

SINTESIS DAN KARAKTERISASI BAHAN *MAGNETORESISTANCE* GRANULAR MAGNETIK Co-Cu DENGAN METODE ELEKTRODEPOSISI

Setyo Purwanto, M. Ihsan, Ari Handayani, Evi Yulianti, Mashadi dan Wisnu A. A.

Puslitbang Iptek Bahan (P3IB) -BATAN
Kawasan Puspiptek, Serpong, Tangerang 15314

ABSTRAK

SINTESIS DAN KARAKTERISASI BAHAN *MAGNETORESISTANCE* GRANULAR MAGNETIK Co-Cu DENGAN METODE ELEKTRODEPOSISI. Sintesis dan karakterisasi bahan *magnetoresistance* granular magnetik Co-Cu dengan metode elektrodeposisi telah dilakukan dengan menggunakan sistem galvanostatik dari kolam tunggal (*single bath*). Film yang terdepositasi pada substrat kristal tunggal silikon[100] diketahui memiliki fasa dari paduan Co-FCC dan Cu-FCC dengan ukuran *grain* masih bervariasi antara 1 mikron ~ 5 mikron. Hasil pemeriksaan *overall area* dengan SEM/EDXS pada cuplikan hasil elektrodeposisi diketahui bahwa untuk beda potensial $V=-0,2$ Volt komposisi granular yang terbentuk adalah $Co_{17,4}Cu_{78,5}Ag_{3,3}$ sedangkan pada $V=-0,36$ Volt komposisi granular adalah $Co_{25,4}Cu_{30,9}Ag_{43,3}$. Unsur Ag muncul pada puncak difraksi karena untuk proses elektrodeposisi dipakai bahan pasta perak sebagai anoda. Diketahui pula bahwa sifat *magnetoresistance* film hasil elektrodeposisi ini sekitar 0,25% (pada $H=7$ kOe) di suhu kamar.

Kata kunci: *Magnetoresistance*, granular magnetik Co-Cu, elektrodeposisi

ABSTRACT

SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION OF MAGNETORESISTANCE GRANULAR MAGNETIC CO-CU BY ELECTRODEPOSITION METHOD. Synthesis and characterization granular magnetic Co-Cu alloy films have been done by means electrodeposition method using a galvanostatic single sulphate bath. Xray diffraction reveals the deposited films on single crystal Si[100] to be metastable phase FCC alloy of Cu and Co with small impurity Ag, and the grain sizes grows to 1~5 micron. Composition films deposited on substrate were dependence on electric potential between anode and cathode. The granular films composition have determined by SEM/EDXS were $Co_{17,4}Cu_{78,5}Ag_{3,3}$ at $V=-0.2$ Volt and $Co_{25,4}Cu_{30,9}Ag_{43,3}$ at $V=-0.36$ Volt. The magnetoresistance ratio (MR) was observed at room temperature for $Co_{17,4}Cu_{78,5}Ag_{3,3}$ sample in a magnetic field of 7kOe.

Key words: Magnetoresistance, magnetic granular Co-Cu, electrodeposition

PENDAHULUAN

Sejak diketemukannya bahan yang bersifat *Giant Magnetoresistance*(GMR) pada lapisan tipis FeCr[1], penelitian dibidang ini maju dengan pesat hingga sampai pada aplikasi yang luas. Selain itu bahan yang memiliki sifat GMR pada sistem granular magnetik- (dimana partikel magnetik dikungkung oleh bahan matriks non magnetik) seperti Co-Ag juga ditemukan pada tahun 1993 oleh J.Q. Xiao et.al.[2]. Selanjutnya penemuan berkembang pada sistem Co-Cu dengan berbagai variasi pembuatan, mulai dari teknik *magnetron sputtering* oleh Berkowitz et.al. [3], teknik *Physical Vapour Deposition*(PVD) oleh J.Q. Xiao et.al. pada tahun 1992 [4] yang memerlukan suasana *vacuum* tinggi sehingga proses fabrikasinya menjadi sangat mahal.

