

Perilaku Korosi Paduan Magnesium AZ91 Hasil *Phosphate Conversion Coating* dalam Lingkungan *Simulated Body Fluids*

Manty Aldilani Ikaningsih^{1*}, Rully Ramadani Muhammad Isa¹, Djoko Hadi Prajitno^{1,2}

¹Program Studi Teknik Metalurgi, Fakultas Teknologi Manufaktur, Universitas Jenderal Achmad Yani
Jl. Terusan Jend. Sudirman, Cibeber, Kec. Cimahi Sel., Kota Cimahi, Jawa Barat, Indonesia

²Badan Riset dan Inovasi Nasional, Bandung, Indonesia

Jl. Dr. Djunjunan No.133, Pajajaran, Kec. Cicendo, Kota Bandung, Jawa Barat 40173, Indonesia

*Penulis korespondensi; E-mail: manty.aldilani@lecture.unjani.ac.id

ABSTRAK

Paduan magnesium AZ91 memiliki potensi sebagai biomaterial *biodegradable* karena densitas rendah dan sifat mekanik yang baik, namun laju korosi yang tinggi dalam lingkungan fisiologis menjadi kendala utama. Penelitian ini bertujuan untuk mengevaluasi pengaruh *phosphate conversion coating* (PCC) terhadap perilaku korosi paduan magnesium AZ91 dalam lingkungan *simulated body fluids* (SBF). Proses PCC dilakukan menggunakan larutan magnesium fosfat dengan pra-aktivasi asam fosfat pada variasi temperatur 40 °C, 60 °C, dan 80 °C serta pH 2,5; 3,0; dan 3,5. Karakterisasi lapisan meliputi pengukuran ketebalan, analisis morfologi dan komposisi unsur (SEM-EDS), pengujian kekerasan Vickers, serta identifikasi fasa kristalin menggunakan *X-ray diffraction* (XRD), sedangkan ketahanan korosi dievaluasi melalui metode *potentiodynamic polarization*. Hasil penelitian menunjukkan bahwa peningkatan temperatur dan penurunan pH pelapisan menghasilkan lapisan PCC yang lebih tebal, rapat, dan homogen, yang berkontribusi pada peningkatan kekerasan permukaan serta penurunan laju korosi. Kondisi optimum diperoleh pada pH 2,5 dan temperatur 80 °C dengan laju korosi terendah, yang menunjukkan efektivitas lapisan dalam meningkatkan performa perlindungan. Dengan demikian, pengendalian parameter proses PCC menjadi faktor kunci dalam mengoptimalkan ketahanan korosi paduan magnesium AZ91 untuk aplikasi biomaterial *biodegradable* di lingkungan fisiologis.

Kata Kunci: paduan magnesium AZ91, *phosphate conversion coating*, ketahanan korosi, *simulated body fluids*, *biodegradable biomaterial*.

ABSTRACT

Magnesium alloy AZ91 has significant potential as a biodegradable biomaterial due to its low density and favorable mechanical properties; however, its high corrosion rate in physiological environments remains a major limitation. This study aims to evaluate the effect of phosphate conversion coating (PCC) on the corrosion behavior of AZ91 magnesium alloy in a simulated body fluid (SBF) environment. The PCC process was carried out using a magnesium phosphate solution with phosphoric acid pre-activation at coating temperatures of 40 °C, 60 °C, and 80 °C and pH values of 2.5, 3.0, and 3.5. Coating characterization included thickness measurement, surface morphology and elemental composition analysis (SEM-EDS), Vickers hardness testing, and crystalline phase identification using X-ray diffraction (XRD), while corrosion resistance was evaluated using potentiodynamic polarization. The results show that increasing the coating temperature and decreasing the solution pH produce thicker, denser, and more homogeneous PCC layers, which contribute to improved surface hardness and reduced corrosion rate. The optimum condition was obtained at pH 2.5 and 80 °C, resulting the lowest corrosion rate and the most effective protective performance. These findings indicate that controlling PCC process parameters is essential for enhancing the corrosion resistance of AZ91 magnesium alloy for biodegradable biomaterial applications in physiological environments.

Keywords: AZ91 magnesium alloy, *phosphate conversion coating*, corrosion resistance, *simulated body fluids*, *biodegradable biomaterial*.

PENDAHULUAN

Paduan magnesium telah lama menjadi perhatian dalam bidang teknik material, khususnya untuk aplikasi biomaterial, karena kombinasi sifat mekanik yang baik, densitas rendah, serta

karakteristik biodegradabilitas yang menjanjikan. Di antara berbagai paduan magnesium, AZ91 merupakan salah satu yang paling banyak dikaji karena kandungan aluminium dan sengnya memberikan kekuatan mekanik yang lebih tinggi dibandingkan magnesium murni [1], [2]. Dalam konteks aplikasi medis, terutama sebagai kandidat implan *biodegradable*, paduan magnesium menawarkan keunggulan berupa kemampuan terdegradasi secara alami di dalam tubuh, sehingga berpotensi mengeliminasi kebutuhan operasi lanjutan untuk pengangkatan implan [3]–[5]. Namun demikian, laju degradasi yang terlalu cepat di lingkungan fisiologis justru menjadi permasalahan utama yang membatasi penerapan praktis paduan magnesium, termasuk AZ91, sebagai biomaterial logam [6],[7]. Oleh karena itu, pemahaman mendalam mengenai perilaku korosi AZ91 dalam lingkungan yang menyerupai cairan tubuh menjadi sangat krusial. Lingkungan fisiologis yang disimulasikan melalui *simulated body fluids* (SBF) atau larutan berbasis NaCl 0,9% menghadirkan kondisi korosif yang kompleks akibat keberadaan ion klorida dan spesies bioaktif lainnya [6].

Perilaku korosi paduan magnesium AZ91 dalam larutan fisiologis pada dasarnya dikendalikan oleh mekanisme elektrokimia yang melibatkan pelarutan magnesium dan evolusi gas hidrogen. Ketika AZ91 terpapar larutan SBF atau NaCl, magnesium mengalami oksidasi menjadi ion Mg^{2+} , sementara reaksi katodik menghasilkan gas hidrogen yang dapat mempercepat degradasi struktural material [7]. Keberadaan ion klorida diketahui mempercepat kerusakan lapisan oksida alami magnesium, sehingga meningkatkan laju korosi dan menyebabkan terbentuknya produk korosi yang tidak stabil [10],[11]. Selain itu, variasi pH dan komposisi ionik dalam larutan fisiologis berpengaruh signifikan terhadap stabilitas produk korosi dan dinamika degradasi permukaan paduan AZ91 [6],[12]. Beberapa penelitian menunjukkan bahwa produk korosi yang terbentuk dapat bersifat sementara dan mudah terkelupas, sehingga tidak mampu memberikan perlindungan jangka panjang terhadap substrat magnesium [1]. Kondisi ini menjadikan kontrol terhadap laju korosi sebagai tantangan utama dalam pengembangan AZ91 untuk aplikasi biomaterial.

Untuk mengatasi permasalahan korosi yang tinggi tersebut, berbagai strategi modifikasi permukaan telah dikembangkan, salah satunya melalui penerapan *conversion coating*. Metode ini memanfaatkan reaksi kimia antara substrat logam dan larutan aktif untuk membentuk lapisan pelindung yang terikat secara kimia pada permukaan material. Di antara berbagai jenis *conversion coating*, *phosphate conversion coating* (PCC) menjadi salah satu pendekatan yang banyak diteliti untuk paduan magnesium karena kemampuannya membentuk lapisan fosfat yang relatif stabil dan berpotensi meningkatkan ketahanan korosi [13],[14]. Lapisan fosfat yang terbentuk umumnya terdiri dari senyawa magnesium fosfat atau kalsium fosfat yang memiliki sifat penghalang terhadap penetrasi ion korosif [8]. Selain itu, lapisan ini juga dilaporkan mampu meningkatkan biokompatibilitas permukaan magnesium, sehingga relevan untuk aplikasi biomaterial [9].

