

Struktur Mikro dan Sifat Listrik Material Ferroelektrik Barium Titanat dengan *doping* Stronsium

Suwarni,¹ Alpi Zaidah,¹ Agus Supriyanto,² Anif Jamaluddin,³ dan Yofentina Iriani^{2,*}

¹Jurusan Ilmu Fisika Program Pascasarjana, Universitas Sebelas Maret Surakarta
Jl. Ir. Sutami No.36 A Ketingan, Surakarta 57126

²Jurusan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Sebelas Maret Surakarta
Jl. Ir. Sutami No.36 A Ketingan, Surakarta 57126

³Program Studi Fisika, Fakultas Keguruan dan Ilmu Pendidikan, Universitas Sebelas Maret Surakarta
Jl. Ir. Sutami No.36 A Ketingan, Surakarta 57126

Intisari

Material ferroelektrik Barium Strontium Titanat ($Ba_xSr_{1-x}TiO_3$, BST) dengan variasi *doping* mol Sr 0,01 ; 0,02 dan 0,03 telah dibuat menggunakan metode reaksi fasa padat. Sampel dicetak dalam bentuk bulk (padatan) kemudian di-sintering pada temperatur 900°C dengan holding time 2 jam. Karakterisasi sampel dilakukan menggunakan X-Ray Diffractometer (XRD) untuk mengetahui tingkat kekristalan dan ukuran kristal dari sampel. Pengujian RCL meter untuk mengetahui besarnya nilai konstanta dielektrik. Hasil karakterisasi XRD sampel memperoleh data dan diolah dalam bentuk grafik hubungan antara intensitas terhadap sudut 2 theta. Material BST dengan variasi *doping* mol Sr 0,01 ; 0,02 dan 0,03 memiliki struktur kristal tetragonal, dengan parameter kisi Sr 0,01 dan 0,03 adalah sama yaitu $a = b = 3,996 \text{ \AA}$ dan $c = 4,012 \text{ \AA}$ sedangkan untuk Sr 0,02 adalah $a = b = 3,998 \text{ \AA}$ dan $c = 4,022 \text{ \AA}$. Ukuran kristal berturut-turut adalah 28,4 nm; 32,3 nm dan 54,8 nm. Semakin besar ukuran kristal, nilai rata-rata regangan kisi semakin kecil seiring dengan meningkatnya penambahan Sr. Pengukuran konstanta dielektrik (K) dilakukan pada rentang frekuensi 1 kHz sampai 80 kHz dan nilai tertinggi adalah pada Sr 0,03 sebesar 18,55.

Abstract

Barium Strontium Titanate ferroelectric material ($Ba_xSr_{1-x}TiO_3$) with doping variation Sr 0.01 mol; 0.02 and 0.03 have been made using solid state reaction method. Samples printed in the form of bulk (solid) and then in-sintering at a temperature of 900°C with a holding time 2 hours. Characterization of samples was performed using X-Ray Diffractometer (XRD) to determine the level kekristalan and crystal size of the sample. RCL meter testing to determine the value of the dielectric constant. XRD characterization results of the samples obtained data and processed in the form of a graph of intensity against angle 2 theta. BST material with doping variation Sr 0.01 mol; 0.02 and 0.03 have a tetragonal crystal structure, in which the Sr lattice parameter of 0.01 and 0.03 are the same, namely $a = b = 3.996 \text{ \AA}$ and $c = 4.012 \text{ \AA}$, while for Sr 0.02 is $a = b = 3.998 \text{ \AA}$ and $c = 4.022 \text{ \AA}$. Crystal size respectively adalah 28.4 nm; 32.3 nm and 54.8 nm. The larger the crystal size, the average value of the smaller lattice strain along with the increasing addition of Sr. Measurement of dielectric constant (K) performed in the frequency range 1 kHz to 80 kHz and the highest value was at 0.03 Sr at 18.55.

KATA KUNCI: Barium strontium titanate, solid state reaction, the lattice parameters, dielectric constant

I. PENDAHULUAN

Sifat khusus dari material ferroelektrik adalah sifat dielektrik, pieroelektrik dan piezoelektrik. Pemanfaatan material ferrolektrik dilakukan berdasarkan masing-masing sifat-sifat tersebut. Pada penelitian ini dilakukan pemanfaatan material ferroelektrik berdasarkan sifat dielektriknya. Material ferroelektrik dapat difabrikasi sesuai kebutuhan serta mudah diintegrasikan dalam bentuk divais. Aplikasi divais berdasarkan sifat histerisis dan konstanta dielektrik yang tinggi adalah pada memori *Dynamic Random Access Memory* (DRAM) [1].

