

Pengaruh Komposisi Unsur Gadolinium (Gd) Terhadap Magnesium (Mg) Melalui *Casting* sebagai Bahan Dasar Implan: Kajian Literatur

Oknovia Susanti^{1*}, Jon Affi¹, Yuni Asrilia¹

¹Laboratorium Metalurgi, Jurusan Teknik Mesin, Universitas Andalas Padang, Indonesia
Kampus Limau Manis, Kota Padang, Sumatera Barat 25175

*Email: oknovia.s@eng.unand.ac.id

DOI: 10.25042/jpe.112020.12

Abstrak

Magnesium mempunyai potensi sebagai bahan dasar material implan karena sifat-sifatnya yang dibutuhkan oleh tulang manusia, seperti sifat biokompatibilitas, non-toksik dan mudah larut (degradabilitas). Unsur ini dibutuhkan oleh tubuh manusia sebanyak 375 Mg/hari yang disimpan pada jaringan tulang dan darah. Magnesium merupakan logam paling ringan yang memiliki massa jenis 1,738 gr/cm³ dengan modulus elastisitas 42 GPa yang sangat dekat dengan angka modulus elastisitas tulang manusia alami 10-40 GPa dan dapat terdegradasi melalui korosi yang terjadi pada cairan tubuh yang mengandung 0,9 wt% klorida. Magnesium murni memiliki laju korosi yang cukup tinggi, sehingga unsur ini perlu ditambahkan dengan unsur-unsur paduan yang dapat mengurangi laju korosi dan sekaligus dapat meningkatkan sifat mekaniknya. Salah satunya melalui penambahan unsur paduan tanah jarang yaitu gadolinium. Paduan magnesium dan gadolinium sebagai *biodegradable* material yang sudah ada pada saat ini banyak dibuat dengan metode *casting*. Oleh karena itu, perlunya membuat kajian literatur tentang paduan magnesium dan gadolinium dengan metode *casting* untuk mengetahui pengaruh penambahan unsur gadolinium ke paduan magnesium yang cocok untuk implan tulang pada tubuh manusia. Berdasarkan hasil kajian literatur dari pengaruh komposisi unsur gadolinium (Gd) terhadap paduan magnesium (Mg) pada proses *casting* untuk bahan dasar implan dapat diketahui bahwa penambahan Gd melebihi 10% akan semakin meningkatkan sifat mekanik dari paduan Mg-Gd dan komposisi yang cocok untuk implan *biodegradable* dapat disesuaikan tergantung kebutuhan dan standar kesehatan sebagai implan. Paduan Mg-Gd ini mempunyai TYS dan UTS dalam rentang yang luas dengan TYS 33 MPa-200 MPa dan UTS 78 MPa-250 MPa. Dan semakin banyak penambahan unsur gadolinium ke dalam magnesium, maka semakin kecil ukuran butirnya. Semakin kecil ukuran butir maka akan meningkatkan kekuatan dan kekerasan dari paduan Mg-Gd.

Abstract

Effect of the Elemental Composition of Gadolinium (Gd) on Magnesium (Mg) Through Casting as a Basic Material for Implants: A Literature Review. Magnesium has potential as an implant base material because of its properties required by human bones, such as biocompatibility, non-toxic and easily dissolved (degradability). This element is needed by the human body as much as 375 Mg / day which is stored in bone and blood tissue. Magnesium is the lightest metal which has a mass type of 1.738 gr / cm³ with a modulus of elasticity of 42 GPa which is very close to the modulus of elasticity of natural human bones 10-40 GPa and can be degraded through corrosion that occurs in body fluids containing 0.9 wt% chloride. Pure magnesium has a high corrosion rate, so there is no need to add alloying elements which can reduce the corrosion rate and at the same time improve its mechanical properties. One of them is through the addition of rare earth alloy elements, namely gadolinium. Currently, magnesium and gadolinium alloys as biodegradable materials are mostly made by casting methods. Therefore, it is necessary to make a literature review on alloys of magnesium and gadolinium by casting methods to see the effect of adding the element gadolinium to magnesium alloys suitable for bone implants in the human body. Based on the results of a literature review of the composition of the effect of the element gadolinium (Gd) on magnesium (Mg) alloys in the casting process for implant base materials, it can be seen that the addition of Gd more than 10% will increase the mechanical properties of the Mg-Gd alloy and a composition suitable for biodegradable implants can be adjusted depending on the needs and health standards as an implant. This Mg-Gd alloy has a wide range of TYS and UTS with TYS 33 MPa-200 MPa and UTS 78 MPa-250 MPa. And the more the element gadolinium is added to magnesium, the smaller the grain size. The smaller the grain size will increase the strength and hardness of the Mg-Gd alloy.

