

PENGARUH PENAMBAHAN PALADIUM TERHADAP PERILAKU THERMAL AMALGAM TEMBAGA TINGGI TIPE *LATHE CUT*

Ellyza Herda *)

*) Bagian Ilmu Material Kedokteran Gigi, Fakultas Kedokteran Gigi Universitas Indonesia

Ellyza Herda : Efek Penambahan Palladium terhadap sifat thermal amalgam tembaga tinggi tipe lathe cut.. Jurnal Kedokteran Gigi Universitas Indonesia 2002; 9(2) : 39 - 42

Abstract

Effects of adding 1 percent (w/o) palladium (Pd) on the thermal behavior of a lathe cut type high copper amalgam (13 w/o copper) were studied. The identical alloys, with and without 1 % Pd were fabricated. X-ray diffraction studies of the amalgams revealed the elimination of the γ_2 -phase by Pd addition. DSC thermogram of non-Pd containing amalgam indicated the existence of two γ_1 -phases one with the transition temperature (endothermic peak) at 88°C and the other at 109°C. The thermogram data of the Pd containing amalgam showed an endothermic peak at 110,7°C. The transition temperature of the n phase of the palladium containing amalgam is 4,9°C lower than the transition temperature of the n phase of the non Pd containing amalgam. This result indicates that the n phase of the Pd containing amalgam includes more of Tin (Sn) than the non-Pd containing amalgam. The thermogravimetri diagram showed that the phase decomposition occurred at about 390°C for the non-Pd containing amalgam and at about 410°C for the Pd containing amalgam. It's concluded that the addition of 1 % Pd into a lathe cut type of high copper amalgam (13 %) could eliminate the formation of γ_2 phase as well as an unstable γ_1 phase, promoting strong mercury bonding to Silver.

Pendahuluan

Amalgam adalah suatu paduan antara merkuri dengan metal atau paduan lain. Konvensional amalgam, atau lebih dikenal dengan sebutan amalgam tembaga rendah, dapat dihasilkan dari pencampuran antara merkuri dengan suatu paduan yang mempunyai komposisi $\pm 70\%$ perak (Ag), $\pm 27\%$ timah (Sn), dan $\pm 5\%$ tembaga (Cu). Amalgam yang di hasilkannya mengandung fasa-fasa γ_1 (Ag_2Hg_3) yang merupakan matriks dari amalgam, n (Ag_3Sn) yaitu sisa partikel yang tidak bereaksi, dan γ_2 (Sn_7Hg). Fasa γ_2 ini merupakan fasa yang paling lemah dan mudah terserang korosi. Pada sekitar tahun 1960 ditetapkan bahwa dengan meningkatkan kandungan tembaga di

dalam paduan amalgam dapat menghasilkan amalgam yang mempunyai sifat-sifat klinik yang lebih baik. Amalgam tembaga tinggi di dapat dengan cara mencampur merkuri dengan paduan amalgam yang mempunyai komposisi 40-60% Ag, $\pm 27\%$ Sn, dan 13-30%Cu. Fasa-fasa yang di dapat dari hasil pencampuran ini yaitu γ_1 , γ_2 dan n (Cu_6Sn_3). Dengan meningkatnya kadar tembaga maka dalam amalgam tidak terbentuk fasa γ_2 , melainkan terbentuk fasa n yaitu fasa yang lebih tahan terhadap korosi. Beberapa metal, seperti misalnya palladium, Indium dan emas dapat ditambahkan ke dalam paduan amalgam dalam jumlah kecil untuk lebih meningkatkan sifat-sifat mekanik ataupun daya tahan korosinya. Pada saat ini amalgam yang banyak dipakai di kedokteran

gigi adalah amalgam tembaga tinggi^{1,2}.

Amalgam tembaga tinggi bila ditinjau dari bentuk partikel paduannya dapat dibagi menjadi tiga yaitu : *lathe cut*, *spherical*, dan campuran antara kedua bentuk tersebut. Pada penelitian ini yang dipakai adalah amalgam tembaga tinggi dengan bentuk partikel *lathe cut*.

Setiap fasa di dalam struktur amalgam memiliki sifat yang berbeda dalam hal kekuatan, kekerasan, maupun daya tahan korosinya. Sisa partikel yang tidak bereaksi, γ_2 adalah fasa yang paling kuat. Sedangkan fasa n yang tertanam didalam matriks maupun pada inter- γ_1 granular γ_1 dapat meningkatkan sifat mekanik (menurunkan creep) dan daya tahan korosi dari amalgam. Greener dkk³ melaporkan bahwa amalgam

menyimpan sampel dalam suhu 37°C selama 24 jam. Setelah itu, sampel dimasukkan ke dalam alat difraksi sinar-X dengan menggunakan sumber sinar $\text{CuK}\alpha$ dengan panjang gelombang $1,5418 \text{ \AA}$. Kecepatan scanning adalah $2\theta/\text{menit}$. Perilaku panas dilakukan dengan menggunakan Differential Scanning Calorimetry (DSC-50) dan Thermogravimetry (TG-50). Pemanasan dilakukan dalam rentang $25-200^{\circ}\text{C}$ dengan kecepatan pemanasan adalah $10^{\circ}\text{C}/\text{menit}$.

