

**STUDI n-LAPIS OKTAHEDRAL TERHADAP SIFAT FEROELEKTRIK OKSIDA LOGAM
AURIVILLIUS $Sr_{(n-2)}Bi_3Ti_nO_{(3n+3)}$ ($n = 3, 4, 5$ dan 6)**

**STUDY n-LAYER OCTAHEDRAL AGAINST THE METAL OXIDE AURIVILLIUS
FERROELECTRIC PROPERTIES $Sr_{(n-2)}Bi_3Ti_nO_{(3n+3)}$ ($n = 3, 4, 5$ and 6)**

Edi Mikrianto¹ ; Dwi Rasy Mujiyanti¹ ; Rahmat Yunus¹; Dahlena Ariyani¹

¹Program Studi Kimia FMIPA Universitas Lambung Mangkurat Jl. A. Yani Km. 36 Banjarbaru, Indonesia

Corresponding author: edimikrianto@unlam.ac.id

ABSTRAK

Senyawa oksida logam berstruktur Aurivillius $Sr_{(n-2)}Bi_3Ti_nO_{(3n+3)}$ ($n = 3, 4, 5$ dan 6) telah disintesis menggunakan metode hidrotermal pada suhu $200\text{ }^\circ\text{C}$, konsentrasi NaOH 3 M sebagai mineralizer, dan variasi waktu 48, 72, dan 96 jam. Penelitian ini bertujuan untuk mengetahui hubungan kausal antara jumlah lapis oktahedral dan sifat karakteristik oksida logam Aurivillius feroelektrik sebagai bahan kapasitor. Keempat oksida logam target sintesis dihasilkan produk sintesis dalam bentuk polikristalin berwarna putih. Analisis struktur menggunakan metode Le Bail menunjukkan bahwa parameter sel untuk oksida logam keempatnya bergeometri orthorombik, grup ruang $A2_1am..$ Namun berbeda ukuran parameter selnya, untuk $SrBi_3Ti_3O_{13}$ (SBT 3 lapis) yaitu $a = 5,0656\text{ \AA}$; $b = 5,1774\text{ \AA}$; $c = 30,2878\text{ \AA}$; $Sr_2Bi_3Ti_4O_{15}$ (SBT 4 lapis) yaitu $a = 5,1453\text{ \AA}$; $b = 5,2455\text{ \AA}$; $c = 35,54354\text{ \AA}$; $Sr_3Bi_3Ti_5O_{18}$ (SBT 5 lapis) yaitu $a = 5,2674\text{ \AA}$; $b = 5,2845\text{ \AA}$; $c = 41,4432\text{ \AA}$ dan $Sr_4Bi_3Ti_6O_{21}$ (SBT 6 lapis) yaitu $a = 5,4800\text{ \AA}$; $b = 5,5643\text{ \AA}$; $c = 45,4994\text{ \AA}$. Pengukuran sifat feroelektrik dari keempat oksida logam Aurivillius hasil sintesis menunjukkan pola histeresis dengan nilai polarisasi remanen sangat besar adalah SBT tiga lapis $30,2\text{ C/cm}^2$; SBT empat lapis $24,4\text{ C/cm}^2$; SBT lima lapis $35,1\text{ C/cm}^2$ dan SBT enam lapis $27,8\text{ C/cm}^2$. Berdasarkan pola histeresis sifat feroelektrik keempat oksida logam target bertambah besar Pr(+) polarisasi remanen dengan bertambahnya jumlah lapis oktahedral, bahkan teridentifikasi bahwa jumlah lapis oktahedral dengan jumlah ganjil lebih besar dibanding dengan n oktahedral genap

Kata Kunci: Aurivillius, hidrotermal, polarisasi, feroelektrik, kapasitor

ABSTRACT

Compound metal oxide structure Aurivillius $Sr_{(n-2)}Bi_3Ti_nO_{(3n+3)}$ ($n = 3, 4, 5$ and 6) have been synthesized using hydrothermal method at $200\text{ }^\circ\text{C}$, the concentration of NaOH 3 M as mineralizer, and the variation 48, 72, and 96 hours. This study aims to determine the causal relationship between the number of octahedral layers and characteristic properties of metal oxides as Aurivillius ferroelectric capacitor materials. Fourth synthesis of metal oxide targets produced synthetic products in the form of white polycrystalline. Analysis of the structure using the Le Bail method showed that the cell parameters for a fourth metal oxide geometries orthorombik, the space group $A2_1am..$ However, different sizes cell parameters, for $SrBi_3Ti_3O_{13}$ (SBT 3 layers), namely $a = 5.0656\text{ \AA}$; $b = 5.1774\text{ \AA}$; $c = 30.2878\text{ \AA}$; $Sr_2Bi_3Ti_4O_{15}$ (SBT 4 layers) is $a = 5.1453\text{ \AA}$; $b = 5.2455\text{ \AA}$; $c = 35.54354\text{ \AA}$; $Sr_3Bi_3Ti_5O_{18}$ (SBT 5 layers) is $a = 5.2674\text{ \AA}$; $b = 5.2845\text{ \AA}$; $c = 41.4432\text{ \AA}$ and $Sr_4Bi_3Ti_6O_{21}$ (SBT 6 layers), namely $a = 5.4800\text{ \AA}$; $b = 5.5643\text{ \AA}$; $c = 45.4994\text{ \AA}$. Measurement properties of ferroelectric Aurivillius fourth metal oxide synthesis results showed a pattern of hysteresis with very large remanent polarization values are SBT three layers of 30.2 C/cm^2 ; SBT four layers of 24.4 C/cm^2 ; SBT five layers of 35.1 C/cm^2 and SBT six layers of 27.8 C/cm^2 . Based on the pattern of the fourth ferroelectric hysteresis properties of the metal oxide targets grew Pr (+) remanent polarization with increasing number of octahedral layers, even the research identified that the number of octahedral layers with an odd number greater than the number of octahedral even.