Mekanisme pembentukan PCC pada paduan magnesium melibatkan proses pelarutan parsial substrat diikuti oleh presipitasi senyawa fosfat pada permukaan. Selama proses ini, magnesium teroksidasi dan bereaksi dengan ion fosfat dalam larutan, menghasilkan lapisan konversi yang bersifat mikrokristalin dan berlapis [10]. Struktur lapisan yang terbentuk sangat dipengaruhi oleh kondisi proses, termasuk temperatur dan pH larutan, yang menentukan laju reaksi serta morfologi lapisan fosfat [11]. Lapisan PCC yang terbentuk secara optimal dapat berfungsi sebagai penghalang fisik dan elektrokimia, sehingga memperlambat pelarutan magnesium dan menurunkan laju evolusi hidrogen [13],[21]. Namun demikian, kualitas lapisan PCC sangat bergantung pada homogenitas dan ketebalan lapisan, karena cacat mikro atau ketidakseragaman dapat menjadi jalur preferensial bagi penetrasi ion klorida.

Parameter proses, khususnya temperatur dan pH larutan pelapisan, memainkan peran penting dalam menentukan karakteristik lapisan yang dihasilkan. Temperatur yang lebih tinggi dilaporkan dapat mempercepat kinetika reaksi pembentukan lapisan, menghasilkan lapisan yang lebih tebal dalam waktu relatif singkat [11]. Namun, temperatur yang terlalu tinggi juga berpotensi menyebabkan pertumbuhan lapisan yang tidak seragam atau rapuh, sehingga justru menurunkan efektivitas perlindungan terhadap korosi [12]. Demikian pula, pH larutan memengaruhi

stabilitas spesies fosfat dan laju presipitasi senyawa magnesium fosfat atau kalsium fosfat pada permukaan substrat [15],[23]. Pada pH tertentu, lapisan yang terbentuk cenderung lebih padat dan rapat, sehingga memberikan ketahanan korosi yang lebih baik dalam lingkungan fisiologis [14]. Oleh karena itu, pengendalian parameter temperatur dan pH menjadi aspek krusial dalam optimasi proses PCC pada paduan magnesium AZ91. Evaluasi perilaku korosi paduan magnesium berlapis PCC dalam SBF menjadi langkah penting untuk menilai efektivitas lapisan dalam kondisi yang menyerupai lingkungan tubuh manusia. Berbagai penelitian menunjukkan bahwa paduan magnesium yang dilapisi PCC menunjukkan penurunan laju korosi yang signifikan ketika diuji dalam larutan SBF atau NaCl 0,9% dibandingkan dengan substrat tanpa pelapisan [11]. Lapisan fosfat berperan dalam membatasi kontak langsung antara substrat magnesium dan larutan korosif, serta menghambat difusi ion klorida ke permukaan logam. Meski demikian, kinerja lapisan PCC dalam lingkungan fisiologis tidak selalu bersifat stabil dalam jangka panjang, terutama jika terjadi degradasi lapisan akibat interaksi dengan ion bioaktif atau protein [15]. Hal ini menunjukkan bahwa meskipun PCC efektif dalam meningkatkan ketahanan korosi awal, masih terdapat tantangan dalam menjaga kestabilan perlindungan selama periode perendaman yang lebih lama.

Dalam konteks pengembangan biomaterial biodegradable, keseimbangan antara laju degradasi dan integritas mekanik menjadi faktor penentu keberhasilan aplikasi paduan magnesium AZ91. Lapisan PCC tidak hanya dituntut untuk menurunkan laju korosi, tetapi juga harus mampu mempertahankan sifat biokompatibilitas dan tidak menimbulkan produk degradasi yang merugikan jaringan biologis [9]. Beberapa studi menekankan bahwa lapisan fosfat dapat mendukung proses biomineralisasi dan meningkatkan interaksi antara permukaan logam dan jaringan tulang [25],[26]. Namun demikian, variasi hasil penelitian menunjukkan bahwa efektivitas PCC sangat dipengaruhi oleh kondisi proses dan karakteristik mikrostruktur substrat AZ91 [18]. Oleh karena itu, diperlukan kajian yang lebih sistematis untuk memahami hubungan antara parameter proses PCC, karakteristik lapisan yang terbentuk, dan perilaku korosi dalam lingkungan SBF.

Berdasarkan tinjauan literatur yang ada, masih terdapat research gap terkait pemahaman komprehensif mengenai pengaruh variasi temperatur dan pH pada proses PCC terhadap perilaku korosi paduan magnesium AZ91 dalam SBF berbasis NaCl 0,9%. Sebagian besar penelitian sebelumnya lebih menekankan pada karakterisasi lapisan atau pengujian dalam media tertentu, tanpa mengkaji secara mendalam keterkaitan antara parameter proses, ketebalan lapisan, dan ketahanan korosi dalam kondisi fisiologis yang disederhanakan. Oleh karena itu, penelitian ini memiliki *novelty* dalam mengkaji secara sistematis perilaku korosi paduan magnesium AZ91 berlapis PCC dengan variasi temperatur dan pH proses, serta mengevaluasinya dalam SBF. Penelitian ini diharapkan dapat memberikan kontribusi ilmiah dalam pengembangan strategi perlindungan korosi paduan magnesium untuk aplikasi biomaterial.

METODE

Material

Material utama yang digunakan dalam penelitian ini adalah paduan magnesium AZ91 sebagai substrat. Paduan AZ91 merupakan paduan berbasis Mg-Al-Zn yang dikenal memiliki sifat mekanik yang baik serta densitas yang rendah, sehingga banyak digunakan dalam aplikasi teknik dan biomaterial. Adapun komposisi dari paduan magnesium AZ91 diperlihatkan pada Tabel 1. Bahan kimia yang digunakan dalam proses pelapisan terdiri atas asam fosfat sebagai pra-aktivator permukaan dan larutan magnesium fosfat sebagai sumber pembentuk lapisan *phosphate conversion coating* (PCC). Media pengujian korosi menggunakan *simulated body fluids* (SBF) sederhana berupa larutan infus NaCl 0,9%. Larutan ini mengandung natrium klorida sebesar 9 g/L yang terdisosiasi menjadi ion Na^+ dan Cl^- dengan konsentrasi masing-masing sekitar 154 mmol/L. Larutan NaCl 0,9% bersifat isotonik terhadap cairan tubuh dan banyak digunakan sebagai simulasi lingkungan fisiologis sederhana, terutama untuk merepresentasikan peran ion klorida dalam proses korosi. Namun demikian, larutan ini tidak sepenuhnya merepresentasikan komposisi SBF standar yang mengandung berbagai ion, seperti Ca^{2+} , Mg^{2+} , dan fosfat. Oleh karena

itu, penggunaan larutan NaCl 0,9% dalam penelitian ini difokuskan pada evaluasi pengaruh ion klorida terhadap perilaku korosi paduan magnesium [7],[8].

