

Karakterisasi Lapisan Tipis Material Magnetik Perovskite Untuk Menentukan Nilai Permittivitas dan Permeabilitasnya.

Gede Yudharma^{1*}, Bayu Ari Wibowo² dan Fauzan Fadhurrohman Amarulloh³

¹ Program Studi Teknik Mesin, Sekolah Tinggi Teknologi Duta Bangsa Jl. Kalibaru Timur, Kelurahan Kalibaru Medan Satria, Bekasi, Indonesia, Jawa Barat.

² Program Studi Teknik Elektro, Sekolah Tinggi Teknologi Duta Bangsa Jl. Kalibaru Timur, Kelurahan Kalibaru Medan Satria, Bekasi, Indonesia, Jawa Barat.

*Email: gyudharma123@gmail.com

Abstrak - Pembuatan lapisan tipis material magnetik perovskite lanthanum manganit menggunakan metoda deposisi elektroforesis pada substrat stainless steel. Serbuk LaMnO_3 terlebih dahulu disintesis memakai metoda sol-gel dengan campuran stokiometri serbuk $\text{La}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ dan $\text{Mn}(\text{NO}_3)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$. Sebagai larutan suspensi dipakai campuran ethanol dan deionized water dengan komposisi 90 : 10 serta serbuk LaMnO_3 sebesar 30 mg dalam 50 ml larutan. Dengan memberikan tegangan DC sebesar 60 V dan waktu deposisi 35 menit. Selanjutnya sampel dikarakterisasi secara berurutan dengan analisis difraksi sinar-X, pemindaian mikroskop elektron dan vector network analysis (VNA). Hasil penelitian menunjukkan bahwa lapisan tipis lanthanum manganit memiliki nilai konstanta dielektrik (ϵ') hingga 80 sedangkan dielectric loss (ϵ'') antara 0-80. Sedangkan nilai permeabilitas pada puncak resonansi mencapai $\mu' = 13$ dan $\mu'' = 7$.

Kata kunci: deposisi elektroforesis, permittivitas dan permeabilitas

Pendahuluan

Perovskite merupakan mineral yang memiliki formula umum ABO_3 , dengan A ion trivalent logam tanah jarang atau logam lantanida dan B merupakan ion trivalent logam unsur transisi dimana struktur unit sel material perovskite yang ideal berbentuk kubus[1]. Salah satu senyawa perovskite yaitu lanthanum manganit atau LaMnO_3 memiliki struktur yang telah tersusun secara antiferomagnetik ini sangat stabil[2]. Sifat magnetik lanthanum manganit yang didoping sebagai senyawa induk tidak berhenti pada substitusi parsial ion La^{3+} di situs A struktur perovskite. Beberapa peneliti telah mempelajari sifat fisik lanthanum manganit yang didoping yang telah disubstitusi parsial baik di situs A maupun situs B [3]. Saat ini, penggunaan gelombang elektromagnetik telah meluas ke berbagai bidang, termasuk telekomunikasi, aplikasi militer, dan proyek sipil. Peningkatan

yang pesat dalam penggunaan dan kecenderungan pergeseran frekuensi untuk domain gigahertz (GHz) juga berkontribusi terhadap peningkatan electromagnetic interference (EMI). Terjadinya EMI berdampak negatif pada kinerja perangkat yang menggunakan gelombang mikro, seperti perangkat medis, perangkat nirkabel, sistem radar, sistem komunikasi satelit, dan antenna. Untuk mengatasi permasalahan EMI, banyak desain material penyerap gelombang mikro baru telah dibuat, termasuk *absorber metamaterial*, peredam permukaan selektif frekuensi resistif dan peredam feromagnetik[4]. Salah satu syarat yang harus dimiliki oleh suatu bahan untuk dapat digunakan sebagai penyerap gelombang elektromagnetik adalah bahwa bahan harus memiliki permeabilitas kompleks (μ_r) dan permittivitas kompleks (ϵ_r). Kemampuan menyimpan energi listrik dan magnet suatu bahan dilambangkan dengan nilai dari permittivitas riil