Maka untuk mengantisipasi hal terakhir, saat ini dikembangkan satu teknik baru tanpa memerlukan suasana vakum yaitu teknik elektrodeposisi untuk mendepositkan bahan GMR Co-Cu pada berbagai

media/substrat. Piraux et.al. pada tahun 1994[5] berhasil menumbuhkan magnetic *multilayer nanowires* Co/Cu di dalam satu matriks polimer. Kemudian disusul oleh K. Blonde et.al. pada tahun 1994[6] dan Liu et.al. pada tahun 1995 [7], berhasil membuat sistem GMR tegak lurus *multilayer* Co/Cu yang memanfaatkan *Cobalt(II) sulfate heptahydrate*, *Copper(II) sulfate heptahydrate* dan asam borat sebagai larutan elektrolit dan percobaan dilakukan pada beda potensial $-0,16$ untuk mendepositkan Cu dan $-1,0$ volt untuk mendepositkan lapisan Co.

Berdasarkan beberapa keberhasilan di atas, studi kali ini adalah menumbuhkan lapisan granular magnetik Co-Cu dengan komposisi larutan yang agak berbeda yakni menggunakan NH_4OH sebagai penstabil pH larutan, dan beda potensial yang diambil adalah $V=-0,2$ dan $V=-0,36$ volt dengan harapan akan menumbuhkan variasi komposisi Co-Cu.

METODE PERCOBAAN

Bahan

1. Larutan elektrolit yang dibuat adalah mengandung masing-masing 0,072M $\text{CoSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ dan $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$. Sebagai pengatur pH dipergunakan NH_4OH , agar menjadi sekitar 4,6-6.
2. Substrat yang dipergunakan adalah *wafer* silikon kristal tunggal pada orientasi (100).

Cara Kerja

Pada penelitian ini pembuatan lapisan tipis nanogranular dilakukan dengan metode elektrodeposisi pada media/substrat Silikon kristal tunggal yang memiliki orientasi (100).

1. Prosedur elektrodeposisi adalah : pertamakali permukaan Si *wafer* dicuci/dibersihkan dengan larutan 10% HF untuk menghilangkan lapisan oksida. Sisi lain yang tidak dipolis dilapisi dengan pasta perak dan dikeringkan dengan *blower*.
2. Silikon (100) yang telah dilapisi dengan sedikit pasta perak digunakan sebagai katoda dan kasa Platina sebagai anoda.
3. Kondisi percobaan; kerapatan arus diseting sebesar 2 mA/cm-persegi, dengan beda potensial antara dua elektroda -0,36 Volt dan -0,2 Volt terhadap elektroda acuan yang berisis larutan Ag-AgCl. Ragam beda potensial ini diambil dengan pertimbangan akan menumbuhkan variasi komposisi Co pada cuplikan. Proses pelapisan dilakukan selama 15 menit. Berat cuplikan ditimbang sebelum dan sesudah proses elektrodeposisi.
4. Peralatan yang digunakan pada proses elektrodeposisi adalah Galvanostat arus searah yang dilengkapi dengan *bath*/kolam elektrodeposisi.
5. Kemudian setelah proses elektrodeposisi selesai cuplikan dikarakterisasi fasa yang terbentuk dengan difraksi sinar-X, strukturmikro dengan *Scanning Electron Microscopy* (SEM) dan penentuan unsur yang terkandung di dalam film diestimasi dengan teknik analisis *Energy Dispersive X-ray* (EDX) serta sifat *magneto-resistance* (MR) dengan metode *four point probe* pada medan magnet $H=7\text{kOe}$. Penyiapan cuplikan untuk pemeriksaan dengan difraksi sinar-X, SEM/EDX, dan *magneto-resistance* diambil dari cuplikan yang sama.