Tabel 1. Komposisi paduan magnesium AZ91[19]

Unsur	Al	Mn	Zn	Si	Cu	Fe	Ni	Lainnya	Mg
Kadar (%)	8,3 – 9,7	0,15 – 0,50	0,35 – 1	0,1	0,03	0,005	0,002	Maks. 0,02	Selebihnya

Metode

Penelitian ini menggunakan pendekatan eksperimental laboratorium untuk mengevaluasi perilaku korosi paduan magnesium AZ91 setelah diberikan perlakuan permukaan berupa *phosphate conversion coating* (PCC) dan diuji dalam lingkungan *Simulated Body Fluids* (SBF). Pendekatan eksperimental ini dipilih karena memungkinkan pengendalian variabel proses secara ketat, khususnya temperatur dan pH larutan pelapisan. Dengan pengendalian tersebut, hubungan sebab-akibat antara perlakuan permukaan dan ketahanan korosi dapat dianalisis secara sistematis. Variabel bebas dalam penelitian ini meliputi temperatur proses PCC (40 °C, 60 °C, dan 80 °C) serta pH larutan (2,5; 3,0; dan 3,5). Sementara itu, variabel terikat mencakup ketahanan korosi dan karakteristik lapisan PCC yang terbentuk pada permukaan paduan magnesium AZ91.

Pemilihan rentang pH 2,5; 3,0; dan 3,5 didasarkan pada kondisi pembentukan lapisan konversi fosfat pada paduan magnesium yang umumnya berlangsung optimal dalam lingkungan asam. Pada kondisi ini, pelarutan awal magnesium meningkat, sehingga menghasilkan ion Mg^{2+} yang kemudian bereaksi dengan ion fosfat membentuk senyawa magnesium fosfat pada permukaan substrat. Reaksi tersebut mendukung proses nukleasi dan pertumbuhan lapisan yang lebih rapat dan homogen. Sebaliknya, pada pH yang lebih tinggi, laju pembentukan lapisan cenderung menurun dan menghasilkan struktur yang lebih kasar dan berpori. Kondisi ini menyebabkan efektivitas lapisan dalam menghambat korosi menjadi lebih rendah, sehingga rentang pH ini dipilih untuk merepresentasikan variasi kualitas lapisan PCC [15],[28],[29]. Variasi temperatur 40 °C, 60 °C, dan 80 °C dipilih untuk merepresentasikan pengaruh kinetika reaksi terhadap proses pembentukan lapisan PCC. Peningkatan temperatur diketahui dapat mempercepat difusi ion dan laju reaksi kimia antara substrat magnesium dan ion fosfat dalam larutan. Hal ini berpengaruh terhadap ketebalan, morfologi, dan homogenitas lapisan yang terbentuk pada permukaan material. Namun demikian, temperatur yang terlalu tinggi berpotensi menyebabkan ketidakseragaman lapisan atau terbentuknya cacat mikro akibat tegangan termal. Oleh karena itu, rentang temperatur ini yang digunakan untuk merepresentasikan kondisi kinetika rendah hingga tinggi yang masih umum digunakan dalam proses pelapisan tanpa menyebabkan degradasi struktur lapisan [13],[19],[29].

Tahapan awal penelitian diawali dengan proses persiapan sampel paduan magnesium AZ91. Spesimen dipotong dengan dimensi seragam untuk menjamin konsistensi hasil pengujian. Selanjutnya, permukaan spesimen dipreparasi secara mekanik melalui proses pengamplasan bertahap menggunakan kertas amplas dengan tingkat kehalusan yang meningkat, bertujuan untuk menghilangkan lapisan oksida alami dan ketidakrataan permukaan. Setelah pengamplasan, spesimen dibilas menggunakan etanol dan aquades untuk menghilangkan sisa partikel abrasif serta kontaminan organik, kemudian dikeringkan pada temperatur ruang. Tahapan persiapan ini dilakukan untuk menghasilkan permukaan yang bersih dan homogen sehingga proses pelapisan dapat berlangsung secara optimal.

Proses pra-aktivasi permukaan dilakukan dengan merendam spesimen dalam larutan asam fosfat selama 10 menit pada temperatur ruang. Tahapan ini bertujuan untuk meningkatkan energi permukaan substrat dan menyediakan situs nukleasi awal bagi pembentukan lapisan fosfat. Selanjutnya, proses PCC dilakukan dengan merendam spesimen dalam larutan magnesium fosfat yang telah diatur pH-nya sesuai dengan rancangan penelitian. Temperatur larutan dijaga konstan pada variasi 40 °C, 60 °C, dan 80 °C menggunakan sistem pemanas dengan kontrol temperatur. Waktu perendaman dibuat konstan selama 30 menit untuk seluruh spesimen, disertai pengadukan kontinu guna menjamin homogenitas larutan selama proses pelapisan. Selama proses

ini berlangsung, terjadi reaksi kimia antara substrat magnesium dan larutan fosfat yang menghasilkan lapisan PCC pada permukaan spesimen. Setelah proses pelapisan selesai, spesimen dibilas menggunakan air deionisasi untuk menghilangkan residu larutan dan kemudian dikeringkan pada temperatur ruang. Pengujian korosi dilakukan menggunakan metode *potentiodynamic polarization* dengan bantuan potensiostat dalam SBF, seperti ditunjukkan pada Gambar 1. Sistem pengujian menggunakan konfigurasi tiga elektroda yang terdiri dari *working electrode* berupa spesimen paduan magnesium AZ91, *reference electrode* (Ag/AgCl) dan *counter electrode* berupa platina (Pt). Pengujian dilakukan menggunakan perangkat potensiostat tipe CS350 *electrochemical workstation* untuk memperoleh kurva polarisasi potensiodynamik. Metode ini digunakan untuk menentukan parameter elektrokimia, seperti densitas arus korosi (I_{corr}) dan potensial korosi (E_{corr}). Data hasil pengujian digunakan untuk menghitung laju korosi berdasarkan standar ASTM G102 [20] dengan konstanta K sebesar $3,27 \times 10^{-3}$, yang dinyatakan dalam satuan mm/tahun.



Gambar 1. Pengujian korosi menggunakan metode *potentiodynamic polarization* dengan konfigurasi tiga elektroda (*working electrode*, *reference electrode*, dan *counter electrode*)

Karakterisasi morfologi dan komposisi unsur lapisan dilakukan menggunakan *scanning electron microscopy* (SEM) tipe Hitachi SU3500 yang dilengkapi dengan *energy dispersive spectroscopy* (EDS). Pengamatan ini bertujuan untuk mengevaluasi homogenitas lapisan, morfologi permukaan, serta distribusi unsur penyusun lapisan PCC setelah proses korosi. Selain itu, pengamatan struktur mikro dan ketebalan lapisan dilakukan menggunakan mikroskop optik Olympus BX60M melalui analisis penampang melintang spesimen. Analisis fasa kristalin dilakukan menggunakan *x-ray diffraction* (XRD) untuk mengidentifikasi senyawa fosfat yang terbentuk pada permukaan paduan magnesium AZ91. Hasil karakterisasi tersebut digunakan untuk mengkorelasikan parameter proses pelapisan dengan perilaku korosi dan karakteristik lapisan yang dihasilkan.