Key Words: Aurivillius, hydrothermal, polarization, ferroelectric, capacitors

PENDAHULUAN

Kemajuan industri dalam bidang teknologi elektronika berkembang sangat cepat. Hal ini didukung oleh komponen-komponen perangkat elektronik penyusunnya. Banyak komponen yang berfungsi sangat penting sebagai penentu operasional pada perangkat elektronika seperti salah satunya adalah kapasitor. Kapasitor adalah suatu material yang bersifat feroelektrik yang mempunyai kemampuan menahan sisa polarisasi elektrik setelah tegangan listrik dihilangkan (Aurivillius, 1950). Kapasitor dapat dibuat dari material yang bersifat semikonduktor, namun kapasitor dari bahan semikonduktor ukuran sel biasanya direduksi besar-besaran sehingga untuk lapisan dielektrik semikonduktor dianggap tidak praktis lagi oleh karena itu material feroelektrik menjadi salah satu alternatif lain. Penggunaan material feroelektrik dimungkinkan karena biasanya material feroelektrik memiliki konstanta dielektrik tinggi dapat digunakan untuk DRAM (*Dynamic Random of Access Memory*) dengan kerapatan tinggi. Keuntungan lain adalah berlaku sebagai memori permanen yang mampu menekan kehilangan informasi selama proses berulang. Selain itu dalam pemanfaatannya sifat-sifat bahan feroelektrik dapat dipabrikasi sesuai kebutuhan serta mudah diintegrasikan dalam bentuk *device*. Material yang dapat bersifat feroelektrik salah satunya adalah senyawa oksida logam berstruktur aurivillius dengan rumus umumnya adalah $(\text{Bi}_2\text{O}_2)^{2+}(\text{A}_{n-1}\text{B}_n\text{O}_{3n+3})^{2-}$

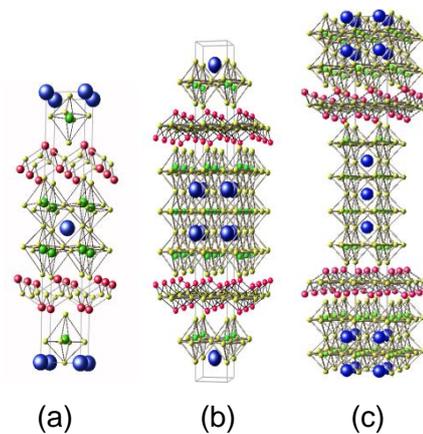
terdiri dari dua lapisan yaitu lapisan perovskit yang berada diantara lapisan $[\text{Bi}_2\text{O}_2]^{2+}$ (Mikrianto E, et al, 2004). Pada lapisan perovskit $[\text{A}_{n-1}\text{B}_n\text{O}_{3n+1}]^{2-}$, kation B berada pada pusat oktahedral oksigen. Kedelapan oktahedral saling bersambungan pada ujung-ujungnya dan membentuk suatu susunan kubus dan kation A berada di dalam susunan kubus itu sehingga kation A mengikat 12 oksigen yang mengelilinginya membentuk geometri dodekahedral. Kation A biasanya adalah unsur mono, di- atau trivalen seperti beberapa unsur logam alkali, alkali tanah, unsur tanah jarang atau campurannya (Akira, 2000). Sedangkan kation B biasanya adalah suatu unsur dari golongan logam transisi, n adalah bilangan bulat ($1 \leq n \leq 8$) yang menyatakan jumlah oktahedral dalam lapisan perovskit sehingga oksida aurivillius dapat membentuk struktur deret seri berdasarkan jumlah lapis oktahedral seperti yang terlihat pada Gambar 1.

Sintesis senyawa oksida logam aurivillius merupakan suatu langkah dan upaya untuk mengeksplorasi senyawa-senyawa oksida logam serta menemukan senyawa oksida logam yang mempunyai sifat feroelektrik unggul sebagai upaya pengayaan dalam pembuatan data base khususnya senyawa oksida logam yang mempunyai karakter feroelektrik dan berpotensi sebagai material kapasitor seiring dengan berkembangnya teknologi prosesing keramik dan teknologi film tipis. (Ismunandar, 2006)

Perkembangan studi material yang potensial sebagai bahan yang bersifat

feroelektrik menunjukkan kemajuan ditandai dengan banyaknya penelitian yang mengarah ke bahan-bahan feroelektrik untuk menjadi bahan memori. Perkembangan studi sintesis dan struktur aurivillius telah banyak dilakukan oleh peneliti-peneliti sebelumnya (Akira, 2000). Pada penelitian sebelumnya (Mikrianto *et al.*, 2007) telah berhasil mensintesis oksida logam aurivillius tipe $\text{SrBi}_4\text{Ti}_4\text{O}_{15}$ empat lapis menggunakan metode sintesis reaksi kimia fasa padat. Hasil sintesis tersebut menghasilkan oksida logam dengan sistem kristal ortorombik dengan parameter sel satuan $a = 5,4752 \text{ \AA}$, $b = 5,5443 \text{ \AA}$, $c = 41,719 \text{ \AA}$ dengan grup ruang $A2_1am$. Hasil sintesis ini menghasilkan kapasitor dengan karakteristik feroelektrik senyawa oksida logam aurivillius $\text{SrBi}_4\text{Ti}_4\text{O}_{15}$ dengan nilai polarisasi remanen $P_r(+)$ dan $P_r(-)$ sebesar $24,7 \text{ Ccm}^{-2}$ dan $10,4 \text{ Ccm}^{-2}$, dan nilai polarisasi jenuh $P_s(+)$ dan $P_s(-)$ adalah $45,9 \text{ Ccm}^{-2}$ dan $29,1 \text{ Ccm}^{-2}$. Rizal *et al.* (2007) juga telah berhasil mensintesis oksida logam Aurivillius $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ dengan metode hidrotermal. Metode sintesis hidrotermal mempunyai beberapa keunggulan, diantaranya penggunaan waktu sintesis yang lebih singkat, kemampuan solvasi yang lebih tinggi, tekanan yang tinggi, dan transpor massa pelarut (Ismunandar, 2006). Keunggulan produk sintesis dari metode hidrotermal ini tentunya akan memberikan pengaruh pada sifat karakteristik, terutama sifat feroelektrik yang dimiliki produk sintesis itu. Pada penelitian ini dilakukan sintesis Senyawa oksida logam berstruktur Aurivillius

dengan rumus $\text{Sr}_{(n-2)}\text{Bi}_3\text{Ti}_n\text{O}_{(3n+3)}$ dengan nilai $n = 3, 4, 5$ dan 6 menggunakan metode hidrotermal pada suhu $200 \text{ }^\circ\text{C}$, konsentrasi NaOH 3 M sebagai mineralizer, dan variasi waktu $48, 72,$ dan 96 jam. Produk sintesis oksida logam aurivillius dilakukan karakterisasi struktur dengan menggunakan metoda difraksi sinar-X (XRD) dengan analisis stuktur refinemen metode *Rietveld* analisis *Le Bail* dan penentuan sifat feroelektrik menggunakan metode keramik kapasitor.