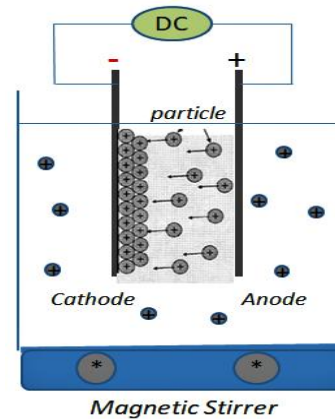
(ϵ') dan permeabilitas riil (μ'). Sementara itu, bagian imajiner (ϵ'' , μ'') mewakili hilangnya energi listrik dan magnet [5]. Untuk dapat diterapkan sebagai material penyerap gelombang mikro pada frekuensi tinggi di atas gigahertz, lapisan tipis menjadi kebutuhan yang dapat mengatasi permasalahan kompleksitas peralatan elektroik dengan ruang yang sempit, serta harus memiliki struktur mikro yang homogen dan morfologi permukaan yang halus [6]. Salah satu material yang banyak digunakan dan dieksplorasi sebagai bahan penyerap gelombang mikro adalah *lanthanum manganite* yang didoping di situs A dengan kation alkali tanah $La_{1-x}A_xMnO_3$. Sifat yang diinginkan biasanya diperoleh dengan memvariasikan konsentrasi ion doping divalen ini [7].

Pada penelitian ini akan dibuat lapisan tipis lanthanum manganit yang diendapkan pada substrat *stainless steel* dengan metoda Deposisi Elektro Foresis (DEF) dan mengarakterisasi untuk menentukan nilai permitivitas dan permeabilitanya.

Eksperimen

Bubuk $LaMnO_3$ telah disiapkan dengan metode pembakaran otomatis *sol-gel* sitrat-nitrat. Massa yang sesuai dari $La(NO_3)_3 \cdot 6H_2O$ dan $Mn(NO_3)_2 \cdot 4H_2O$ ditimbang berdasarkan perhitungan stokiometri dan dilarutkan dalam air *deionisasi*. Penambahan asam sitrat sebagai kompleks ion logam dihitung dengan perbandingan asam sitrat terhadap ion logam sebanyak 1,2 : 1. Setelah itu, larutan diaduk dan dipanaskan di atas *hot plate* magnetik pada suhu $80^\circ C$. pH larutan diatur menjadi 7 dengan menambahkan larutan amonia. Jika sudah terbentuk gel kental, maka dilanjutkan untuk menghilangkan kadar airnya dengan cara pemanasan pada suhu $120^\circ C$ dalam oven semalaman. Proses selanjutnya adalah kalsinasi pada suhu $550^\circ C$ selama 6 jam. Tahap terakhir adalah sintering pada suhu $800^\circ C$ selama 12 jam. Hasil proses *sol-gel* dikarakterisasi dengan difraktometer sinar-X (XRD) menggunakan difraktometer PANalytical X'pert dengan $CuK\alpha$ ($\lambda=1,5406$).

Selanjutnya, suspensi dibuat dengan melarutkan bubuk $LaMnO_3$ ke dalam larutan 30 mg/50 ml menggunakan campuran *etanol* dan *deionized water*. Sebelum melakukan proses DEF, suspensi di ultrasonik selama 30 menit untuk memastikan campuran homogen dan menghindari penggumpalan suspensi. Pemasangan insalasi DEF menggunakan wadah glass ukur agar cukup untuk suspensi cair (volume 50 ml) seperti terlihat pada gambar 1, sedangkan penempatan elektroda dalam gelas diatur dengan jarak antar elektroda 10 mm. Tegangan DC yang diberikan sebesar 60V, serta waktu deposisi selama 35 menit.



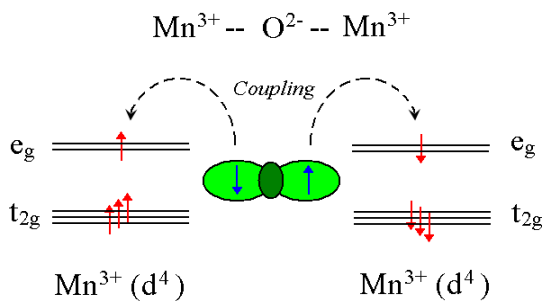
Gambar 1. Skema proses deposisi elektroforesis

Untuk menghindari pengendapan partikel, dilakukan pengadukan lambat dengan menggunakan *magnetic bead stirrer*. Massa deposit diperoleh dengan menimbang sampel sebelum dan sesudah proses deposisi. Setelah pengendapan, substrat dikeringkan pada suhu kamar untuk menghindari penguapan yang cepat dari dispersan organik dan munculnya retakan. Kemudian dianil pada suhu $950^\circ C$ selama 2 jam.

