

Preparasi Film Tipis Nano Magnetik CoFe_2O_4 dengan Metode Sol Gel dan Karakterisasinya untuk Media Pererekam Berkapasitas Tinggi

Togar Saragi, Thomson N, Christian S dan Norman Syakir
Jurusan Fisika Universitas Padjadjaran Bandung
email: t.saragi@phys.unpad.ac.id

Abstrak

Telah berhasil disintesis bahan magnetik CoFe_2O_4 dengan metode sol gel. Prekursor Co^{2+} [$\text{Co}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$] dan prekursor Fe^{3+} [$\text{Fe}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$] dicampur dengan variasi mol persen Co^{2+} : 33%, 40% dan 50%, dilarutkan dalam 2-methoxyethanol (100 cc) dan diethanolamine (2 cc) dan direfluks pada suhu 70°C selama 12 jam. Hasil pengukuran XRD ditunjukkan bahwa kristal CoFe_2O_4 sudah terbentuk. Hasil pengukuran Vibrating Sample Magnetometer (VSM) menunjukkan karakteristik *easy-axis* terjadi pada aplikasi medan magnetik tegak lurus bidang sampel. Parameter karakteristik magnetik sampel target dengan 33% Co adalah $M_r = 5,3277$ emu/gr, $H_c = 138,8$ Oe, $B_r = 65,3859$ kOe, dan $\text{BH}_{\text{maks}} = 2,2804$ MGOe. 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. Peningkatan nilai saturasi magnetik sebanding dengan peningkatan persentasi mol Co^{2+} .

Kata kunci: CoFe_2O_4 , sol gel, nano magnetik, hysteresis loop, magnetisasi saturasi, *koercive field*, media perekam.

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_r/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, keramik 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 magnetik 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, teksture, struktur dan komposisi kimia dapat diperoleh secara teliti melalui kontrol parameter preparasi (9).

Permanen magnet lain yang dapat dikembangkan sebagai media perekam adalah barium ferrite, namun salah satu prekursor $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ sangat mudah eksplosif. Demikian juga dalam hal preparasi, film tipis barium ferrite memerlukan suhu annealing yang tinggi (700 - 950°C) sehingga penggunaan substrat konvensional tidak dapat dilakukan.

Dewasa ini berbagai usaha dilakukan untuk meningkatkan karakteristik magnetik terutama ukuran dan distribusi butiran (10). Interaksi butiran atau kopling antara butiran magnetik akan menjadi sumber noise yang akhirnya akan membatasi kinerja media perekaman pada area densitas yang besar (11). Namun hal ini bisa diatasi melalui preparasi nanomagnetik. Ukuran kristal orde ~ 50 nm akan mampu meminimasi perbandingan sinyal dan noise (signal-to-noise ratio (SNR)) dalam bahan perekam densitas tinggi (ultrahigh density recording (12,13).

Bahan magnet menunjukkan perilaku yang berbeda-beda dalam kehadiran medan magnet, yaitu perubahan medan magnet sampel itu sendiri, atau melalui gaya yang dialami sampel akibat distribusi medan magnet (14). Setiap bahan magnetik dalam skala atom akan menghasilkan arus (kecil) sebagai akibat dari orbit elektron sekitar inti dan spin elektron pada sumbunya. Ketika medan magnet diaplikasikan maka akan terjadi penyearahan dipol-dipol magnetik, dan medium tersebut akan terpolarisasi secara magnetik (termagnetisasi) (15).

Bahan Fe memiliki saturasi magnetisasi yang tinggi 1714 Oe dan setiap cm^3 terdapat momen magnetik sebesar 1700 emu, suatu besaran yang sangat tinggi jika dibandingkan dengan bahan paramagnetik pada medan yang sama yang hanya memiliki magnetisasi sebesar 10^{-3} emu/ cm^3 (16).

Cobalt ferrite (CoFe_2O_4) adalah oksida kubik 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 ($K_1 = +2 \times 10^6$ erg/ cm^3), saturasi magnetik (33.44 kWb/ m^2), stabilitas kimia yang tinggi dan sifat mekanik yang kuat (13,17,18), dan akan menjadi generasi baru dalam pengembangan disk magneto-optical (MO) (19), millimetre-wave filters, phase shifters dan non-reciprocal devices with frequency tuning provided by an external magnetic field (20, 21), Coplanar Waveguides (CPWs) dalam microwave integrated circuits (MICs) dan monolithic microwave integrated circuits (MMICs) (22,23,24). 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.

