

STUDI AWAL PREPARASI FILM TIPIS BAHAN MAGNET CoFe_2O_4 DENGAN METODE SOL GEL DAN KARAKTERISASINYA

T. SARAGI[†], N. SYAKIR, T. H. NAINGGOLAN, C. ALBOIN

Prodi Fisika FMIPA, Universitas Padjadjaran, Jl. Raya Bandung-Sumedang km.21
Jatinangor, Sumedang 45363, Indonesia

Abstrak. Telah berhasil disintesis bahan magnetik CoFe_2O_4 dengan metode sol gel. Prekursor Co^{2+} $[\text{Co}(\text{CH}_3\text{COO}_2)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}]$ dan prekursor Fe^{3+} $[\text{Fe}(\text{CH}_3\text{COO}_2)_2 \cdot 2.9\text{H}_2\text{O}]$ dicampur dengan variasi mol persen Co^{2+} : 33%, 40% dan 50%, dilarutkan dalam 2-methaoxyethanol (100 cc) dan diethanolamine (2 cc) dan direfluks pada suhu 70°C selama 12 jam. Hasil pengukuran XRD menunjukkan bahwa phase kristal CoFe_2O_4 sudah terbentuk, walaupun masih mengandung impuritas Fe_2O_4 atau Fe_3O_4 . Hasil pengukuran Vibrating Sample Magnetometer (VSM) menunjukkan telah terbentuk proses magnetisasi baik pada sampel target dan lapisan tipis. Parameter karakteristik magnetik sampel target dengan 33% Co adalah $M_r = 5,3277$ emu/gr, $H_c = 138,8$ Oe. Sedangkan parameter karakteristik magnetik sampel lapisan tipis 33% Co adalah $m_r = 1,8261 \times 10^{-4}$ emu, $H_c = 651,064$ Oe, sampel lapisan tipis 40% Co adalah $m_r = 3,5997 \times 10^{-4}$ emu, $H_c = 426,4633$ Oe, dan sampel lapisan tipis 50% Co adalah $m_r = 3,8984 \times 10^{-4}$ emu, $H_c = 542,5$ Oe. Sampel lapisan tipis menunjukkan bahwa karakteristik *easy-axis* terjadi pada aplikasi medan magnetik tegak lurus bidang sampel. Peningkatan nilai saturasi magnetik sebanding dengan peningkatan persentasi mol Co^{2+} .

Kata kunci : CoFe_2O_4 , sol gel, hysteresis loop, magnetisasi, koercive field

Abstract. We have successfully synthesized magnetic material CoFe_2O_4 with sol gel method. Precursor Co^{2+} $[\text{Co}(\text{CH}_3\text{COO}_2)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}]$ and precursors Fe^{3+} $[\text{Fe}(\text{CH}_3\text{COO}_2)_2 \cdot 2.9\text{H}_2\text{O}]$ is mixed with a variety of mole percent of Co^{2+} : 33%, 40% and 50%, dissolved in 2-methaoxyethanol (100 cc) and diethanolamine (2cc) and refluxed at 70°C temperature for 12 hours. XRD measurement results showed that the crystal phase CoFe_2O_4 been formed, although it still contains impurities Fe_2O_4 or Fe_3O_4 . Vibrating Sample Magnetometer measurement results (VSM) shows the magnetization process has been established both in the target sample and a thin layer. Parameters of the magnetic characteristics of the target sample with 33% Co was $M_r = 5.3277$ emu / g, $H_c = 138.8$ Oe. While the parameters of the magnetic characteristics of the thin film sample 33% Co is $M_r = 1,8261 \times 10^{-4}$ emu, $H_c = 651.064$ Oe, a thin layer of the sample 40% Co is $m_r = 3,5997 \times 10^{-4}$ emu, $H_c = 426.4633$ Oe and a thin layer of the sample 50% Co is $m_r = 3,8984 \times 10^{-4}$ emu, $H_c = 542.5$ Oe. Thin layer samples shows that the characteristics of the easy-axis occurs in the magnetic field perpendicular to the application field of the sample. Increasing the value of magnetic saturation is proportional to the increase in the percentage of moles of Co^{2+} .