Semua peralatan dan percobaan dilakukan di Puslitbang Iptek Bahan-BATAN.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Kondisi Cuplikan/Sampel

Setelah proses deposisi selama 15 menit untuk meyakinkan bahwa benar terjadi proses penumbuhan lapisan granular pada substrat dilakukan penimbangan

berat cuplikan/sampel. Hasil pengukuran berat cuplikan dapat dilihat pada Tabel 1.

Tabel 1. Berat cuplikan sebelum dan sesudah proses elektrodeposisi selama 15 menit.

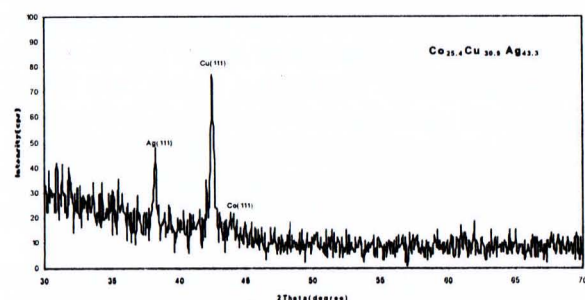
No. cuplikan	Beda potensial (Volt)	Berat awal (gram)	Berat Pasca Elektrodeposisi (gram)	Selisih Berat (gram)
1.	-0.36	0,0872	0,0882	0,0010
2.	-0.20	0,0631	0,0639	0,0008

Fasa, Struktur Kristal dan Strukturmikro Granular Magnetik

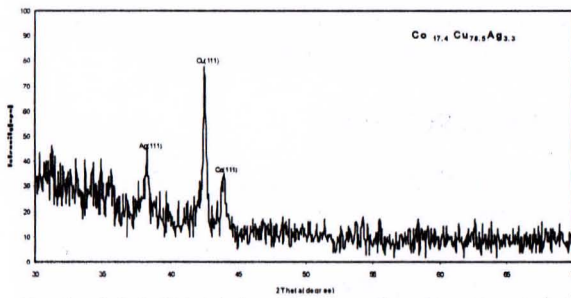
Setelah proses elektrodeposisi dan penimbangan cuplikan, selanjutnya dilakukan pengecekan kualitas cuplikan dengan difraksi sinar-X dan SEM-EDX untuk mengetahui fasa dan komposisi serta morfologi cuplikan.

Seperti dapat dilihat pada Gambar 1 dan Gambar 2, untuk pola difraksi sinar-X dari cuplikan 1 dan cuplikan 2. Dari kurva pola difraksi sinar-X pada kedua gambar tersebut tercermin bahwa fasa yang terbentuk adalah fasa *metastable* Co-Cu dengan unsur pengotor Ag yang berasal dari pasta perak. Puncak Co dan Cu memiliki *preferred orientation* (111). Fasa Co-Cu ini diketahui pada suhu kamar memiliki sifat hampir tidak bercampur (*immiscibility*). Hal ini memang diharapkan pada sistem granular magnetik yang memiliki sifat *magneto-resistance*. Puncak Ag(111) muncul dari pasta perak yang ikut serta terdeposisi. Sebenarnya unsur Ag tidak diharapkan ikut terdeposisi, karena dikhawatirkan akan menurunkan sifat *magneto-resistance* bahan Co-Cu. Kandungan unsur Ag yang ikut terdeposisi dapat dikurangi pada cuplikan nomor 2 dimana beda potensial/tegangan antar elektroda diubah menjadi -0,2 Volt. Tampaknya beda tegangan ini merupakan kondisi yang cukup ideal, dimana komposisi granular yang diperoleh adalah $\text{Co}_{17,5}\text{Cu}_{78,6}\text{Ag}_{3,3}$. Hasil ini sesuai dengan hasil percobaan Liu et.al.[6] dan Blondel et.al.[7], dimana pada beda potensial $V=-0,16$ Volt unsur Cu akan terdeposisi secara dominan.