Kata Kunci: Biodegradable implants, magnesium alloy, pengecoran, unsur tanah jarang



1. Pendahuluan

Magnesium mempunyai potensi sebagai bahan dasar material implan karena sifat-sifatnya yang dibutuhkan oleh tulang manusia, seperti sifat biokompatibilitas, non-toksik, dan mudah larut (degradabilitas). Magnesium yang berlebih di dalam tubuh akan mudah dikeluarkan (diekskresikan). Unsur ini dibutuhkan oleh tubuh manusia sebanyak 375 Mg/hari yang disimpan pada jaringan tulang dan darah.

Magnesium merupakan logam paling ringan yang memiliki massa jenis $1,738 \text{ gr/cm}^3$ dengan modulus elastisitas 42 GPa yang sangat dekat dengan angka modulus elastisitas tulang manusia alami 10-40 GPa dan dapat terdegradasi melalui korosi yang terjadi pada cairan tubuh yang mengandung 0,9 wt% klorida [1].

Magnesium murni memiliki laju korosi yang cukup tinggi, sehingga unsur ini perlu ditambahkan dengan unsur-unsur paduan yang dapat mengurangi laju korosi dan sekaligus dapat meningkatkan sifat mekaniknya [2]. Dan pada saat sekarang ini unsur paduan yang mendapat perhatian adalah unsur gadolinium. Unsur ini mampu untuk memperbaiki sifat mekanik dan mampu memperlambat laju korosi. Paduan magnesium dan gadolinium sebagai *biodegradable* material yang sudah ada pada saat ini banyak dibuat dengan metode *casting* [3].

2. Hasil dan Pembahasan

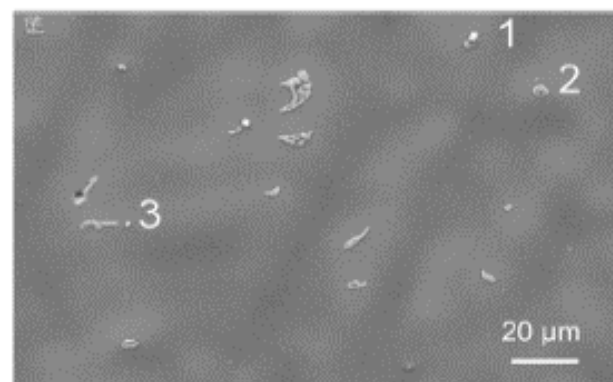
Hort, dkk. [3] telah melakukan penelitian tentang paduan magnesium dan unsur tanah jarang sebagai material implan. Paduan biner yang dilakukan mendapatkan hasil bahwa profil properti yang telah diselidiki lebih dekat dengan nilai-nilai tulang kortikal tulang manusia yang membuat paduan ini sangat cocok untuk bahan dasar implan. Untuk pengujian ini digunakan Mg-2% Gd, Mg-5% Gd, Mg-10% Gd dan Mg-15% Gd yang dilakukan dengan proses *casting*. Magnesium murni dilebur di dalam cawan baja ringan di bawah pelindung atmosfer ($\text{Ar}+2\% \text{SF}_6$).

Gadolinium ditambahkan pada saat temperatur leleh 750°C . Saat pelelehan, paduan diaduk selama 30 menit pada 200 rpm untuk mencegah Gd mengendap sebelum dilakukan

pengecoran. Setelah meleleh, paduan dituangkan ke dalam cetakan baja ringan pada temperatur 550°C agar menghasilkan *plate* (300 mm x 210 mm x 30 mm) yang digunakan untuk penelitian selanjutnya. Semua bahan diselidiki dalam kondisi *as-cast* (F), setelah *solutionizing* (T4) dan *artificial aging* (T6). Untuk T4 digunakan temperatur 525°C dan dianil selama 24 jam. Pada T6 digunakan temperatur 250°C selama 6 jam. Untuk mengetahui struktur mikro, semua bahan di *grinding*, dipoles dan dietsa.