Hasil dan Pembahasan

Material lanthanum manganit memiliki Sifat antiferomagnetik karena adanya interaksi antara sesama ion Mn^{3+} dengan tetangga terdekat melalui anion O^{2-} yang disebut dengan interaksi

superexchange. Dan interaksi ini yang membuat terjadinya perubahan transfer electron hadir. *Superexchange* merupakan interaksi magnetik antara ion Mn^{3+} yang berdekatan dimediasi oleh ion non magnetik O^{2-} dengan spin elektron yang berpasangan seperti yang ditunjukkan pada Gambar 7. Hal ini merupakan interaksi yang lazim terjadi pada saat oksida manganit terisolasi dengan ion perantaranya adalah O^{2-} .



Gambar 2. Ilustrasi mekanisme interaksi *superexchange* $Mn^{3+} - Mn^{3+}$ [2].

Dalam hal ini, Mn^{3+} berada pada konfigurasi $3d^4$ yang terdiri dari orbital t_{2g} (*triply degenerate orbital*) dengan level energi yang lebih rendah dan orbital e_g (*excited degenerate orbital*) yang memiliki level energi lebih tinggi. Dengan demikian orbital yang terlibat adalah orbital e_g (*excited degenerate orbital*) yang kosong dari ion Mn^{3+} dan orbital $2p$ ion O^{2-} yang terisi. Jadi elektron pada orbital $2p$ ion O^{2-} terbagi diantara dua ion Mn^{3+} yang berdekatan yang mengisi orbital e_g yang kosong. Ini merupakan transfer elektron secara tidak nyata (*virtual transfer*) yang menjadi ciri khas dari mekanisme interaksi *superexchange* $LaMnO_3$. Sehingga material ini cocok diaplikasikan sebagai kandidat bahan absorber gelombang elektromagnetik [2].

Dari table 1 merupakan data hasil karakterisasi XRD yang di *refine* dengan metoda Rietveld. dapat dilihat bahwa sample memiliki group ruang R-3c. Hasil dari pendekatan grafis sesuai dengan hasil yang diperoleh dari pendekatan kristalografi menggunakan persamaan Debye-Scherrer berikut [8].

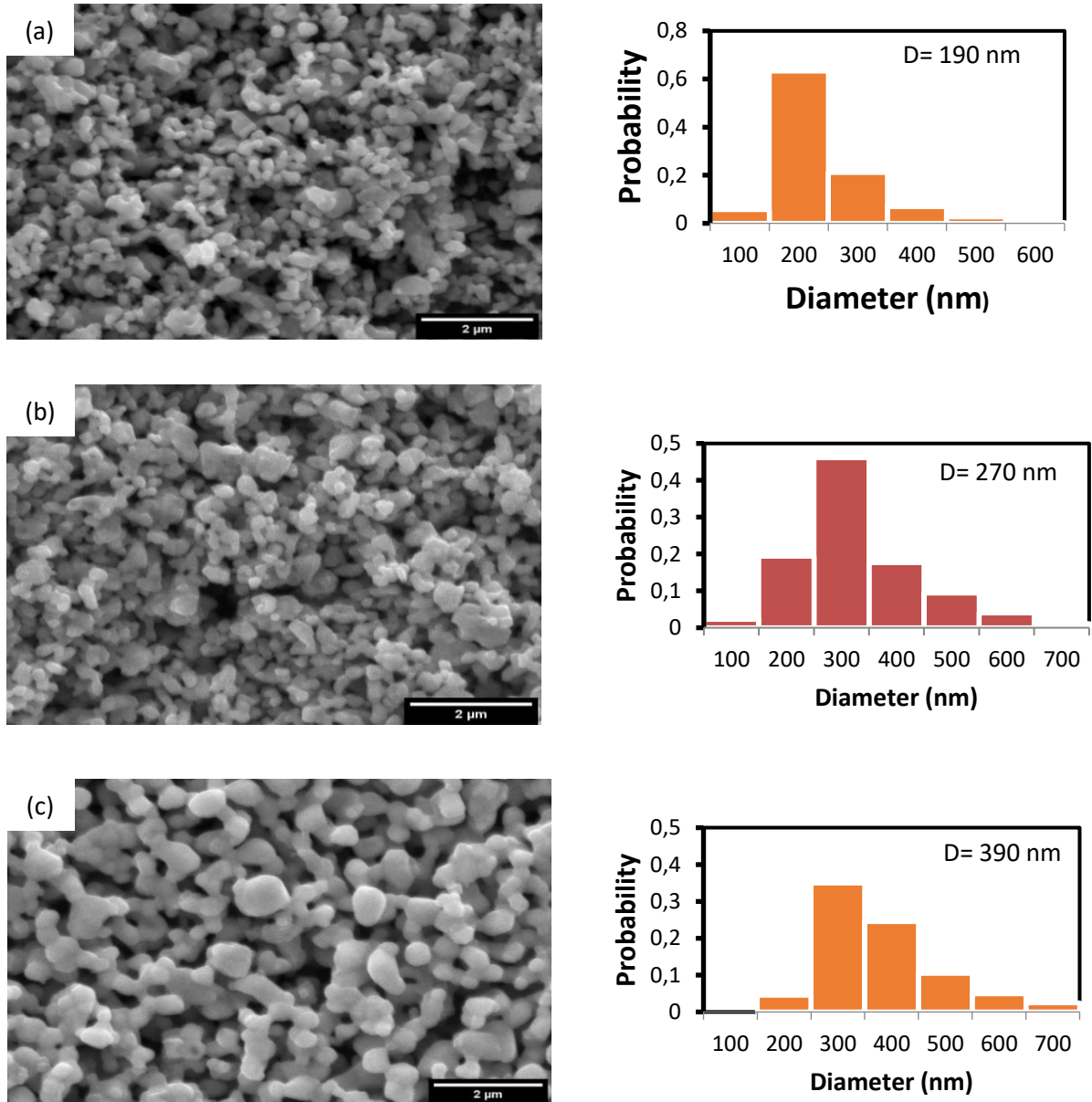
$$D = \frac{0.9 \lambda}{\beta_{HKL} \cos \theta}$$