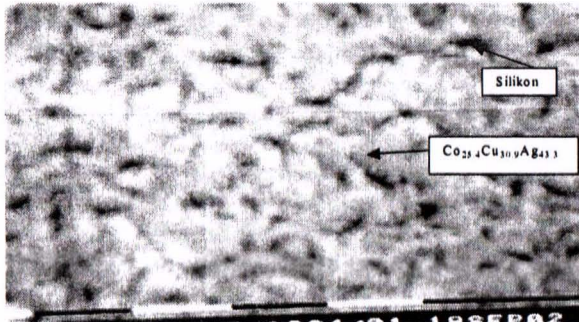
Dari Gambar 3 dan Gambar 4 hasil foto mikro *Scanning Electron Microscopy*(SEM) terlihat bahwa pada cuplikan nomor 1, sebaran granular lebih rapat



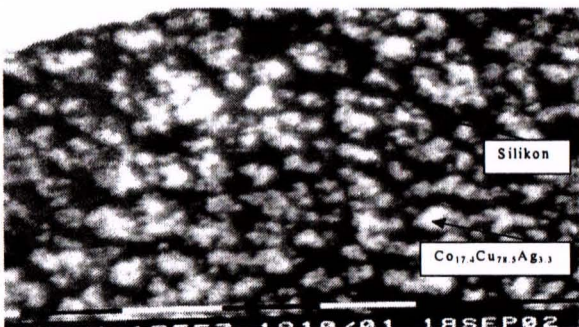
Gambar 1. Pola difraksi sinar-X dari cuplikan $\text{Co}_{25,4}\text{Cu}_{30,9}\text{Ag}_{43,3}$, proses pelapisan dilakukan pada beda potensial -0,36 Volt. Waktu deposisi $t=15$ menit.



Gambar 2. Pola difraksi sinar-X dari cuplikan $Co_{17.4}Cu_{78.5}Ag_{3.3}$, proses pelapisan dilakukan pada beda potensial -0,20 Volt. Waktu deposisi $t=15$ menit.



Gambar 3. Strukturmikro cuplikan nomor 1 (beda potensial $V = -0,36$ Volt), analisa *spot* menunjukkan bahwa komposisi granular adalah $Co_{25.4}Cu_{30.9}Ag_{43.3}$.



Gambar 4. Strukturmikro cuplikan nomor 2, analisa *spot* (putih) menunjukkan bahwa komposisi Granular adalah $Co_{13.2}Cu_{86.4}Ag_{0.4}$.

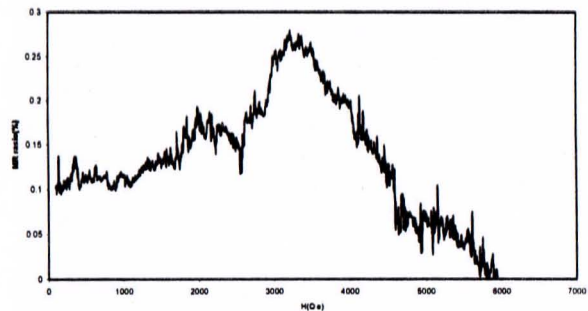
dibanding cuplikan nomor 2 karena ruang antar granular terisi oleh unsur Ag. Komposisi granular hasil *spot* analisis pada posisi granular tertentu untuk cuplikan nomor 1 adalah $Co_{27.5}Cu_{42.2}Ag_{30.3}$, sedangkan analisis komposisi untuk daerah yang lebih luas disekitar *spot* (*overall-area*) adalah $Co_{25.4}Cu_{30.9}Ag_{43.3}$. Untuk cuplikan nomor 2, sebaran granular magnetik agak renggang dengan komposisi granular $Co_{13.2}Cu_{86.4}Ag_{0.4}$ untuk *spot* analisis. Sedangkan untuk analisa pada daerah yang lebih luas di sekitar *spot* komposisi rata-rata granular adalah $Co_{17.4}Cu_{78.5}Ag_{3.3}$. Komposisi cuplikan nomor 2 ini mendekati hasil sintesis granular $Co_{20}Cu_{80}$ dengan metode elektrodeposisi oleh Pattanaik et.al. [8] Hasil analisis *spot* pada citra berwarna hitam pada kedua gambar adalah unsur silikon. Detil hasil analisis komposisi dengan SEM/EDXS dapat dilihat pada Tabel 2.