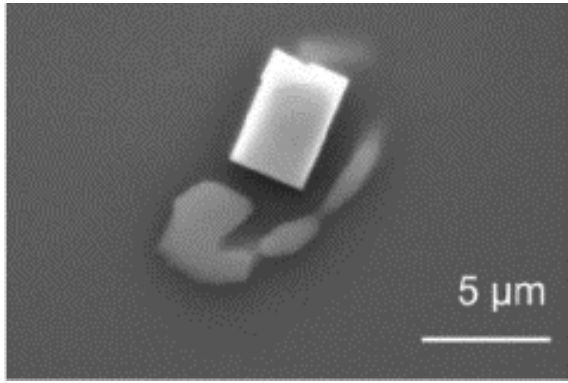
Mikrostruktur diselidiki menggunakan SEM (*Scanning Electron Microscope*) termasuk energi analisis X-ray dispersive (EDX) untuk menentukan komposisi kimia dari paduan dan TEM (*Transmission Electron Microscope*) dilakukan pada sampel foil tipis dari paduan Mg-Gd berbeda. Foil disiapkan dengan *electropolishing* menggunakan larutan 2,5% HClO_4 dan 95% metanol pada 50°C dan tegangan 50 V.

Untuk analisis komposisi kimia keseluruhan menggunakan ICPOES spektroskopi emisi optic plasma yang dipadukan secara induktif. Spesimennya dilarutkan dalam asam nitrat pekat. Ukuran butir ditentukan dengan menggunakan metode intersep garis. Untuk analisis fasa, pengukuran difraksi sinar X (XRD) dilakukan dengan menggunakan *Bruker D8 Advanc* (Bruker AXS, Jerman). Sampel diselidiki dalam balok paralel menggunakan radiasi $\text{Cu K}\alpha_1$ (panjang gelombang $k=0,15406 \text{ nm}$).



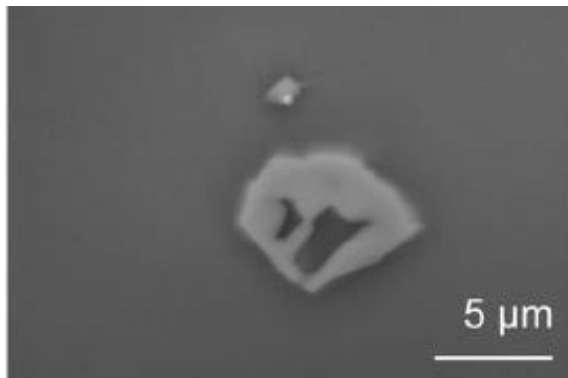
Gambar 1. Mikrograf SEM dari paduan Mg15Gd pada kondisi F (*as-cast*) [3]

Pada Gambar 1 dapat dilihat hasil pengujian SEM pada paduan Mg15Gd pada kondisi F (*as-cast*) yang mendapatkan 3 jenis partikel yang mengandung rata-rata 0,5% oksigen.



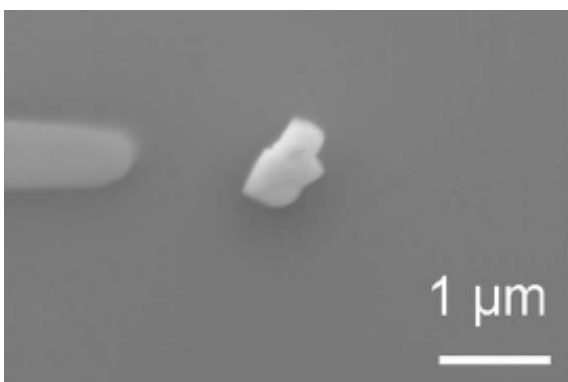
Gambar 2. Partikel 1(bentuk persegi panjang, putih) [3]

Pada Gambar 2 dapat dilihat bentuk partikel pertama yang ada pada paduan Mg15Gd. Partikel ini sangat banyak mengandung Gd 83,5%, Mg 13,4% dan oksigen 3,1%.