Karakteristik magnetik dari partikel kecil bergantung pada waktu relaksasi τ , seperti pada peramaan berikut (25):

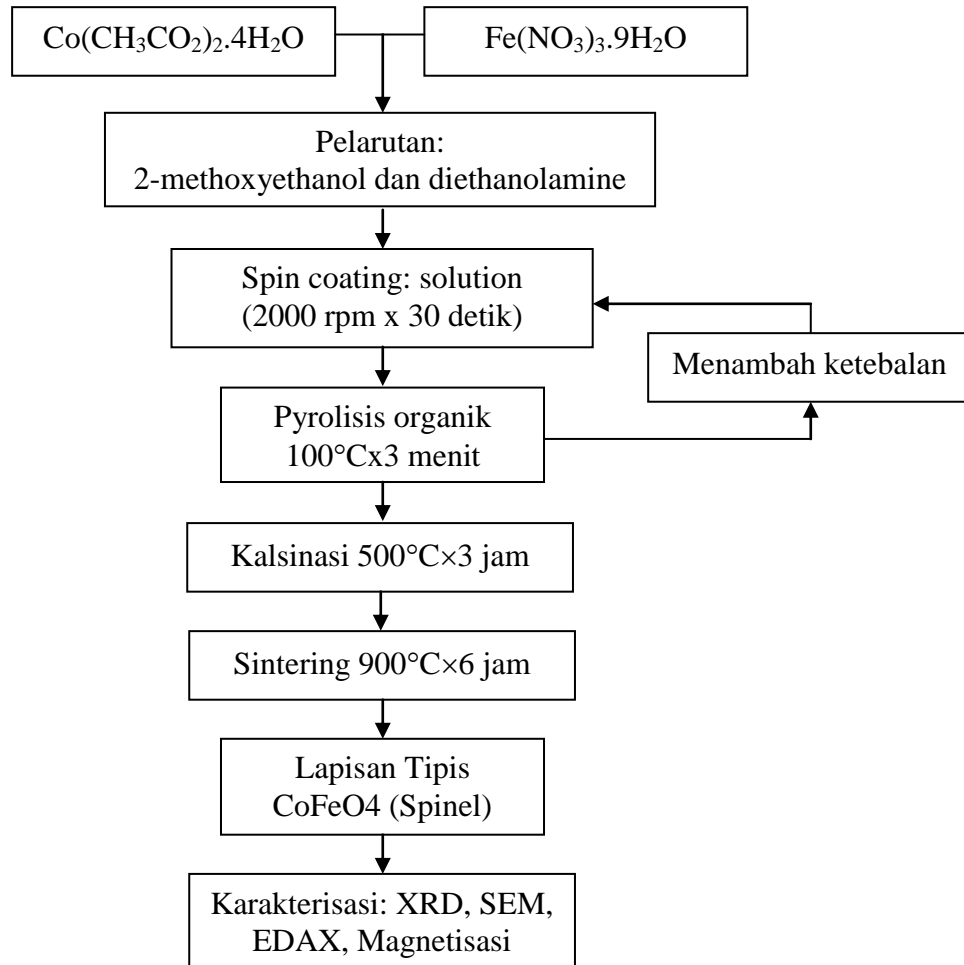
$$\tau = \tau_0 \exp\left(\frac{KV}{k_B T}\right) \quad 1$$

dimana $\tau = \Gamma_0^{-1}$, Γ_0 adalah frekuensi dalam orde $10^9 - 10^{13}$ s $^{-1}$, k_B adalah konstanta Boltzmann, T adalah temperatur, K adalah konstanta anisotropy dan V adalah volume partikel. Misalkan sebuah sistim (bahan) terdiri dari partikel-partikel domain tunggal yang tidak berinteraksi dalam matriks padatan bukan magnetik, jika $k_B T > KV$ maka waktu

relaksasinya akan menjadi kecil dan vektor magnetisasi akan berotasi dengan cepat sebagai respon terhadap perubahan medan aplikasi atau temperatur. Respon ini akan terlihat dari pengukuran histeresis loop yaitu kurva antara magnetisasi terhadap aplikasi medan magnet.