Di mana D adalah rata-rata ukuran kristalit (\AA), λ adalah panjang gelombang Cu-K α yang bertindak sebagai sumber sinar-X yang digunakan selama pengukuran ($1,5406 \text{ \AA}$), β_{HKL} adalah lebar penuh pada setengah maksimum (FWHM) dari setiap puncak difraksi dalam satuan radian, dan θ adalah sudut difraksi untuk puncak paling intens.

Tabel 1. Hasil yang diperoleh dari proses *refine* Rietveld

Parameter kisi	Atom	Posis atom		
		X	Y	Z
SG : R -3 c	La	0	0	0.25
a=b (\AA) = 5,530	Mn	0	0	0.25
c (\AA) = 13,396	O	0.456	0	0.25
A= $\beta = 90^\circ$, $\gamma = 120^\circ$				
d = 35,56 nm				

Karakterisasi *Scanning Electron Microscopy* (SEM) bertujuan untuk melihat bentuk morfologi material $LaMnO_3$. Pada pengujian ini sampel yang digunakan berbentuk lapisan tipis pada substrat SS 316. Mode karakterisasi yang digunakan adalah BSE seperti terlihat pada gambar 3. Sampel disiapkan dengan metoda deposisi elektroforesis dengan konsentrasi suspensi 30 mg $LaMnO_3$ dengan memberikan tegangan 60V serta waktu deposisi selama 35 menit. Sampel lapisan tipis kemudian di anil dengan temperatur 800, 900 dan 950°C selama 2 jam. Dari hasil SEM dan pengukuran diameter partikel memakai software imagej terlihat bahwa makin tinggi temperatur anil rata-rata diameter partikel semakin besar. Secara umum, sampel terdiri dari banyak partikel serta teramati morfologi berpori. Berdasarkan histogram yang menunjukkan distribusi ukuran partikel rata-rata (D) sekitar 190-390 nm. Perubahan temperatur anil mempengaruhi ukuran partikel dan morfologi $LaMnO_3$ hasil deposisi [9].