HASIL DAN PEMBAHASAN

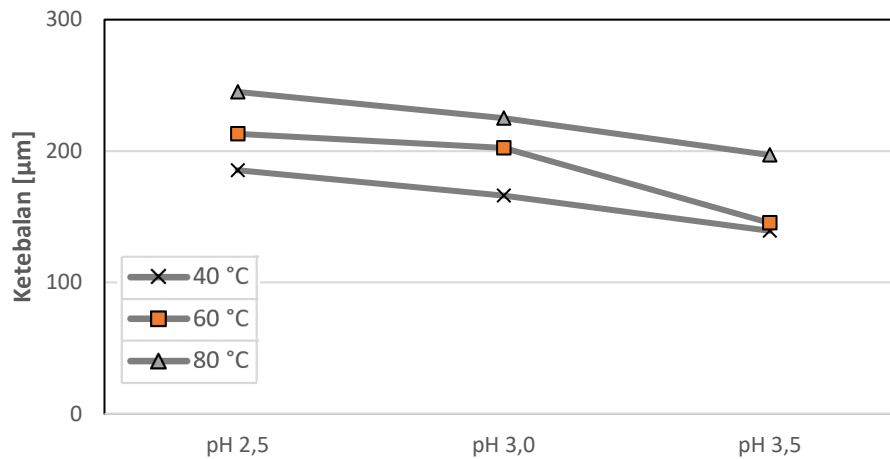
Ketebalan Lapisan PCC

Pengujian metalografi dilakukan untuk mengamati ketebalan lapisan PCC yang terbentuk pada permukaan paduan magnesium AZ91 akibat variasi pH dan temperatur proses pelapisan. Metode ini digunakan karena mampu memberikan gambar visual yang jelas mengenai morfologi dan distribusi ketebalan lapisan pada penampang melintang spesimen. Hasil pengamatan metalografi, seperti ditunjukkan pada Gambar 2, memperlihatkan bahwa lapisan PCC terbentuk secara kontinu pada seluruh spesimen yang diuji. Meskipun demikian, ketebalan dan homogenitas lapisan menunjukkan variasi yang signifikan tergantung pada kondisi proses pelapisan. Hal ini mengindikasikan bahwa parameter pH dan temperatur memiliki pengaruh penting terhadap proses pembentukan dan pertumbuhan lapisan PCC pada permukaan paduan magnesium AZ91.



Gambar 2. Hasil pengamatan metalografi lapisan PCC pada paduan magnesium AZ91 dengan variasi pH dan temperatur proses pelapisan: (a) pH 2,5 - T 40 °C; (b) pH 2,5 - T 60 °C; (c) pH 2,5 - T 80 °C; (d) pH 3,0 - T 40 °C; (e) pH 3,0 - T 60 °C; (f) pH 3,0 - T 80 °C; (g) pH 3,5 - T 40 °C; (h) pH 3,5 - T 60 °C; (i) pH 3,5 - T 80 °C

Hasil pengukuran ketebalan lapisan yang disajikan pada Gambar 3 menunjukkan bahwa ketebalan lapisan meningkat seiring dengan meningkatnya temperatur proses dan menurunnya nilai pH larutan pelapis. Kondisi ketebalan tertinggi diperoleh pada pH 2,5 dan temperatur 80 °C dengan ketebalan rata-rata mencapai 245 µm. Sebaliknya, ketebalan terendah sebesar 139 µm diperoleh pada kondisi pH 3,5 dan temperatur 40 °C. Fenomena ini mengindikasikan bahwa kondisi pelapisan yang lebih asam dan temperature yang lebih tinggi mampu mempercepat proses pembentukan lapisan fosfat. Dengan demikian, ombinasi kedua parameter tersebut menjadi factor kunci dalam mengoptimalkan ketebalan lapisan PCC yang terbentuk.

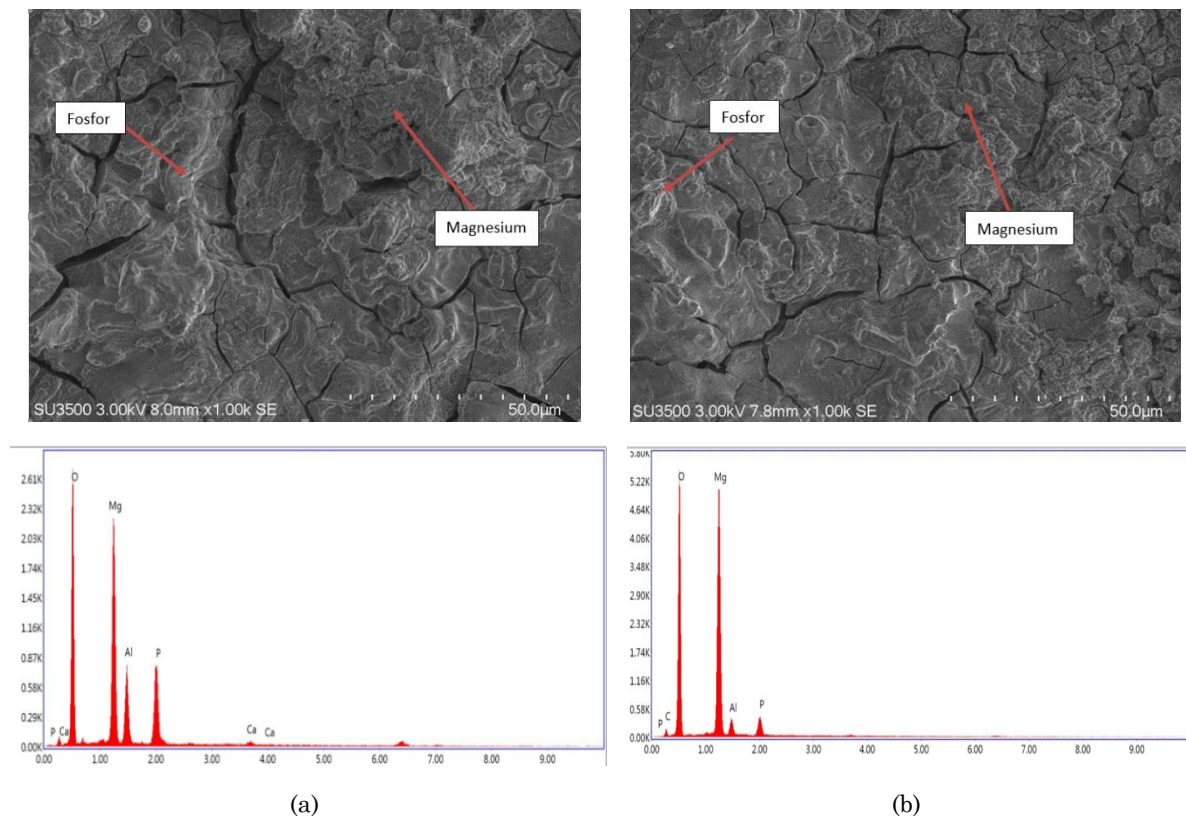


Gambar 3. Grafik ketebalan lapisan PCC pada paduan magnesium AZ91 pada variasi pH dan temperatur proses

Peningkatan ketebalan lapisan pada temperatur yang lebih tinggi berkaitan erat dengan percepatan kinetika reaksi kimia antara substrat magnesium dan ion fosfat dalam larutan. Temperatur yang lebih tinggi menyebabkan penurunan viskositas larutan serta peningkatan difusivitas ion Mg^{2+} dan PO_4^{3-} , sehingga mempercepat proses deposisi senyawa fosfat pada permukaan logam. Selain itu, kondisi pH yang lebih rendah meningkatkan laju pelarutan awal magnesium, sehingga menyediakan ion Mg^{2+} dalam jumlah lebih besar untuk reaksi pembentukan lapisan. Kombinasi efek kinetika dan peningkatan ketersediaan ion ini menghasilkan lapisan yang lebih tebal dan relatif lebih homogen. Temuan ini sejalan dengan hasil penelitian sebelumnya yang menunjukkan bahwa pertumbuhan lapisan konversi pada paduan magnesium sangat dipengaruhi kondisi proses pelapisan, terutama temperatur dan pH larutan [8], [18], serta dipengaruhi oleh kinetika reaksi permukaan yang berkaitan dengan proses korosi awal material [21].