Material ferroelektrik yang mempunyai perpaduan sifat paling menarik untuk aplikasi memori adalah Barium Strontium Titanat. Material BST mempunyai konstanta dielektrik yang tinggi, loss dielektrik rendah, densitas kebocoran arus rendah. Konstanta dielektrik yang tinggi akan meningkatkan kapasitansi muatan lebih tinggi sehingga penyimpanan muatan juga lebih banyak [1].

Pembuatan BST dapat dilakukan beberapa cara diantaranya *Metalorganic Chemical Vapor Deposition* (MOCVD) [2], *Pulsed Laser Deposition* (PLD) [3], Magnetron Sputtering [4], serta *Chemical Solution Deposition* atau metode sol gel dan metode reaksi fasa padat (*solid state reaction*) [5].

$Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ memiliki struktur kristal tetragonal dan bersifat ferroelektrik jika $x \geq 0,75$. Ketika $SrTiO_3$ ditamahkan pada $BaTiO_3$, ion Sr^{2+} akan menggantikan ion

*E-MAIL: yopen.2005@yahoo.com

Ba²⁺. Penggantian Ba²⁺ oleh Sr²⁺ dapat mengubah sifat-sifat listrik serta dapat digunakan untuk mengendalikan konstanta dielektrik dengan mengatur komposisi larutan padatan materialnya [6].

Penelitian mengenai Ba_xSr_{1-x}TiO₃ dengan x = 0,90 oleh Maharsi [7] didapatkan parameter kisi a = b = 3,986 Å dan c = 3,988 Å. Nilai konstanta dielektrik maksimum diperoleh pada temperatur 900°C sebesar 3650 pada frekuensi minimum 0,01 kHz. Kemudian oleh Indriana (2014) Ba_xSr_{1-x}TiO₃ dengan x = 0,95 didapatkan nilai parameter kisi a = b = 3,988 Å dan c = 4,002 Å dan nilai konstanta dielektrik sebesar 4420 juga pada frekuensi minimum 0,01 kHz [8].

Nilai parameter kisi Ba_xSr_{1-x}TiO₃ dengan x ≥ 0,75 berdasarkan *International Centre for Diffraction Data* (ICDD) memiliki sistem kristal tetragonal dengan parameter kisi a = b = 3,977 Å dan c = 3,988 Å yakni Ba_{0,77}Sr_{0,23}TiO₃ [9].

Pada paper ini, Ba_xSr_{1-x}TiO₃ dengan variasi mol Sr = 0,03 ; 0,02 ; 0,01 dengan temperatur 900°C, *holding time* 2 jam dibuat menggunakan metode reaksi fasa padat. Metode ini relatif sederhana dengan mencampurkan semua bahan dasar kemudian dikompaksi (ditekan) dilanjutkan dengan proses sintering pada temperatur tertentu sehingga terbentuk senyawa baru yang diinginkan [10]. Penelitian ini adalah untuk mengetahui pengaruh variasi presentasi *doping* mol Sr terhadap struktur mikro material dan terhadap sifat listrik yakni besarnya nilai konstanta dielektrik dari Ba_xSr_{1-x}TiO₃.

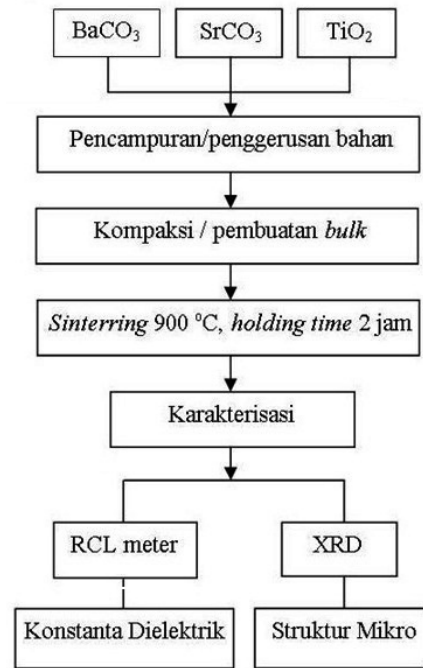
II. METODE PENELITIAN

Metode reaksi fasa padat merupakan metode padatan, yakni tanpa melibatkan penggunaan larutan. Pembuatan Ba_xSr_{1-x}TiO₃ dengan metode reaksi fasa padat adalah mencampurkan seluruh bahan yaitu BaCO₃, SrCO₃ dan TiO₂. Pencampuran dilakukan dengan menggerus bahan agar terbentuk campuran yang homogen. Serbuk Ba_xSr_{1-x}TiO₃ kemudian dicetak dalam bentuk bulk (padatan) menggunakan alat hydarulic press dan di-sintering pada temperatur 900°C selama 2 jam.

