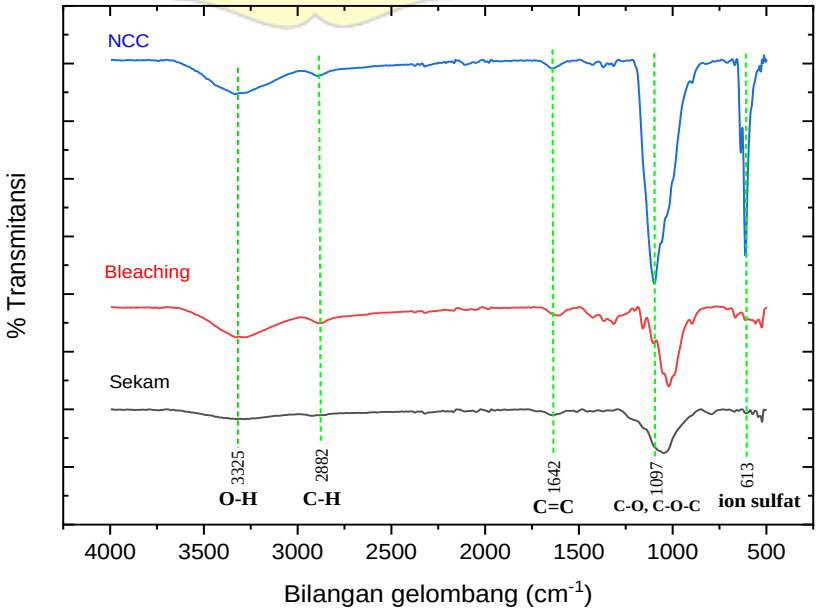
Gambar 4.2 Hasil uji TEM nanoselulosa yang kedua (A) nanoselulosa *whisker* perbesaran 50.000x dengan skala 200 nm, (B) nanoselulosa *whisker* perbesaran 150.000x dengan skala 50 nm.

Hasil karakterisasi TEM yang kedua menunjukkan morfologi bentuk partikel nanoselulosa sekam padi (*O. sativa* L.) yang diperoleh berbentuk *whisker* atau sepeti batang pendek atau jarum *(nanowhisker)*. Partikel nanoselulosa diukur menggunakan *software imageJ* dengan perbesaran mulai dari 50.000x hingga 150.000x. Pengukuran panjang dan lebar *nanowhisker* pada Gambar 4.2 ditandai dengan warna merah yang menunjukkan panjang dan warna kuning menunjukkan lebar. Berdasarkan hasil pengukuran tersebut didapatkan bahwa nanoselulosa sekam padi (*O. sativa* L.) yang kedua memiliki panjang 84-303 nm

dengan rerata 126 nm dan lebar 14-31 nm dengan rerata 16 nm. Nanoselulosa yang digunakan pada penelitian ini adalah nanoselulosa berbentuk *whisker*. *Nanowhisker* juga dikenal dengan nama lain nanocrystallin cellulose (NCC).

4.1.3 Hasil Uji *Fourier Transform Infrared* (FTIR)

Uji karakterisasi FTIR dilakukan di Laboratorium Kimia Analisis, FMIPA, Institut Teknologi Bandung menggunakan alat FTIR *Prestige* 21 *Shimadzu*. Uji FTIR dilakukan pada tiga sampel yaitu bubuk sekam padi (sekam), *bleaching* II selulosa (*bleaching)*, dan nanoselulosa kristalin hasil isolasi (NCC). Uji karakterisasi FTIR dilakukan untuk melihat gugus fungsi kimia yang terdapat pada sampel yang diuji. Hasil uji FTIR diolah menggunakan *software Origin 22*. Spektrum yang diperoleh tersebut diamati, diidentifikasi dan dibandingkan dengan melihat puncak negatif dari spektrum hasil FTIR. Hasil uji dapat dilihat pada Gambar 4.3.



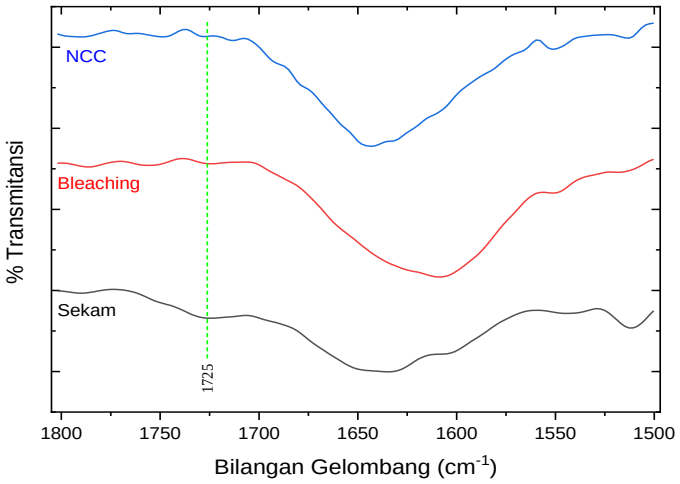
Gambar 4.3 Plot hasil analisis FTIR nanoselulosa.

Nilai puncak negatif spektrum yang diperoleh pada penelitian dicocokkan dengan nilai acuan daerah serapan gugus fungsi FTIR pada Tabel 4.1 sehingga dapat ditentukan gugus fungsi kimia dari sampel yang diuji.