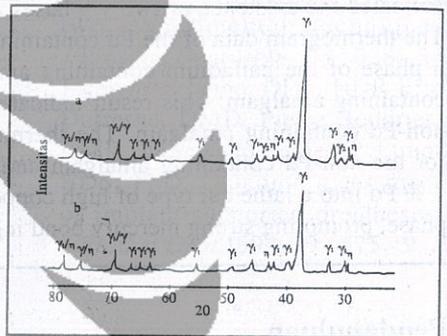
Hasil dan Pembahasan

Pola difraksi sinar-X dari amalgam 1 dan 2 ditunjukkan pada Gambar-1. Pola difraksi dari amalgam 1 menunjukkan bahwa amalgam 1 mengandung fasa γ_1 , γ_2 , dan n . Amalgam 2 menunjukkan fasa γ_1 , γ_2 , dan n . Menyatakan bahwa difraksi yang tinggi yang berkisar 13% masih terdapat pada partikel yang juga ditunjukkan pada Gambar 1a). Menyatakan bahwa bentuk pada difraksi sinar-X dari amalgam 1 dan 2 menunjukkan bentuk partikel yang mengandung palladium dan merkuri juga mengandung 1% Pd. Menyatakan bahwa difraksi yang tinggi (13%) mencegah difraksi sinar-X (Gambar-1b). Diffraksi sinar-X dari amalgam 1 dan 2 ditunjukkan pada Gambar-2a dan Gambar-2b. Diffraksi sinar-X dari amalgam 1 dan 2 menunjukkan puncak endotermik pada temperatur 88°C dan 109°C yang menunjukkan adanya 2 macam struktur kristal. Menyatakan bahwa difraksi sinar-X dari amalgam 1 dan 2 menunjukkan adanya fasa γ_1 dan γ_2 yang larut dalam merkuri. Menyatakan bahwa difraksi sinar-X dari amalgam 1 dan 2 menunjukkan adanya fasa γ_1 dan γ_2 yang larut dalam merkuri.

menyimpan sampel dalam suhu 37°C selama 24 jam. Setelah itu, sampel dimasukkan ke dalam alat difraksi sinar-X dengan menggunakan sumber sinar $\text{CuK}\alpha$ dengan panjang gelombang $1,5418 \text{ \AA}$. Kecepatan scanning adalah $2\theta/\text{menit}$. Perilaku panas dilakukan dengan menggunakan Differential Scanning Calorimetry (DSC-50) dan Thermogravimetry (TG-50). Pemanasan dilakukan dalam rentang $25-200^{\circ}\text{C}$ dengan kecepatan pemanasan adalah $10^{\circ}\text{C}/\text{menit}$.

Pola difraksi sinar-X dari amalgam 1 dan 2 ditunjukkan pada Gambar-1. Pola difraksi dari amalgam 1 menunjukkan bahwa amalgam 1 mengandung fasa γ_1 , γ_2 , dan n . Amalgam 2 menunjukkan fasa γ_1 , γ_2 , dan n . Menyatakan bahwa difraksi yang tinggi yang berkisar 13% masih terdapat pada partikel yang juga ditunjukkan pada Gambar 1a). Menyatakan bahwa bentuk pada difraksi sinar-X dari amalgam 1 dan 2 menunjukkan bentuk partikel yang mengandung palladium dan merkuri juga mengandung 1% Pd. Menyatakan bahwa difraksi yang tinggi (13%) mencegah difraksi sinar-X (Gambar-1b). Diffraksi sinar-X dari amalgam 1 dan 2 ditunjukkan pada Gambar-2a dan Gambar-2b. Diffraksi sinar-X dari amalgam 1 dan 2 menunjukkan puncak endotermik pada temperatur 88°C dan 109°C yang menunjukkan adanya 2 macam struktur kristal. Menyatakan bahwa difraksi sinar-X dari amalgam 1 dan 2 menunjukkan adanya fasa γ_1 dan γ_2 yang larut dalam merkuri. Menyatakan bahwa difraksi sinar-X dari amalgam 1 dan 2 menunjukkan adanya fasa γ_1 dan γ_2 yang larut dalam merkuri.