Keywords : CoFe_2O_4 , sol gel, hysteresis loop, magnetisation , koercive field

1. Pendahuluan

Film tipis permanen magnetik dari bahan ferrite sangat menarik dalam aplikasi industri sebagai media perekam berkapasitas (densitas) tinggi. Hal ini disebabkan karena bahan ini memiliki magnetisasi saturasi yang cukup tinggi (80 emu/gr), koersivitas yang tinggi (5400 Oe), sifat mekanik yang kuat dan kestabilan kimia [1]. M. William, dkk., melaporkan bahwa media perekam berkapasitas (densitas) tinggi memerlukan lebar transisi yang kecil, dan sebanding dengan M_{rt}/H_c , dimana M_r adalah magnetisasi remanen, t adalah ketebalan lapisan tipis dan H_c adalah koersivitas magnetik [2]. Karakteristik ini merupakan syarat penting dalam pengembangan kontak media perekam khususnya dalam preparasi ketebalan lapisan tipis dan ukuran nanopartikel. Untuk mengoptimalkan kapasitas media perekam, preparasi lapisan tipis dapat juga dibuat dalam bentuk nanokomposit dari partikel-partikel logam atau oksida yang didispersikan dalam matriks polymer,

[†] email : t.saragi@phys.unpad.ac.id

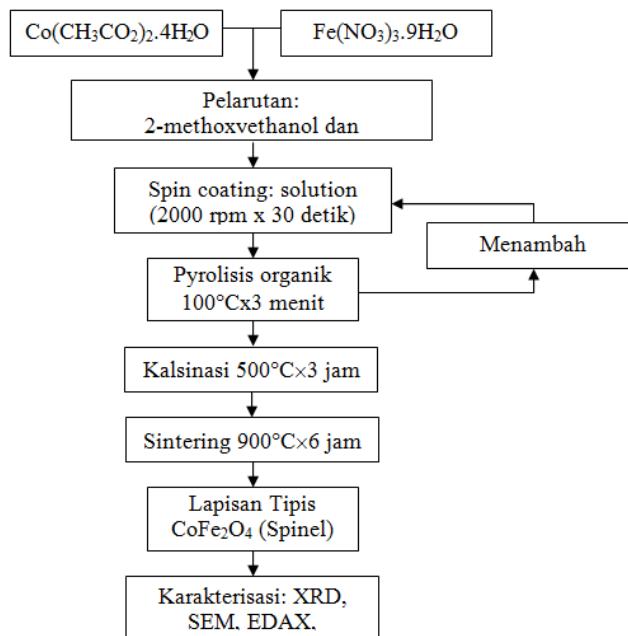
keramic atau vitreous [3], khususnya dalam matriks insulator [4]. Metode ini mampu menghasilkan nanopartikel yang memiliki rasio permukaan/volum yang jauh lebih tinggi dibandingkan dengan bulk.

Beberapa metode yang dapat digunakan untuk preparasi lapisan tipis magnet ferrite adalah laser ablation, sputtering dan ion beam [5,6,7,8]. Namun untuk aplikasi praktis bahan ini pada media perekam magnetik, maka metode sol-gel merupakan alternatif yang sangat baik, khususnya dalam preparasi film tipis ultra-fine particle yang didispersikan dalam berbagai matriks. Morfologi sampel, texture, struktur dan komposisi kimia dapat diperoleh secara teliti melalui kontrol parameter preparasi [9].