Tabel 4.1 Nilai Puncak Uji Karakterisasi FTIR

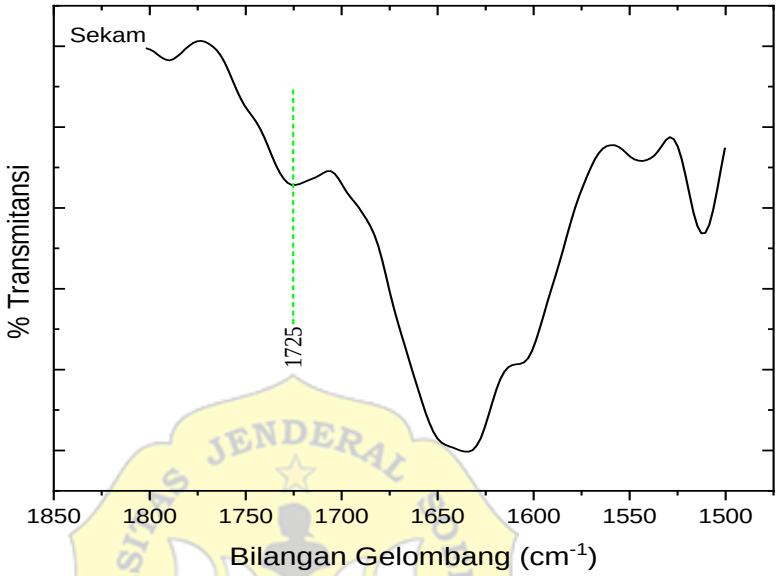
No	Deskripsi	Puncak serapan (cm^{-1})	
		Nanoselulosa Sekam padi	**Referensi Nandiyanto, *et al.*, 2019**
1.	O-H di gugus fungsi hidroksil	3325	3570-3200
2.	C-H di gugus alkil	2882	2970-2880
3.	C=C di gugus alkena	1642	1680-1620
4.	C-O di gugus hidroksil dan C-O-C di gugus eter	1097	1140-1070
5.	Ion sulfat	613	680-610

Spektrum pada Gambar 4.3 dilakukan perbesaran pada bilangan gelombang antara 1800-1500 cm^{-1}. Hal ini bertujuan untuk memerlihatkan puncak negatif yang dimiliki spektrum nanoselulosa sekam padi, *bleaching* sekam padi dan sekam padi pada bilangan gelombang 1725 cm^{-1}.



Gambar 4.4 Perbesaran plot hasil analisis FTIR

Berdasarkan Gambar 4.4, dilakukan pemfokusan spektrum milik sekam padi. Pemfokusan ini bertujuan untuk memperjelas adanya puncak negatif yang dimiliki oleh spektrum sekam padi pada bilangan gelombang 1725 cm^{-1} yang terlihat pada Gambar 4.5 berikut:



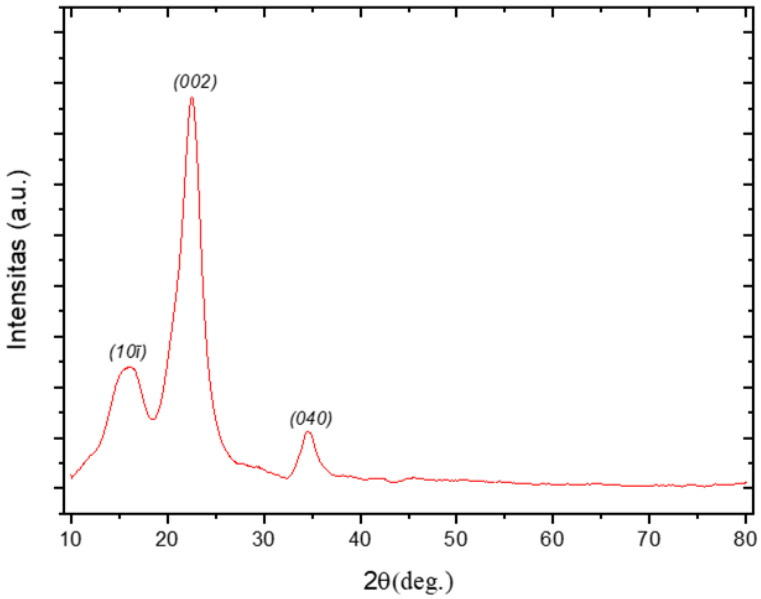
Gambar 4.5 Plot hasil analisis FTIR sekam padi

4.1.4 Hasil Uji *X-Ray Diffraction* (XRD)

Uji karakterisasi *X-Ray Difraction* (XRD) dilakukan di Laboratorium Logam, Fakultas Teknik Mesin dan Dirgantara, Institusi Teknologi Bandung. Uji XRD ini dilakukan untuk mengetahui indeks kristalinitas dari nanoselulosa sekam padi yang diperoleh. Pada penelitian ini didapatkan indeks kristalinitas nanoselulosa sekam padi sebanyak 63,56% yang dihitung menggunakan metode kalkulasi luas menggunakan fungsi distribusi Chaucy dan Gaussian.

Difraktogram kristal nanoselulosa dibuat menggunakan *software Origin 2022* dan didapatkan gambaran seperti pada Gambar 4.6 yang menunjukkan bahwa terdapat tiga titik puncak tertinggi. Puncak

pertama dimulai pada 16,19°, lalu puncak tertinggi ditunjukkan pada 22, 51° dan puncak terendah ditunjukkan pada 34,56°. Puncak-puncak tersebut menunjukkan bahwa nanoselulosa yang berhasil diisolasi memiliki struktur kristal selulosa tipe I (Nugraha et al., 2021). Selulosa tipe I memiliki bidang kristal (10$\bar{1}$), (002), dan (040) dengan refleksi pada 2θ yaitu 16,6°, 22,5°, dan 34,7° (Nilsson, 2017).

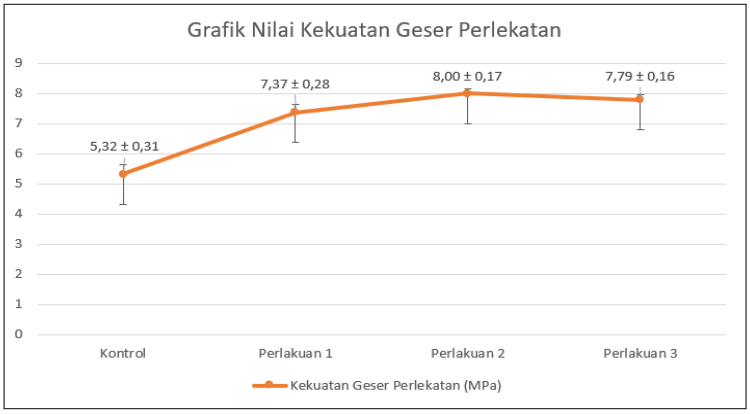


Gambar 4.6 Difraktogram nanoselulosa

4.1.5 Hasil uji kekuatan geser perlekatan dan analisis data

Penelitian mengenai pengaruh penambahan nanoselulosa sekam padi (*O. sativa* L.) terhadap kekuatan geser perlekatan *Glass Ionomer Cement* konvensional pada permukaan dentin telah selesai dilaksanakan. Sampel yang digunakan yaitu restorasi GIC sesuai variabel bebas dan diaplikasikan pada 32 gigi premolar pertama rahang bawah. Uji ini dilakukan di Laboratorium Bahan Teknik, Departemen Teknik Mesin Sekolah Vokasi, Universitas Gadjah Mada. Alat yang digunakan adalah *Universal Testing Machine* (UTM).