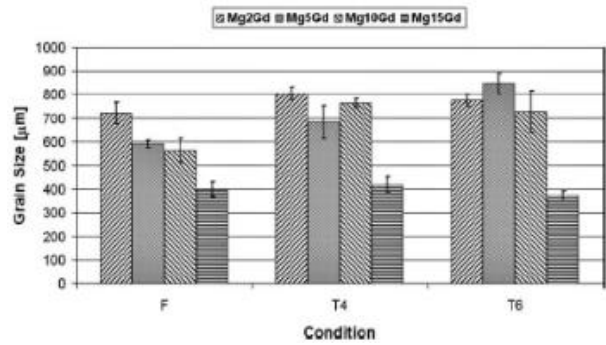
Gambar 3. Partikel 2 (grey) [3]

Pada Gambar 3 dapat dilihat bentuk dari partikel 2, partikel ini memiliki kandungan Mg 86,3%, Gd 12,7% dan oksigen 1%.



Gambar 4. Partikel 3 [3]

Pada Gambar 4 dapat dilihat bentuk dari partikel ketiga yang memiliki kandungan magnesium dan gadolinium yang hampir sama. Partikel jenis ini memiliki kandungan oksigen sebesar 12%.



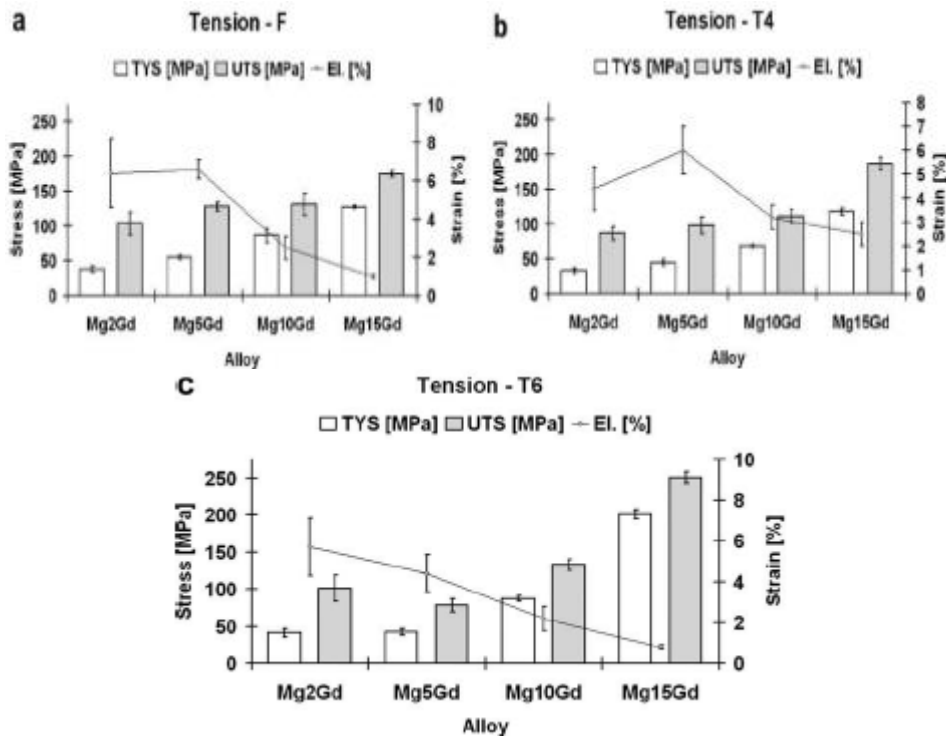
Gambar 5. Ukuran butir paduan Mg-Gd dengan beberapa perlakuan panas [3]

Pada Gambar 5 dapat dilihat ukuran butir pada paduan Mg-Gd dengan beberapa perlakuan panas. Dalam paduan Mg-Gd *as-cast* ukuran butir berkurang dengan adanya peningkatan gadolinium. Setelah diberikan perlakuan panas T6, ukuran butir meningkat terutama untuk paduan dengan kurang dari 10 wt% Gd. Sedangkan, untuk paduan 15 wt% Gd ukuran butir sangat stabil selama diberikan perlakuan panas. Ukuran butir dalam semua paduan cukup kasar karena laju pendinginan yang relatif lambat selama *casting*.