suhu 127°C ⁷⁻¹¹. Studi lain menunjukkan bahwa amalgam yang mengandung fasa γ_2 memberikan puncak endotermik pada temperatur $\pm 80^{\circ}\text{C}$ dan hal ini berhubungan dengan terjadinya pelelehan dari fasa γ_2 (Sn_7Hg) dan fasa γ_1 berturut-turut¹². Namun dari literatur dan diagram fasa Sn-Hg dapat diketahui bahwa fasa γ_2 mengalami transisi pada temperatur $\pm 214^{\circ}\text{C}$ ¹³. Dari hasil studi analisa termal yang dilakukan oleh Sarkar¹⁴, dilaporkan bahwa puncak endotermik pada temperatur $\pm 80,7^{\circ}\text{C}$ disebabkan karena terjadinya transformasi fasa yang tumpang tindih, dan hal ini menunjukkan adanya fasa γ_2 dan fasa γ_1 . Fasa γ_2 adalah suatu pre-sipitat intergranular Sn-Hg yang mempunyai temperatur transisi peritekt-



Gambar 1. Pola difraksi dari : (a) amalgam 1 dan (b) amalgam 2.

ik pada $\pm 90^{\circ}\text{C}$ ¹⁰⁻¹⁴ dan dinyatakan juga bahwa sulit untuk membedakan antara fasa γ_2 dan fasa d_2 bila menggunakan teknik difraksi sinar-X. Sehingga intensitas fasa γ_2 juga merupakan intensitas fasa d_2 . Dengan demikian puncak endotermik pada temperatur 88°C pada amalgam 1 menunjukkan adanya transisi dari fasa γ_2 dan fasa γ_1 yang mengandung Sn lebih besar dibandingkan dengan fasa γ_1 yang mempunyai temperatur transisi pada 109°C . Termogram DSC dari amalgam 2 (Gambar-2b) menunjukkan adanya puncak endotermik pada temperatur $110,7^{\circ}$ dan 183°C .

Pada amalgam 2 terlihat bahwa penambahan 1% Pd dapat menyebabkan distribusi Sn yang lebih homogen sehingga hanya terbentuk satu macam fasa γ_1 dengan temperatur transisi yang lebih tinggi dan lebih stabil dibandingkan dengan amalgam tanpa Pd.

Adanya pelebaran puncak pada termogram amalgam 2, mungkin disebabkan karena adanya gradien konsentrasi Sn di dalam fasa γ_1 . Hasil penelitian ini juga menunjukkan bahwa kemungkinan besar palladium berada pada fasa γ_1 dan membentuk fasa Pd-Sn. Hasil penelitian ini konsisten dengan hasil penelitian Link dkk⁶ yang menyatakan bahwa Pd larut di dalam fasa γ_1 dan membentuk fasa Pd-Sn, sehingga dapat meningkatkan sifat-sifat mekanik dari amalgam yang mengandung palladium. Tidak terdeteksinya fasa Pd-Sn ataupun Pd-Hg dengan teknik difraksi sinar-x disebabkan karena jumlah fasa-fasa ini yang sangat kecil, selain intensitas fasa-fasa ini tumpang tindih dengan intensitas fasa-fasa yang biasa ada pada amalgam.

Puncak endotermik fasa n pada amalgam 1 terjadi pada temperatur 187,9°C dan 183°C untuk amalgam². Temperatur transisi fasa n pada amalgam 2 lebih rendah 4,9°C dari amalgam 1. Hal ini dapat dijelaskan bahwa fasa n merupakan fasa yang non-stoichiometry, dan bila ditinjau dari diagram fasa Cu-Sn maka fasa n mempunyai temperatur transisi pada $\pm 186^\circ\text{C}$ dan 189°C, tergantung jumlah Sn yang larut dalam fasa tersebut¹⁴. Hal ini berarti bahwa fasa n dalam amalgam 2 lebih banyak mengandung Sn dibandingkan dengan fasa n pada amalgam 1, sehingga temperatur transisi fasa n pada amalgam 2 lebih rendah dibandingkan dengan temperatur transisi fasa n amalgam 1. Dari Gambar-2 juga terlihat bahwa pembentukan fasa n pada amalgam 2 lebih sedikit dibandingkan fasa n di dalam amalgam 1. Hasil ini konsisten dengan hasil penelitian Lin dkk⁶ yang menyatakan bahwa

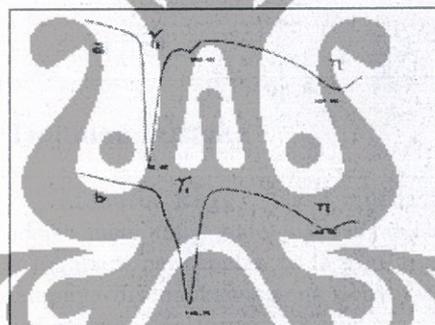
adanya palladium di dalam amalgam dapat menekan pembentukan fasa n . Hal ini lebih memperkuat bahwa palladium berada pada fasa γ_1 dan membentuk fasa Pd-Sn. Adanya fasa Pd-Sn menyebabkan fasa γ_1 lebih stabil.