Berdasarkan uji yang telah dilakukan, didapatkan hasil akhir berupa data dari gaya yang dihasilkan dengan satuan Newton (N). Data tersebut selanjutnya diolah menggunakan rumus kekuatan geser perlekatan. Nilai rata-rata dan standar deviasi dari uji kekuatan geser perlekatan yang diperoleh dapat dilihat pada Gambar 4.7 berikut:



Gambar 4.7 Nilai rata-rata dan standar deviasi uji kekuatan geser perlekatan

Berdasarkan data pada Gambar 4.7, nilai kekuatan geser perlekatan dengan nilai rata-rata tertinggi terdapat pada Kelompok P2 (nanoselulosa 1%) yaitu sebesar 8,00 $\pm$ 0,17 MPa dan nilai rata-rata terendah terdapat pada Kelompok Kontrol (tanpa penambahan nanoselulosa) yaitu sebesar 5,32 $\pm$ 0,31 MPa. Penambahan nanoselulosa sekam padi dengan konsentrasi 0,5%, 1%, dan 1,5% dapat meningkatkan kekuatan geser perlekatan GIC konvensional.

Data dari nilai kekuatan geser perlekatan yang diperoleh selanjutnya dilakukan analisa menggunakan *software Statistical Product and Service Solusitions* 25 (SPSS 25). Tahapan analisis data diawali dengan uji normalitas menggunakan *Shapiro Wilk* dikarenakan jumlah sampel yang digunakan kurang dari 50 yaitu sebanyak 32 sampel. Derajat kepercayaan yang digunakan yaitu 95%. Hasil uji

normalitas menunjukkan bahwa Kelompok Kontrol, Kelompok P1, Kelompok P2, dan Kelompok P3 masing-masing sebesar 0,928; 0,962; 0,947; dan 0,904. Hasil uji yang didapatkan adalah nilai (p>0,05) pada seluruh kelompok yang menunjukkan bahwa data yang diperoleh terdistribusi normal (Lampiran 6).

Pengujian selanjutnya adalah uji homogenitas menggunakan *Levene's test*. Hasil yang didapatkan dari uji homogenitas data penelitian ini adalah p>0,05 yaitu 0,109 yang menandakan bahwa data yang diperoleh adalah homogen (Lampiran 6). Data yang telah terdistribusi normal dan juga homogen selanjutnya dilakukan analisis statistik parametrik menggunakan uji *One-way ANOVA* yang dapat dilihat pada tabel 4.2 berikut:

Tabel 4.2 Hasil Uji One-way ANOVA Nilai Kekuatan Geser Perlekatan

No.	Kelompok Sampel	Jumlah Sampel	F_{hitung}	Nilai p
1.	Kontrol	8	27,563	0,000*
2.	P1	8		
3.	P2	8		
4.	P3	8		

Keterangan:
*p<0,05 = terdapat perbedaan
F_{tabel} = 2,95

Hasil uji One-way ANOVA menunjukkan bahwa nilai F hitung lebih besar daripada F tabel (27,563 > 2,95) dan nilai p<0,05 yaitu 0,000 sehingga dapat disimpulkan bahwa terdapat perbedaan yang bermakna antar kelompok. Data dilanjutkan dengan uji *Post Hoc* menggunakan *Least Significant Difference* (LSD) untuk mengetahui kelompok dengan perbedaan bermakna. Hasil Uji *Post Hoc* LSD dapat dilihat pada Tabel 4.3 berikut:

Tabel 4.3 Hasil Uji *Post Hoc* LSD Nilai Kekuatan Geser Perlekatan

Kelompok Sampel	Kontrol	P1	P2	P3
Kontrol		0,000*	0,000*	0,000*
P1			0,000*	0,002*
P2				0,096
P3				

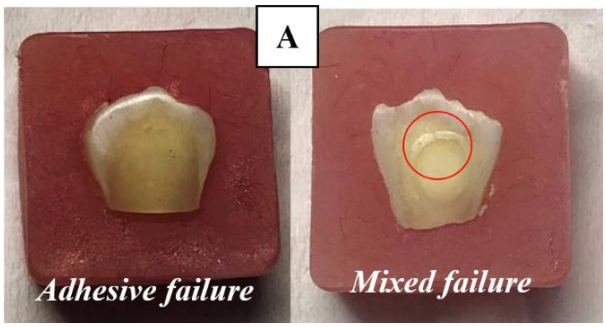
Keterangan:
P1: Kelompok perlakuan konsentrasi 0,5%
P2: Kelompok perlakuan konsentrasi 1%
P3: Kelompok perlakuan konsentrasi 1,5%
*= Terdapat perbedaan yang signifikan (p<0,05) antar kelompok

Hasil uji *Post Hoc* LSD menunjukkan bahwa terdapat perbedaan yang signifikan (p<0,05) antara Kelompok Kontrol dengan Kelompok P1 dengan nilai p yaitu 0,000, Kelompok Kontrol dengan Kelompok P2 dengan nilai p yaitu 0,000, Kelompok Kontrol dengan Kelompok P3 dengan nilai p yaitu 0,000, Kelompok P1 dengan Kelompok P2 dengan nilai p yaitu 0,000, Kelompok P1 dengan Kelompok P3 dengan nilai p yaitu 0,002. Selain itu, hasil uji *Post Hoc* LSD juga menunjukkan bahwa tidak terdapat perbedaan yang signifikan antara Kelompok P2 dengan Kelompok P3 karena nilai p>0,05 yaitu 0,096.

