Jusami
Homepage: http://jusami.batan.go.id
Jurnal Sains Materi Indonesia
Akreditasi LIPI
No.: 602/AU3/P2MI-LIPI/03/2015
Tanggal 15 April 2015
ISSN : 1411-1098

STUDI PENDAHULUAN PEMBUATAN LAPISAN TIPIS *MWCNT*-Fe PADA PERMUKAAN GELAS DENGAN *SPIN COATING*

P. Purwanto, Yunasfi dan Salim Mustofa
Pusat Sains dan Teknologi Bahan Maju - BATAN
Kawasan Puspiptek, Serpong 15314, Tangerang Selatan
E-mail: ppurwanto88@gmail.com

Diterima: 17 Februari 2015 Diperbaiki: 30 Juli 2015 Disetujui: 1 September 2015

ABSTRAK

STUDI PENDAHULUAN PEMBUATAN LAPISAN TIPIS *MWCNT*-Fe PADA PERMUKAAN GELAS DENGAN *SPIN COATING*. Telah dilakukan pembuatan lapisan tipis *Multi-Walled Carbon Nanotubes* (*MWCNT*)-Fe pada permukaan gelas. Pengukuran struktur kristal campuran serbuk *MWCNT*-Fe dilakukan dengan *XRD*, dimana pola difraksi yang nampak menunjukkan adanya puncak dari *carbon* dan Fe saja, tidak ditemukan unsur pengotor lainnya. Pengamatan morfologi dengan menggunakan *SEM* menunjukkan permukaan lapisan tipis *MWCNT*-Fe yang terbentuk pada permukaan substrat gelas. Pengukuran sifat listrik pada lapisan tipis *MWCNT*-Fe selanjutnya dilakukan untuk mengetahui efek perubahan frekuensi ukur terhadap nilai konduktansi dan kapasitansi. Secara umum nilai konduktansi relatif stabil terhadap perubahan frekuensi, sedangkan nilai kapasitansi lapisan tipis *MWCNT*-Fe mengalami penurunan seiring dengan naiknya frekuensi ukur. Namun seiring dengan bertambahnya persen (%) berat Fe di dalam lapisan tipis, nilai konduktansi lapisan tipis naik drastis, dan sebaliknya nilai kapasitansi mengalami penurunan drastis seiring dengan naiknya frekuensi pengukuran. Dari spektrum Raman terlihat adanya puncak *D band* pada posisi 1310 cm^{-1} hingga 1320 cm^{-1}, puncak harmonik pertama *G band* (tangensial *G band*) pada posisi 1580 cm^{-1} hingga 1595 cm^{-1}, dan puncak harmonik kedua *G band* (*G' band*) pada posisi 1605 cm^{-1} hingga 1615 cm^{-1}.

Kata kunci: Lapisan tipis, *XRD*, *Spin Coating*, Konduktansi, Kapasitansi, Spektrum Raman

ABSTRACT

PRELIMINARY STUDY OF FABRICATION OF MWCNT-Fe THIN FILM ON GLASS BY USING SPIN COATING. The fabrication of MWCNT-Fe thin film on glass has been done. The measurement of crystal structure of MWCNT-Fe mixing powder has been carried out by XRD, which shows only the peak of carbon and Fe, found no other impurity elements. The observation of the surface morphology using SEM shows the surface of MWCNT-Fe thin film formed on the surface of glass substrate. The measurement of electrical properties of MWCNT-Fe thin film then was being done in order to know the effect of frequency changes against the value of conductance and capacitance against the changes of measuring frequency. In general, the conductance is relatively stable against changes in frequency, while the capacitance value of MWCNT-Fe thin film decrease with the increasing of measuring frequency. However, along with the increasing of weight percent (%) of Fe in a thin film, the conductance value of MWCNT-Fe thin film rises drastically, and contrary the value of capacitance decreased with the increasing of measuring frequency. From the Raman spectrum, it shows the D band peak at around 1310 cm^{-1} to 1320 cm^{-1}, the second harmonic peak of G band (G' band) was found at around 1605 cm^{-1} to 1615 cm^{-1}, and the tangential peak of G band was found at around 1580 cm^{-1} to 1595 cm^{-1}.