Pada Gambar-3 diberikan hasil uji Termogravimetry (TG) dari amalgam 1 dan 2. Dapat dilihat bahwa pada amalgam 1 dekomposisi fasa terjadi pada temperatur 390°C (Gambar-3a). Sedangkan pada amalgam 2 dekomposisi fasa terjadi pada $\pm 410^\circ\text{C}$ (Gambar-3b). Hasil uji thermogravimetry membuktikan bahwa puncak endotermik yang terjadi baik pada amalgam 1 maupun amalgam 2 disebabkan karena transformasi fasa γ_1 menjadi fasa γ_1 (Ag-Hg). Fasa γ_1 mengalami dekomposisi pada temperatur $\pm 390^\circ\text{C}$ untuk amalgam 1, dan pada amalgam 2 terjadi temperatur $\pm 410^\circ\text{C}$. Pada saat dekomposisi fasa, terjadi kehilangan berat yang cukup besar didalam amalgam sebagai akibat menguapnya merkuri¹⁵. Dari

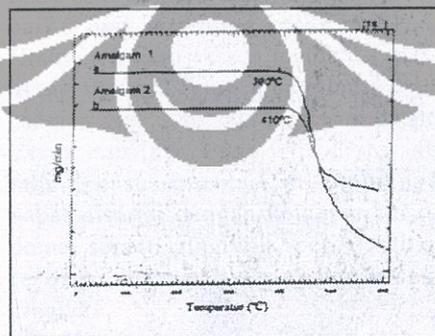
hasil uji thermogravimetry ini, terlihat bahwa amalgam 2 lebih stabil dari pada amalgam 1, dan terbukti bahwa merkuri di dalam amalgam terikat kuat dengan perak. Merkuri akan lepas pada temperatur yang jauh sangat tinggi dibandingkan dengan temperatur yang mungkin terjadi didalam mulut.

Daftar Pustaka

1. Ferracane JL. *Materials in Dentistry, Principles and Application*. 1st, Philadelphia: JB Lippincott Company. 1985 : 117 - 143.
2. Craig RG. *Restorative Dental Materials*. 9th ed. St. Louis : The CV. Mosby Co. 1993 : 214-241.
3. Greener EH, Chung KH and Chern Lin JH. Creep in a Palladium-enriched High Copper Amalgam. *Biomaterials* 1988; 9: 213-217.
4. Chung K. Effects of Palladium addition on Properties of Dental Amalgams. *Dent Mater* 1992; 8; 190-192.
5. Marshall SJ and Marshall BW. Time-Dependent Changes in Cu-Rich Amalgams. *J. Biomed. Mater. Res* 1979; 13: 395-406.
6. Lin JHC, Chung KH and Greener EH. Micro Structures of Admixed Amalgams Produced From Pd-containing Dispersants. *Dent. Mater* 1992; 8 : 85-88.
7. Marek M. The Effect of Tin on the Corrosion Behaviour of the Ag-Hg Phase of Dental Amalgam and Dissolution of Mercury. *J Dent Res* 1990; 69; 1786-1790.
8. Mahler DB, Adey JD, Microprobe Analysis of Three High Copper Amalgams. *J Dent Res* 1984; 63 : 921-925.
9. Mahler DB, Adey J and Fleming MA. Hg Emission from Dental Amalgam as Related to the Amount of Sn in The Ag-Hg (γ_1) Phase. *J Dent Res* 1994; 73: 1663-1668.



Gambar-2. Termogram DSC dari : (a) amalgam 1 dan (b) amalgam 2.



Gambar-3. Termogram TG dari : (a) amalgam 1 dan (b) amalgam 2.

10. Sarkar NK. Abstrak No 1382. *J Dent Res* 1992; 71.
11. Sarkar NK. The Matrix Phase of a Ductile Dental Amalgam. *J. Mat. Sci. Mater. Med* 1995; 6: 373-376.
12. El Hadary MS, Kamar A, Fayed A and El-Cady As. Identification of Mercury Containing Phases in Dental Amalgams by Differential Scanning Calorimeter. *J. Thermal Analysis* 1984; 29: 131-137.
13. Hansen M and Anderko K. *Constitution of Binary Alloys*. New York : Mc Graw Hill. 1985.
14. Sarkar NK. Mechanism of γ_2 formation in conventional Dental Amalgams. *J. Mater. Sci Mater. Med* 1995; 6: 552-556.
15. Omloo WPFAM, Schut hof J and Arends J. Thermal Analysis of Dental Amalgams. *J Dent Res* 1972; 51: 1552-1555.

Paper ini telah dipresentasikan pada pertemuan ilmiah dokter gigi dalam rangka HUT ke 33 LADOKGI TNI AL R.E.MARTADINATA, Jakarta 9-10 September 1997.