Gambar 1. Struktur Aurivillius berdasarkan jumlah lapis oktahedral pada lapisan perovskit (a). 2 lapis (b). 3 lapis (b). 4 lapis (Mikrianto *et al.*, 2016)

Sintesis oksida logam aurivillius dengan rumus $\text{Sr}_{(n-2)}\text{Bi}_3\text{Ti}_n\text{O}_{(3n+3)}$ dengan nilai $n = 3, 4, 5$ dan 6 dilakukan untuk mengetahui hubungan kausal antara jumlah lapis oktahedral terhadap sifat feroelektrik akibat bertambahnya jumlah lapis oktahedral. Hal ini merupakan suatu fenomena yang menarik untuk dilakukan suatu penelitian terpadu sehingga ditemukan jawaban tentang hubungan bertambahnya jumlah lapis oktahedral terhadap sifat feroelektriknya. Dengan demikian penelitian ini pada

gilirannya akan dapat menambah minat pada pencarian atau sintesis material feroelektrik yang yang berpotensi sebagai material kapasitor unggul dan memungkinkan untuk inovasi teknologi yang melibatkan keunggulan material feroelektrik

METODOLOGI PENELITIAN

Alat dan Bahan

Sintesis oksida Aurivillius tipe $\text{Sr}_{(n-2)}\text{Bi}_3\text{Ti}_n\text{O}_{(3n+3)}$ dengan nilai $n = 3, 4, 5$ dan 6 dengan menggunakan metode reaksi hidrotermal dilaksanakan di Laboratorium Dasar FMIPA UNLAM Banjarbaru. Analisis hasil sintesis senyawa oksida logam Aurivillius dengan menggunakan difraktometer sinar-X (XRD) dilakukan di Departemen Pertambangan Institut Teknologi Bandung. Sedangkan penentuan sifat feroelektriknya dilakukan dengan instrumen tipe RT66A *Ferroelectric System-Radiant Technology* di Program Studi Fisika, ITB, Bandung. Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini adalah neraca analitik, difraktometer sinar X serbuk, instrumen tipe RT66A *Ferroelectric System-Radiant Technology*, *furnace* dan peralatan gelas.

Sintesis oksida Aurivillius tersebut dibuat dengan mereaksikan oksida-oksida penyusunnya sesuai dengan stoikiometri yang diinginkan. Oksida-oksida penyusun dari oksida Aurivillius yang akan disintesis adalah Bi_2O_3 (99,999% Aldrich), TiO_2 (99,99% Aldrich) dan SrCO_3 (99,98% Aldrich).

Prosedur Penelitian

Sebanyak bahan reaktan stokiometri ditimbang, dicampur dan digerus hingga menjadi homogen. Campuran dimasukkan ke dalam autoklaf kemudian ditambahi larutan NaOH 3 M hingga mencapai ± 25 mL. Autoklaf dipanaskan di dalam *furnace* pada suhu pemanasan 200°C selama 48 jam, 72 jam, dan 96 jam sehingga terbentuk tekanan *autogenous* dalam autoklaf. Serbuk yang diperoleh dicuci dengan air bebas mineral untuk menghilangkan ion Na^+ dan dikeringkan pada suhu 105°C di dalam oven (Rizal, *et al.*, 2007).

Sampel hasil sintesis dikarakterisasi dengan difraksi sinar-X (XRD) dari sumber sinar logam Cu. Produk senyawa target yang terbentuk dilakukan analisa produk dengan membandingkan database PDF (*Powder Diffraction File*) dan untuk menentukan kepastian struktur oksida aurivillius yang terbentuk dilakukan refinemen menggunakan metoda pengindeksan dengan metode *rietveld* analisis *Le Bail* untuk menentukan parameter sel satuan, grup ruang, bentuk geometri dan indeks Miller. Data difraksi sinar-x diambil dari sudut (2θ) 10° sampai dengan 90° dengan selang $0,05^\circ$. Difraktogram yang diperoleh berupa grafik hubungan antara intensitas puncak dan sudut difraksi (2θ).

Beberapa gram senyawa oksida aurivillius hasil sintesis dilakukan pengepresan untuk membentuk pelet dengan luas penampang $1,54 \text{ cm}^2$ dan ketebalan sekitar $\pm 1 \text{ mm}$ ($1000 \mu \text{ m}$). Pelet yang

terbentuk dipanaskan pada temperatur 800 °C selama 24 jam sehingga membentuk keramik. Prosedur yang sama juga dilakukan pada senyawa oksida aurivillius hasil sintesis. Keramik yang terbentuk ditempatkan pada kaca aluminium evaporator yang sebelumnya bagian permukaan diberi satu tetes pasta perak. Bagian atas dari keramik diberi satu tetes pasta perak dan ditutup lagi dengan kaca aluminium evaporator sehingga membentuk kapasitor. Kapasitor kemudian disolder dengan kawat penghubung elektrode pada kedua sisi kaca evaporator. Karakterisasi feroelektrik dilakukan dengan instrumen tipe RT66A *Ferroelektrik Sistem-Radiant Technology* untuk mengetahui sifat feroelektrik senyawa target. Kawat dihubungkan dengan elektroda pada instrumen dan dilakukan seting pengukuran. Data diambil pada tegangan maksimum (V_{max}) 16 Volt pada kapasitor pembobot 0,05 μF dengan jumlah titik 300 buah (Mikrianto *et al.*, 2004)

HASIL DAN PEMBAHASAN

Sintesis Oksida Logam Aurivillius

Senyawa oksida logam Aurivillius, telah berhasil disintesis dengan menggunakan metode hidrotermal. Bahan-bahan yang digunakan untuk sintesis mempunyai tingkat kemurnian yang sangat tinggi agar mendapatkan produk kristal yang lebih murni dan mengurangi pengotor di dalamnya. Bahan-bahan yang digunakan pada sintesis oksida logam Aurivillius reaktan aldrich ditimbang menggunakan neraca analitik

untuk memperoleh massa yang akurat. Bahan-bahan yang sudah ditimbang dengan teliti dimasukkan ke dalam mortar untuk digerus dengan bantuan larutan aseton agar dapat bercampur dan berinteraksi satu sama lain. Penggerusan pada oksida logam akan menghasilkan distribusi homogen dari campuran oksida reaktan dimana partikel oksida yang satu akan dikelilingi oleh partikel oksida yang lain. Selain itu, penggerusan dilakukan untuk memperluas permukaan kontak padatan, karena dengan semakin berkurangnya ukuran partikel maka luas permukaan kontak padatan akan bertambah sehingga kecepatan reaksi dan difusi yang terjadi akan semakin meningkat.

Campuran tersebut selanjutnya dipindahkan ke dalam autoklaf, ditambahkan *mineralizer* NaOH 3 M sebanyak 25 mL sambil diaduk dan kemudian dipanaskan dalam oven pada suhu 200 °C dengan variasi waktu 48 jam, 72 dan 96 jam. Penambahan *mineralizer* bertujuan untuk meningkatkan kelarutan reaktan yang akan disintesis dan pengadukan bertujuan agar reaktan-reaktan yang telah terlarut tersebut dapat saling bertabrakan sehingga terjadi reaksi pada suhu 200 °C serta pengaruh tekanan dari sistem yang tertutup, diharapkan senyawa oksida logam yang terbentuk memiliki kemurnian tinggi dengan ukuran kristal yang besar, dan dislokasi yang minimum.