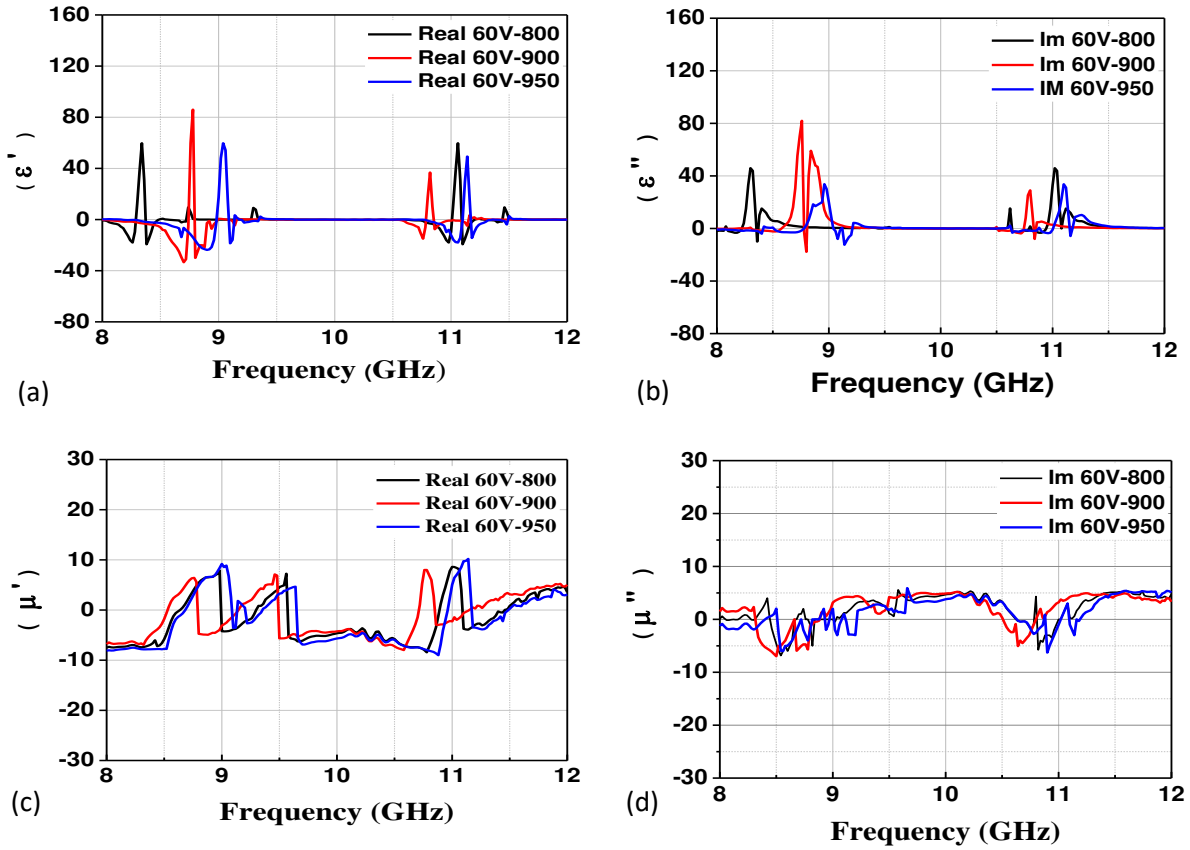


Gambar-3. Hasil SEM lapisan tipis pada temperature a. 800°C, b. 900°C dan c. 950°C

Suatu material penyerap gelombang mikro atau *microwave absorber material (MAM)* yang baik yaitu apabila memiliki sifat magnetik dan listrik yang baik pula. Untuk itu maka material tersebut harus memiliki nilai impedansi tertentu serta kesesuaian antara nilai permeabilitas relatif (μ_r) dan juga nilai permitivitas relatifnya (ϵ_r). Sedangkan untuk mengetahui besar nilai impedansi yang dimiliki oleh suatu material MAM dapat dilakukan dengan melalui perhitungan dari persamaan berikut ini [10]

$$Z_{in} = Z_0 \sqrt{\frac{\mu_r}{\epsilon_r}} \tanh\left(\left[\frac{2\pi L}{\lambda_0}\right] \sqrt{\mu_r \epsilon_r}\right) \quad (1)$$

- Dimana: Z_{in} adalah impedansi input (ohm)
 Z_0 adalah impedansi karakteristik udara bebas (ohm)
 c adalah cepat rambat cahaya = 3×10^8 m/s
 L adalah tebal material (m)
 f adalah frekuensi gelombang mikro (Hz)



Gambar 4. (a-b) Pola permitivitas riil dan imajiner dan (c-d) permeabilitas riil dan imajiner,