Cobalt ferrite (CoFe_2O_4) adalah oksida cubik dengan struktur inverse spinel [9]. Dalam hal ini sisi oktahedral B diisi oleh 8 kation Co^{2+} dan 8 kation Fe^{3+} , sedangkan sisi tetrahedral A diisi oleh 8 kation Fe^{3+} sisa. Bahan ini memiliki magnetisasi saturasi dan anisotropi magneto-kristalin yang tinggi ($K_1 = +2 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$), saturasi magnetik (33.44 kWb/m^2), stabilitas kimia yang tinggi dan sifat mekanik yang kuat [10,11,12], dan akan menjadi generasi baru dalam pengembangan disk magneto-optical (MO) [13], millimetre-wave filters, phase shifters dan non-reciprocal devices with frequency tuning provided by an external magnetic field [14, 15], Coplanar Waveguides (CPWs) dalam microwave integrated circuits (MICs) dan monolithic microwave integrated circuits (MMICs) [16,17,18]. Kapasitas/Kerapatan linier yang tinggi (*High linear densities*) sangat mungkin dicapai dengan adanya lebar transisi yang sangat sempit pada perbandingan M_r t/ H_c , dimana M_r adalah magnetisasi remanen, t adalah ketebalan film tipis dan H_c adalah koersivity.

2. Eksperimen

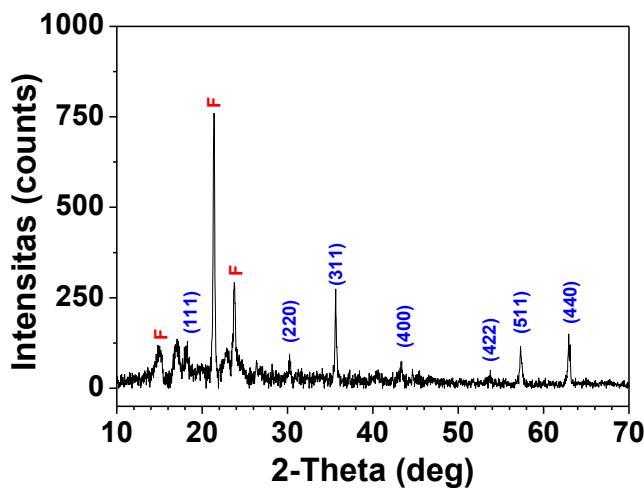
Dalam penelitian ini akan dilakukan preparasi film tipis permanen magnet dari bahan cobalt ferrite dengan metode sol-gel tanpa kontrol pH, sebagai studi awal proses pembentukan kristal CoFe_2O_4 . Tahapan eksperimen secara lengkap ditampilkan pada diagram alir seperti pada Gambar 1 berikut::



Gambar 1. Diagram alir tahapan eksperimen

3. Hasil dan Pembahasan

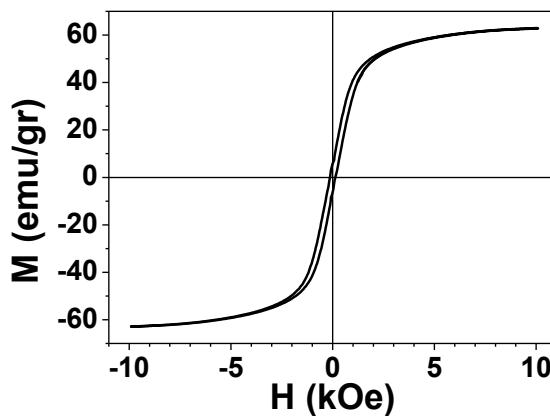
Hasil pengukuran XRD target CoFe_2O_4 setelah proses sintering ditunjukkan pada Gambar 2 berikut:



Gambar 2. Pola XRD target CoFe_2O_4 sesudah sintering. F adalah pengotor Fe_2O_3 atau Fe_3O_4 yang puncaknya berdekatan

Dari hasil pengukuran XRD ditunjukkan bahwa bahan magnet CoFe_2O_4 telah menghasilkan phase kristal, namun masih memiliki impuritas Fe_2O_3 atau Fe_3O_4 yang mengakibatkan berkurangnya fraksi volume CoFe_2O_4 .