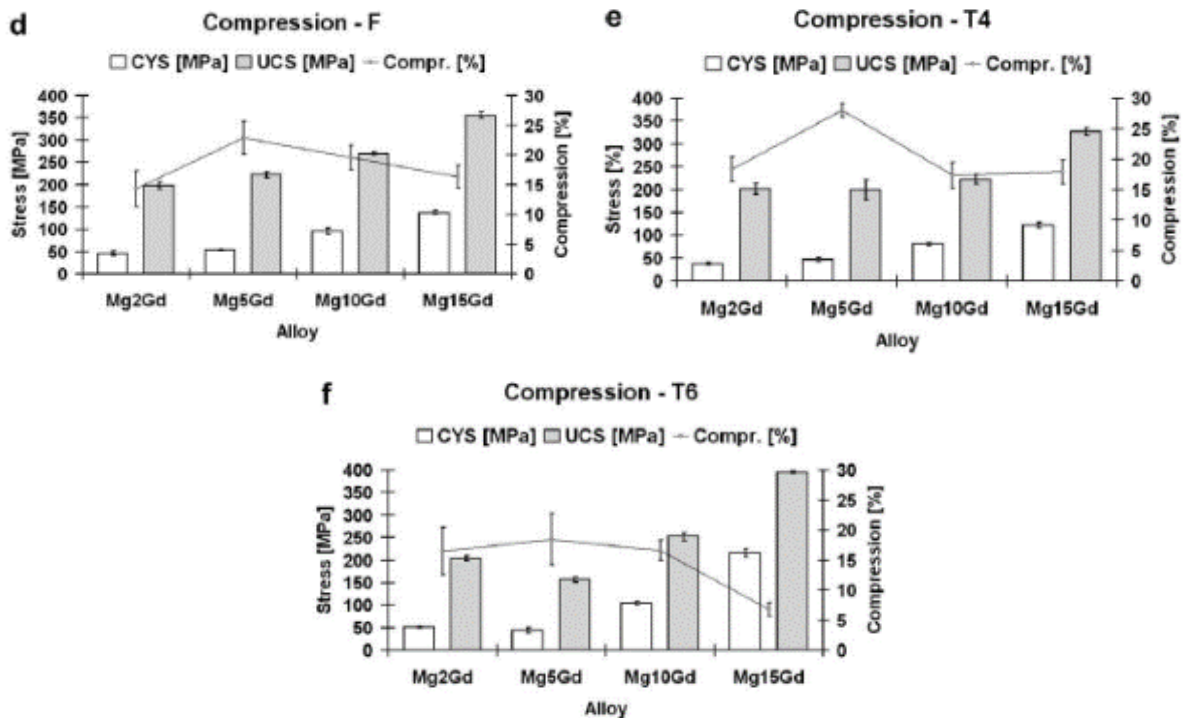
Dapat dilihat pada Gambar 6 sifat mekanik yang diperoleh dalam tegangan. Semakin banyak jumlah Gd maka semakin meningkat juga kekuatan tarik ultimat dan kekuatan tarik luluh, sementara pada saat yang sama elongasi berkurang. TYS dan UTS pada paduan ini memiliki rentang yang cukup luas, yaitu TYS memiliki rentang 33 MPa-200 MPa dan UTS memiliki rentang 78 MPa-250 MPa.

Dapat dilihat pada Gambar 7 peningkatan jumlah Gd menyebabkan meningkatnya kekuatan luluh tekan (CYS) dan kekuatan tekan ultimat (UCS). CYS dan UCS pada paduan ini juga memiliki rentang yang cukup luas, yaitu CYS memiliki rentang 38 MPa-216 MPa dan UCS memiliki rentang 157 MPa-395 MPa.

Vostry, dkk. [4] melakukan penelitian tentang perkembangan mikrostruktur dengan perlakuan panas pada paduan Mg-Gd. Penambahan Gd ke dalam Mg dinyatakan dapat meningkatkan kekerasan paduan. Untuk pengujian, 3 paduan biner Mg-Gd dibuat dengan proses *casting*. Setelah dilakukan, didapatkan hasil bahwa paduan Mg-15Gd mengandung 3 fasa berbeda, yaitu fasa utama α' (matriks) yang merupakan larutan padat Gd super jenuh dalam Mg dan 2 fasa yang banyak mengandung Gd.