Peralatan karakterisasi Ba_xSr_{1-x}TiO₃ dilakukan menggunakan XRD Bruker D8 Advance dengan λ_{cu} sebesar 1,54056 Å untuk mengetahui struktur kristal dan ukuran kristal dari sampel. Data yang diperoleh dari XRD adalah berupa intensitas dan sudut difraksi 2θ, kemudian dicocokkan dengan data base *International Center for Diffraction Data* (ICDD) no #440093 untuk BST x ≥ 0,75. Diagram alir penelitian ditunjukkan pada Gambar 1.

Konstanta dielektrik diperoleh dari Pers.(1) dan berdasarkan data yang terbaca pada alat RCL meter digital (LCR-800 Series Gwinstek) berupa kapasitansi (C) dan faktor dissipasi (D). d merupakan tebal sampel (m), A luas permukaan sampel (m²) dan ε_o adalah permitivitas dielektrik (8,85 × 10⁻¹² Farad.m⁻¹).

$$K = \frac{Cd}{\epsilon_o A} \tag{1}$$



Gambar 1: Diagram alir penelitian.

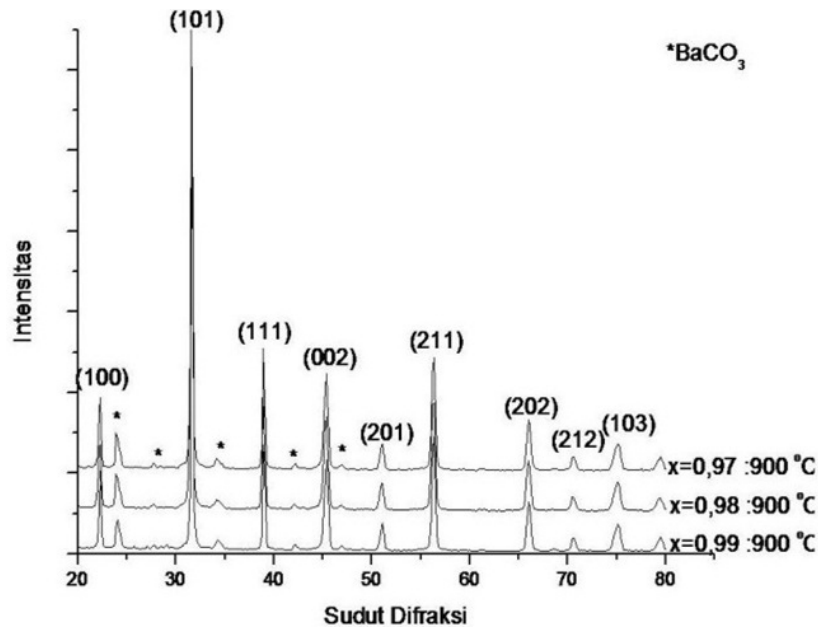
III. HASIL DAN PEMBAHASAN

Pola difraksi yang diperoleh dari X-ray Diffractometer (XRD) digunakan untuk mengetahui parameter kisi, struktur kristal, ukuran kristal, regangan kisi serta tingkat kekristalan dari sampel. Gambar 2 menunjukkan pola difraksi yang terbentuk dari sampel Ba_xSr_{1-x}TiO₃ dengan variasi komposisi *doping* mol Sr 0,01 ; 0,02 ; 0,03 menggunakan temperatur sintering 900°C dengan *holding time* 2 jam.

Puncak-puncak dari pola difraksi yang dihasilkan oleh komposisi Ba_xSr_{1-x}TiO₃, variasi *doping* mol Sr 0,01 ; 0,02 ; 0,03 dicocokkan dengan database ICDD #440093. Dari pola difraksi yang telah dicocokkan dengan database terlihat bahwa masih terdapat serbuk BaCO₃, hal ini dikarenakan dalam proses pencampuran masih ada bahan yang belum tercampur secara homogen.

Gambar 2 menunjukkan bahwa variasi komposisi mol Ba dan Sr menyebabkan pergeseran sudut difraksi (2θ). Semakin besar komposisi mol Sr maka sudut difraksi akan semakin besar (bergeser ke kanan). Hal ini terkait dengan jari-jari atom Sr yang lebih kecil dari jari-jari atom Ba yaitu 1,12 Å dan 1,34 Å. Perbedaan jari-jari atom menyebabkan parameter kisi berbeda sehingga posisi atom juga akan berbeda, ketika sampel dikenai sinar-X maka puncak kristalnya juga akan berbeda.