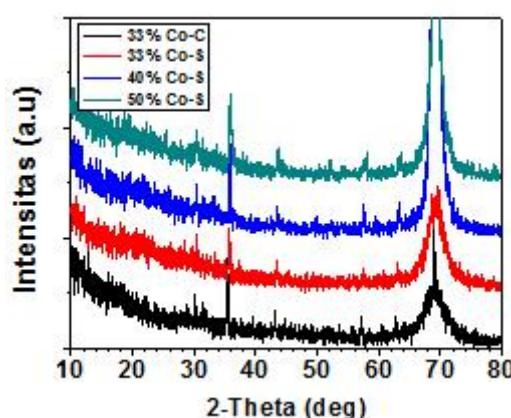
Hasil pengukuran Vibrating Sample Magnetometer (VSM) CoFe_2O_4 dengan perbandingan mol persen Co (33%) dan Fe (67%) ditunjukkan pada Gambar 3 berikut.



Gambar 3. Hasil pengukuran magnetisasi sampel CoFe_2O_4 dengan perbandingan mol persen Co (33%) dan Fe (67%)

Dari hasil pengukuran tersebut diperoleh karakteristik magnetik magnetisasi remanen (M_r) adalah 5,3277 emu/gr, medan koercive (H_c) adalah 0,1388 kOe (138,8 Oe). Secara keseluruhan serbuk/target telah menghasilkan karakteristik kristal dan magnetik yang relatif baik.

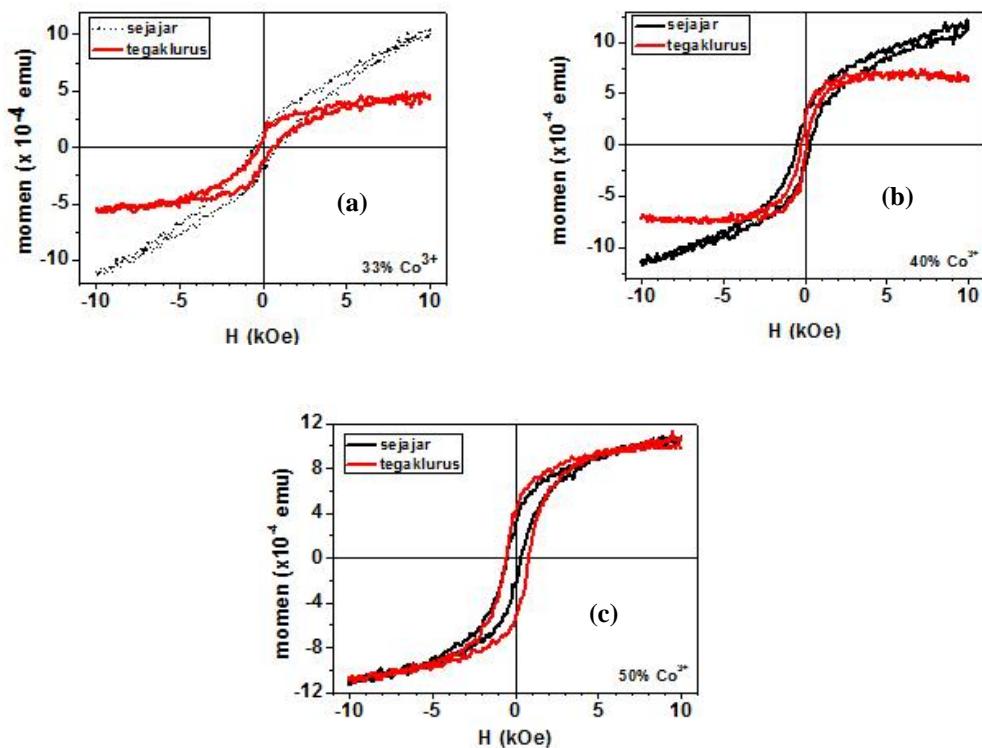
Gambar 4 menunjukkan hasil XRD lapisan tipis CoFe_2O_4 pada berbagai perbandingan komposisi Co dan Fe. Kurva (hitam) adalah sampel dengan perbandingan persentasi mol 33% Co dan 67% Fe setelah kalsinasi suhu 500°C selama 3 jam, warna merah adalah sampel dengan perbandingan persentasi mol 33% Co dan 67% Fe setelah sintering pada suhu 900°C selama 6 jam, warna biru adalah sampel dengan perbandingan persentasi mol 40% Co dan 60% Fe setelah sintering 900°C selama 6 jam, dan warna hijau adalah sampel dengan perbandingan persentasi mol 50% Co dan 50% Fe setelah sintering 900°C selama 6 jam. Dari hasil XRD dapat dianalisa bahwa puncak CoFe_2O_4 terdapat pada $2\theta = 30^\circ, 35^\circ$ dan 57° , namun impuritas Fe_3O_4 muncul pada $2\theta = 22^\circ - 24^\circ$. Pada sudut 57° terdapat puncak CoFe_2O_4 dan Fe_2O_3 yang sangat berdekatan.