Ketika gelombang elektromagnetik yang datang tegak lurus dengan material, dan dalam hal ini Z_{in} merupakan impedansi karakteristik yang dimiliki oleh material MAM. Dan untuk nilai permeabilitas relatif (μ_r) serta nilai permitivitas relatif (ϵ_r) diperoleh dari persamaan berikut ini[11].

$$\mu_r = \frac{1-\Gamma}{\Lambda(1-\Gamma)\sqrt{\frac{1}{\lambda_0^2}-\frac{1}{\lambda_c^2}}} \quad (2)$$

$$\epsilon_r = \mu_r \frac{(1-\Gamma)^2}{(1+\Gamma)^2} \left(1 - \frac{\lambda_0^2}{\lambda_c^2}\right) + \frac{\lambda_0^2}{\lambda_c^2} \frac{1}{\mu_r} \quad (3)$$

dari persamaan (2) dan (3), nilai koefisien refleksi (Γ) yang digunakan, diperoleh dari perhitungan dengan persamaan (4) dibawah ini.

$$\Gamma = \frac{S_{11}^2 - S_{21}^2 + 1}{2S_{11}} \pm \sqrt{\left(\frac{S_{11}^2 - S_{21}^2 + 1}{2S_{11}}\right)^2 - 1} \quad (4)$$

dimana koefisien refleksi harus bernilai kurang dari 1 ($\Gamma < 1$), dan untuk nilai parameter reflektansi (S_{11}) serta parameter transmisi (S_{21}) yang digunakan, berasal dari hasil pengujian penyerapan gelombang mikro dengan menggunakan *Vector Network Analyzer* (VNA) dengan frekuensi antara 8 - 12 GHz.

Nilai permitivitas dan permeabilitas untuk material lapisan tipis lanthanum manganit yang dideposisi selama 35 menit, kemudian dianil dengan temperatur 800, 900 dan 950 selama 2 jam dapat dilihat pada gambar 4. Tingginya nilai konstanta dielektrik (ϵ') hingga 80 sedangkan *dielectric loss* (ϵ'') antara 0-80, berkurang dengan bertambahnya temperatur anil. Gambar 4 a-b adalah bagian riil dari permitivitas (ϵ') dan bagian imajiner (ϵ''). Tingginya nilai konstanta dielektrik (ϵ') hingga 83 dikaitkan dengan perilaku logam tipis tipis perovskite lanthanum manganit. Polarisasi muatan antara partikel konduktif yang berdekatan menimbulkan nilai konstanta dielektrik yang tinggi [12]. Rugi dielektrik karena konduksi (ϵ'') diamati antara 0-83, menurun

dengan meningkatnya suhu anil. Rugi dielektrik dapat disebabkan oleh karena relaksasi dielektrik, konduktansi dan resonansi[13] Beberapa puncak muncul pada kurva permitivitas nyata dan imajiner, menunjukkan perilaku resonansi magnetik yang kompleks [14]. Gambar 4. c-d adalah bagian riil dari permeabilitas (μ') merupakan *alignment* dipol magnet dan bagian imajiner (μ'') yang terkait dengan kehilangan sifat magnet. Nilai μ'' lebih rendah dari bagian nyata μ' yang menunjukkan terjadinya frekuensi resonansi magnetik pada sampel yang dapat dikaitkan dengan resonansi alami dan fenomena arus eddy yang terjadi pada lapisan tipis[15]. Nilai permeabilitas pada puncak resonansi mencapai $\mu' = 13$ dan $\mu'' = 7$. Nilai ini lebih tinggi dari bahan LSMO *bulk*[50], Dengan nilai permitivitas dan permeabilitas yang dimiliki lapisan tipis lanthanum manganit ini, material ini bisa menjadi kandidat sebagai absorber gelombang mikro.

Kesimpulan

Dalam penelitian ini dibuat lapisan tipis dengan memakai metoda deposisi elektroforesis. Suspensi dengan konsentrasi 0.3 gram LaMnO_3 pada 50 ml larutan *athenol* dan *aquabides* dengan komposisi (90/10). Pada proses deposisi elektroforesis ini, mampu menghasilkan lapisan tipis lanthanum manganit pada substrat *stainless steel*. Lapisan tipis hasil deposisi elektroforesis lanthanum manganit pada tegangan 60V dan waktu deposisi 35 menit kemudian dipanaskan dengan temperatur anil 800, 900 dan 950°C selama 2 jam. Hasil penelitian menunjukkan bahwa lapisan tipis lanthanum manganit memiliki nilai konstanta dielektrik (ϵ') hingga 80 serta dielectric loss (ϵ'') antara 0-80. Sedangkan nilai permeabilitas pada puncak resonansi mencapai $\mu' = 13$ dan $\mu'' = 7$. Dengan nilai permitivitas dan permeabilitas yang dimiliki lapisan tipis lanthanum manganit ini, bisa menjadi kandidat sebagai material absorber gelombang mikro.