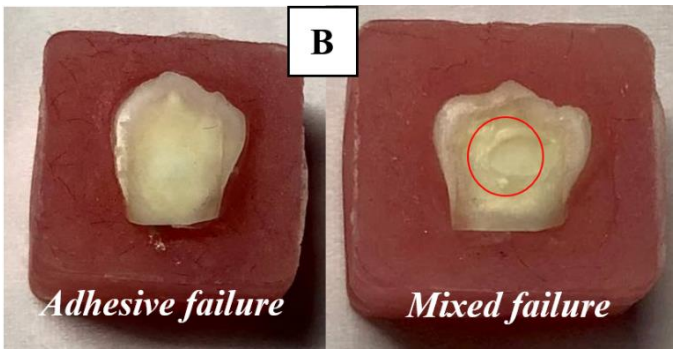
Seluruh sampel setelah pengujian kekuatan geser selanjutnya dilakukan analisis mode kegagalan/*failure modes* dari perlekatan GIC. Mode kegagalan dinilai secara subjektif oleh peneliti yang mengacu pada penelitian yang dilakukan oleh Sharafeddin et al. (2020). Model kegagalan dinilai dari hasil foto sampel sesaat setelah dilakukan uji kekuatan geser perlekatan dan selanjutnya ditentukan mode kegalalan yang terjadi apakah *adhesive failure*, *cohesive failure* atau *mixed failure*. A*dhesive failure* terjadi jika tidak ditemukannya sisa GIC yang menempel pada permukaan dentin setelah dilakukannya uji kekuatan

geser perlekatan. *Cohesive failure* terjadi jika ditemukan cukup banyak sisa GIC yang menempel pada permukaan dentin setelah dilakukannya uji kekuatan geser perlekatan. *Mixed failure* terjadi jika ditemukan sedikit sisa GIC yang menempel pada permukaan dentin setelah dilakukannya uji kekuatan geser perlekatan.

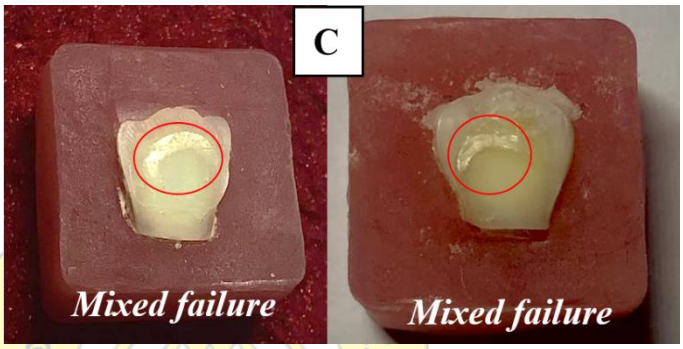
Pada penelitian ini terdapat dua jenis mode kegagalan yang terjadi yaitu *adhesive failure* dan *mixed failure*. Setiap kelompok penelitian terdiri dari 8 sampel. Mode kegagalan pada kelompok kontrol menunjukkan 6 sampel mengalami *adhesive failure* dan 2 sampel mengalami *mixed failure*. Kelompok P1 menunjukkan 2 sampel mengalami *adhesive failure* dan 6 sampel mengalami *mixed failure.* Kelompok P2 menunjukkan seluruh sampel mengalami *mixed failure.* Kelompok P3 menunjukkan 3 sampel mengalami *adhesive failure* dan 5 sampel mengalami *mixed failure*. Gambaran mode kegagalan tiap kelompok dapat dilihat pada Gambar dibawah ini dan selengkapnya pada Lampiran 8.



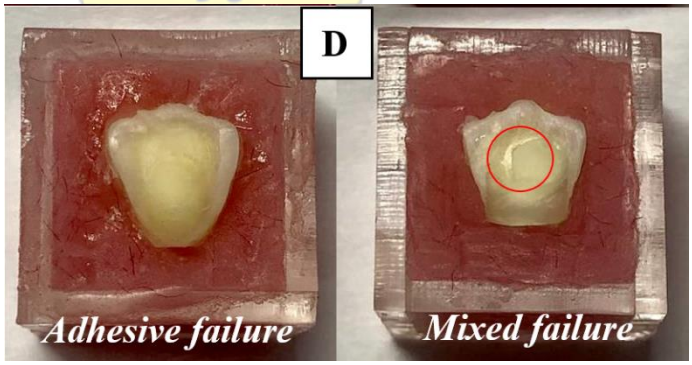
Gambar 4.8 Mode kegagalan *adhesive failure* (tidak terlihat sisa GIC menemel pada permukaan dentin) dan *mixed failure* (tersisa sedikit GIC pada permukaan dentin) milik kelompok kontrol. Lingkaran merah menunjukkan sisa GIC yang masih menempel pada dentin



Gambar 4.9 Mode kegagalan *adhesive failure* (tidak terlihat sisa GIC menemel pada permukaan dentin) dan *mixed failure* (tersisa sedikit GIC pada permukaan dentin) milik kelompok P1. Lingkaran merah menunjukkan sisa GIC yang masih menempel pada dentin



Gambar 4.10 Mode kegagalan *mixed failure* (tersisa sedikit GIC pada permukaan dentin) milik kelompok P2. Lingkaran merah menunjukkan sisa GIC yang masih menempel pada dentin



Gambar 4.11 Mode kegagalan *adhesive failure* (tidak terlihat sisa GIC menemel pada permukaan dentin) dan *mixed failure* (tersisa sedikit GIC pada permukaan dentin) milik kelompok P3

4.2 Pembahasan

Berdasarkan hasil uji TEM yang pertama pada Gambar 4.1 menunjukkan hasil isolasi nanoselulosa sekam padi yang pertama berbentuk *spherical (nanosphere). Nanosphere* bukanlah jenis nanoselulosa yang diinginkan dalam penelitian ini sehingga dilakukan isolasi nanoselulosa sekam padi yang kedua. Hasil isolasi nanoselulosa yang kedua dilakukan uji TEM kembali seperti pada Gambar 4.2 dan menunjukkan gambaran nanoselulosa berbentuk seperti batang pendek atau jarum yang biasa disebut *nanowhisker*. Hal ini sesuai dengan pendapat Nasir et al. (2017) yang menyatakan bahwa nanoselulosa *whisker* dapat diperoleh menggunakan metode hidrolisis asam. Nanoselulosa yang digunakan pada penelitian ini adalah *nanowhisker* dengan ukuran nanoselulosa yang diperoleh yaitu panjang partikel 84-303 nm dan lebar partikel 14-31 nm. Hal ini sejalan dengan penelitian Thomas et al. (2018) yang menyatakan bahwa nanoselulosa berbentuk *whisker* atau yang juga dikenal dengan *nanocellulose crystallin* (NCC) memiliki dimensi panjang yang berkisar 50-500 nm dan lebar yang berkisar antara 3-50 nm.