Pemanasan dilakukan pada reaktan akan diserap dalam bentuk vibrasi atom-atom penyusunnya. Hantaran panas dalam bahan

padatan ini melibatkan transfer energi antar atom-atom yang bervibrasi, di mana vibrasi atom-atom ini akan mempengaruhi gerakan-gerakan atom lain. Semakin lama waktu sintesis yang dilakukan, diharapkan vibrasi tersebut akan lebih optimal apalagi jika pengaruh tekanan ditambah. Oleh karena itu, secara teoritis pada periode waktu pemanasan yang lama akan dihasilkan produk sintesis yang mempunyai nilai kristalinitas tinggi. Hasil penelitian waktu optimum pemanasan dilakukan selama 72 jam dihasilkan struktur padatan yang paling baik.

Setelah waktu sintesis yang ditentukan dicapai, dilakukan pendinginan secara perlahan, hal ini dimaksudkan agar senyawa yang berada di dalam autoklaf mengalami pendinginan secara berangsur-angsur, sehingga tidak mengakibatkan kerusakan struktur kristal yang dihasilkan. Setelah masa pendinginan selesai, terlihat bahwa senyawa mengendap di dasar autoklaf dan larutan NaOH yang berada di atasnya tetap bening dan warna endapan adalah putih berbentuk serbuk dan bertekstur kasar. Endapan senyawa yang terbentuk disaring untuk memisahkannya dari larutan NaOH yang masih tersisa. Senyawa produk sintesis dilakukan pencucian dengan air bebas mineral (*aqua dm*) untuk menghilangkan ion Na^+ sisa *mineralizer* yang masih melekat pada senyawa. Filtrat dari proses pencucian senyawa ini dilakukan pengukuran pH sampai netral. Setelah senyawa oksida logam sudah bebas dari ion Na^+ , maka

senyawa tersebut didiamkan dalam suhu kamar untuk menguapkan molekul air yang masih terikat di dalam senyawa sampai benar-benar kering. Senyawa yang telah kering kemudian digerus lagi untuk mendapatkan partikel-partikel senyawa yang lebih halus. Data hasil pengamatan hasil sintesis senyawa oksida Aurivillius target untuk metode sintesis hidrotermal pada suhu 200 °C selama 72 jam konsentrasi *mineralizer* NaOH 3 M disajikan pada Tabel 1.

Tabel 1. Data pengamatan hasil sintesis Oksida Logam Aurivillius hasil sintesis

SrBi_3Ti_3 O_{12} (SBT 3)	$\text{Sr}_2\text{Bi}_3\text{Ti}_4$ O_{15} (SBT 4)	$\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_5$ O_{18} (SBT 5)	$\text{Sr}_4\text{Bi}_3\text{Ti}_6$ O_{21} (SBT 6)
Putih	Putih	Putih	Putih
Serbuk Kasar	Serbuk Kasar	Serbuk Kasar	Serbuk Kasar

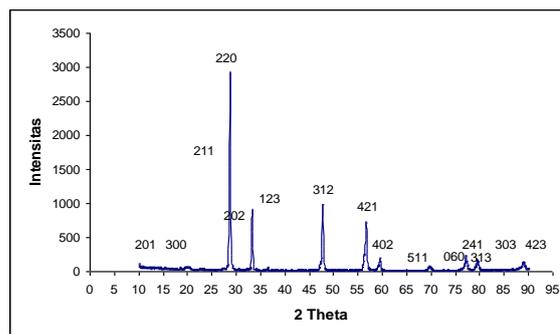
Sumber : (Mikrianto *et al.*, 2016)

Karakterisasi Difraksi sinar-X

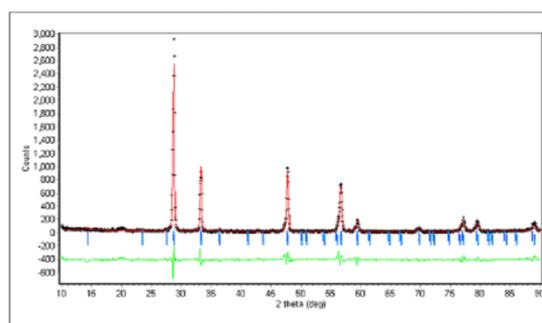
Analisa difraksi sinar-X terhadap serbuk padatan hasil dilakukan ketika terjadi perubahan warna atau tekstur pada senyawa yang menandakan telah terjadi produk reaksi disajikan pada tabel 1. Struktur kristal suatu bahan dapat diidentifikasi dengan difraksi sinar-X. Prinsipnya bahwa susunan dan orientasi atom di dalam kristal suatu bahan akan menghasilkan pola difraksi sinar-X yang berbeda, sehingga dapat diidentifikasi struktur kristal suatu bahan melalui pola-pola difraksi sinar-X. Pola-pola difraksi ini berupa puncak-puncak intensitas hasil difraksi pada berbagai sudut 2θ . Data difraksi yang diambil untuk analisis dalam rentang $2\theta = 10.025^\circ$ sampai 79.985° , dengan modus *scanning continuous*, dan *step size* sebesar $2\theta = 0.050$

serta waktu 1 detik per *step*. Dengan mengetahui pola difraksi serbuk sinar-X yang dihasilkan maka dapat dilihat dan dipelajari fasa yang terbentuk sehingga dapat diidentifikasi.

Produk sintesis yang telah dihasilkan menggunakan metode hidrotermal pada penelitian ini diperoleh struktur yang baik yaitu pada suhu sintesis 200 °C, waktu sintesis 72 jam dengan konsentrasi NaOH 3 M. Hal ini dikarenakan pada sintesis selama 72 jam dihasilkan senyawa yang lebih murni dan mempunyai nilai kristalinitas lebih tinggi jika dibandingkan dengan senyawa yang disintesis pada selama 48 jam, hal ini disebabkan reaktan-reaktan belum semuanya terjadi reaksi antar partikel reaktannya. Sedangkan sintesis yang dilakukan selama 96 jam, produk sintesis terjadi kerusakan struktur yang ditunjukkan munculnya puncak baru yang disebabkan oleh munculnya fasa produk baru sebagai pengotor produk sintesis. Sehingga waktu optimum reaksi pada metode hidrotermal sintesis $\text{SrBi}_3\text{Ti}_3\text{O}_{12}$, $\text{Sr}_2\text{Bi}_3\text{Ti}_4\text{O}_{15}$, $\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_5\text{O}_{18}$, dan $\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_6\text{O}_{21}$ dilakukan selama 72 jam pada suhu 200 °C. Hasil analisis difraksi sinar-x dan refinemen struktur metode *rietveld* analisis *LeBail* pada sintesis oksida logam aurivillius dapat dilihat pada gambar di bawah ini.



