

BAB I. PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Penggunaan komputer pada saat ini berkembang dengan cepatnya sehingga menyebabkan naiknya kebutuhan terhadap teknologi penyimpanan data dengan densitas yang tinggi, nonvolatil, dan daya konsumsi yang rendah¹. Senyawa berstruktur perovskit berlapis yang memiliki dipol listrik dan dipol magnetik yang bekerja secara bersamaan telah menarik minat yang luar biasa disebabkan karena aplikasinya yang potensial di dalam penyimpanan multidata, transduser, modulator amplitudo, dan perangkat gelombang optik². Material multiferroik merupakan material yang memiliki aktivitas feroelektrik dan feromagnetik yang bekerja secara serentak. Namun material yang menunjukkan sifat multiferroik di atas temperatur ruangan dan cocok dijadikan sebagai kandidat untuk penggunaan perangkat masa depan masih sangat langka. Salah satu cara untuk membuat material multiferroik dimulai dari serangkaian feroelektrik yang baik dan membuat fungsi tambahannya dengan memasukkan ion magnetik kedalam sistemnya. Material yang menjanjikan untuk tujuan ini dapat berupa senyawa berfasa Aurivillius³. Oksida multiferroik bertipe Aurivillius merupakan kandidat yang berpotensi untuk dijadikan material multiferroik berfasa tunggal dengan sifat feroelektrik dan feromagnetik yang bekerja berdampingan².

Senyawa berfasa Aurivillius merupakan senyawa dengan rumus umum kimianya yaitu $(\text{Bi}_2\text{O}_2)^{2+}(\text{A}_{m-1}\text{B}_m\text{O}_{3m+1})^{2-}$, dimana A merupakan kombinasi dari satu atau lebih ion bervalensi satu, dua, atau tiga dengan koordinasi dodekahedral. Sedangkan B merupakan kombinasi ion dengan valensi tiga, empat, lima, atau enam dengan koordinasi oktahedral dan m menunjukkan jumlah oktahedral BO_6 diantara lapisan Bi_2O_2 yang berdekatan disepanjang sumbu c. Oktahedral BO_6 ini menunjukkan polarisasi spontan dan lapisan $(\text{Bi}_2\text{O}_2)^{2+}$ bertindak sebagai isolasi lapisan paraelektrik terutama untuk mengendalikan respon listrik seperti konduktivitas listrik, sedangkan feroelektrisitas muncul pada pada blok perovskit. Sebagian besar dari oksida ini merupakan material feroelektrik yang normal dengan temperatur transisi yang tinggi⁴. Material Aurivillius ini memiliki perhatian yang besar disebabkan karena memiliki polarisasi remanen yang besar, bebas timbal, dapat dibuat dalam temperatur rendah, memiliki temperatur tansisi yang tinggi, dan memiliki sifat piezoelektrik yang bagus sehingga senyawa ini merupakan kandidat untuk penggunaan piezoelektrik bertemperatur tinggi dan media penyimpanan⁵.

Penelitian mengenai senyawa Aurivillius ini telah banyak dilakukan, diantaranya yaitu $\text{Bi}_5\text{Ti}_3\text{Fe}_{0.5}\text{Ni}_{0.5}\text{O}_{15}$ ⁶, $\text{BaBi}_4\text{Ti}_4\text{O}_{15}$ ⁷, $\text{Bi}_5\text{Ti}_3\text{FeO}_{15}$, $\text{Bi}_6\text{Ti}_3\text{Fe}_2\text{O}_{18}$ ⁸, $\text{SrBi}_4\text{Ti}_4\text{O}_{15}$ ⁹, $\text{CaBi}_4\text{Ti}_4\text{O}_{15}$ ¹⁰, dan lain-lain. *Calcium bismuth titanate* $\text{CaBi}_4\text{Ti}_4\text{O}_{15}$ (CBT) merupakan salah satu material multifungsi dengan potensi aplikasi pada suhu tinggi disebabkan karena suhu transisinya yang tinggi ($T_c = 790^\circ\text{C}$) dan resistivitas yang tinggi¹⁰. Dengan sifat tersebut menjadikan CBT ini menarik untuk disintesis. Pada tahun 2014, Diao dkk melaporkan bahwa substitusi ion tanah jarang pada senyawa Aurivillius $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ dapat menstabilkan ion oksigen di dalam kisi serta meningkatkan sifat feroelektriknya. La dan Nd merupakan unsur yang paling banyak digunakan untuk memodifikasi sifat senyawa Aurivillius¹¹. Pada penelitian yang telah dilakukan oleh Hou dkk, dilaporkan bahwa substitusi ion Nd^{3+} untuk Bi^{3+} pada senyawa $\text{CaBi}_{4-x}\text{Nd}_x\text{Ti}_4\text{O}_{15}$ menyebabkan feroelektrisitas dalam $\text{CaBi}_{4-x}\text{Nd}_x\text{Ti}_4\text{O}_{15}$ menjadi lebih lemah dan temperatur transisi dari senyawa tersebut juga menjadi menurun seiring dengan meningkatnya x ¹². Penggunaan doping La^{3+} pada senyawa Aurivillius $\text{Bi}_{4-x}\text{La}_x\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ telah dilaporkan oleh Pavlovic pada tahun 2011. Dengan penambahan ion La^{3+} dapat meningkatkan sifat dielektrik dari senyawa bismuth titanat $\text{Ba}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ karena menekan volatilitas kation Bi^{3+} dan mengurangi kekosongan oksigen di dalam keramik¹³. Penggunaan doping La^{3+} juga diketahui dapat mengurangi *loss dielectric* dari senyawa Aurivillius¹⁴. Selain substitusi doping ion tanah jarang, substitusi kation logam transisi magnetik sebagai doping juga dapat dilakukan pada senyawa Aurivillius. Substitusi kation logam transisi magnetik ke dalam lapisan oktahedral pusat pada blok perovskit sambil mempertahankan perpindahan feroelektrik di lapisan oktahedral luar, menunjukkan rute yang memungkinkan untuk material multiferroik¹⁵. Kation Mn^{3+} merupakan salah satu kation logam transisi magnetik. Selain itu doping Mn^{3+} juga dapat meningkatkan feroelektrisitas dari suatu senyawa Aurivillius ini¹⁵. Oleh karena itu, penggunaan kation Mn^{3+} kedalam blok perovskit diharapkan menghasilkan material yang memiliki sifat yang menarik, termasuk feroelektrik dan feromagnetik dalam satu fasa¹⁶.