Tabel 2. Perbandingan komposisi unsur Co,Cu dan Ag pada cuplikan nomor 1 ($V = -0,36$ Volt) dan nomor 2 ($V=-0,2$ Volt)

NAMA CUPLIKAN	SPOT ANALISIS (at%)			OVER-ALL (at%)		
	Co	Cu	Ag	Co	Cu	Ag
No.1	27,5	42,2	30,3	25,4	30,9	43,3
No.2	13,2	86,4	0,4	17,4	78,5	3,3

Pengukuran Sifat *MagnetoResistance* dan Fenomena *Tunneling MagnetoResistance (TMR)* pada Granular Magnetik $Co_{17.4}Cu_{78.5}Ag_{3.3}$

Sifat *magnetoResistance* bahan granular magnetik diukur untuk $Co_{17.4}Cu_{78.5}Ag_{3.3}$ dengan pertimbangan komposisi cuplikan tersebut mendekati hasil sintesis sebelumnya yang dilakukan oleh Pattanaik et.al.[8] yaitu $Co_{20}Cu_{80}$. Pengukuran sifat *magnetoResistance* dilakukan dengan metode *four point probe* pada kondisi suhu ruang serta medan magnet $H=7kOe$. Hasil pengukuran rasio *magnetoResistance* pada cuplikan tersebut dapat dilihat pada Gambar 5.

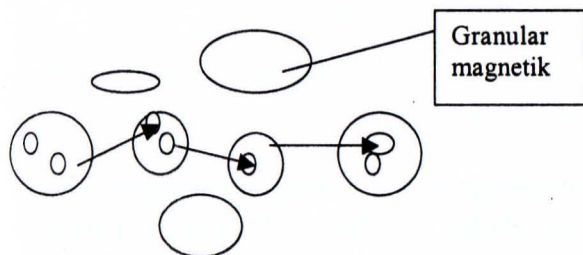


Gambar 5. Kurva *MagnetoResistance* granular magnetik $Co_{17.4}Cu_{78.5}Ag_{3.3}$

Pada cuplikan ini harga rasio *magnetoResistance* sekitar 0,25% pada $H=5kOe$, nilai ini lebih kecil dibandingkan dengan hasil pengukuran Pattanaik et.al. yaitu 0,50% pada medan yang sama. Hal ini diduga bahwa unsur Ag dari pasta perak yang bersifat penghantar dan ikut terdeposisi pada sekitar granular menurunkan proses *tunneling magnetoResistance* antar granular magnetik, seperti dilustrasikan pada Gambar 6. Tanda panah menunjukkan proses *tunneling* antar granular.

Pada model proses *tunneling* di atas, kemunculan sifat *magnetoResistance* secara ideal sangat bergantung pada probabilitas dari proses *tunneling electron* antar granular yang terjadi secara simultan. Jika kondisi ini terpenuhi maka sifat *magnetoResistance* bahan akan optimal. Namun karena pada cuplikan $Co_{17.4}Cu_{78.5}Ag_{3.3}$ mengandung unsur Ag mengganggu proses tersebut mengakibatkan harga rasio *magnetoResistance* bahan tersebut menjadi menurun atau tidak optimal. Untuk mengantisipasi terdeposisinya unsur Ag dari pasta perak diusulkan pada penelitian lanjut untuk

menggantinya dengan lapisan tipis perak dengan proses evaporasi atau *vacuum coating*.