Gambar 2. Difraktogram aurivillius $\text{SrBi}_3\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ sintesis suhu 200 °C selama 72 jam (Mikrianto *et al.*, 2016).

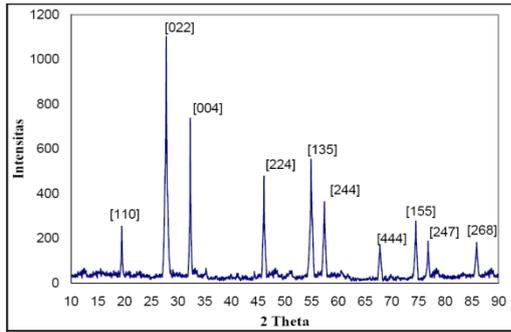


Gambar 3. Pola refinemen struktur aurivillius $\text{SrBi}_3\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ (Mikrianto *et al.*, 2016)

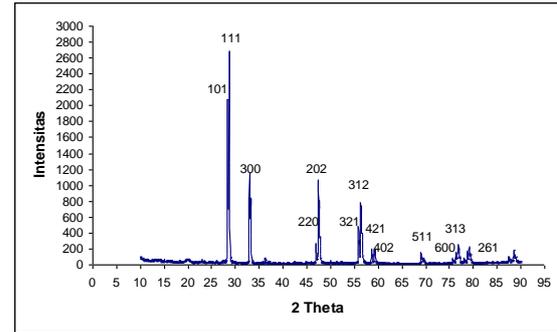
Tabel 2. Hasil pengindeksan parameter satuan, group ruang dan sistem kristal senyawa oksida logam aurivillius $\text{SrBi}_3\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ metode *rietveld* analisis *Le Bail*

Parameter	Oksida aurivillius $\text{SrBi}_3\text{Ti}_3\text{O}_{12}$
Sistim Kristal	<i>Ortorombik</i>
Group Ruang	<i>A2₁am</i>
Parameter sel satuan	<i>a</i> : 5,06565 (Å) <i>b</i> : 5,17745 (Å) <i>c</i> : 30,2878 (Å)
Sudut sel satuan	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$

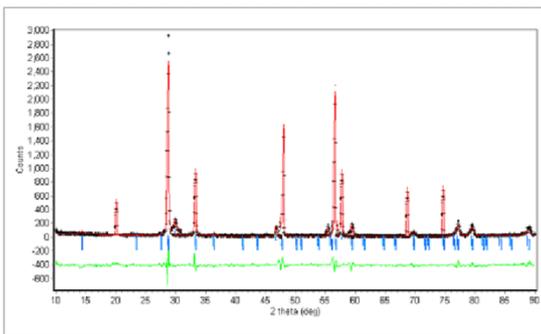
Sumber : (Mikrianto *et al.*, 2016)



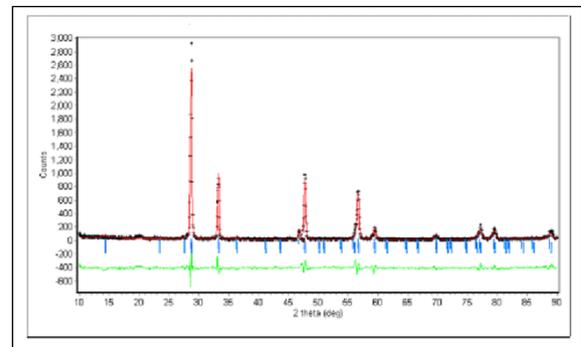
Gambar 4. Difraktogram aurivillius $\text{Sr}_2\text{Bi}_3\text{Ti}_4\text{O}_{15}$ sintesis suhu 200°C selama 72 jam (Mikrianto *et al.*, 2016).



Gambar 6. Difraktogram aurivillius $\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_5\text{O}_{18}$ sintesis suhu 200°C selama 72 jam (Mikrianto *et al.*, 2016).



Gambar 5. Pola refinemen struktur aurivillius $\text{Sr}_2\text{Bi}_3\text{Ti}_4\text{O}_{15}$ (Mikrianto *et al.*, 2016).



Gambar 7. Pola refinemen struktur aurivillius $\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_5\text{O}_{18}$ (Mikrianto *et al.*, 2016).

Tabel 3. Hasil pengindeksan parameter satuan, group ruang dan sistem kristal senyawa oksida logam aurivillius $\text{Sr}_2\text{Bi}_3\text{Ti}_4\text{O}_{15}$ metode *rietveld* analisis *Le Bail*

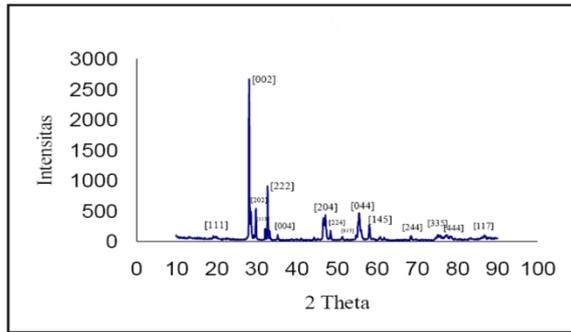
Parameter	Oksida aurivillius $\text{Sr}_2\text{Bi}_3\text{Ti}_4\text{O}_{15}$
Sistim Kristal	<i>Ortorombik</i>
Group Ruang	$A2_1am$
Parameter sel satuan	$a : 5,1453 (\text{\AA})$ $b : 5,0725 (\text{\AA})$ $c : 35,5434 (\text{\AA})$
Sudut sel satuan	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$

Sumber : (Mikrianto *et al.*, 2016)

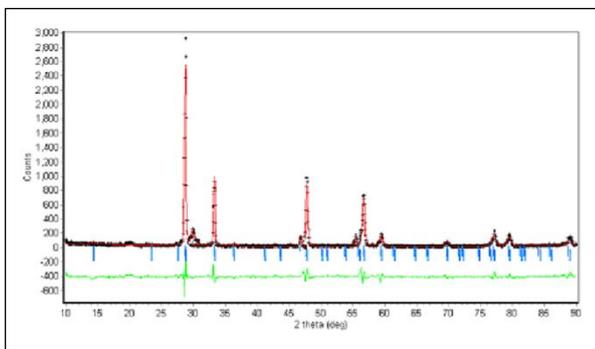
Tabel 4. Hasil pengindeksan parameter satuan, group ruang dan sistem kristal senyawa oksida logam aurivillius $\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_5\text{O}_{18}$ metode *rietveld* analisis *Le Bail*

Parameter	Oksida aurivillius $\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_5\text{O}_{18}$
Sistim Kristal	<i>Ortorombik</i>
Group Ruang	$A2_1am$
Parameter sel satuan	$a : 5,2674 (\text{\AA})$ $b : 5,2845 (\text{\AA})$ $c : 41,4432 (\text{\AA})$
Sudut sel satuan	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$

Sumber : (Mikrianto *et al.*, 2016)



Gambar 8. Difraktogram aurivillius $\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_6\text{O}_{21}$ sintesis suhu 200°C selama 72 jam (Mikrianto *et al.*, 2016).