Metode penelitian

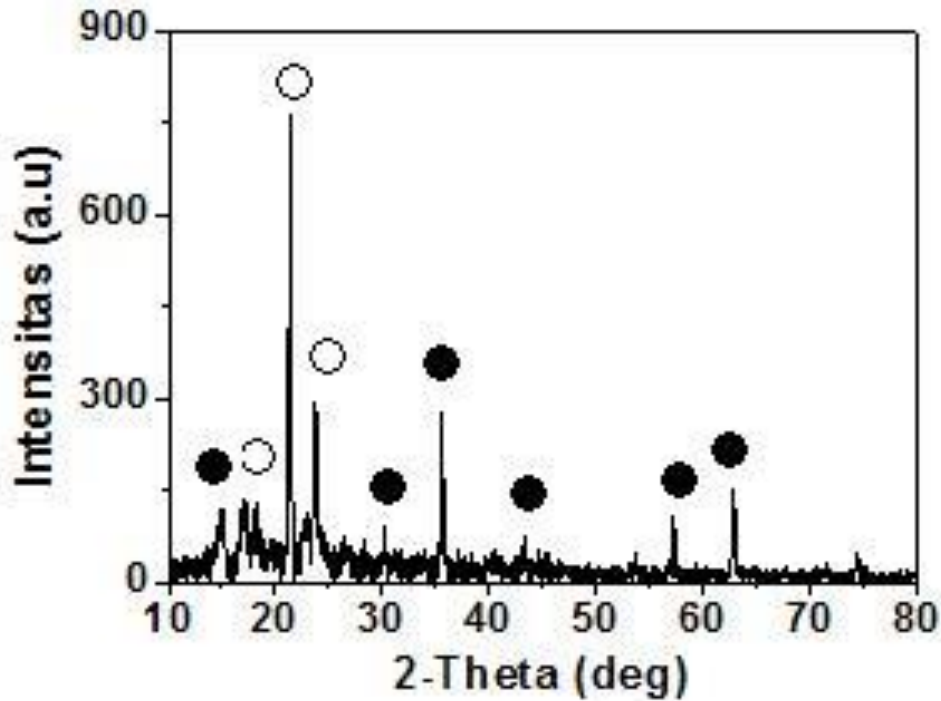
Dalam penelitian ini akan dilakukan preparasi film tipis permanen magnet dari bahan cobalt ferrite dengan metode sol-gel. Tahapan eksperimen secara lengkap ditampilkan pada diagram alir seperti pada Gambar 1 berikut:



Gambar 1. Diagram alir tahapan eksperimen

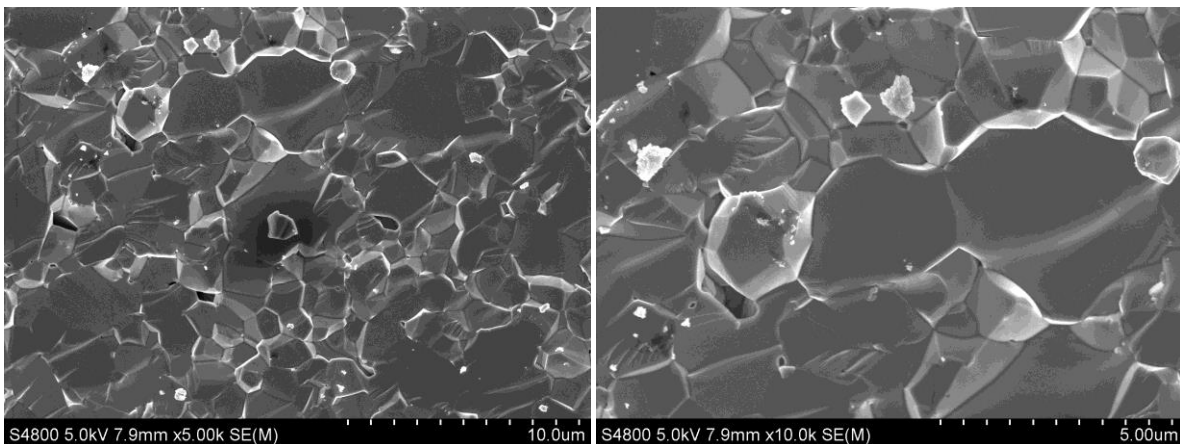
HASIL DAN DISKUSI

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



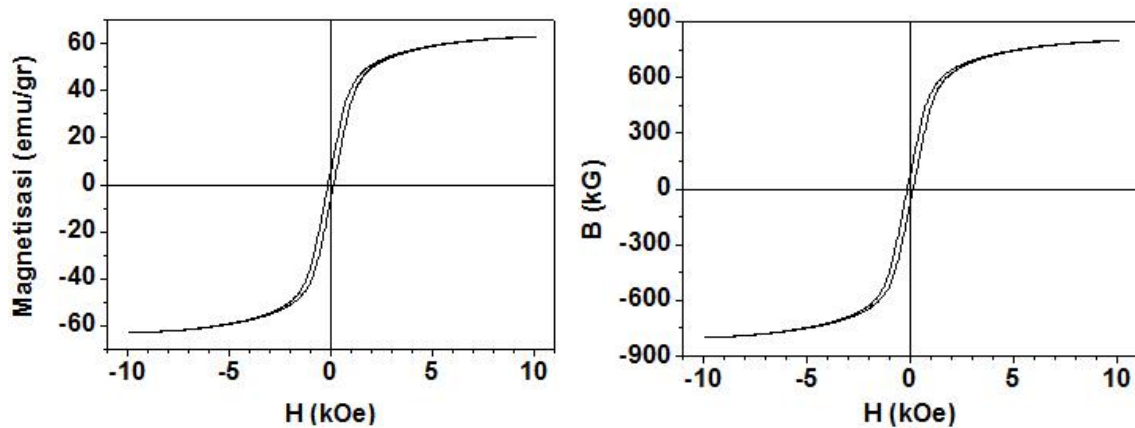
Gambar 2. Pola XRD target CoFe_2O_4 sesudah sintering, o (Fe_2O_3), • (CoFe_2O_4)

Dari hasil pengukuran XRD ditunjukkan bahwa bahan magnet CoFe_2O_4 telah menghasilkan phase kristal, namun masih memiliki impuritas Fe_2O_3 , sehingga fraksi volume CoFe_2O_4 menjadi berkurang.



Gambar 3. Karakteristik butiran bahan magnet 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 Vibrating Sample Magnetometer (VSM) CoFe_2O_4 . Sebelah kiri adalah grafik loop M-H dan sebelah kanan adalah loop B-H.

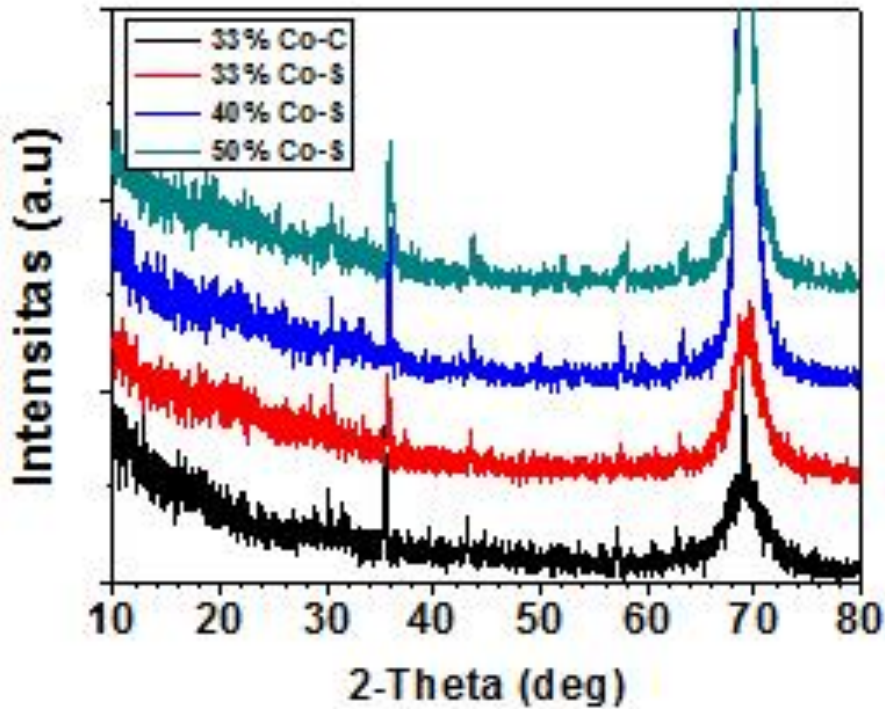
Kurva loop B-H diolah dengan menggunakan persamaan:

$$\vec{B} = \vec{H} + 4\pi\vec{M} \quad 2$$

Persamaan 6 adalah dalam sistim CGS, dimana satuan \vec{B} adalah kilo Gauss (kG), \vec{H} dalam kOersted (kOe), dan \vec{M} dalam emu.

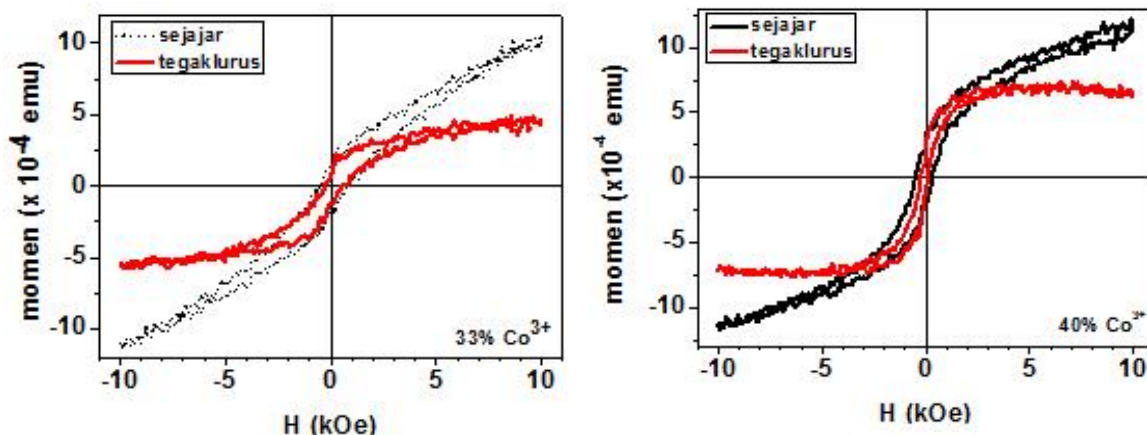
Dari hasil pengukuran tersebut dilakukan pengolahan data dan diperoleh karakteristik magnetik Magnetisasi Remanen (M_r) adalah 5,3277 emu/gr, Medan Koercive (H_c) adalah 0,1388 kOe (138,8 Oe), medan induksi remanen (B_r) adalah 65,3859 kOe dan Energi Maksimum $BH_{\text{maks}} = 2,2804$ MGOe. Secara keseluruhan serbuk/target telah menghasilkan karakteristik kristal dan magnetik yang relatif baik, dan dapat ditingkatkan dengan optimasi pada tahapan proses.