Pada Gambar 4.1 dan 4.2 juga terlihat *nanosphere* maupun *nanowhisker* yang diperoleh cenderung mengalami aglomerasi. Aglomerasi/penggumpalan pada nanopartikel umumnya terjadi karena adanya gaya Van der Waals antara nanopartikel yang ada (Lani et al., 2014). Aglomerasi pada nanopartikel dapat diminimalisir dengan dilakukannya ultrasonikasi. Pada penelitian ini, nanoselulosa telah dilakukan ultrasonikasi namun memang tidak dapat mencegah

terbentuknya aglomerasi. Hal ini didukung oleh penelitian yang dilakukan oleh Othman et al. (2012) dimana aglomerasi yang terbentuk pada nanopartikel yang telah diultrasonikasi jumlahnya lebih sedikit dibandingkan nanopartikel yang tidak dilakukan ultrasonikasi. Pada penelitian Othman et al. (2012) juga dibahas adanya penambahan bahan lain yang dapat mengurangi aglomerasi jauh lebih banyak namun tetap tidak bisa menghilangkan agglomerasi sepenuhnya.

Isolasi nanoselulosa pada penelitian ini dilakukan menggunakan metode hidrolisis asam dan diperoleh nanoselulosa berbentuk nano*sphere* dan nano*whisker*. Menurut Romruen et al. (2022) bentuk morfologi nanoselulosa dapat dilihat setelah limbah sekam padi melalui proses hidrolisis asam untuk menghilangkan komponen amorf dan menghasilkan struktur dengan indeks kristalinitas yang tinggi. Proses hidrolisis asam dapat menghasilkan nanoselulosa dengan berbagai morfologi seperti *spherical* maupun *whisker*. Perbedaan morfologi yang dihasilkan dapat disebabkan oleh perbedaan suhu yang digunakan saat melakukan proses isolasi nanoselulosa.

Menurut Mardina et al. (2014) terdapat beberapa variabel yang memengaruhi reaksi hidrolisis asam, salah satunya adalah suhu. Suhu dapat memengaruhi kecepatan reaksi mengikuti persamaan Arhenius dimana semakin tinggi suhu, semakin cepat jalannya reaksi. Kecepatan reaksi hidrolisis akan meningkat hampir 2 kali untuk setiap kenaikan suhu 10°C. Pada isolasi nanoselulosa pertama diduga adanya sedikit kesalahan pada peneliti dalam pengelolaan suhu sehingga suhu larutan meningkat

dan mampu menyebabkan kecepatan reaksi yang berlebihan. Akibatnya, senyawa asam tidak hanya melibatkan bagian amorf dalam reaksinya tetapi juga melibatkan sebagian kristalin sehingga menghasilkan nanoselulosa *spherical*.

Uji FTIR dilakukan pada tiga sampel yaitu bubuk sekam padi (sekam), *bleaching* II (*bleaching*), dan nanoselulosa kristalin hasil isolasi (NCC). Berdasarkan Gambar 4.3, seluruh sampel memiliki puncak negatif atau dearah serapan disekitar bilangan gelombang 3325 cm^{-1}, 2882 cm^{-1}, 1642 cm^{-1} dan 1097 cm^{-1}. Pada Tabel 4.1 terlihat daerah serapan pada bilangan gelombang 3325 cm^{-1} yang menunjukkan adanya ikatan O-H pada gugus fungsi hidroksil. Daerah serapan pada bilangan gelombang 2882 cm^{-1} menunjukkan adanya ikatan C-H dari gugus alkil. Daerah serapan bilangan gelombang 1097 cm^{-1} menunjukkan ikatan C-O pada gugus hidroksil dan C-O-C pada gugus eter. Hal ini sejalan dengan penelitian yang dilakukan oleh Lu dan Hsieh (2012) dimana selulosa merupakan struktur yang memiliki gugus fungsi yang khas yaitu O-H, C-H, C-O dan C-O-C. Menurut Razali et al. (2017) hidrolisis asam tidak memengaruhi struktur kimia dari selulosa. Hal ini menunjukkan bahwa kelompok kimia dari material yang dihasilkan (nanoselulosa) stabil dan tidak terjadi reaksi kimia yang kuat. Hal yang sama juga diungkapkan oleh Hartati et al. (2019) yaitu hidrolisis asam melibatkan reaksi esterifikasi gugus hidroksil selulosa dengan ion sulfat pada permukaan selulosa sehingga suspensi kristal stabil tanpa mengubah gugus fungsi selulosa.

Seluruh difraktogram sampel memiliki ikatan C=C pada gugus fungsi alkena dengan daerah serapan di bilangan gelombang 1642 cm^{-1}. Alkena merupakan gugus fungsi yang umum ditemukan pada polimer dan nanoselulosa merupakan polimer yang berasal dari alam. Ikatan ion sulfat ditemukan hanya pada spektrum sampel nanoselulosa (NCC) yaitu pada bilangan gelombang 613 $cm^{-1.}$ Ditemukannya ion sulfat ini sesuai dengan penelitian (Gu et al., 2013b) yang menyatakan bahwa ion sulfat merupakan hasil dari reaksi kimia hidrolisis asam menggunakan asam sulfat (H_2SO_4) untuk mengisolasi nanoselulosa (NCC) dari sekam padi dalam penelitian ini.