Morfologi Permukaan dan Komposisi Unsur Lapisan (SEM-EDS)

Pengamatan menggunakan *scanning electron microscopy* (SEM) dilakukan untuk mengamati morfologi permukaan lapisan PCC yang terbentuk pada paduan magnesium AZ91. Sedangkan analisis *energy dispersive spectroscopy* (EDS) digunakan untuk mengidentifikasi komposisi unsur penyusun lapisan. Seperti diperlihatkan pada Gambar 4, hasil pengamatan SEM pada kondisi pH 2,5 dan temperatur 80 °C menunjukkan terbentuknya butiran kristal yang relatif halus, padat, dan terdistribusi secara merata di seluruh permukaan spesimen. Sebaliknya, pada pH 3,5 dengan temperatur yang sama, lapisan menunjukkan morfologi yang lebih kasar dengan ukuran butir yang lebih besar dan distribusi yang kurang homogen. Perbedaan ini mengindikasikan bahwa kondisi larutan pelapisan memiliki pengaruh signifikan terhadap mekanisme pembentukan dan pertumbuhan lapisan fosfat.



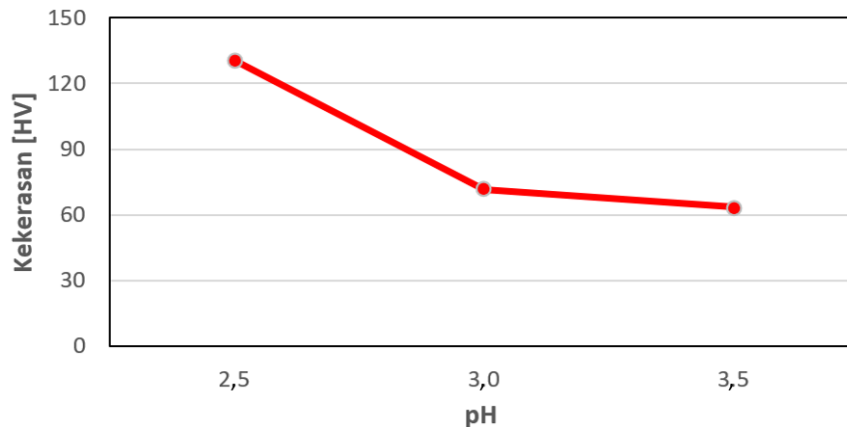
Gambar 4. Citra SEM permukaan dan hasil analisis EDS lapisan PCC pada paduan magnesium AZ91 pada kondisi (a) pH 2,5 T = 80 °C dan (b) pH 3,5 T = 80 °C

Perbedaan morfologi ini menunjukkan bahwa pH larutan memiliki peran penting dalam mekanisme pertumbuhan kristal lapisan fosfat. Pada pH yang lebih rendah, laju nukleasi relatif lebih tinggi dibandingkan laju pertumbuhan kristal, sehingga terbentuk banyak inti kristal berukuran kecil yang menghasilkan lapisan lebih rapat dan homogen. Sebaliknya, pada pH yang lebih tinggi, laju pertumbuhan kristal lebih dominan, sehingga menghasilkan kristal berukuran lebih besar dengan jarak antar butir yang lebih renggang. Kondisi ini menyebabkan lapisan yang terbentuk kurang padat dan memiliki potensi porositas yang lebih tinggi. Fenomena ini sejalan dengan kajian Gray dan Luan (2002) yang menyatakan bahwa karakteristik lapisan konversi pada magnesium sangat dipengaruhi oleh keseimbangan antara proses nukleasi dan pertumbuhan kristal selama reaksi kimia di permukaan [22].

Hasil analisis EDS menunjukkan bahwa lapisan PCC didominasi oleh unsur oksigen (O), magnesium (Mg), fosfor (P), aluminium (Al), dan kalsium (Ca). Kandungan oksigen dan fosfor yang lebih tinggi pada spesimen pH 2,5 mengindikasikan terbentuknya senyawa magnesium fosfat dalam jumlah yang lebih besar. Keberadaan unsur kalsium dalam jumlah kecil menunjukkan kemungkinan terbentuknya lapisan fosfat campuran (*mixed phosphate*) pada permukaan material. Lapisan fosfat campuran ini dalam beberapa penelitian dilaporkan mampu meningkatkan ketahanan korosi serta biokompatibilitas material. Hal ini didukung oleh penelitian Staiger, et al. (2006) yang menyatakan bahwa komposisi kimia lapisan permukaan berperan penting dalam menentukan respons korosi dan interaksi biologis material berbasis magnesium [23].

Sifat Mekanik Permukaan

Pengujian kekerasan permukaan dilakukan menggunakan metode Vickers dengan beban 25 gf selama 10 detik sesuai standar ASTM E384. Hasil pengujian yang ditunjukkan pada Gambar 5 memperlihatkan bahwa nilai kekerasan meningkat seiring dengan menurunnya pH larutan pelapis pada temperatur 80 °C. Peningkatan ini mengindikasikan bahwa kondisi larutan yang lebih asam mendorong terbentuknya lapisan PCC dengan struktur yang lebih padat dan rapat. Selain itu, variasi pH juga mempengaruhi mekanisme pertumbuhan lapisan fosfat yang berkontribusi terhadap perubahan sifat mekanik permukaan. Dengan demikian, parameter pH berperan penting dalam menentukan karakteristik kekerasan lapisan hasil pelapisan.



Gambar 5. Nilai kekerasan Vickers permukaan paduan magnesium AZ91 setelah PCC pada variasi pH larutan pada temperatur 80 °C

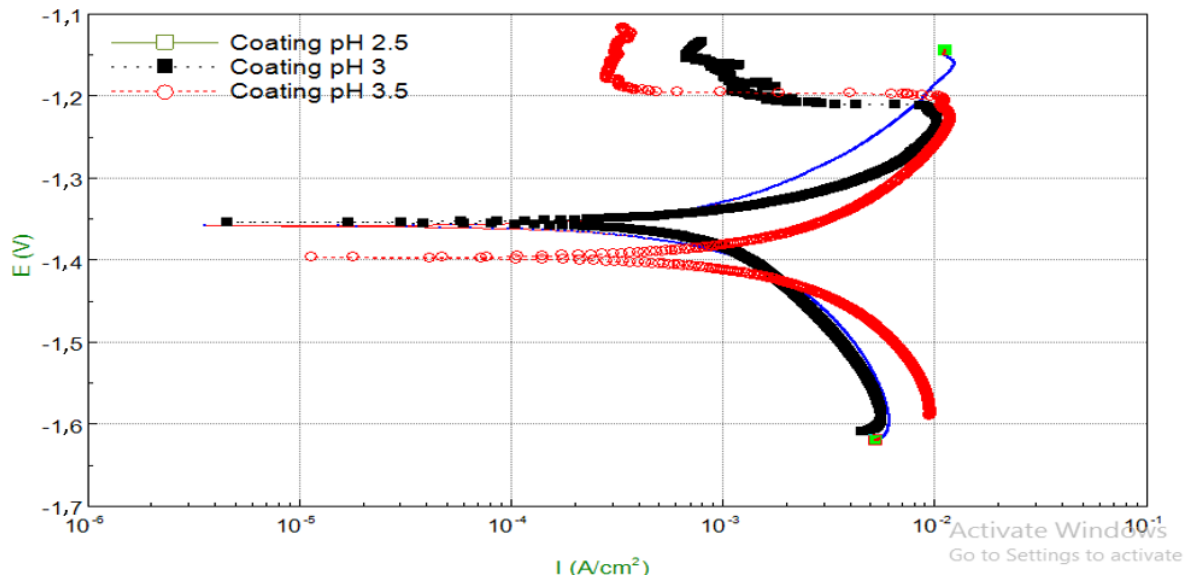
Nilai kekerasan difokuskan pada temperatur 80 °C karena kondisi ini merupakan temperatur pelapisan tertinggi yang digunakan dalam penelitian ini, sehingga merepresentasikan kondisi kinetika reaksi yang paling intensif. Pada temperatur ini, proses difusi ion dan reaksi kimia antara magnesium dan ion fosfat berlangsung lebih cepat, sehingga menghasilkan lapisan PCC dengan ketebalan dan kerapatan yang paling optimal dibandingkan temperatur yang lebih rendah. Selain itu, hasil pengamatan metalografi dan morfologi menunjukkan bahwa lapisan yang terbentuk pada 80 °C memiliki struktur yang paling homogen dan kontinu. Kondisi ini sejalan dengan penelitian sebelumnya yang menyatakan bahwa peningkatan temperatur pelapisan dapat meningkatkan kinetika reaksi serta kualitas lapisan konversi fosfat pada paduan magnesium [18], [24].