Gambar 4. Pola XRD lapisan tipis CoFe_2O_4 dengan variasi persentasi komposisi Co^{2+} dan Fe^{3+}

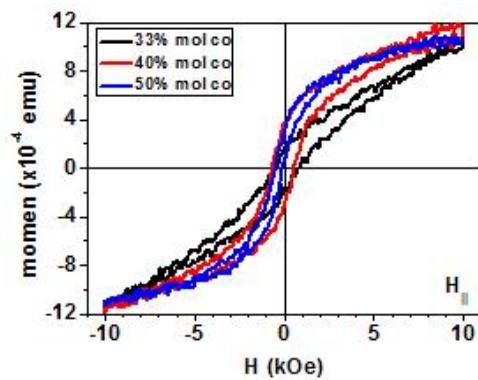
Secara keseluruhan kristal sampel yang dihasilkan belum memiliki kualitas yang baik, sebagaimana ditunjukkan melalui intensitas puncak yang masih relatif kecil ditambah dengan munculnya fase selain CoFe_2O_4 . Hal ini kemungkinan disebabkan adanya reaksi yang belum sempurna pada proses sol gel sebagaimana dihasilkan pada sampel serbuk/target. Beberapa faktor yang mempengaruhi stabilitas dalam larutan dan stabilitas untuk aplikasi *spin coating* adalah: pH larutan, konsentrasi ion-ion logam, suhu preparasi, viskositas larutan prekursor, dan putaran *spin coating*. Tiga bagian pertama sangat berperan dalam preparasi dengan metode sol gel, sedangkan dua bagian terakhir sangat berperan dalam preparasi lapisan tipis dengan metode spin coating. Kualitas kristal ini juga akan menyebabkan karakteristik magnetik yang belum optimal [19].

Hasil pengukuran Vibrating Sampel Magnetometre (VSM) sampel lapisan tipis setelah sintering pada suhu 900°C selama 6 jam ditunjukkan pada Gambar 5 dengan perbandingan persentasi mol (a). 33% Co dan 67% Fe, (b). 40% Co dan 60% Fe, dan (c). 50% Co dan 50% Fe. Warna hitam menyatakan karakteristik magnetisasi pada medan aplikasi \mathbf{H} sejajar permukaan lapisan tipis, sedangkan warna merah menyatakan karakteristik magnetisasi pada medan aplikasi \mathbf{H} tegak lurus permukaan lapisan tipis. Dari hasil pengukuran tersebut dapat dinyatakan bahwa penambahan komposisi Co^{2+} akan menyebabkan *easy-axis* tidak terorientasi pada arah tertentu. Pada sampel (a) terlihat jelas perbedaan magnetisasi terhadap medan aplikasi yang searah bidang dan regak lurus bidang, yang mengindikasikan bahwa *easy-axisnya* adalah tegak lurus bidang, kemudian pada gambar (b) perbedaan proses magnetisasi dengan medan aplikasi sejajar maupun tegak lurus bidang mulai berkurang, dan akhirnya pada sampel (c) *easy-axis* nya relatif berimpit. Dengan demikian penambahan persentasi mol Co^{2+} mampu meningkatkan karakteristik *easy-axis* magnetisasi lapisan tipis.