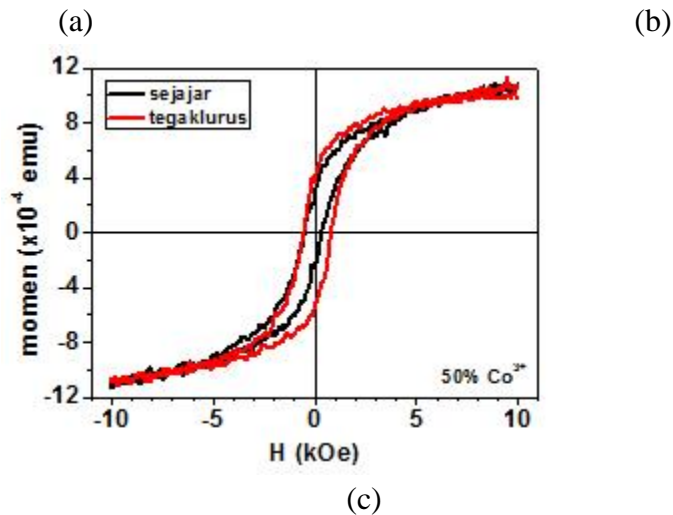
Hasil XRD lapisan tipis CoFe_2O_4 ditunjukkan pada Gambar 4. Kurva (hitam) adalah sampel dengan perbandingan persentasi mol 33% Co dan 67 % Fe setelah kalsinasi suhu 500°C selama 3 jam, warna merah adalah sampel dengan perbandingan persentasi mol 33% Co dan 67 % Fe setelah sintering pada suhu 900°C selama 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 $2\theta = 35^\circ$ dan 57° , namun impuritas Fe_3O_4 muncul pada $2\theta = 30^\circ$, dan Fe_2O_3 pada $2\theta=57^\circ$ (walaupun pada sudut ini puncak antara CoFe_2O_4 dan Fe_2O_3 sangat berdekatan). Secara keseluruhan kualitas kristal sampel yang dihasilkan belum memiliki kualitas yang baik, karena intensitas puncaknya 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. Kualitas kristal ini juga akan menyebabkan karaktersitik magnetik yang belum optimal.



Gambar 4. Pola XRD lapisan tipis CoFe_2O_4 dengan variasi % Co^{3+} .

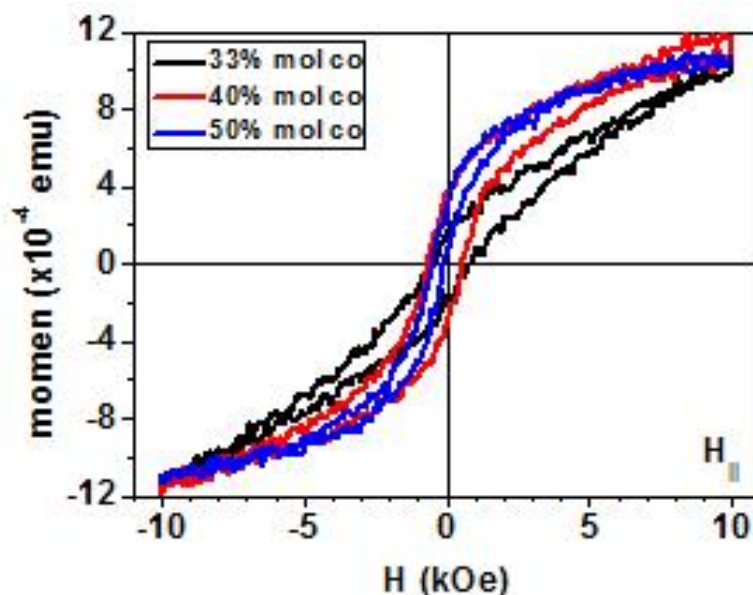
Hasil pengukuran Vibrating Sampel Magnetometre (VSM) sampel lapisan tipis setelah sintering pada suhu 900°C selama 6 jam ditunjukkan pada Gambar 5 dengan perbandingan persentasi mol (a). 33% Co dan 67% Fe, (b). 40% Co dan 60% Fe, dan (c). 50%Co dan 50% Fe. Warna hitam menyatakan karakteristik magnetisasi pada medan aplikasi (\vec{H}) sejajar permukaan lapisan tipis, sedangkan warna merah menyatakan karakteristik magnetisasi pada medan aplikasi (\vec{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 tegak lurus bidang, yang mengindikasikan bahwa *easy-axis*nya 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.