Peningkatan kekerasan ini berkorelasi dengan ketebalan dan kerapatan lapisan PCC yang terbentuk pada permukaan material. Lapisan yang lebih tebal dan lebih rapat memberikan resistansi yang lebih tinggi terhadap deformasi plastis akibat penetrasi indentor selama pengujian. Selain itu, pembentukan senyawa fosfat yang relatif keras pada permukaan paduan magnesium turut berkontribusi terhadap peningkatan kekerasan. Struktur lapisan yang padat juga mengurangi kemungkinan terjadinya deformasi lokal akibat distribusi tegangan yang tidak merata. Temuan ini sejalan dengan penelitian Chen *et al.* [31] yang menyatakan bahwa lapisan fosfat mampu meningkatkan kekerasan permukaan melalui pembentukan struktur padat pada antarmuka lapisan–substrat.

Peningkatan kekerasan permukaan pada kondisi pH rendah juga menunjukkan hubungan yang erat dengan peningkatan ketahanan korosi material. Lapisan dengan kekerasan tinggi umumnya memiliki struktur yang lebih padat dan homogen dibandingkan lapisan dengan kekerasan rendah. Kondisi ini menyebabkan lapisan lebih efektif dalam menahan penterasi dan deformasi mekanik, sekaligus menghambat difusi ion korosif. Selain itu, struktur yang rapat menunjukkan bahwa proses nukleasi lebih dominan dibandingkan pertumbuhan kristal selama pembentukan lapisan. Oleh karena itu, kekerasan permukaan dapat digunakan sebagai indikator tidak langsung terhadap kualitas mikrostruktur dan performa perlindungan korosi lapisan PCC.

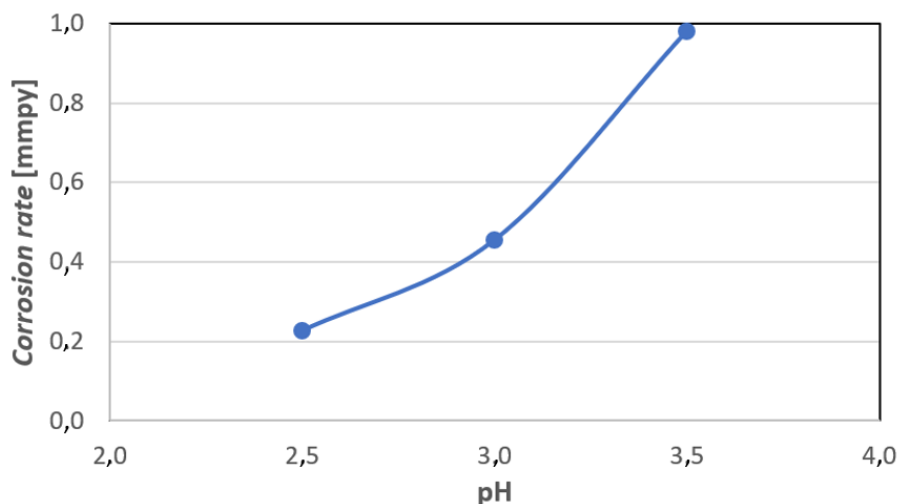
Perilaku Korosi dan Laju Korosi dalam Media SBF

Pengujian ketahanan korosi dilakukan menggunakan metode *potentiodynamic polarization* dalam media SBF sederhana berupa larutan infus NaCl 0,9%. Metode ini digunakan untuk mengevaluasi parameter elektrokimia, seperti potensial korosi (E_{corr}) dan densitas arus korosi (I_{corr}). Hasil pengujian yang ditunjukkan pada Gambar 6 memperlihatkan bahwa nilai E_{corr} dan I_{corr} dipengaruhi secara signifikan oleh pH larutan pelapis PCC. Spesimen dengan pH pelapisan lebih rendah menunjukkan nilai I_{corr} yang lebih kecil, yang mengindikasikan laju korosi yang lebih rendah. Hal ini menunjukkan bahwa kondisi pelapisan yang lebih asam menghasilkan lapisan yang lebih efektif dalam melindungi substrat magnesium dari serangan korosif.



Gambar 6. Kurva potentiodynamic polarization (Tafel) paduan magnesium AZ91 berlapis PCC

Hasil perhitungan laju korosi yang disajikan pada Gambar 7 menunjukkan bahwa laju korosi terendah diperoleh pada spesimen dengan pH 2,5. Sebaliknya, laju korosi tertinggi terjadi pada kondisi pH 3,5 yang menunjukkan performa perlindungan yang lebih rendah. Lapisan yang terbentuk pada pH 2,5 memiliki struktur yang lebih padat, halus, dan homogen, sehingga mampu menghambat difusi ion Cl^- dari media SBF menuju substrat magnesium. Sebaliknya, pada pH 3,5, lapisan yang terbentuk cenderung lebih berpori dan tidak homogen. Kondisi ini memungkinkan penetrasi ion agresif ke dalam lapisan dan mempercepat proses korosi pada substrat.

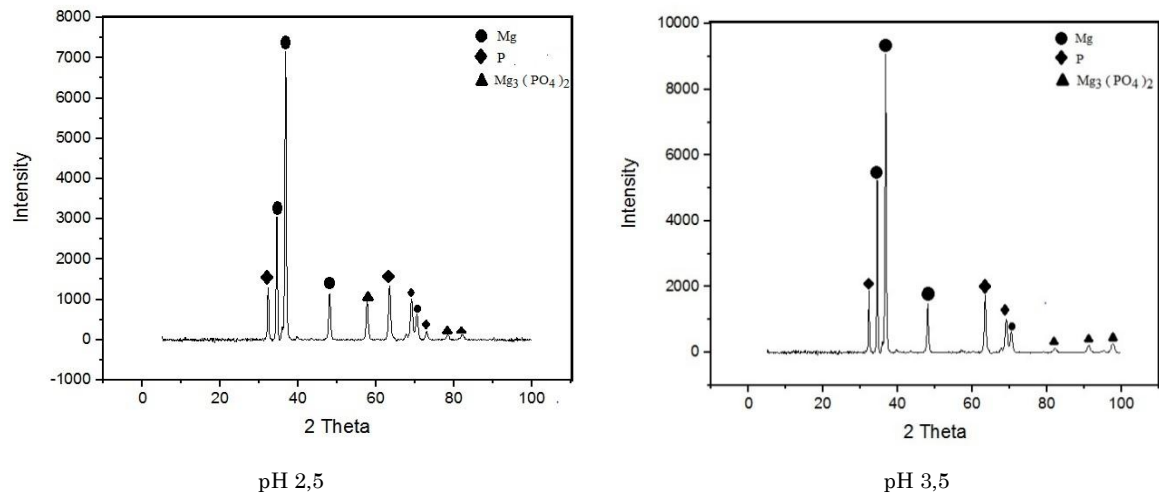


Gambar 7. Laju korosi paduan magnesium AZ91 berlapis PCC pada variasi pH larutan pelapis menggunakan metode *potentiodynamic polarization* dalam media SBF

Fenomena ini konsisten dengan mekanisme kinetika reaksi pembentukan lapisan fosfat yang sangat dipengaruhi oleh pH larutan pelapis. Penurunan tingkat keasaman larutan menyebabkan berkurangnya ketersediaan ion fosfat aktif dan menurunkan laju pelarutan awal magnesium, sehingga menghambat proses nukleasi lapisan. Akibatnya, pembentukan lapisan konversi menjadi kurang optimal dan menghasilkan struktur yang lebih kasar serta berpori pada pH yang lebih tinggi. Lapisan dengan kerapatan rendah tersebut memiliki kemampuan terbatas dalam menghambat difusi ion agresif, khususnya ion Cl^- , menuju permukaan substrat magnesium. Kondisi ini mempercepat terjadinya reaksi elektrokimia yang menyebabkan peningkatan laju korosi. Oleh karena itu, efektivitas lapisan konversi fosfat sangat bergantung pada kondisi pH selama proses pelapisan, sebagaimana hasil penelitian sebelumnya [10], [24], [25].