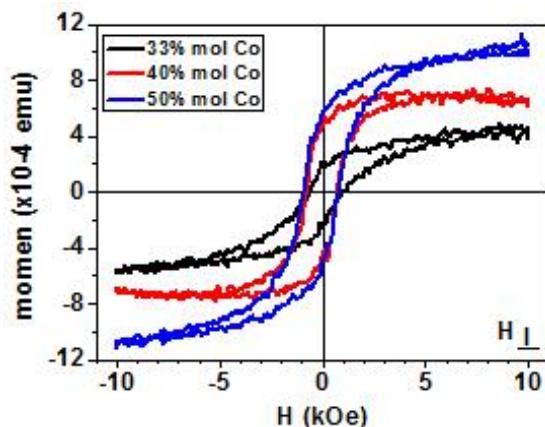


Gambar 5. Grafik VSM lapisan tipis CoFe_2O_4 pada \mathbf{H} sejajar bidang sampel (warna hitam) dan \mathbf{H} tegak lurus bidang sampel (warna merah) dengan perbandingan persen mol (a) 33% Co^{2+} dan 67% Fe^{3+} , (b) 40% Co^{2+} dan 60% Fe^{3+} , dan (c) 50% Co^{2+} dan 50% Fe^{3+} .

Gambar 6 menunjukkan kurva megnetisasi ketiga lapisan tipis dengan medan aplikasi sejajar bidang. Dari gambar di atas diperlihatkan bahwa semakin besar komposisi ion Co^{2+} akan menyebabkan saturasi magnetisasi yang semakin bagus. Hal ini mengindikasikan bahwa komposisi ion Co^{2+} dalam struktur tetrahedral memberikan kontribusi momen dipol yang efektif. Hal ini berbeda dibandingkan dengan kurva hysteresis loop dalam aplikasi medan magnet tegak lurus bidang seperti yang ditunjukkan pada Gambar 7. Dalam aplikasi medan magnet tegak lurus bidang, kurva hysteresis loopnya nampak terlihat dengan bagus disertai dengan peningkatan nilai saturasi magnetik walaupun nilai momen remanennya relatif sama.



Gambar 6. Grafik VSM lapisan tipis CoFe_2O_4 dengan variasi % mol Co^{2+} (\mathbf{H} sejajar bidang).



Gambar 7. Grafik VSM lapisan tipis CoFe_2O_4 dengan variasi % mol Co^{2+} (\mathbf{H} tegak lurus bidang)

Nilai momen remanen dan medan koercive lapisan tipis CoFe_2O_4 terhadap persentase mol ion logam Co dan Fe ditunjukkan pada Tabel 3. Dari Tabel 1 terlihat bahwa nilai momen remanen dan medan koercive meningkat terhadap penambahan ion logam Co dan Fe.

Tabel 1. Nilai parameter magnetik lapisan $\text{CoFe}_2\text{O}_4/\text{SiO}_2$, dengan aplikasi medan magnet, \mathbf{H} tegak lurus bidang sampel

| No | % mol Co | % mol Fe | $m_r (\times 10^{-4} \text{emu})$ | $H_c (\text{Oe})$ |
|----|----------|----------|-----------------------------------|-------------------|
| 1 | 33 | 67 | 1,8261 | 426,4630 |
| 2 | 40 | 60 | 3,5997 | 542,5000 |
| 3 | 50 | 50 | 3,8984 | 651,0640 |

4. Kesimpulan

Telah dihasilkan fase kristal bahan magnet CoFe_2O_4 yang dipreparasi dengan metode sol gel tanpa kontrol pH. Karakteristik magnetik target yang dihasilkan adalah $Mr = 5,3277$ emu/gr, dan $H_c = 0,1388$ kOe = 138,8 Oe. Lapisan tipis dengan komposisi mol % Co^{2+} menunjukkan easy axes lapisan ferrite terorientasi secara random. Untuk memperbaiki karakteristik magnetik lapisan ferrite akan dilakukan sintesis sampel dengan mengontrol pH.