Gambar 9. Pola refinemen struktur aurivillius $\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_6\text{O}_{21}$ (Mikrianto *et al.*, 2016).

Tabel 5. Hasil pengindeksan parameter satuan, group ruang dan sistem kristal senyawa oksida logam aurivillius $\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_6\text{O}_{18}$ metode *rietveld* analisis *Le Bail*

Parameter	Oksida aurivillius $\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_6\text{O}_{21}$
Sistim Kristal	<i>Ortorombik</i>
Group Ruang	$A2_1am$
Parameter sel satuan	$a : 5,1800 (\text{\AA})$ $b : 5,0643 (\text{\AA})$ $c : 45,4994 (\text{\AA})$
Sudut sel satuan	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$

Sumber : (Mikrianto *et al.*, 2016)

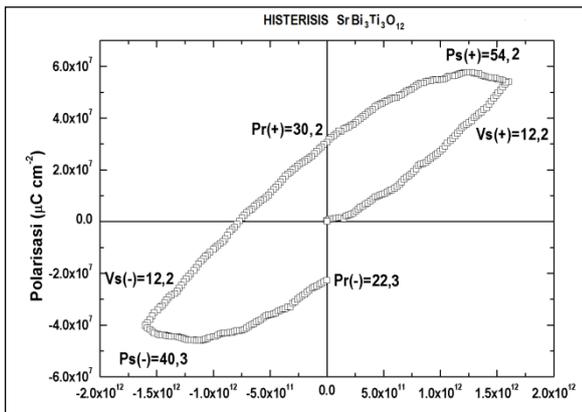
Pada Tabel 2, 3, 4 dan 5 hasil analisis difraksi sinar-x dengan refinemen data struktur aurivillius parameter sel a dan b mempunyai nilai sekitar 5 \AA untuk semua produk sintesis namun pada parameter sel c bertambah sekitar 5 \AA dengan bertambahnya jumlah lapis oktahedral.

Karakterisasi Feroelektrik

Metode yang digunakan dalam penentuan sifat feroelektrik ialah dengan metode keramik, pada proses penelitiannya metode keramik relatif lebih sederhana dibandingkan dengan metode film tipis. Sebanyak 2 gram sampel hasil sintesis senyawa Aurivillius yang berbentuk serbuk dibuat menyerupai tablet dengan melalui proses pengepresan. Selanjutnya dipanaskan pada suhu pemanasan sekitar 1.000°C sampai menjadi bentuk pelet tablet yang keras dan padat menyerupai keramik dengan luas penampang $1,54 \text{ cm}^2$ ketebalan sekitar $\pm 1 \text{ mm}$. Pemanasan 1.000°C dilakukan untuk menyatukan domain-domain polarisasi dalam struktur padatan pelet kapasitor. Pada material padatan feroelektrik terdiri banyak domain yang masing-masing mempunyai arah domain yang beragam dan acak. Domain polarisasi itu akan menyatu satu dengan yang lain ketika material itu dipanaskan hingga mendekati titik leleh dan tidak sampai merusak struktur dan kristalinitas produk sintesis yang telah terbentuk.

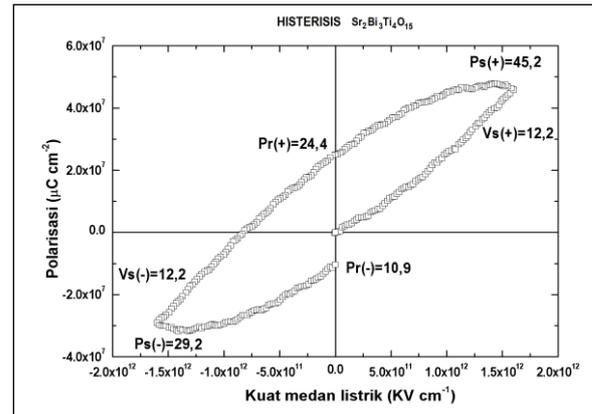
Keramik yang terbentuk kemudian ditetaskan pasta perak pada bagian permukaan atas keramik dan penetasan pasta perak juga dilakukan pada bagian permukaan bawah keramik untuk menghindari terdapatnya lubang yang tidak tersentuh oleh pasta perak. Keramik yang telah ditetaskan pasta perak pada permukaan bagian atas dan bawah membentuk keramik kapasitor. Kapasitor

tersebut kemudian disolder menggunakan kawat penghubung elektroda pada bagian sisi keramik kemudian dihubungkan dengan instrument penentuan sifat feroelektrik RT66A *Ferroelectric Sistem – Radiant Technology* dengan kapasitas Vmax 16 volt dan kapasitas pembobot 0,1 μ F sedangkan jumlah titik yang diambil dalam sekali pengukuran sebanyak 300 titik.

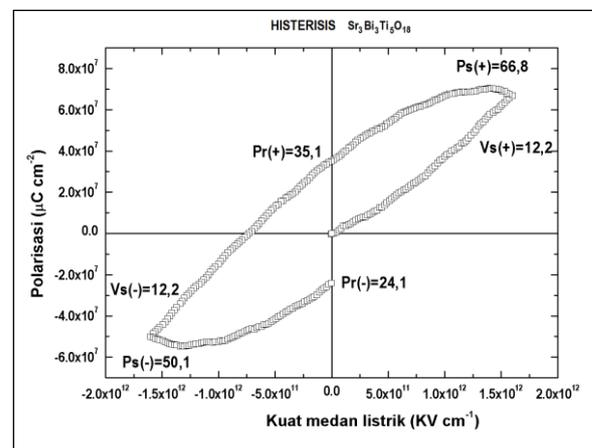


Gambar 10. Loop histerisis aurivillius $\text{SrBi}_3\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ (Mikrianto *et al.*, 2016)