Identifikasi Fasa Kristalin Lapisan

Pengujian XRD dilakukan untuk mengidentifikasi fasa kristalin yang terbentuk pada lapisan PCC pada kondisi pH 2,5 dan 3,5 dengan temperatur 80 °C. Difraktogram yang ditunjukkan pada Gambar 8 memperlihatkan puncak-puncak difraksi yang teridentifikasi berkaitan dengan senyawa magnesium fosfat, khususnya $Mg_3(PO_4)_2$. Identifikasi fasa ini menunjukkan bahwa proses pelapisan berhasil membentuk senyawa fosfat pada permukaan paduan magnesium AZ91. Selain itu, keberadaan puncak difraksi tertentu menunjukkan tingkat kristalinitas lapisan yang berbeda pada masing-masing kondisi pH. Variasi intensitas dan ketajaman puncak difraksi mengindikasikan perbedaan ukuran kristalit dan keteraturan struktur kristal yang terbentuk. Dengan demikian, analisis XRD memberikan informasi penting mengenai struktur kristalin lapisan PCC yang terbentuk.



Gambar 8. Difraktogram XRD lapisan PCC pada paduan magnesium AZ91 yang dibentuk pada temperatur 80 °C dengan variasi pH 2,5 dan 3.5

Lapisan yang terbentuk pada pH 3,5 menunjukkan intensitas puncak difraksi yang lebih tinggi, yang mengindikasikan derajat kristalinitas yang lebih besar. Hal ini menunjukkan bahwa pertumbuhan kristal magnesium fosfat pada pH 3,5 berlangsung lebih dominan dibandingkan proses nukleasi. Pertumbuhan kristal yang lebih terarah menghasilkan ukuran kristal yang lebih besar dan struktur yang lebih teratur. Namun demikian, kristalinitas yang tinggi tidak selalu berkorelasi dengan ketahanan korosi yang lebih baik. Kristal berukuran besar cenderung membentuk batas butir dan celah antarbutir yang meningkatkan porositas lapisan. Akibatnya, lapisan yang lebih kristalin dapat memiliki efektivitas perlindungan yang lebih rendah dibandingkan lapisan yang lebih rapat dan homogen.

Sebaliknya, pada pH 2,5, intensitas puncak difraksi yang lebih rendah menunjukkan bahwa lapisan bersifat semi-amorf dengan ukuran kristal yang lebih kecil. Kondisi ini menunjukkan bahwa proses nukleasi lebih dominan dibandingkan pertumbuhan kristal selama pembentukan lapisan. Struktur semi-amorf yang terbentuk menghasilkan lapisan yang lebih rapat dan homogen pada permukaan substrat. Selain itu, ukuran kristal yang kecil mengurangi terbentuknya celah antarbutir yang menjadi jalur penetrasi ion agresif. Oleh karena itu, lapisan pada pH rendah menunjukkan kemampuan perlindungan yang lebih baik terhadap korosi dibandingkan dengan lapisan yang lebih kristalin.

Perbedaan karakteristik kristalin ini juga berkorelasi dengan hasil pengujian sifat mekanik dan ketahanan korosi yang telah dibahas sebelumnya. Lapisan semi-amorf pada pH 2,5 yang lebih rapat dan homogen menghasilkan nilai kekerasan yang lebih tinggi serta laju korosi yang lebih rendah. Sebaliknya, lapisan yang lebih kristalin pada pH 3,5 cenderung memiliki porositas lebih tinggi, sehingga kekerasan yang dihasilkan lebih rendah dan laju korosi meningkat. Hal ini menunjukkan bahwa tidak hanya komposisi fasa, tetapi juga mikrostruktur kristalin memiliki peran penting dalam menentukan performa lapisan. Dengan demikian, hubungan antara kristalinitas, kekerasan dan ketahanan korosi menunjukkan konsistensi antar hasil karakterisasi

yang diperoleh. Temuan ini sejalan dengan penelitian Chen *et al.* [22] dan Zhang *et al.* [31] yang menyatakan bahwa karakteristik mikrostruktur lapisan sangat mempengaruhi ketahanan korosi paduan magnesium.

Secara keseluruhan, hasil penelitian ini menunjukkan bahwa parameter pH dan temperatur pada proses *phosphate conversion coating* berpengaruh signifikan terhadap karakteristik lapisan yang terbentuk. Variasi parameter tersebut mempengaruhi ketebalan, morfologi, sifat mekanik permukaan, struktur kristalin, serta ketahanan korosi paduan magnesium AZ91. Peningkatan temperatur dan penurunan pH terbukti mampu meningkatkan kinetika reaksi pembentukan lapisan, sehingga menghasilkan lapisan dengan karakteristik yang lebih baik. Lapisan yang terbentuk pada pH rendah dan temperatur tinggi menunjukkan performa yang lebih baik, ditandai dengan ketebalan yang lebih tinggi, morfologi yang lebih rapat dan homogen, serta peningkatan kekerasan permukaan. Selain itu, hasil ini juga menunjukkan bahwa keseimbangan antara kristalinitas dan kerapatan lapisan merupakan faktor kunci dalam menentukan efektivitas perlindungan. Oleh karena itu, pengendalian parameter proses PCC menjadi sangat penting untuk mengoptimalkan performa lapisan pada aplikasi biomaterial.