Menurut Lu dan Hsieh (2012) dan Islam et al. (2017) pada bilangan gelombang sekitar 1700 cm^{-1} dan 1729 cm^{-1} terdapat daerah serapan yang menunjukkan gugus fungsi karboksil aldehid yang dimiliki oleh lignin dan hemiselulosa. Gambar 4.4 menunjukkan perbesaran spektrum ketiga sampel dengan rentang bilangan gelombang 1800-1500 cm^{-1}. Pada bilangan gelombang sekitar 1700 cm^{-1} khususnya spektrum milik sampel sekam padi (sekam) ditemukan puncak negatif pada bilangan gelombang 1725 cm^{-1}. Puncak negatif tersebut menunjukkan adanya kandungan lignin dan hemiselulosa yang dimiliki oleh sekam padi. Puncak negatif kian melandai pada spektrum hasil *bleaching* (*bleaching*) dan nanoselulosa (NCC) yang menunjukkan bahwa nanoselulosa yang dihasilkan sudah tidak mengandung lignin dan hemiselulosa. Gambaran puncak negatif yang lebih jelas dimiliki oleh spektrum sekam padi (sekam) dapat dilihat pada Gambar 4.5. Hal ini sejalan dengan pendapat Razali et al. (2017)

yaitu tidak ada gugus fungsi pada bilangan gelombang 1650-1740 cm^{-1} menunjukkan isolasi nanoselulosa bebas dari zat pengotor.

Berdasarkan perhitungan indeks kristalinitas menggunakan fungsi distribusi Chaucy dan Gaussian didapatkan indeks kristalinitas nanoselulosa sekam padi adalah sebesar 63,56%. Hasil uji XRD ini sesuai dengan penelitian yang dilakukan (Evelyna et al., 2019) dimana indeks kristalinitas selulosa berada pada kisaran 54-88%. Indeks kristalinitas yang diperoleh termasuk cukup tinggi, hal ini dipengaruhi oleh terdapatnya struktur nanoselulosa berupa *whisker* yang berukuran pendek (kristalinitas lebih tinggi pada struktur nano-*whisker* pendek).

Pola difraksi XRD dapat digunakan untuk menentukan struktur kristal dengan cara melihat puncak difraksi pada pola XRD (Nilsson, 2017). Pada penelitan ini, diperoleh gambaran XRD pada Gambar 4.4, dimana terdapat tiga puncak tertinggi yang menunjukkan kristalinitasnya. Puncak pertama dimulai pada $2\theta = 16{,}19^{o}$ yang merupakan puncak difraksi terendah, lalu puncak tertinggi ditunjukkan pada $2\theta = 34{,}56^{o}$ dan bergeser pada $2\theta = 22{,}51^{o}$. Ketiga titik puncak tersebut menunjukkan bidang kristal ($10\bar{1}$), (002), dan (040). Tiga titik puncak difraksi berkisar $16{,}19^{o}$-$34{,}56^{o}$, hal ini menunjukkan kesesuaian angka difraksi nanoselulosa dari penelitian Nilsson (2017) dimana hasil XRD nanoselulosa berkisar antara $12{,}3^{o}$-$34{,}7^{o}$. Hasil tersebut juga sejalan dengan pendapat Hartati et al. (2019) yaitu pola difraktogram untuk kristal selulosa tipe I berada pada 2θ dengan nilai 15°, 16°, $22{,}5^{o}$, dan 34°. Selulosa tipe I merupakan selulosa yang secara umum ditemukan pada selulosa yang berasal dari sumber

natural (Nugraha et al., 2021). Selulosa tipe 1 memiliki sel unit berupa monoklinik ataupun triklinik (Nilsson, 2017).

Hasil uji kekuatan geser perlekatan pada penelitian tercantum pada Tabel 4.2. Nilai dari tabel tersebut menunjukkan kelompok GIC dengan penambahan nanoselulosa sekam padi konsentrasi 0,5% (P1), 1% (P2) dan 1,5% (P3) mengalami peningkatan kekuatan geser perlekatan dibandingkan kelompok yang tidak diberi penambahan nanoselulosa (kontrol). Nilai tertinggi diperoleh kelompok P2 dengan rerata nilai sebesar 8,00 ± 0,17 Mpa. Nilai terendah dimiliki oleh kelompok kontrol sebesar 5,32 ± 0,31 Mpa. Nilai tersebut sudah mencapai standar kekuatan geser perlekatan GIC II.a (GIC Fuji II GC) berdasarkan penelitian yang dilakukan oleh Kumari dan Singh, (2022) dimana rerata nilai kekuatan geser perlekatan GIC Fuji II terhadap dentin adalah 5,15 ± 1,22 MPa. Menurut Sidhu dan Nicholson (2016), GIC konvensional mampu berikatan dengan gigi melalui ikatan kimia yang terbentuk antara gugus karboksilat milik asam poliakrilat (GIC) dengan ion kalsium milik kristal apatit (gigi) yang terjadi pada fase gelasi atau *cross-linking* (reaksi *setting* GIC).

Hasil uji kekuatan geser perlekatan pada kelompok P1, yaitu kelompok GIC dengan penambahan nanselulosa sekam padi 0,5% menunjukkan peningkatan kekuatan geser perlekatan hingga mencapai 7,37 ± 0,10 MPa. Nilai ini lebih tinggi dibandingkan dengan kelompok kontrol, namun lebih rendah jika dibandingkan dengan kelompok P2 dan kelompok P3. Hasil uji post hoc LSD pada Tabel 4.4 menunjukkan terdapat perbedaan yang signifikan antara kelompok P1 terhadap

kelompok kontrol, kelompok P2 dan kelompok P3. Hal ini sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Bo et al. (2013) dimana penambahan nanoselulosa kristalin dalam jumlah sedikit sudah mampu meningkatkan kekuatan geser perlekatan GIC.

Menurut Moradian et al. (2021) nanoselulosa kristalin mampu mengisi ruang kosong antar partikel *glass* GIC. Nanoselulosa berinteraksi dengan baik terhadap matriks GIC dan tidak mengganggu fluiditas matriks maupun waktu *setting*. Nanoselulosa kristalin yang sangat tipis, berskala nano dan berbentuk seperti jarum mendukung distribusi nanopartikel yang baik ke dalam matriks GIC (Silva et al., 2016).