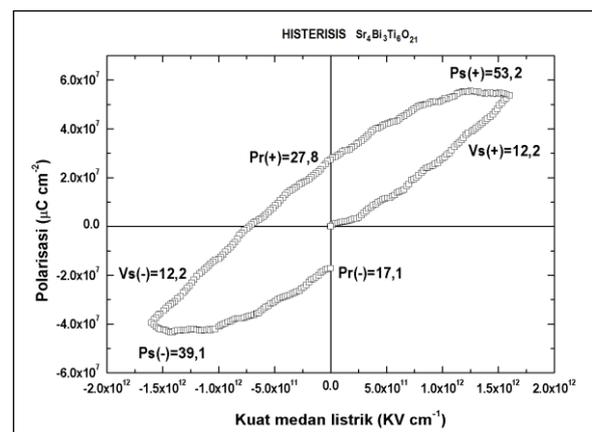
Setiap material yang mempunyai sifat feroelektrik akan selalu menunjukkan grafik loop histerisis seperti yang ditunjukkan pada keempat senyawa produk sintesis oksida aurivillius $\text{SrBi}_3\text{Ti}_3\text{O}_{12}$, $\text{Sr}_2\text{Bi}_3\text{Ti}_4\text{O}_{15}$, $\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_5\text{O}_{18}$, dan $\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_6\text{O}_{21}$ dapat dilihat pada gambar 10 sampai 13.



Gambar 11. Loop histerisis aurivillius $\text{Sr}_2\text{Bi}_3\text{Ti}_4\text{O}_{15}$ (Mikrianto *et al.*, 2016)



Gambar 12. Loop histerisis aurivillius $\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_5\text{O}_{18}$ (Mikrianto *et al.*, 2016)



Gambar 13. Loop histerisis aurivillius $\text{Sr}_3\text{Bi}_3\text{Ti}_5\text{O}_{18}$ (Mikrianto *et al.*, 2016).

Data hasil pengukuran sifat feroelektrik pada senyawa oksida Aurivillius Sr_n -

$2)Bi_3Ti_nO_{(3n+3)}$ $n = 3, 4, 5$ dan 6 menunjukkan pola loop histerisis artinya bahwa material tersebut berpotensi sebagai material feroelektrik kapasitor. Hasil pengukuran dapat dilihat pada tabel di bawah ini.

Tabel 6. Hasil pengukuran sifat feroelektrik oksida aurivillius $Sr_{(n-2)}Bi_3Ti_nO_{(3n+3)}$ $n = 3, 4, 5$ dan 6

Pengukuran	Aurivillius			
	SBT 3	SBT 4	SBT 5	SBT 6
Vmaks(Volt)	16	16	16	16
K. Pemb. (μF)	0,10	0,10	0,10	0,10
A (cm^{-2})	1,54	1,54	1,54	1,54
d (μm)	1000	1000	1000	1000
Jumlah Titik	300	300	300	300
Vs (+) ($KVcm^{-1}$)	12,20	12,20	12,20	12,20
Vs (-) ($KVcm^{-1}$)	12,20	12,20	12,20	12,20
Ps (+) (Ccm^{-2})	54,2	45,2	66,8	53,2
Ps (-) (Ccm^{-2})	40,3	29,2	50,1	39,1
Pr(+) (Ccm^{-2})	30,2	24,4	35,1	27,8
Pr(-) (Ccm^{-2})	22,3	10,9	24,1	17,1
Kef	305,63	214,96	332,89	244,90
Kap (nF)	293,89	210,11	356,68	221,69

Sumber : (Mikrianto *et al.*, 2016)

Pada Tabel 6 harga Vs (Voltase saturasi) Vs (+) dan Vs(-) adalah $12,2 KVcm^{-1}$ untuk keempat senyawa. Harga Vs tersebut menunjukkan bahwa tegangan awal diberikan 0 volt dengan arah domain polarisasi acak kemudian secara kontinu tegangan akan naik seiring terjadi perubahan arah polarisasi hingga mencapai maksimum pada tegangan Vmaks $16 KVcm^{-1}$, namun pada tegangan $12,2 KVcm^{-1}$ arah domain-domain polarisasi sudah mencapai jenuh Ps (Polarisasi saturasi) menuju ke satu arah mengikuti arah sumber tegangan medan listrik.

Pada tegangan medan listrik Vs $12,2 KVcm^{-1}$ dialirkan Ps(+) polarisasi saturasi SBT 3, SBT 4, SBT 5 dan SBT 6 masing-masing sebesar $54,2 Ccm^{-2}$, $45,2 Ccm^{-2}$, $66,8 Ccm^{-2}$ dan $53,2 Ccm^{-2}$ dan harga Pr(+) (*polarisasi remanen*) masing-masing sebesar

$30,2 Ccm^{-2}$, $24,4 Ccm^{-2}$, $35,1 Ccm^{-2}$ dan $27,8 Ccm^{-2}$. Pada tahap selanjutnya, pembalikkan arah medan listrik luar yang diberikan hingga diperoleh harga Ps(-) polarisasi saturasi masing-masing sebesar $40,3 Ccm^{-2}$, $29,2 Ccm^{-2}$, $50,1 Ccm^{-2}$ dan $39,1 Ccm^{-2}$ dan harga Pr(-) (*polarisasi remanen*) sebesar $22,3 Ccm^{-2}$, $10,9 Ccm^{-2}$, $24,1 Ccm^{-2}$, dan $17,1 Ccm^{-2}$ pada tegangan saturasi $12,2 KVcm^{-1}$.

Setelah dilakukan pembalikkan arah medan listrik luar terlihat harga Pr(-) yang dihasilkan lebih kecil dari harga Pr(+), hal ini menunjukkan bahwa sebagian arah domain polarisasi masih dipertahankan seperti keadaan arah polarisasi saat saturasi dan tidak berbalik arah mengikuti sumber arah medan listrik luar yang dialirkan.

Sementara itu parameter sifat feroelektrik lain yaitu Kef (koefisien dielektrik) yang diukur pada tegangan maksimum 16 Volt dan kapasitansi pemboobot $0,1 \mu F$, material SBT 3, SBT 4, SBT 5 dan SBT 6 sebesar 305.631, 214.962, 332.893 dan 244.904 sedangkan nilai kapasitansinya adalah sebesar 293,89 nF, 210,11 nF, 356,68 nF, dan 221,69 nF. Nilai koefisien dielektrik dan nilai kapasitansi berbanding lurus dengan nilai polarisasi saturasi dan polarisasi remanen.