Ucapan terima kasih

Penulis mengucapkan terimakasih kepada DIKTI Kementerian Pendidikan Nasional yang telah memberikan bantuan penelitian dalam bentuk Penelitian Hibah Bersaing melalui Dana DIPA BLU Universitas Padjadjaran Tahun Anggaran 2012 sesuai Dengan Surat Keputusan Rektor Universitas Padjadjaran Nomor : 1039/UN6.RKT/KP/2012, Tanggal : 2 Februari 2012.

Daftar Pustaka

1. Jae-Gwang Lee, Jae Yun Park, Young-Jei Oh, Chul Sung Kim, Journal of Applied Physics, 84 (5), 2801-2805, 1998
2. M. Williams and L. Comstock, in AZP Conference Proceedings (AIP, Woodbury, NY, 1971), Vol. 5, 738-742, 1971
3. G. Ennas, A. Mei, A. Musinu, G. Piccaluca, G. Pinna and S. Solinas, Journal. of Non Cryst. Solids, 587, 232-234, 1998

4. L. Armelao, G. Granozzi, E. Todello, P. Colombo, G. Principi, P.P. Lottici, dan G. Antonioli. J. of Non-Cryst. Solids, 435, 192-193, 1995
5. L. Zhang, G.C. Papaefthymiou, R.F. Ziolo, dan J.Y. Ying, Nanostructure Materials, 9, 185, 1997
6. C. Yan, F. Cheng, C. Liao, J. Kuang, Z. Xu, L. Chen, H. Zhao, Z. Liu, Y. Wang, T. Zhu dan G. He, J. Magn. Magn. Mater. 192, 396, 1999
7. C. J. Brinker (Ed), The Physics and Chemistry of Sol Gel Processing, Academic Press, San Diego, 1990
8. N.D.S. Mohallem, L.M. Seara, App. Surf. Sci. 214, 143, 2003
9. C.J. Brinker (Ed), The Physics and Chemistry of Sol-Gel Processing, Academic Press, San Diego, 1990
10. E.S. Murdoch, R.F. Simmons, R. Davidson, IEEE Trans. Magn. 28, 3072, 1992
11. T. Kodama, Y. Kitayama, M.Tsuji dan Y. Tamaura, J. Appl. Phys. 71, 5926, 1992
12. S.A. Chamber, R.F.C. Farrow, S. Maat, M.F. Toney, L. Folks, J.G. Catalano, T.P. Trainor, dan G.E. Brown, J. Mgn. Mgn. Mater. 246, 124, 2001
13. R.K. Kotnala, Bull. Mater. Sci., 15 (2), 149-152, 1992
14. Adam J D, Davis L E, Dionne G F, Schloemann E F and Stitzer S N, IEEE Trans. Microw. Theory Tech. 50, 721, 2002
15. Zihui Wang, Young-Yeal Song, Yiyan Sun, Joshua Bevivino, Mingzhong Wu, V. Veerakumar, Timothy J. Fal, dan Robert E. Camley, Applied Physics Letters, 97, 072509(1 - 3), 2010
16. R.N. Simons, Coplanar Waveguide Circuits, Components, and Systems, John Wiley & Sons, New York, NY, 2001
17. K. Chang, Encyclopedia of RF and Microwave Engineering, John Wiley & Sons, Hoboken, NJ, 2005
18. K.C. Gupta, Microstrip Lines and Slotlines, 2nd ed., Artech House, Norwood, MA, 1996
19. N. Chand Pramanik, tatsuo Fujii, Makoto Nakanishi dan Jun Takada, Journal of Materials Science, 40, 2005.