Keywords: Thin film, XRD, Spin Coating, Conductance, Capacitance, Raman Spectrum

PENDAHULUAN

Sensor adalah piranti yang mendeteksi atau mengukur kuantitas fisik dan kimia seperti suhu, tekanan, suara, dan konsentrasi. Hasil pengukuran dikonversi menjadi sebuah sinyal elektronik. Persyaratan utama sensor adalah sensitivitas yang tinggi, respons yang cepat, dan reliabilitas yang tinggi. Keberadaan piranti sensor telah memberi berbagai dampak signifikan di dalam kehidupan, dengan lingkup aplikasi yang luas mulai dari biomedikal sampai ke industri otomotif [1-3]. Sensor secara umum dari sisi pengukuran dan pengaturan harus memenuhi beberapa persyaratan yakni linieritas, kapasitansi, konduktivitas, stabil terhadap suhu, kepekaan, batas frekuensi terendah/tertinggi serta stabilitas waktu [4].

Pengembangan lapisan tipis sebagai sensor terus dikembangkan, salah satunya adalah dengan memanfaatkan bahan lapisan tipis berbasis *Carbon Nanotubes* (*CNT*). Contoh aplikasi pemanfaatan lapisan tipis berbasis *CNT* adalah untuk sensor biomedik [5,6]. Berbagai macam sintesis *Multi-Walled Carbon Nanotubes (MWCNT)-Fe* dan karakterisasinya telah dilakukan oleh beberapa peneliti dalam kaitannya untuk aplikasi sensor biomedik [7,8].

Prinsip dasar kerja dari sensor biomedik adalah berdasarkan sifat konduktivitas dan impedansi dari lapisan tipis, dengan substratnya adalah gelas atau bahan lain [9]. Pada dasarnya, untuk meningkatkan kinerja biosensor membutuhkan sinyal bahan transduser yang baik yang berperan penting terhadap komunikasi antara target biomolekul dan permukaan sensor. Sifat fisik dan kimia yang unik dari lapisan tipis berstruktur nano membuka jalan untuk tercapainya sebuah biosensor dengan kinerja yang bagus. Lapisan tipis berbasis *CNT* bisa berfungsi sebagai konduktor listrik dan elektroda pengubah di dalam sebuah biosensor berbasis oksida. Oleh karena itu pada penelitian ini difokuskan pada pembuatan lapisan tipis untuk mendukung nantinya diperolehnya biosensor berkinerja bagus.

Tujuan akhir dari penelitian ini adalah untuk mendapatkan lapisan tipis *MWCNT*-Fe yang dapat digunakan untuk sensor. Sebagai salah satu bagian dari pencapaian tujuan akhir tersebut, melalui penelitian ini telah diselidiki sifat listrik dari lapisan tipis *MWCNT*-Fe yang difabrikasi memakai metoda *spin coating*, yang selanjutnya dapat diketahui potensi pemanfaatan lapisan tipis ini secara optimal untuk elemen sensor biomedik.

METODE PERCOBAAN

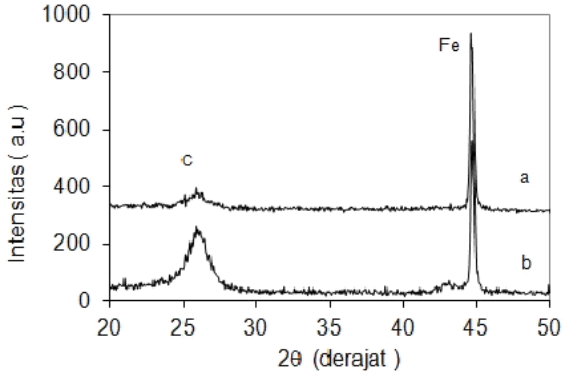
Tahapan-tahapan yang dilalui pada proses percobaan ini sebagai berikut:

a. Menyiapkan substrat gelas dan bahan fabrikasi lapisan tipis yakni Fe buatan *Aldrich* dengan kemurnian 99,9% dan *MWCNT* buatan *Cheap Tube* dengan kemurnian di atas 95%. Selanjutnya menyiapkan 2 variasi campuran serbuk *MWCNT*-Fe dengan persen (%) berat Fe sebesar 5% dan 7%. Tujuan penambahan kandungan unsur Fe di dalam campuran *MWCNT*-Fe adalah sebagai upaya untuk meningkatkan sifat listrik dari lapisan tipis yang dibuat.
b. Menyiapkan larutan *PVA* 10%. Kemudian ke dalam larutan *PVA* 10% ini dimasukkan campuran serbuk *MWCNT*-Fe (5%) dan *MWCNT*-Fe (7%). Larutan PVA ini nantinya akan berfungsi sebagai pengikat (binder) pada saat pembuatan lapisan tipis *MWCNT*-Fe dengan metoda *spin coating*. Larutan *PVA* yang telah ditambahkan *MWCNT*-Fe lalu diaduk dengan *magnetic stirrer* selama 1 jam sambil dipanaskan pada suhu 50 ^{o}C. Hasil akhirnya berbentuk larutan sol gel.
c. Menyiapkan peralatan *spin coating*. Peralatan tersusun atas komponen-komponen berupa ruang vakum, sistem pompa vakum, sumber tegangan *DC*, dan sistem gas masukan.
d. Larutan sol-gel *MWCNT*-Fe (baik yang mengandung Fe 5% maupun Fe 7%) lalu diteteskan secara bertahap sebanyak 3 tetes di atas permukaan gelas substrat yang diletakkan di dalam ruang *spin coating* dan diputar dengan kecepatan putar 300 *rpm*. Setelah itu lapisan tipis dikeringkan di udara terbuka pada suhu kamar.
e. Melakukan karakterisasi terhadap lapisan tipis yang diperoleh menggunakan alat *XRD* merek *Shimadzu* tipe *XD*-610, *LCR*-meter merek *Hioki* tipe 3523-50 *LCR Hitester*, Raman Spektroskopi merek Bruker tipe Senterra R200-785 dan *SEM-EDX* merek *Jeol* tipe JSM-6510LA. Alat-alat ini digunakan untuk mengetahui fasa-fasa yang terbentuk, mengukur konduktansi dan kapasitansi, mengamati morfologi permukaan lapisan tipis *MWCNT*-Fe.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil *XRD*

Gambar 1 memperlihatkan pola *XRD* terhadap sampel campuran serbuk *MWCNT*-Fe dengan persen (%)

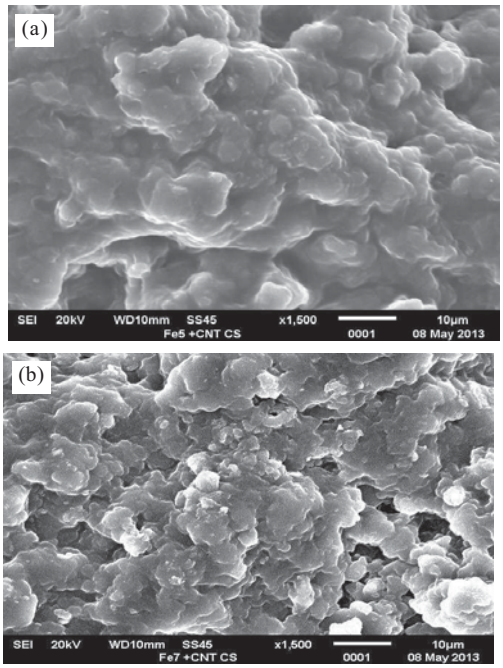


Gambar 1. Pola difraksi *XRD* campuran serbuk *MWCNT*-Fe (a). Fe (7%) dan (b). Fe (5%).

berat Fe sebesar 5% dan 7%. Hanya ada 2 puncak yakni karbon (C) dan Fe yang teridentifikasi dan tidak ada unsur pengotor ditemukan pada hasil *XRD* tersebut. Penambahan kandungan unsur Fe memberi dampak turunnya puncak karbon dan meningkatnya puncak Fe.