Referensi

[1] T. Sasaki, Y. Matsumoto, J. Hombo, and

- Y. Ogawa, "A New Preparation Method of LaMnO_3 Perovskite Using Electrochemical Oxidation," *JOURNAL. SOLID STATE Chem.*, vol. 91, pp. 61–70, 1991.
- [2] P. Sableku and W. A. Ari, "Analisis struktur dan sifat magnetik perovskit LaMnO_3 sebagai kandidat bahan absorber gelombang elektromagnetik," 2013.
- [3] A. Coşkun, E. Taşarkuyu, A. E. Irmak, M. Acet, Y. Samancıoğlu, and S. Aktürk, "Magnetic properties of $\text{La}_{0.65}\text{Ca}_{0.30}\text{Pb}_{0.05}\text{Mn}_{0.9}\text{B}_{0.1}\text{O}_3$ (B = Co, Ni, Cu and Zn)," *J. Alloys Compd.*, vol. 622, pp. 796–804, Feb. 2015.
- [4] P. Chen, R. K. Li, Y. Gu, Y. Shi, and R. X. Wu, "Ultrathin broadband microwave absorbers using ferromagnetic films," *J. Magn. Magn. Mater.*, vol. 349, pp. 259–263, 2014.
- [5] A. Ling *et al.*, "Thin and broadband $\text{Ce}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$ - δ /MWCNTs composite absorber with efficient microwave absorption," *J. Alloys Compd.*, vol. 787, pp. 1097–1103, 2019.
- [6] G. Li, G. G. Hu, H. D. Zhou, X. J. Fan, and X. G. Li, "Attractive microwave-absorbing properties of $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ manganite powders," *Mater. Chem. Phys.*, vol. 75, no. 1–3, pp. 101–104, 2002.
- [7] I. Marozau *et al.*, "Influence of La and Mn vacancies on the electronic and magnetic properties of LaMnO_3 thin films grown by pulsed laser deposition," *Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys.*, vol. 89, no. 17, May 2014.
- [8] U. Holzwarth and N. Gibson, "The Scherrer equation versus the 'Debye-Scherrer equation'," *Nat. Publ. Gr.*, vol. 6, no. 9, p. 534, 2011.
- [9] "zener1951 - Interaction between the d-shell in the transition metals. II Ferromagnetic compounds of manganese with perovskite structure."
- [10] Y. B. Feng, T. Qiu, and C. Y. Shen, "Absorbing properties and structural design of microwave absorbers based on carbonyl iron and barium ferrite," *J.*

Magn. Magn. Mater., vol. 318, no. 1–2, pp. 8–13, 2007.

- [11] P. Saville, “Review of Radar Absorbing Materials Defence R & D Canada – Atlantic,” *Def. Res. Dev. Canada*, no. January, p. 62, 2005.
- [12] S. S. S. Afghahi, A. Mirzazadeh, M. Jafarian, and Y. Atassi, “A new multicomponent material based on carbonyl iron/carbon nanofiber/lanthanum-strontium-manganite as microwave absorbers in the range of 8-12 GHz,” *Ceram. Int.*, vol. 42, no. 8, pp. 9697–9702, 2016.
- [13] Y. S. Lee *et al.*, “Single layer microwave absorber based on rice husk-mwcnts composites,” *ARPJ. Eng. Appl. Sci.*, vol. 11, no. 14, pp. 8932–8937, 2016.
- [14] Z. W. Liu, L. X. Phua, Y. Liu, and C. K. Ong, “Microwave characteristics of low density hollow glass microspheres plated with Ni thin-film,” *J. Appl. Phys.*, vol. 100, no. 9, pp. 2–8, 2006.
- [15] J. M. Vila-Funqueiriño *et al.*, “Room-temperature ferromagnetism in thin films of LaMnO₃ deposited by a chemical method over large areas,” *ACS Appl. Mater. Interfaces*, vol. 7, no. 9, pp. 5410–5414, Mar. 2015.