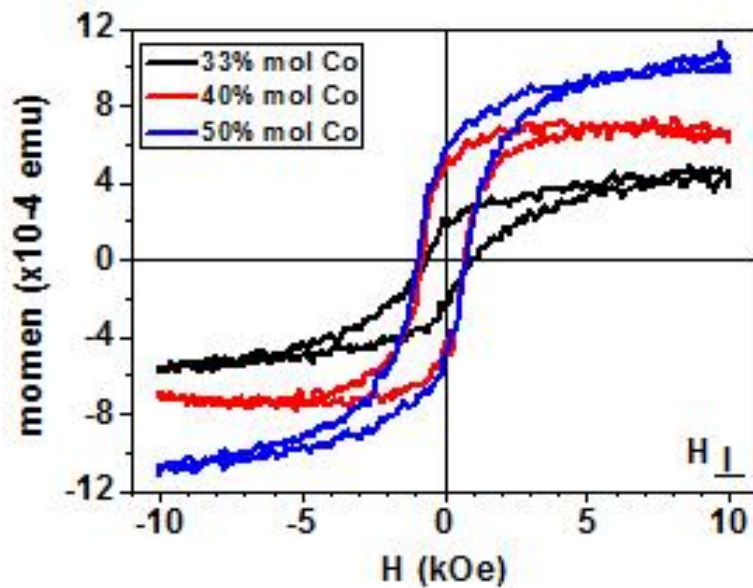


Gambar 5. Grafik VSM lapisan tipis CoFe_2O_4 pada \vec{H} sejajar bidang sampel (warna hitam) dan \vec{H} tegak lurus bidang sampel (warna merah) dengan perbandingan persen mol (a) 33% Co^{2+} dan 67% Fe^{3+} , (b) 40% Co^{2+} dan 60% Fe^{3+} , dan (c) 50% Co^{2+} dan 50% Fe^{3+} .

Gambar 6 menunjukkan kurva magnetisasi 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+} (H sejajar bidang).



Gambar 7. Grafik VSM lapisan tipis CoFe_2O_4 dengan variasi % mol Co^{2+} (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, 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

Kesimpulan dan Saran

Telah berhasil dipreparasi kristal bahan magnet CoFe_2O_4 dengan karakteristik dengan karakteristik magnetik $M_r = 5,3277 \text{ emu/gr}$, $H_c = 0,1388 \text{ kOe} = 138,8 \text{ Oe}$, $B_r = 65,3859 \text{ kOe}$, $BH_{\text{maks}} = 2,2804 \text{ MGOe}$. 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 menggunakan silika matriks.

Ucapan Terimakasih

Penulis mengucapkan terimakasih kepada Rektor Universitas Padjadjaran atas bantuan dana pengukuran sampel ke Tohoku University dan 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. 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. S.S. Vidyawathi, R. Amaresh dan L.N. Satapathy, *Bull. Mater. Sci.*, 25 (6), 569–572, 2002
11. Yingjian Chen, Maithri Rao, David E. Laughlin, dan Mark H. Kryder, *IEEE Transactions On Magnetics*, 34 (4), 1648-1650, 1998
12. V.K. Sankaranarayanan, R.P. Pant, A.C. Rastogi, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 220, 72-78, 2000
13. E.S. Murdoch, R.F. Simmons, R. Davidson, *IEEE Trans. Magn.* 28, 3072, 1992
14. Gignoux D. & Schlenker M., *Magnetism, Materials and Applications*, Springer, 2005
15. Edward P Purlani, *Permanent Magnet and Electromechanical Devices*, Academic Press, 2001
16. Cullity, B.D., *Introduction To Magnetic Materilas*, Addison-Wesley Publishing Company, Inc.), 1972
17. T. Kodama, Y. Kitayama, M.Tsuji dan Y. Tamaura, *J. Appl. Phys.* **71**, 5926, 1992
18. 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
19. R.K.Kotnala, *Bull, Mater. Sci.*, 15 (2), 149-152, 1992
20. Adam J D, Davis L E, Dionne G F, Schloemann E F and Stitzer S N, *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* 50, 721, 2002
21. Zihui Wang, Young-Yeal Song, Yiyun Sun, Joshua Bevivino, Mingzhong Wu, V. Veerakumar, Timothy J. Fal, dan Robert E. Camley, *Applied Physics Letters*, **97**, 072509(1 -3), 2010
22. R.N. Simons, *Coplanar Waveguide Circuits, Components, and Systems*, John Wiley & Sons, New York, NY, 2001
23. K. Chang, *Encyclopedia of RF and Microwave Engineering*, John Wiley & Sons, Hoboken, NJ, 2005
24. K.C. Gupta, *Microstrip Lines and Slotlines*, 2nd ed., Artech House, Norwood, MA, 1996
25. X.X. Zhang, J.M. Hernandez dan J. Tejada, *Physical Review B*, 54, 6, 1996