Morfologi Permukaan

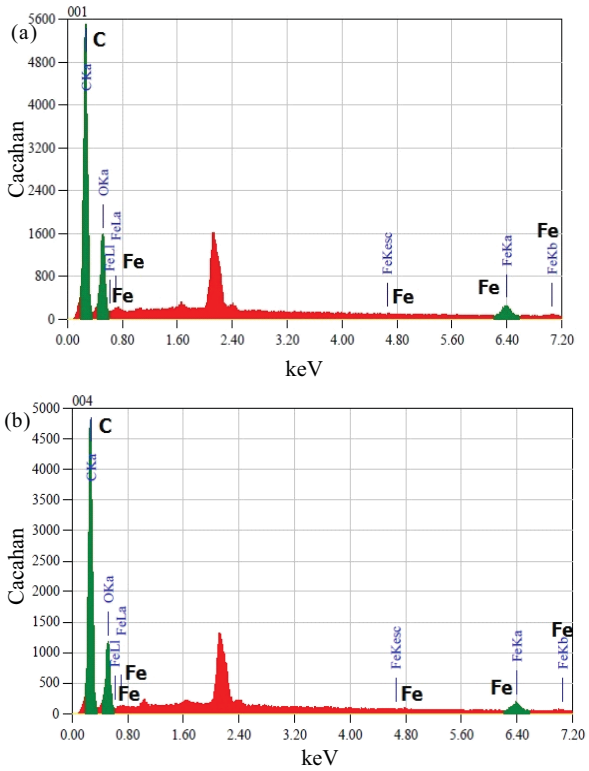
Gambar 2(a) menunjukkan morfologi permukaan lapisan tipis *MWCNT*-Fe (5%), dan Gambar 2b menunjukkan morfologi permukaan lapisan tipis *MWCNT*-Fe (7%). Pada kedua permukaan tampak adanya aglomerasi partikel dan pori-pori. Partikel-partikel terdispersi dengan lebih baik pada komposisi *MWCNT*-Fe (7%) yang ditandai dengan mengecilnya ukuran aglomerasi partikel (Gambar 2b). Dispersi ini diprediksi dari adanya penambahan kandungan unsur Fe di dalam *MWCNT*. Bertambahnya partikel Fe di dalam campuran serbuk *MWCNT*-Fe akan memecah aglomerasi *MWCNT* pada proses pengadukan larutan *MWCNT*-Fe oleh *magnetic stirrer*, sehingga berujung ke dispersi yang lebih bagus dari *MWCNT*. Fe sebagai surfaktan memiliki peran penting dalam mendispersikan *MWCNT*.



Gambar 2. Morfologi permukaan lapisan tipis MWCNT-Fe : (a). Lapisan tipis MWCNT-Fe (5%) dan (b). Lapisan tipis MWCNT-Fe (7%).

Namun secara keseluruhan pertumbuhan lapisan tipis yang halus dan rata serta homogen belum terjadi pada penelitian tahap awal pembuatan lapisan tipis ini. Diperlukan proses tambahan seperti aniling untuk menumbuhkan lapisan tipis *MWCNT*-Fe yang halus dan rata serta homogen dan homogen dengan morfologi berbentuk butiran partikel di atas substrat, seperti yang diperoleh oleh peneliti lainnya dengan parameter berbeda [10-11].

Untuk mengetahui unsur-unsur yang ada pada permukaan lapisan tipis *MWCNT*-Fe, dilakukan pengujian dengan EDX (*Energy Dispersive X-Ray*) pada lapisan tipis *MWCNT*-Fe. Dari hasil analisis spektrum dengan *EDX* didapat informasi adanya unsur-unsur C (dianggap mewakili *CNT*), O dan Fe, seperti diperlihatkan pada Gambar 3. Tidak ditemukan unsur-unsur lainnya (pengotor) baik pada lapisan tipis *MWCNT*-Fe (5%) maupun *MWCNT*-Fe (7%) ini.



Gambar 3. Tampilan spektrum EDS lapisan tipis MWCNT-Fe (a). Lapisan tipis MWCNT-Fe (5%) dan (b). Lapisan tipis MWCNT-Fe (7%).