Menurut Fatriasari et al. (2019) nanoselulosa memiliki luas permukaan yang tinggi serta *aspect ratio* mencapai > 100, hal ini sangat bermanfaat untuk aplikasi dalam bidang nanokomposit yang membutuhkan peningkatan kekuatan dan ketangguhan. Luas permukaan yang tinggi membuat nanopartikel mudah untuk berinteraksi dengan unsur lain. Pada level struktur nano, gugus fungsi hidroksil pada permukaan selulosa semakin terekspos yang membuatnya semakin bersifat hidrofilik dan gugus fungsi reaktif hidroksil dapat dimodifikasi untuk aplikasi lebih lanjut. Dentin gigi memiliki kandungan air dan komponen organik lebih tinggi dibandingkan enamel dan menyebabkan dentin bersifat lembab, sehingga suatu material harus bersifat hidrofilik agar mampu berikatan baik dengan dentin (Tanjung et al., 2019). Sifat hidrofilik yang sama-sama dimiliki oleh nanoselulosa dan dentin menunjukkan bahwa kedua bahan tersebut mampu berinteraksi dan berikatan secara baik

Nanoselulosa kristalin memiliki gugus hidroksil yang mampu berikatan secara kimia dengan ion kalsium yang terdapat pada kristal apatit dentin gigi (Moradian et al., 2021). Hal ini menunjukkan bahwa adanya ikatan yang terbentuk antara nanoseluloa dengan dentin gigi. Nanoselulosa juga membentuk ikatan hidrogen dengan gugus hidroksil milik partikel glass (*powder* GIC) dan gugus karboksil milik asam poliakrilat (*liquid* GIC) (Silva et al., 2019). Berdasarkan hasil FTIR, nanoselulosa juga mengandung sedikit ion sulfat (SO_4^{2-}) yang bermuatan negatif (Gu et al., 2013). Ion sulfat bermuatan negatif ini juga diperkirakan mampu berinteraksi secara elektrostatik dengan ion positif powder GIC dan kristal apatit gigi sehingga mampu menambah perlekatan antara nanoselulosa terhadap GIC dan terhadap gigi. Berdasarkan penjelasan diatas dapat disimpulkan bahwa dengan adanya penambahan nanoselulosa kristalin kedalam GIC, terdapat beberapa ikatan yang terbentuk yaitu ikatan nanoselulosa-dentin, nanoselulosa-GIC dan GIC-dentin. Ikatan-ikatan tersebut menimbulkan perlekatan yang lebih baik antara GIC dengan nanoselulosa terhadap dentin gigi sehingga menghasilkan nilai kekuatan geser perlekatan yang lebih tinggi dibandingkan kelompok kontrol.

Pada kelompok P2, yaitu GIC dengan penambahan nanoselulosa sekam padi 1% menunjukkan nilai rerata kekuatan geser perlekatan sebesar 8,00 ± 0,06 MPa. Kelompok ini memiliki nilai paling tinggi dibandingkan dengan kelompok kontrol, kelompok P1 dan kelompok P3. Hasil uji post hoc LSD pada Tabel 4.4 menunjukkan terdapat perbedaan yang signifikan antara kelompok P2 terhadap kelompok kontrol dan

kelompok P1 namun tidak terdapat perbedaan yang signifikan terhadap kelompok P3. Nilai ini memperlihatkan bahwa penambahan nanoselulosa sebesar 1% merupakan konsentrasi nanoselulosa yang ideal sehingga didapatkan kekuatan geser perlekatan yang optimum dibandingkan dengan penambahan nanoselulosa 0,5% dan 1,5%. Hal ini sejalan dengan hasil penelitian yang diperoleh Bo et al. (2013) dimana penambahan 1% nanoselulosa kristalin kayu putih ke dalam GIC menghasilkan nilai kekuatan geser perlekatan paling tinggi dibandingkan penambahan nanoselulosa konsentrasi 0,5% dan 1,5%.

Menurut Dwifulqi et al. (2021) konsentrasi yang tepat dapat memberikan interaksi yang ideal antara kristal dengan matrix GIC selama bereaksi. Bo et al. (2013) juga menyatakan bahwa dibutuhkannya konsentrasi nanoselulosa yang ideal untuk mendapatkan peningkatan kekuatan geser perlekatan yang maksimal. Nilai paling tinggi yang diperoleh kelompok P2 menunjukkan bahwa konsentrasi nanokristal yang digunakan mungkin telah memberikan interaksi yang ideal antara nanokristalin dengan matriks GIC selama terjadinya reaksi kimia yang berefek pada ikatan yang lebih kuat. Pada penelitian ini jumlah nanoselulosa yang ditambahkan sama dengan jumlah *liquid* GIC yang dikurangkan agar tetap menjaga rasio yang sesuai antara *liquid* dan *powder* GIC. Penambahan nanoselulosa 1% menyebabkan jumlah *liquid* GIC yang dikurangkan juga tidak terlalu banyak dan diduga terbentuknya konsentrasi yang ideal antara nanoselulosa, *liquid* dan *powder* GIC untuk saling bereaksi.

Pada kelompok P3, yaitu GIC dengan penambahan nanoselulosa sekam padi 1,5% menunjukkan nilai rerata kekuatan geser perlekatan mencapai 7,79 ± 0,06 MPa. Nilai ini lebih tinggi jika dibandingkan dengan kelompok kontrol dan kelompok P1 namun lebih rendah jika dibandingkan dengan kelompok P2. Hasil uji post hoc LSD pada Tabel 4.4 menunjukkan terdapat perbedaan yang signifikan antara kelompok P3 terhadap kelompok Kontrol dan terhadap kelompok P1 namun tidak terdapat perbedaan yang signifikan terhadap kelompok P2.

Menurut Silva et al. (2016) penambahan serat nanoselulosa dengan konsentrasi diatas 1% dapat menyebabkan kegagalan mekanis akibat agregasi nanopartikel. Agregasi ataupun aglomerasi pada nanopartikel dapat mengurangi potensi suatu nanopartikel dalam meningkatan sifat mekanik bahan karena berkurangnya *interfacial area* yang terbentuk (Ashraf et al., 2018). Rezvani et al. (2019) juga menyatakan bahwa komposisi dari bahan restorasi dapat mempengaruhi kekuatan ikatan bahan tersebut. Beberapa penelitian telah menunjukkan bahwa penambahan nanopartikel kedalam GIC dapat membatasi reaksi asam-basa GIC sehingga mengganggu ikatan kimia yang terbentuk. Penambahan *filler* dalam jumlah besar dapat memengaruhi kekuatan ikatan GIC terhadap struktur gigi.