Parameter kisi Ba_xSr_{1-x}TiO₃ dengan variasi komposisi mol Ba dan Sr diperoleh dari proses perhitungan. Parameter kisi a = b ≠ c menunjukkan sampel BST mempunyai struktur kristal tetragonal. Tingkat ketetragonalan ditunjukkan dengan perbandingan nilai parameter kisi c dan a. Dapat dilihat bahwa semakin besar komposisi Sr, nilai tetragonality semakin be-



Gambar 2: Pola difraksi $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ temperatur $900^\circ C$.

TABEL I: Parameter kisi dan Tetragonality $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$.

Parameter Kisi dan Tetragonality	x		
	0,99	0,98	0,97
a=b	3,996	3,998	3,996
c	4,012	4,022	4,012
c/a	1,004	1,006	1,004

sar, dapat dilihat pada Sr 0,01 dengan Sr 0,02, hal ini karena jari-jari Ba^{2+} 1,34 Å lebih besar dibandingkan jari-jari Sr^{2+} 1,12 Å, ion Sr^{2+} menggantikan ion Ba^{2+} , oleh sebab itu parameter kisinya semakin besar. Namun Pada Sr 0,01 dan 0,03 mempunyai parameter kisi yang sama, karena besarnya sudut difraksi yang terbentuk juga sama.

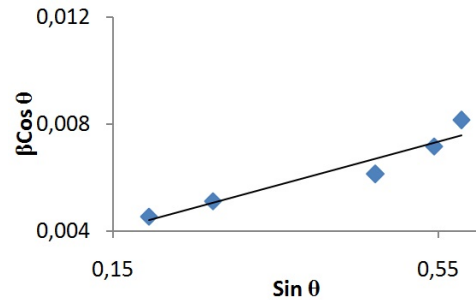
Tetragonality dari sampel BST untuk variasi komposisi *doping* mol Sr 0,01 ; 0,02 ; 0,03 memiliki tetragonality bernilai lebih dari 1, karena $c > a$, ditunjukkan pada Tabel I.

Sudut difraksi yang diperoleh dari Gambar 2, digunakan untuk menghitung besarnya ukuran butir kristal dari grafik hubungan antara $\sin \theta$ dengan $\beta \cos \theta$ sehingga didapat grafik linier yang terdapat nilai ukuran butir kristal (D) yang dinyatakan dalam nm dan regangan kisi (η) yang dinyatakan dalam %. Faktor-faktor yang mempengaruhi nilai FWHM ditunjukkan pada Persamaan Scherrer (2). Nilai β merupakan nilai FWHM, θ adalah sudut difraksi, k adalah konstanta Scherrer (untuk struktur kristal tetragonal = 1), dan λ adalah panjang gelombang sinar-X yang digunakan.

$$\beta = \frac{k\lambda}{D \cos\theta} \tag{2}$$

Hubungan linearitas antara $\sin \theta$ dengan $\beta \cos \theta$ ditunjukkan pada Pers.(3).

$$\beta \cos\theta = \frac{k\lambda}{D} + c \sin\theta \tag{3}$$



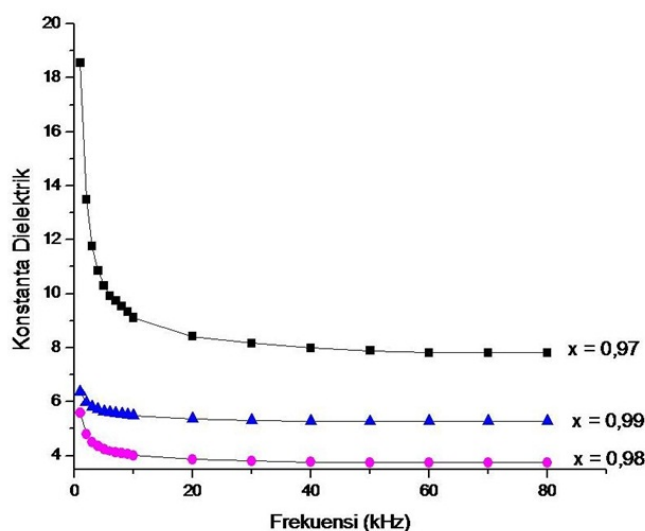
Gambar 3: Grafik plot $\cos \theta$ vs $\beta \cos \theta$ $Ba_{0,97}Sr_{0,03}TiO_3$.

TABEL II: Ukuran kristal $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$.