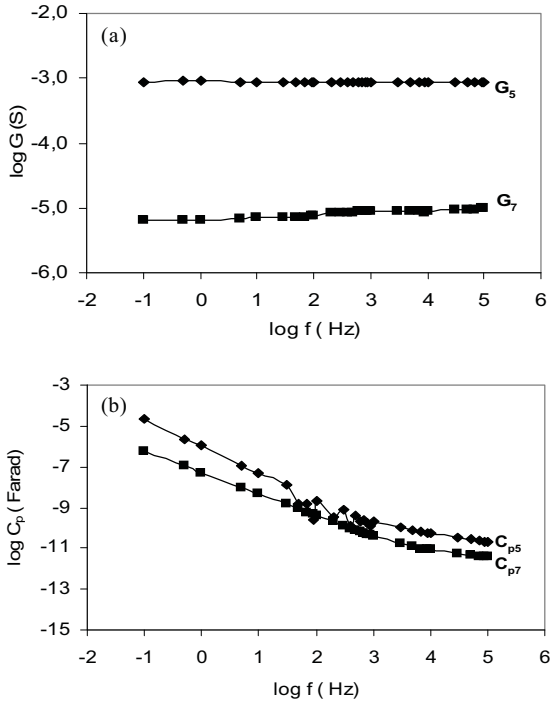
Konduktivitas dan Kapasitansi *MWCNT*-Fe

Gambar 4(a) menunjukkan kurva nilai konduktansi dan Gambar 4(b) menunjukkan kurva nilai kapasitansi lapisan tipis *MWCNT*-Fe di atas permukaan gelas substrat. Dari gambar tampak jelas bahwa nilai konduktansi lapisan tipis *MWCNT*-Fe relatif stabil terhadap perubahan frekuensi. Sedangkan nilai kapasitansi *MWCNT*-Fe turun seiring dengan naik nilai frekuensi.

Dari Tabel 1 diketahui bahwa nilai konduktansi lapisan tipis naik drastis seiring dengan bertambahnya persen (%) berat Fe di dalam

Tabel 1. Parameter listrik *MWCNT*-Fe.

Sampel	Konduktansi (µS)	Kapasitansi (µF)
MWCNT-Fe (5%)	0,0873	0,251
MWCNT-Fe (7%)	6,67	0,0301



Gambar 4. Kurva nilai konduktansi (G) dan kapasitansi (C) lapisan tipis *MWCNT*-Fe (a). (G5 : *MWCNT*-Fe (5%), G7 : *MWCNT*-Fe (7%)) dan (b). (Cp5 : *MWCNT*-Fe5%, Cp7 : *MWCNT*-Fe7%).

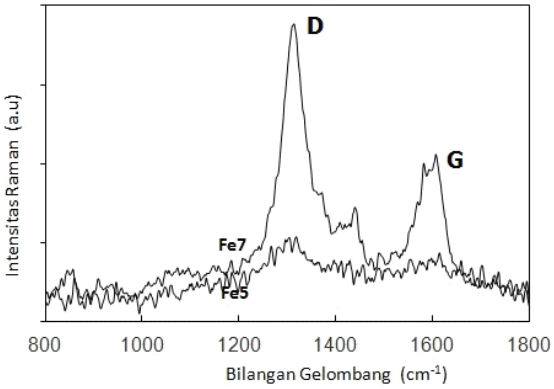
lapisan tipis. Sedangkan kecenderungan terhadap nilai kapasitansi adalah sebaliknya, yaitu mengalami penurunan drastis.

Secara teori unsur Fe adalah unsur yang menghantarkan listrik, artinya berfungsi sebagai konduktor, sehingga kenaikan kandungan unsur Fe dapat menaikkan nilai konduktansi. Sedangkan unsur karbon di dalam *MWCNT* memiliki sifat menyimpan listrik lebih bagus dibandingkan dengan Fe. Artinya unsur karbon memiliki nilai kapasitansi lebih tinggi dibandingkan Fe. Sehingga kebalikan dari nilai konduktansi, penambahan persen (%) berat Fe di dalam lapisan tipis akan membuat turunnya nilai kapasitansi, dan hal ini ditunjukkan dengan jelas pada hasil pengukuran nilai kapasitansi terhadap lapisan tipis *MWCNT*-Fe.