KESIMPULAN

Penelitian ini menunjukkan bahwa *phosphate conversion coating* secara efektif meningkatkan ketahanan korosi paduan magnesium AZ91 dalam lingkungan *simulated body fluids* (SBF), dimana kinerja lapisan sangat dipengaruhi oleh pH dan temperatur proses pelapisan. Peningkatan temperatur dan penurunan pH terbukti meningkatkan kinetika reaksi pembentukan lapisan, sehingga menghasilkan lapisan dengan ketebalan, kerapatan, dan kekerasan yang lebih tinggi serta laju korosi yang lebih rendah. Kondisi optimum diperoleh pada pH 2,5 dan temperatur 80 °C, yang menghasilkan lapisan paling rapat, homogen, dan memiliki laju korosi terendah. Selain itu, kristalinitas lapisan juga berperan penting, dimana lapisan semi-amorf dengan ukuran kristal lebih kecil menunjukkan perlindungan korosi yang lebih efektif dibandingkan lapisan yang lebih kristalin namun berpori. Secara keseluruhan, hasil penelitian ini menunjukkan bahwa pengendalian pH dan temperatur dalam proses PCC merupakan faktor kunci dalam mengoptimalkan mikrostruktur, sifat mekanik, dan ketahanan korosi paduan magnesium AZ91 untuk aplikasi biomaterial *biodegradable*.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] Y. Xin, K. Huo, T. Hu, G. Tang, and P. K. Chu, "Corrosion products on biomedical magnesium alloy soaked in simulated body fluids," *J. Mater. Res.*, vol. 24, no. 8, pp. 2711–2719, Aug. 2009, doi: 10.1557/JMR.2009.0323.
- [2] R. Zeng, W. Dietzel, F. Witte, N. Hort, and C. Blawert, "Progress and challenge for magnesium alloys as biomaterials," *Adv. Eng. Mater.*, vol. 10, no. 8, pp. B3–B14, Aug. 2008, doi: 10.1002/ADEM.200800035;JOURNAL:JOURNAL:15272648;WGROU:STRING:PUBLICATION.
- [3] B. Heublein, R. Rohde, V. Kaese, M. Niemeyer, W. Hartung, and A. Haverich, "Biocorrosion of magnesium alloys: a new principle in cardiovascular implant technology?," *Heart*, vol. 89, no. 6, pp. 651–656, Jun. 2003, doi: 10.1136/HEART.89.6.651.
- [4] G. Song and S. Song, "A possible biodegradable magnesium implant material," *Adv. Eng. Mater.*, vol. 9, no. 4, pp. 298–302, Apr. 2007, doi: 10.1002/ADEM.200600252;WGROU:STRING:PUBLICATION.
- [5] G. Song and A. Atrens, "Understanding Magnesium Corrosion—A Framework for Improved Alloy Performance," *Adv. Eng. Mater.*, vol. 5, no. 12, pp. 837–858, Dec. 2003, doi: 10.1002/ADEM.200310405.
- [6] S. S. H. V. Voleti, S. Ambuj, T. Sathish, and B. Ratna Sunil, "Comparative Study on the Biodegradation Behavior of Pure Mg in NaCl Solution and Simulated Body Fluids," *Adv. Sci. Technol.*, vol. 120, pp. 69–73, 2022, doi: 10.4028/P-GRWES4.

- [7] Y. Xin, C. Liu, X. Zhang, G. Tang, X. Tian, and P. K. Chu, "Corrosion behavior of biomedical AZ91 magnesium alloy in simulated body fluids," *J. Mater. Res.*, vol. 22, no. 7, p. 2004, Jul. 2007, doi: 10.1557/jmr.2007.0233.
- [8] D. Liu, Y. Li, Y. Zhou, and Y. Ding, "The Preparation, Characterization and Formation Mechanism of a Calcium Phosphate Conversion Coating on Magnesium Alloy AZ91D," *Mater.* 2018, Vol. 11, Page 908, vol. 11, no. 6, p. 908, May 2018, doi: 10.3390/MA11060908.
- [9] H. Fatima *et al.*, "Hydrothermally Deposited Mg Phosphate Coatings Improve Pure Mg Substrate's Biocompatibility and Corrosion Resistance for Biomedical Applications," *Asia-Pacific J. Chem. Eng.*, vol. 20, no. 5, p. e70089, Sep. 2025, doi: 10.1002/APJ.70089;SUBPAGE:STRING:ABSTRACT;WEBSITE:WEBSITE:PERICLES;REQUESTEDJOURNAL:JOURNAL:19322143;ISSUE:ISSUE:DOI.
- [10] X. Lu *et al.*, "Formation Mechanism and Corrosion Performance of Phosphate Conversion Coatings on AZ91 and Mg-Gd-Y-Zr Alloy," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 165, no. 10, p. C601, Jul. 2018, doi: 10.1149/2.0221810JES.
- [11] C. S. Lin, H. C. Lin, K. M. Lin, and W. C. Lai, "Formation and properties of stannate conversion coatings on AZ61 magnesium alloys," *Corros. Sci.*, vol. 48, no. 1, p. 93, Jan. 2006, doi: 10.1016/j.corsci.2004.11.023.
- [12] T. Wu and K. Zhang, "Corrosion and Protection of Magnesium Alloys: Recent Advances and Future Perspectives," *Coatings*, vol. 13, no. 9, 2023, doi: 10.3390/coatings13091533.
- [13] Y. Song, D. Shan, R. Chen, F. Zhang, and E. H. Han, "Biodegradable behaviors of AZ31 magnesium alloy in simulated body fluid," *Mater. Sci. Eng., C*, vol. 29, no. 3, p. 1039, Apr. 2009, doi: 10.1016/j.msec.2008.08.026.
- [14] G. Duan *et al.*, "Designing for the chemical conversion coating with high corrosion resistance and low electrical contact resistance on AZ91D magnesium alloy," *Corros. Sci.*, vol. 135, p. 197, May 2018, doi: 10.1016/j.corsci.2018.02.051.
- [15] L. Yang, N. Hort, R. Willumeit, and F. Feyerabend, "Effects of corrosion environment and proteins on magnesium corrosion," *Corros. Eng. Sci. Technol.*, vol. 47, no. 5, pp. 335–339, Aug. 2012, doi: 10.1179/1743278212Y.0000000024.
- [16] Y. Su, Y. Su, Y. Lu, J. Lian, and G. Li, "Composite Microstructure and Formation Mechanism of Calcium Phosphate Conversion Coating on Magnesium Alloy," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 163, no. 9, p. G138, 2016, doi: 10.1149/2.0801609jes.
- [17] F. Soleymani, R. Emadi, and S. Sadeghzade, "Bioactivity Behavior Evaluation of PCL-Chitosan-Nanobaghdadite Coating on AZ91 Magnesium Alloy in Simulated Body Fluid," *Coatings*, vol. 10, no. 231, 2020, doi: <https://doi.org/10.3390/coatings10030231>.
- [18] W. Q. Zhou, D. Y. Shan, E.-H. Han, and W. Ke, "Phosphate Conversion Coating on Diecast AZ91D and Its Corrosion Resistance," *Mater. Sci. Forum*, vol. 488–489, pp. 819–822, Jul. 2005, doi: 10.4028/WWW.SCIENTIFIC.NET/MSF.488-489.819.
- [19] MatWeb, "Magnesium AZ91D-F, Cast." *MatWeb Material Property Data*, n.d. <https://www.matweb.com/search/datasheet.aspx?MatGUID=07baafb9c364fb18fd413bcecd867f&ckck=1> (accessed Mar. 31, 2026).
- [20] ASTM International, "Standard Practice for Calculation of Corrosion Rates and Related Information from Electrochemical Measurements," vol. 89, no. Reapproved, 1999.
- [21] X. Gu, Y. Zheng, Y. Cheng, S. Zhong, and T. Xi, "In vitro corrosion and biocompatibility of binary magnesium alloys," *Biomaterials*, vol. 30, no. 4, p. 484, Feb. 2009, doi: 10.1016/j.biomaterials.2008.10.021.
- [22] J. E. Gray and B. Luan, "Protective coatings on magnesium and its alloys - A critical review," *J. Alloys Compd.*, vol. 336, no. 1–2, pp. 88–113, Apr. 2002, doi: 10.1016/S0925-8388(01)01899-0.
- [23] M. P. Staiger, A. M. Pietak, J. Huadmai, and G. Dias, "Magnesium and its alloys as orthopedic biomaterials: A review," *Biomaterials*, vol. 27, no. 9, p. 1728, Mar. 2006, doi:

10.1016/j.biomaterials.2005.10.003.

- [24] W. Zai, Y. Su, H. C. Man, J. Lian, and G. Li, "Effect of pH value and preparation temperature on the formation of magnesium phosphate conversion coatings on AZ31 magnesium alloy," *Appl. Surf. Sci.*, vol. 492, pp. 314–327, Oct. 2019, doi: 10.1016/J.APSUSC.2019.05.309.
- [25] S. Zhang, Y. Xu, L. Liu, Q. Lei, J. Dong, and T. Zhang, "Preparation of Conductive and Corrosion Resistant Phosphate Conversion Coating on AZ91D Magnesium Alloy," *Coatings*, vol. 13, no. 10, 2023, doi: 10.3390/coatings13101706.