Nanoselulosa sekam padi dengan konsentrasi 1,5% dalam bentuk *gel* yang ditambahkan kedalam *liquid* GIC memiliki konsentrasi yang cukup besar. Besarnya konsentrasi tersebut menyebabkan jumlah *liquid* yang dikurangi juga cukup besar sehingga tidak terbentuknya proporsi

yang ideal antara *liquid* GIC dengan *powder* GIC dan berdampak kepada ikatan yang terbentuk. Menurut Moradian et al. (2021) berdasarkan instruksi ISO 9917-1:2007, setiap perubahan dalam rasio *liquid* terhadap *powder* dari GIC dapat memengaruhi sifat klinis akhir dari bahan, sehingga menemukan proporsi optimal dalam penambahan nanoselulosa kristalin ke GIC sangat penting. Jumlah *liquid* GIC yang berkurang menyebabkan kandungan asam poliakrilat juga berkurang.

Asam poliakrilat merupakan kunci utama dalam reaksi GIC dimana unsur ini akan berikatan dengan partikel GIC, dentin gigi dan nanoselulosa. Kurangnya asam poliakrilat menyebabkan menurunnya jumlah ikatan yang akan terbentuk antara *powder-liquid* GIC, GIC-dentin dan GIC-nanoselulosa. Ikatan yang terbentuk menjadi tidak optimal dan dapat menyebabkan terjadinya penurunan nilai kekuatan geser perlekatan.

Tidak terdapatnya perbedaan yang signifikan antara nilai kelompok P2 dan P3 menunjukkan bahwa penambahan nanoselulosa konsentrasi 1,5% tidak memberikan pengaruh yang berarti terhadap kekuatan geser perlekatan jika dibandingkan dengan kelompok P2. Berdasarkan keseluruhan nilai kekuatan geser perlekatan yang didapatkan peneliti, hasil ini menunjukkan bahwa diantara penambahan nanoselulosa sekam padi konsentrasi 0,5%, 1% dan 1,5% kedalam GIC, konsentrasi 1% menunjukkan nilai kekuatan geser perlekatan yang paling baik.

Mode kegagalan / *failure modes* kekuatan geser perlekatan antara GIC dengan permukaan dentin pada penelitian ini dinilai secara subjektif oleh peneliti dengan mengacu pada jurnal yang ditulis oleh Sharafeddin et

al. (2020). Penilaian dilakukan dengan melihat gambaran GIC yang masih menempel pada permukaan dentin setelah dilakukan uji kekuatan geser. Gambaran tersebut diambil menggunakan kamera biasa sehingga gambaran mode kegagalan yang diperoleh kurang jelas. Mode kegagalan dapat terlihat lebih jelas jika dilihat menggunakan *stereomicroscope* seperti yang digunakan oleh Sharafeddin et al. (2020).

Berdasarkan analisis mode kegagalan / *failure modes* perlekatan GIC, kelompok kontrol tanpa penambahan nanoselulosa dominan mengalami *adhesive failure* dan ketiga kelompok perlakuan penambahan nanoselulosa dominan mengalami *mixed failure*. Hal ini sejalan dengan pendapat Hara et al. (2001) yang menyatakan bahwa semakin tinggi nilai kekuatan ikatan maka semakin sedikit persentase terjadinya *adhesive failure*. *Adhesive failure* yang mendominasi pada kelompok kontrol dapat terjadi karena lemahnya gaya adhesi yang terjadi antara partikel GIC dengan partikel dentin. Menurut Sharafeddin et al. (2020), *adhesive failure* pada GIC terjadi karena ikatan perekat (gaya adhesi) yang dimiliki GIC relatif lemah terhadap kekuatan GIC sehingga terjadi kegagalan perlekatan pada interface GIC dan gigi.

Mixed failure yang mendominasi hampir seluruh sampel kelompok perlakuan dapat terjadi karena adanya partikel nanoselulosa pada GIC yang mampu menambah gaya adhesi yang terbentuk antara GIC dengan dentin. Hasil *failure mode* ini sejalan dengan hasil uji kekuatan geser perlekatan yang diperoleh dimana kelompok perlakuan mengalami peningkatan dibandingkan kelompok kontrol. *Mixed failure* yang

mendominasi pada kelompok perlakuan dapat menunjukkan bahwa terjadi peningkatan perlekatan antara GIC yang diberi nanoselulosa terhadap dentin gigi dibandingkan GIC tanpa penambahan nanoselulosa dengan gigi.

Penelitian mengenai penambahan nanoselulosa sekam padi (*O. sativa* L.) kedalam GIC konvensional sejauh ini baru dilakukan untuk melihat pengaruhnya terhadap sifat mekanis. Kekuatan mekanis yang telah diuji sejauh ini adalah kekuatan tekan (Kartikarini, 2022), uji kekerasan (Bagjana, 2022) dan uji kekuatan geser perlekatan terhadap permukaan dentin. Penggunaan GIC konvensional yang ditambahkan nanoselulosa sebagai bahan restorasi klinis, masih perlu dilakukan uji lebih lanjut. Uji tersebut diperlukan untuk data tambahan dalam menunjang persyaratan GIC konvensional yang ditambahkan nanoselulosa sekam padi layak untuk diaplikasikan secara klinis. Uji mekanis yang dapat dilakukan selanjutnya antara lain adalah uji *elastic modulus* dan *diametral tensile strength.*

4.3 Keterbatasan Penelitian

Keterbatasan dalam penelitian ini antara lain yaitu tidak dilakukannya uji *Scanning Elctron Microscope* (SEM) sehingga tidak terlihat perlekatan partikel GIC yang diberi nanoselulosa pada dentin gigi. Keterbatasan penelitian lainnya adalah gambaran mode kegagalan / *failure modes* yang diperoleh kurang jelas sehingga diperlukan alat yang lebih canggih untuk mendapatkan gambaran yang lebih jelas.