Gambar 6. Ilustrasi skematis proses *tunneling* orde tinggi (kondisi ideal); yang bersifat *simultan tunneling* dari 3 elektron. Disini satu muatan elektronik berpindah dari satu granular besar (kiri) melalui 2 granular kecil menuju granular besar yang bersifat netral (kanan) [9].

KESIMPULAN

Dari percobaan ini dapat disimpulkan beberapa hal antara lain;

1. Proses pembuatan film tipis granular magnetik berbasis Co-Cu pada media atau substrat silikon kristal tunggal [100] dengan metode elektrodeposisi telah dapat dilakukan.
2. Kondisi beda potensial antara anoda dan katoda sebesar $V = -0,20$ Volt menghasilkan granular magnetik dengan komposisi $\text{Co}_{17,4}\text{Cu}_{78,5}\text{Ag}_{3,3}$, yang lebih mendekati hasil penelitian sebelumnya. Dibandingkan dengan kondisi beda potensial $V = -0,36$ Volt yang menghasilkan komposisi granular $\text{Co}_{25,4}\text{Cu}_{30,9}\text{Ag}_{43,3}$.
3. Morfologi film tipis $\text{Co}_{17,4}\text{Cu}_{78,5}\text{Ag}_{3,3}$ berbentuk granular dengan ukuran 1~5 mikrometer, jarak antar granular lebih renggang dibandingkan granular dari fasa $\text{Co}_{25,4}\text{Cu}_{30,9}\text{Ag}_{43,3}$ yang terlihat lebih rapat.
4. Harga rasio *magneto-resistance* untuk film tipis $\text{Co}_{17,4}\text{Cu}_{78,5}\text{Ag}_{3,3}$ senilai 0,25% pada $H = 5$ kOe separuh lebih kecil dari yang ditemukan oleh penelitian sebelumnya. Diduga unsur Ag yang ikut terdepositasi pada granular menyebabkan proses *tunneling magneto-resistance* antar granular menjadi tidak optimal.

UCAPAN TERIMAKASIH

Penulis pertama mengucapkan banyak terimakasih kepada DR. Ridwan selaku Kepala BBM-P3IB yang ikut mendukung terlaksananya penelitian ini sampai selesai. Tak lupa ucapan yang sama kepada DR. M. Dani, Kepala BBI-P3IB atas fasilitas yang disediakan seperti peralatan Galvanostatik dan Laboratorium Kimia di BBI. Terimakasih yang dalam juga disampaikan untuk teman-teman di kelompok Bahan Magnet dan Kelompok Bahan Alam-BBI atas kerjasamanya hingga penelitian ini dapat terlaksana. Terakhir diucapkan terimakasih kepada Dra. Saryati, APU,

atas masukannya kepada penulis sehingga makalah ini dapat dibuat lebih mendalam dan sempurna.

DAFTAR PUSTAKA

- [1]. M.N. BAIBICH et. al., *Phys. Rev. Lett.*, **61** (1988) 2472
- [2]. J.Q. XIAO et. al., *Phys. Rev. B.* **46**(14), (1992) 9266-9269
- [3]. BERKOWITZ A.E et. al., *Phys. Rev. Lett.*, **68**(25) (1992) 3745-3748
- [4]. J.Q. XIAO et. al., *Phys. Rev. Lett.*, **68**(25) (1992) 3749-3752
- [5]. L. PIRAUX et. al., *Appl. Phys. Lett.*, **65**(19), (1994) 2484-2486
- [6]. A. BLONDEL et. al., *Appl. Phys. Lett.*, **65**(19) (1994) 3019-3021
- [7]. K. LIU et. al., *Phys. Rev. B.*, **51**(11) (1995) 7381-7384
- [8]. PATTANAIAK G.R. et. al., *Journal Of Magn. Magn. of Mater.*, **219** (2000) 309-316
- [9]. H. FUJIMORI et. al., *Mater. Sci. and Eng.*, **A267** (1999) 184-192