Gambar 6. Sifat mekanik dari paduan Mg-Gd dalam tegangan [3]



Gambar 7. Sifat mekanik dari paduan Mg-Gd dalam kompresi [3]

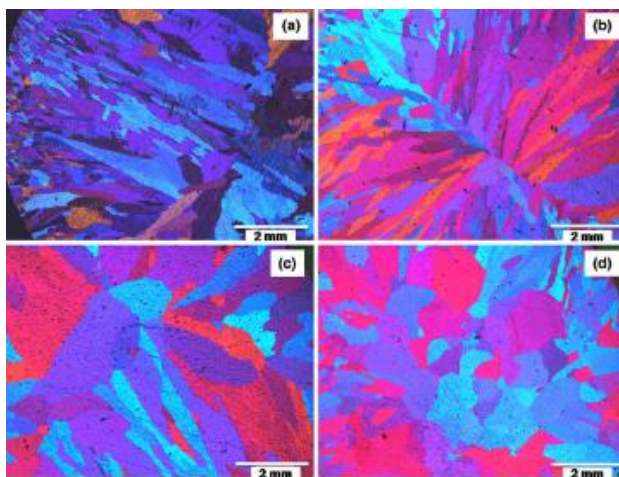
Struktur Mg₅Gd terdapat di batas butir dan piring persegi panjang dari Gd murni atau larutan padat yang kaya Gd di bagian dalam butir. Larutan padat jenuh ganda α'-Mg dalam Mg-14,55 wt% Gd terurai selama anil isokronal

dari 20°C hingga 500°C ke dalam fasa berikut berturut-turut: β'' (metastabil) → β' (metastabil) → β (Mg₅Gd stabil). Kemungkinan hubungan 3 mode orientasi fasa β' metastabil hadir pada temperatur yang lebih rendah (hingga 280°C),



hanya satu mode yang bertahan hingga 330°C. Presipitasi dari fasa β' belum diamati pada *solution treated* paduan Mg-4,47 wt% Gd dan Mg-9,33 wt% Gd. Fasa metastabil β' yang diendapkan dalam ketiga mode mempengaruhi kekerasan puncak dalam Mg-14,55 wt% Gd. Stabilitas termal yang sangat baik dari fasa ini memastikan nilai kekerasan tinggi selama tahap selanjutnya, yaitu *isothermal treatment* pada 200°C dan 250°C untuk waktu yang lama (hingga 80 jam).

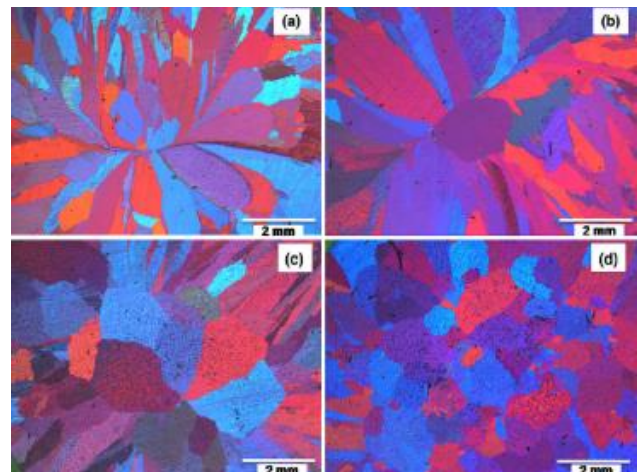
Zhi Wang, dkk. [5] melakukan penelitian tentang struktur mikro dari paduan Mg-Gd. Paduan disiapkan dalam tungku listik resistensi. Sekitar 350 g magnesium murni (99,9 wt%) dilebur dalam wadah boron nitrida yang dilapisi baja ringan dibawah campuran gas pelindung murni Ar + 0,2% SF₆. Jumlah Gd murni (1, 2, 5 dan 10 wt%) ditambahkan ke magnesium yang mencair pada 780°C untuk mendapatkan paduan Mg-Gd.



Gambar 8. Struktur mikro paduan Mg-Gd pada temperatur 450°C, (a) Mg-1Gd, (b) Mg-2Gd, (c) Mg-5Gd dan (d) Mg-10Gd [5]

Dapat dilihat pada Gambar 8 struktur mikro paduan Mg-Gd pada temperatur 450°C. Kolumnar morfologi butir mendominasi dalam paduan yang memiliki kandungan Gd rendah, sedangkan yang berbentuk kolom dapat dilihat pada Mg-5Gd dan Mg-10Gd. Untuk paduan Mg-1Gd dan Mg-2Gd ukuran sel primer meningkat karena temperatur cetakan menurun dari 450°C hingga 250°C. Hal ini menyatakan