Metode yang paling banyak digunakan untuk sintesis senyawa Aurivillius yaitu metode reaksi kimia padat. Namun persiapan senyawa Aurivillius dengan ion d^0 dan d^n oleh reaksi kimia padat sangat sulit. Adanya perbedaan valensi ion menyebabkan terbentuknya fasa pengotor. Selain itu metode reaksi kimia padat juga memiliki kekurangan yaitu homogenitas campuran reaktan yang rendah dan difusi ionik yang lambat¹⁶. Oleh sebab itu digunakan metode alternatif lain untuk sintesis senyawa

aurivillius ini, yaitu dengan metode hidrotermal. Proses hidrotermal dapat mempersiapkan kristal oksida dengan distribusi ukuran partikel yang sempit, menghasilkan bubuk keramik yang sangat halus tanpa kalsinasi pada suhu tinggi. Partikel yang dihasilkan membentuk aglomerasi yang rendah dengan meminimalkan jumlah langkah prosesnya seperti pencampuran, kalsinasi dan lain-lainnya atau tanpa menggunakan langkah tersebut. Selain itu, metode hidrotermal relatif simpel dan mudah untuk digunakan⁹. Oleh sebab itu, pada penelitian ini dilakukan sintesis senyawa Aurivillius yang mengandung kation magnetik dan feroelektrik $\text{Ca}_{1-x}\text{Bi}_{3+x}\text{LaTi}_{4-x}\text{Mn}_x\text{O}_{15}$ dengan komposisi $x = 0; 0,2; 0,4; 0,6; 0,8; \text{ dan } 1$ dengan menggunakan metode hidrotermal serta mempelajari pengaruh penambahan kation La dan Mn terhadap sifat dielektriknya.

1.2 Rumusan Masalah

Berdasarkan latar belakang yang telah dipaparkan di atas, maka dapat diajukan rumusan masalah, yaitu

1. Apakah sintesis senyawa Aurivillius $\text{Ca}_{1-x}\text{Bi}_{3+x}\text{LaTi}_{4-x}\text{Mn}_x\text{O}_{15}$ dengan komposisi $x = 0; 0,2; 0,4; 0,6; 0,8; \text{ dan } 1$ dapat dilakukan dengan metode hidrotermal?
2. Bagaimana kemurnian fasa dan karakteristik kristal yang terbentuk?
3. Bagaimana pengaruh penggunaan kation La^{3+} dan Mn^{3+} terhadap sifat dielektrik senyawa Aurivillius $\text{Ca}_{1-x}\text{Bi}_{3+x}\text{LaTi}_{4-x}\text{Mn}_x\text{O}_{15}$?

1.3 Tujuan Penelitian

Berdasarkan rumusan masalah yang telah diajukan, maka penelitian ini bertujuan untuk

1. Mensintesis senyawa senyawa Aurivillius $\text{Ca}_{1-x}\text{Bi}_{3+x}\text{LaTi}_{4-x}\text{Mn}_x\text{O}_{15}$ dengan komposisi $x = 0; 0,2; 0,4; 0,6; 0,8; \text{ dan } 1$ menggunakan metode hidrotermal.
2. Menentukan kemurnian fasa dan karakteristik kristal yang terbentuk
3. Mempelajari pengaruh penggunaan kation La^{3+} dan Mn^{3+} terhadap sifat dielektrik senyawa Aurivillius $\text{Ca}_{1-x}\text{Bi}_{3+x}\text{LaTi}_{4-x}\text{Mn}_x\text{O}_{15}$.

1.4 Manfaat Penelitian

Senyawa yang disintesis diharapkan dapat digunakan pada bahan-bahan multiferroik seperti peralatan penyimpanan memori. Selain itu juga diharapkan dapat digunakan sebagai katalis, material magnetik dan konduktor.