Dari hasil pengujian listrik ini lapisan tipis *MWCNT*-Fe (7%) memberikan nilai konduktansi jauh lebih besar dibandingkan *MWCNT*-Fe (5%), dan berpotensi diaplikasikan untuk bahan sensor yang memanfaatkan sifat konduktansi seperti sensor cahaya dan lain sebagainya. Sedangkan *MWCNT*-Fe (5%) dengan nilai kapasitansi yang lebih besar lebih cocok diterapkan sebagai bahan sensor yang memanfaatkan sifat kapasitansi seperti sensor kelembaban.

Spektroskopi Raman

Analisis Raman Spektroskopi dengan *laser power* 10 mV dan panjang gelombang 768 nm juga dilakukan terhadap sampel lapisan tipis *MWCNT*-Fe.



Gambar 5. Spektrum Raman *MWCNT*-Fe.

Gambar 5 menunjukkan spektrum Raman pada bahan lapisan tipis *MWCNT*-Fe (5%) dan *MWCNT*-Fe (7%). Puncak D band muncul pada posisi 1310 cm^{-1} hingga 1320 cm^{-1}, puncak harmonik kedua G *band* (G' *band*) muncul pada posisi 1605 cm^{-1} hingga 1615 cm^{-1}, dan puncak harmonik pertama G (tangensial G *band*) muncul pada posisi 1580 cm^{-1} hingga 1595 cm^{-1}. Munculnya 2 buah puncak G dan G' adalah berkaitan dengan mode tangensial grafit aktif E2g Raman, dimana dua atom dalam sel unit *graphene* yang bergetar tangensial satu terhadap yang lain. D *band* diaktifkan pada urutan yang pertama dari proses hamburan karbon sp2 melalui keberadaannya di dalam *vacancies*, di batas butiran serbuk, atau cacat (*defect*) lainnya, yang semuanya akan menurunkan kesimetrian kisi kristal [12,13].

Dengan kata lain, puncak D *band* diperkirakan muncul dari adanya gangguan di dalam sp2 karbon, dan dapat juga muncul karena adanya pengotor (*impurities*) atau distorsi kisi pada *MWCNT*. Oleh karena itu, keberadaan puncak D band dapat menjadi tanda atau menunjukkan adanya gangguan (kekacauan) di dalam kerangka heksagonal *MWCNT* [14]. Dalam hal terkait penelitian ini adalah gangguan berupa pencampuran atau penambahan serbuk Fe ke dalam *MWCNT*. Nilai intensitas Raman mengalami penurunan seiring dengan semakin besarnya nilai persen berat Fe ke dalam *MWCNT* atau semakin besarnya kandungan pengotor yang menimbulkan kekacauan atau distorsi kisi pada kerangka heksagonal *MWCNT*. Keberadaan puncak G *band* sendiri adalah berhubungan dengan modus E2g [15] dari grafit berorientasi tinggi dan menunjukkan adanya karbon kristal pada sampel *MWCNT*. Nilai intensitas Raman dari puncak G *band* juga menurun seiring dengan penurunan persen berat Fe di dalam *MWCNT*.

KESIMPULAN

Dari hasil penelitian ini dapat disimpulkan bahwa struktur *MWCNT*-Fe telah terdeposisi di atas gelas substrat namun belum memiliki morfologi yang halus dan rata serta homogen sehingga perlu proses tambahan

untuk memperbaiki penumbuhannya. Nilai konduktansi lapisan tipis naik drastis seiring dengan bertambahnya persen (%)berat Fe di dalam lapisan tipis, dan sebaliknya nilai kapasitansi mengalami penurunan drastis seiring dengan naiknya frekuensi pengukuran. Terjadi pergeseran bilangan gelombang pada spektrum lapisan tipis *MWCNT*-Fe karena adanya cacat dan vibrasi pada *MWCNT*. Cacat dan vibrasi ini muncul karena adanya pengaruh penambahan Fe.

UCAPAN TERIMAKASIH

Peneliti mengucapkan terimakasih atas bantuan staf BKAN yang telah membantu penelitian ini, terutama pada Mashadi, Muflikhah dan Tria Madesa serta kepala BKAN yang telah mengizinkan pemakaian alat.