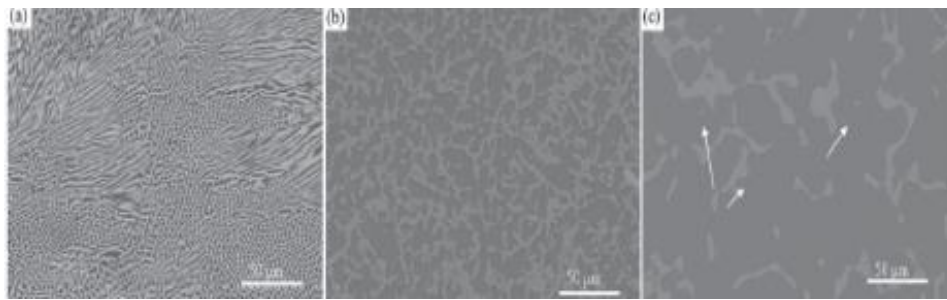
bahwa paduan Mg-1Gd dan Mg-2Gd secara dominan menunjukkan struktur sel pada temperatur cetakan 450°C dan berubah menjadi pertumbuhan kolom dengan beberapa cabang di temperatur 250°C saat laju pendinginan meningkat. Dalam mode sel solidifikasi, pendinginan di ujung dendrit berkurang seiring laju pendinginan meningkat sehingga terjadi *cell flattening*, yang mengarah ke pertumbuhan kolumnar yang bercabang. Paduan Mg-5Gd dan Mg-10Gd terdapat struktur dendrit karena memiliki jumlah Gd yang tinggi.



Gambar 9. Struktur butir paduan Mg-Gd pada temperatur 250°C [5]

Dapat dilihat pada Gambar 9 struktur butiran paduan Mg-Gd pada temperatur 250°C. Butir sedikit kasar memanjang pada paduan Mg-5Gd. Paduan Mg-10Gd memiliki butir yang lengkap, karena memiliki laju pendinginan yang tinggi. Mg-1Gd dan Mg-2Gd disolidifikasi dalam bentuk sel atau kolom. Sel-sel ini dimulai dari dinding cetakan CRC dan tumbuh ke arah tengah batang. Karena mengandung jumlah Gd yang rendah, paduan ini dipadatkan tanpa banyak cabang dendrit.

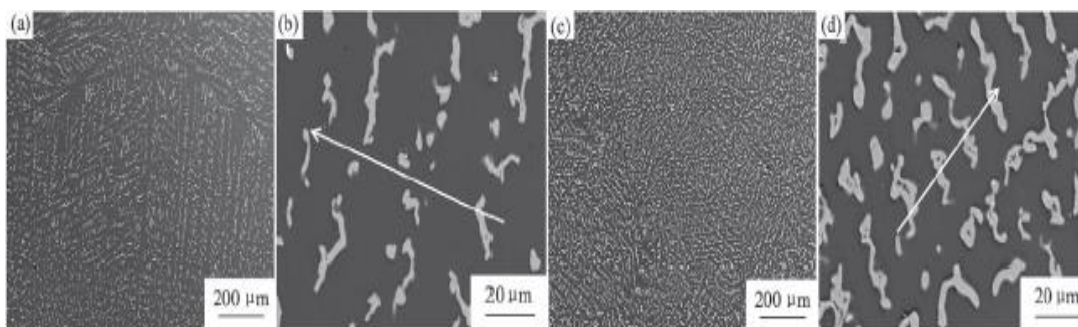
Peng Qiuming, dkk. [6] melakukan penelitian tentang kelarutan unsur Gd dan identifikasi endapan dalam paduan biner Mg-Gd. Paduan yang mengandung Gd berbeda (10 wt%-35 wt%) digunakan untuk mengidentifikasi kelarutan Gd setelah anil pada temperatur yang berbeda 5 paduan biner dibuat dari Mg murni.



Gambar 10. Mikrograf SEM dari mikrostruktur paduan Mg-35Gd (a) as-cast, (b) anil 7 d 400 °C, (c) anil 7 d 500 °C [6]

Dapat dilihat pada Gambar 10 mikrostruktur dari *as-cast* dan anil (7 d 400°C dan 7 d 500°C) pada paduan Mg-35Gd pada sampel keadaan *as-cast* terutama terdiri dari dendrit primer dan matriks Mg. Sejumlah besar dendrit berbentuk sungai yang pada dasarnya terkait dengan pemisahan Gd selama proses solidifikasi tidak setimbang. Endapan eutektik hampir tidak dapat