Pada Tabel 6 teridentifikasi bahwa nilai semua parameter yang terukur menunjukkan kenaikan dengan naiknya jumlah n lapis oktahedral. Data menunjukkan bahwa semakin bertambahnya jumlah n lapis oktahedral pada senyawa oksida aurivillius dalam satu seri $Sr_{(n-2)}Bi_3Ti_nO_{(3n+3)}$ semakin

besar pula nilai parameter sifat feroelektriknya. Namun terdapat fenomena menarik pada semua parameter yang terukur bahwa jumlah n oktahedral lapis ganjil lebih besar dibandingkan jumlah n lapis genap yang berada satu lapis di atasnya. Hal ini dapat dijelaskan bahwa domain-domain polarisasi pada n oktahedral ganjil lebih kuat menahan polarisasi saturasi dalam satu arah sehingga pada saat tegangan medan listrik luar diubah arah atau medan listrik dimatikan maka arah polarisasi n lapis oktahedral ganjil mempunyai kemampuan lebih besar menahan arah polarisasi dan tetap berada pada arah polarisasi saturasinya. Hal ini mengakibatkan bahwa nilai Polarisasi remanen lebih besar untuk n oktahedral ganjil dibandingkan dengan n lapis oktahedral genap.

KESIMPULAN

Hasil penelitian ini dapat ditarik kesimpulan bahwa :

1. Senyawa oksida logam aurivillius tipe $Sr_{(n-2)}Bi_3Ti_nO_{(3n+3)}$ $n = 3, 4, 5$ dan 6 telah berhasil disintesis dengan metode hidrotermal pada suhu $200\text{ }^\circ\text{C}$ dicapai selama waktu optimum 72 jam menggunakan mineralizer NaOH 3M dihasilkan serbuk kristal berwarna putih, bertekstur kasar.
2. Pola difraksi keempat senyawa oksida aurivillius hasil sintesis bergeometri ortorombik dengan group ruang $A2_1am$ dan parameter sel a, b berkisar 5 \AA , namun untuk parameter c meningkat

sekitar 5 \AA dengan kenaikan jumlah lapis n oktahedral.

3. Keempat material hasil sintesis menunjukkan sifat karakteristik feroelektrik ditunjukkan dengan pola grafik loop histerisis.
4. Oksida Aurivillius hasil sintesis pada semua parameter sifat feroelektrik menunjukkan bahwa semakin bertambah jumlah lapis oktahedral senyawa oksida Aurivillius dalam satu seri $Sr_{(n-2)}Bi_3Ti_nO_{(3n+3)}$ dengan jumlah n oktahedral lapis ganjil lebih besar dibanding dengan n lapis oktahedral genap yang berada satu lapis di atasnya.

UCAPAN TERIMAKASIH

Saya mengucapkan terima kasih kepada Kemen Ristek Dikti yang telah mendanai penelitian ini dan mahasiswa Program Studi Kimia FMIPA ULM yang telah membantu dalam penelitian ini.

DAFTAR PUSTAKA

- Akira O., T. Kubo, Y. Keiji. K. Seiji, T. Toshihiko, 2000. Crystal Structure of High-Temperatur Paraelectric Phase in Bi-layered Perovskite $Sr_{0,85}Bi_{2,1}Ta_2O_9$. *Journal Japan J Applied Physics*. **39**: 5711-5715
- Aurivillius B., 1950. Mixed Oxides with Layer Lattices III Structure of $BaBi_4Ti_4O_{15}$, *Arkiv For Kemi Band*. **2** No 37: 519-527
- Borg, S., S. Goran, and J.O. Bovin, 2002. Structure Study of $Bi_{2,5}Na_{0,5}Ta_2O_9$ and $Bi_{2,5}Na_{m-1,5}Nb_mO_{3m+3}$ ($m=2-4$) by Neutron Powder Diffraction and Electron Microscopy, *Journal of Solid State Chemistry*. **167**: 86-96.

- Ismunandar; E. Mikrianto, 2004. Structure Rifenement of Five Layers Coumpound $Ba_4Bi_2Nb_2Ti_3O_{18}$, *Proceedings ITB on Engineering Science*, **36B**(1): 57 – 62.
- Ismunandar, 2006. *Padatan Oksida Logam Struktur, Sintesis dan Sifat–Sifatnya*, Penerbit ITB, Bandung.
- Kennedy, B. J., Ismunandar, and M. M. Elcombe, 2009. Structure and Bonding in $Bi_2(SmSb)O_7$ and $Bi_2(NdSb)O_7$. *Mater. Sci. Forum*: 278-281, 762.
- Miyayama M, In-Sook Yi, 2009. Electrical Anisotropy in Single Crystals of Bi-Layer Structured ferroelctrics, *Journal Ceramics International*: 529-533
- Mikrianto E. Ismunandar, 2004. Sintesis dan Karakterisasi Senyawa Berstruktur Aurivillius Empat dan Lima Lapis dan Penentuan Sifat Feroelektriknya. *Jurnal Matematika dan Sains*. **9**(3): 279 – 284
- Mikrianto E, Ismunandar, Khairurizal, 2007. Synthesis and characterization metal oxide aurivillius homolog series type $(Bi_2O_2)^{2+}(A_{(n-1)}B_nO_{3n+3})^{2-}$ ($A^{2+} = Ba, Sr$), The International Conference on Neutron and X-Ray Scattering (ICNX2007), Bandung, Jawa Barat.
- Mikrianto, E., & D. R. Mujiyanti, 2010. Sintesis dan Karakterisasi Sifat Feroelektrik Senyawa Oksida Logam Aurivillius dan Oksida Logam Piroklor. *Laporan Hasil Hibah Bersaing*, Banjarbaru, Kalimantan Selatan. (vol dan no)
- Mikrianto, E., & D.R. Mujiyanti, 2016. Pengaruh Jumlah Lapis Oktahedral Oksida Aurivillius $Sr_{(n-2)}Bi_3Ti_nO_{(3n+3)}$ ($n = 3, 4, 5$ dan 6) Sebagai Bahan Kapasitor. Laporan Akhir Hibah Fundamental, Banjarbaru, Kalimantan Selatan.
- Mikrianto, E., & D.R. Mujiyanti, 2011. Sintesis dan Penentuan Sifat Feroelektrik Senyawa Oksida Logam Berstruktur Aurivillius $Pb_2Bi_3Ti_{3,5}W_{0,5}O_{15}$, *Jurnal Matematika dan Sains*. **16**(1): 10 – 15
- Mikrianto, E., & D. R. Mujiyanti, 2011. Sintesis Dan Karakterisasi Senyawa Berstruktur Aurivillius Lima Lapis $CuBi_5Ti_5O_{18}$ dan $AgBi_5Ti_5O_{18}$ dan Penentuan Sifat Feroelektrik, *Jurnal Matematika dan Sain*. **1**(2): 59 – 68.
- Rizal, M., & Ismunandar. 2007. Sintesis dengan Metode Hidrotermal dan Karakterisasi Senyawa Berstruktur Aurivillius $Bi_4Ti_3O_{12}$. Kelompok Keahlian Kimia Anorganik dan Fisik, FMIPA, ITB, Bandung