DAFTAR ACUAN

[1]. H. Yoon. "Current Trends in Sensors Based on Conducting Polymer Nanomaterials." *Nanomaterials*, vol. 3, pp. 524-549, Oct. 2013.

[2]. H. S. Hassan, A.B. Kashyout, I. Morsi, A.A.A. Nasser and Ibrahim Ali. "Synthesis, Characterization and Fabrication of Gas Sensor Devices Using ZnO and ZnO:In Nanomaterials." *Beni-Suef University Journal of Basic and Applied Sciences*, vol. 3, pp. 216-221, Sept. 2014.

[3]. K. Xu, Mohsen Purahmad *et al*. "Chapter 3: Design and Applications of Nanomaterial-Based and Biomolecule-Based Nanodevices and Nanosensors." in *Design and Applications of Nanomaterials for Sensors*, Jorge M. Seminario, Ed. Dordrecht: Springer, 2014, pp.61-97.

[4]. M. Heidari and P. Azimi. "Conductivity Effect on the Capacitance Measurement of a Parallel-Plate Capacitive Sensor System." *Res. J. Appl. Sci. Eng. Technology*, vol.3, pp.53-60, Jan. 2011.

[5]. C. Boero, Jacopo Olivo *et al*. "New Approaches for Carbon Nanotubes-Based Biosensors and Their Application to Cell Culture Monitoring." *IEEE Transactions on Biomedical Circuits and Systems*, vol. 6, no. 5, pp. 479-485, Oct. 2012.

[6]. Y.T. Chang , J.H. Huang, M.C. Tu, *et al.* "Flexible Direct-growth CNT Biosensors." *Biosens Bioelectron*, vol. 26, pp. 898-902, 2013.

[7]. D. Zheng, S.K. Vashist, M.M. Dykas *et al.* "Graphene versus Multi-Walled Carbon Nanotubes for Electrochemical Glucose Biosensing." *Materials*, vol. 6, pp. 1011-1027, Mar. 2013.

[8]. J. C. Claussen, J. Shi, Chandra S. Rout *et al*. "Nano-seized Biosensors for Medical Applications." in *Biosensors for Medical Applications*, Series in Biomaterials Number 45, Seamus Higson, Ed. UK: Woodhead Publishing Limited, 2012, pp. 78-91.

[9]. I. Akhtar, F. Hashmi *et al.* "A Review: Biomedical Applications of Carbon Nanotubes." *Pac. J. Life Sci.,* vol. 2 (3), pp. 117-125, Aug. 2014.

[10]. S. Kim, A.A. Kafi, E. Bafekpour, *et al*. "Wettability Investigation of UV/O_3 and Acid Functionalized MWCNT and MWCNT/PMMA Nanocomposites by Contact Angle Measurement." *Journal of Nanomaterials*, vol. 2015, no.12, 2015.

[11]. A.K. Srivastava, P. Sachan, C. Samanta, *et al.* "Domain Growth of Carbon Nanotubes Assisted by Dewetting of Thin Catalyst Precursor Films." *Applied Surface Science*, vol. 288, pp. 215-221, 2014.

[12]. T. Ch. Hirschmann, P.T. Araujo *et al.* "Characterization of Bundled and Individual Triple-Walled Carbon Nanotubes by Resonant Raman Spectroscopy." *ACS Nano*, vol. 7 (3), pp.2381-2387, Mar. 2013.

[13]. X. Hou, L. Sheng, L. Yu *et al*. "Surface-enhanced Raman Spectra of Individual Multiwalled Carbon Nanotubes with Small Innermost Diameters." *Journal of Raman Spectroscopy*, vol. 43 (10), pp. 1381-1384, Oct. 2012.

[14]. L.G. Cancado, A. Jorio, E. H. Martins Ferreira *et al.* "Quantifying Defects in Graphene via Raman Spectroscopy at Different Excitation Energies." *Nano Lett.*, vol. 43 (10), pp. 3190-3196, Jun. 2011.

[15]. C. Bower, O. Zhou *et al*. " Nucleation and Growth of Carbon Nanotubes by Microwave Plasma Chemical Vapor Deposition." *Appl. Phys. Lett.,* vol. 77, pp. 2767-2769, 2000.