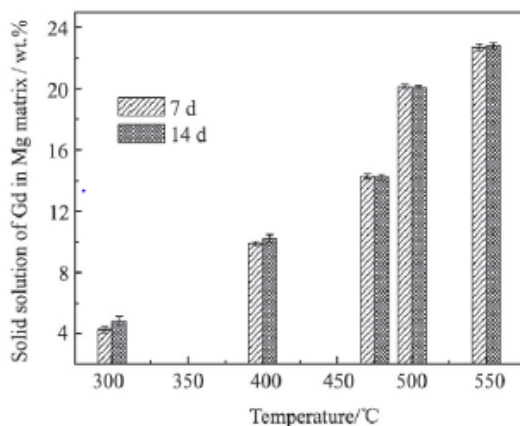
diamati dalam paduan, yang mungkin hilang didaerah dendrit yang luas. Dengan anil, temperatur meningkat sehingga fraksi dendrit menurun secara bertahap dan struktur mikro menjadi kasar. Endapan eutektik (panah putih pada gambar c) terbentuk selama proses solidifikasi juga terdeteksi tanpa ada dendrit.



Gambar 11. Mikrograf SEM dari paduan setelah anil 14 d pada 400°C, (a) dan (b) Mg-15Gd, (c) dan (d) Mg-20Gd [6]

Dapat dilihat pada Gambar 11 anil struktur mikro dari Mg-15Gd dan Mg-20Gd. setelah dianil pada temperatur 400°C selama 14 hari, kedua paduan menunjukkan morfologi yang sama.

Dapat dilihat pada Gambar 12 hubungan antara kandungan Gd dan temperatur anil dalam matriks. Kelarutan Gd meningkat dengan kenaikan temperatur anil. Larutan solusi padat Gd maksimum dalam matriks Mg adalah 22,8 wt% pada 550°C.



Gambar 12. Hubungan antara kandungan Gd dan temperatur anil [6]

3. Kesimpulan

Berdasarkan hasil data mengenai kajian literatur dari pengaruh komposisi unsur gadolinium (Gd) terhadap paduan magnesium (Mg) pada proses *casting* untuk bahan dasar implan, maka dapat diambil kesimpulan sebagai berikut, penambahan Gd melebihi 10% akan semakin meningkatkan sifat mekanik dari paduan Mg-Gd. Komposisi yang cocok untuk implan *biodegradable* dapat disesuaikan tergantung kebutuhan dan standar kesehatan, karena paduan Mg-Gd ini mempunyai TYS dan

UTS dalam rentang yang luas dengan TYS 33 MPa-200 MPa dan UTS 78 MPa-250-MPa. Semakin banyak penambahan unsur gadolinium ke dalam magnesium, maka semakin kecil ukuran butirnya. Semakin kecil ukuran butir maka akan meningkatkan kekuatan dan kekerasan dari paduan Mg-Gd.

Referensi

- [1] W. F. Ng, K. Y. Chiu, and F. T. Cheng, "Effect of pH on the in vitro corrosion rate of magnesium degradable implant material," *Mater. Sci. Eng. C*, vol. 30, no. 6, pp. 898–903, 2010.
- [2] G. Song and S. Song, "A possible biodegradable magnesium implant material," *Adv. Eng. Mater.*, vol. 9, no. 4, pp. 298–302, 2007.
- [3] N. Hort *et al.*, "Magnesium alloys as implant materials-Principles of property design for Mg-RE alloys," *Acta Biomater.*, vol. 6, no. 5, pp. 1714–1725, 2010.
- [4] P. Vostrý, B. Smola, I. Stulíková, F. Von Buch, and B. L. Mordike, "Microstructure evolution in isochronally heat treated Mg-Gd alloys," *Phys. Status Solidi Appl. Res.*, vol. 175, no. 2, pp. 491–500, 1999.
- [5] A. Srinivasan, Z. Wang, Y. Huang, F. Beckmann, K. U. Kainer, and N. Hort, "Hot tearing characteristics of binary Mg-Gd alloy castings," *Metall. Mater. Trans. A Phys. Metall. Mater. Sci.*, vol. 44, no. 5, pp. 2285–2298, 2013.
- [6] P. Qiuming, M. A. Ning, and L. I. Hui, "Gadolinium solubility and precipitate identification in Mg-Gd binary alloy," *J. Rare Earths*, vol. 30, no. 10, pp. 1064–1068, 2012.