Sampel	Ukuran Kristal (nm)
$Ba_{0,99}Sr_{0,01}TiO_3$	28,4
$Ba_{0,98}Sr_{0,02}TiO_3$	32,3
$Ba_{0,97}Sr_{0,03}TiO_3$	54,8

Pengaruh variasi *doping* mol Sr terhadap ukuran kristal yaitu semakin besar penambahan Sr maka ukuran kristal juga semakin besar. Besarnya ukuran butir mempengaruhi jarak atom-atom dalam kristal yang semakin berdekatan sehingga menyebabkan regangan kisi juga semakin kecil. Besarnya ukuran kristal dan regangan kisi berdasarkan Pers.(3) ditunjukkan pada Tabel II.

Nilai regangan kisi menunjukkan perubahan panjang kisi. Gambar 3 menunjukkan persamaan linier $y = 0,008271674x + 0,00281168$ dan $R^2 = 0,919606419$ untuk $Ba_{0,97}Sr_{0,03}TiO_3$. Nilai regangan kisi berdasarkan persamaan tersebut adalah sebesar 0,8271 % dan ukuran partikel sebesar 54,8 nm.



Gambar 4: Grafik hubungan frekuensi dengan konstanta dielektrik variasi *doping* mol Sr 0,01; 0,02; 0,03.

Besarnya nilai konstanta dielektrik yang diperoleh dari RCL meter adalah, bahwa semakin kecil frekuensi yang diberikan, nilai konstanta dielektrik yang dihasilkan semakin besar. Variasi nilai konstanta dielektrik yang diberikan adalah dari 1 kHz sampai 80 kHz, dengan tegangan 1 volt. Besarnya nilai konstanta dielektrik bergantung besarnya nilai frekuensi yang diberikan, ditunjukkan pada Gambar 4.

Berdasarkan Gambar 4, dapat dilihat bahwa konstanta dielektrik maksimum sebesar 18,55 diperoleh pada frekuensi minimum 1 kHz pada $\text{Ba}_{0,97}\text{Sr}_{0,03}\text{TiO}_2$. Penambahan variasi mol Sr yang semakin besar mempengaruhi besarnya nilai kapasitansi sehingga konstanta dielektrik juga semakin besar karena struktur kristal juga semakin meningkat.

IV. SIMPULAN

$\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$ yang telah dibuat menggunakan metode reaksi fasa padat, dapat disimpulkan bahwa pengaruh *doping*

Sr terhadap struktur kristal $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$ adalah memperbesar sudut 2θ dan nilai parameter kisinya juga semakin besar. Besarnya nilai ukuran kristal juga dipengaruhi banyaknya penambahan mol Sr, semakin besar penambahan *doping* mol Sr ukuran kristal juga semakin besar yakni 54,8 nm sehingga konstanta dielektrik juga semakin besar yaitu pada frekuensi minimum sebesar 18,55 pada 1 kHz $\text{Ba}_{0,97}\text{Sr}_{0,03}\text{TiO}_2$.

Ucapan Terima Kasih

Penulis mengucapkan terimakasih atas kerjasama dan dukungan dana melalui Hibah Pascasarjana DIPA PNBPN UNS dengan nomor kontrak, No:501/UN27.11/PN/2014.

- [1] K. Uchino, *Ferroelectric Devices* (Marcel Dekker, Inc. New York, 2000).
- [2] T. Schneller, *et al.*, *J. Mater. Chem.*, **21**, 7953 (2011).
- [3] D. Pergolesi, *et al.*, *Nature Materials*, **9**, 846-852 (2010).
- [4] T. Ohno, *et al.*, *Acta Chim. Slov.*, **61**, 453-456 (2014).
- [5] A. Ries, *et al.*, *Materials Characterization*, **50**, 217-221 (2003).
- [6] M. M. Vijatovic, J.D. Bobic, and B.D. Stojanovic, *Science of Sintering*, **40**, 235-244, (2008).
- [7] R. Maharsi, *Karakterisasi Kekristalan dan Konstanta Dielektrik $\text{Ba}_{0,9}\text{Sr}_{0,1}\text{TiO}_3$ yang Dibuat dengan Metode Solid State Reaction*, Skripsi, Universitas Sebelas Maret, 2014.

- [8] U. Indriana, *Pengaruh variasi komposisi mol Barium (Ba) dan Strontium (Sr) terhadap sifat dielektriknya sebagai kapasitor atau penyimpan muatan pada $\text{Ba}_{0,95}\text{Sr}_{0,05}\text{TiO}_3$* , Skripsi, Universitas Sebelas Maret, 2014.
- [9] F.H. Wee, *et al.*, *Progress In Electromagnetic Research*, **121**, 181-213 (2011).
- [10] Pradhan, *et al.*, *Journal of Applied Physics*, **97**,093903 (2005).