

Pengaruh Waktu Pencampuran terhadap Struktur Kristal dan Konstanta Dielektrik Material $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$

Dianisa Khoirum Sandi¹, Agus Supriyanto¹, Anif Jamaludin², dan Yofentina Iriani¹

¹Program Studi Fisika, Fakultas MIPA, Universitas Sebelas Maret, Surakarta

²Program Studi Pendidikan Fisika, Fakultas KIP, Universitas Sebelas Maret, Surakarta
yopen_2005@yahoo.co.id

Received 28-06-2015, Revised 25-09-2015, Accepted 28-09-2015, Published 20-10-2015

ABSTRACT

Barium Strontium Titanate ($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$) or BST has been synthesized using solid state reaction method. Raw materials of BST were $BaCO_3$, $SrCO_3$, and TiO_2 . Those materials were mixed, pressed, and sintered at temperature $1200^\circ C$ for 2 h. Mixing time of raw materials was varied to identify its effects on crystal structures and dielectrics constant of $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ using X-Ray Diffraction (XRD) and LCR meter instrument, respectively. The results of XRD showed that crystals structure of $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ is tetragonal. Lattice parameter of $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ for 6 h of mixing time is $a = b = 3.988 \text{ \AA}$ and $c = 3.998 \text{ \AA}$. Lattice parameter of $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ for 8 h of mixing time is $a = b = 3.976 \text{ \AA}$ and $c = 4.000 \text{ \AA}$. Crystalline size of $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ was calculated using Scherrer equation. Crystalline size, crystallinity, and dielectric constant of $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ for 6 h of mixing time is 38 nm, 96%, and 115 at frequency 1 KHz, respectively while their value for 8 h of mixing time is 39 nm, 96%, and 196 at frequency 1 KHz, respectively. Thus it can be concluded that mixing time affects the lattice parameters of $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ crystal. The longer mixing time causes crystalline size, crystallinity, and dielectrics constant increase.

Keywords: barium strontium titanate ($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$), solid state reaction method, micro structure, dielectrics constant

ABSTRAK

Barium Stronsium Titanat ($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$) atau BST telah disintesis menggunakan metode reaksi padatan. Material dasar yang digunakan adalah $BaCO_3$, $SrCO_3$, dan TiO_2 . Material-material tersebut digerus, dibuat *bulk*, dan di-*sintering* pada suhu $1200^\circ C$ selama 2 jam. Waktu pencampuran bahan dasar divariasasi selama 6 jam dan 8 jam untuk mengetahui pengaruhnya terhadap struktur kristal $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ menggunakan *X-Ray Diffraction* (XRD) dan konstanta dielektrik $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ menggunakan LCR meter. Hasil XRD menunjukkan bahwa struktur kristal $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ merupakan tetragonal. Parameter kisi $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ dengan waktu pencampuran 6 jam adalah $a=b=3,988 \text{ \AA}$ dan $c=3,998 \text{ \AA}$. Sedangkan dengan waktu pencampuran 8 jam parameter kisinya adalah $a=b=3,976 \text{ \AA}$ dan $c=4,000 \text{ \AA}$. Persamaan Scherrer digunakan untuk mengetahui ukuran kristal BST. Ukuran kristal, derajat kristalinitas, dan konstanta dielektrik $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ dengan waktu pencampuran 6 jam, masing-masing adalah 38 nm, 96%, dan 115 pada frekuensi 1 KHz. Sedangkan pada $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ dengan waktu pencampuran 8 jam, masing-masing adalah 39 nm, 96%, dan 196 pada frekuensi 1 KHz. Sehingga dapat disimpulkan bahwa perbedaan waktu pencampuran menyebabkan terjadi perubahan parameter kisi pada kristal $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$. Semakin lama waktu pencampuran menyebabkan ukuran kristal, kristalinitas, dan konstanta dielektrik $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ meningkat.

Kata kunci: barium stronsium titanat ($Ba_{(1-x)}Sr_xTiO_3$), metode reaksi padatan, struktur kristal, konstanta dielektrik

PENDAHULUAN

Material ferroelektrik merupakan suatu material yang dapat mengalami polarisasi spontan walaupun tanpa dikenai medan listrik^[1-2]. Dalam perkembangannya, material ferroelektrik menjadi semakin penting sebagai bahan pada perangkat elektronik^[3]. Barium Titanat ($BaTiO_3$) merupakan salah satu material ferroelektrik dengan nilai konstanta dielektrik tinggi yang paling umum digunakan dalam industri elektronik. Dalam industri elektronik, $BaTiO_3$ digunakan sebagai bahan utama pembuatan komponen elektronik seperti kapasitor, multilayer kapasitor (MMLC), perangkat penyimpanan energi^[1,4,5]. Pada penelitian-penelitian yang telah dilakukan, sintesis $BaTiO_3$ sering kali dilakukan dengan menambahkan atom Sr atau Zr. Penambahan atom-atom tersebut dalam $BaTiO_3$ dapat mengubah mikrostruktur $BaTiO_3$. Perubahan mikrostruktur pada $BaTiO_3$ salah satunya dapat berpengaruh terhadap sifat dielektriknya^[6].

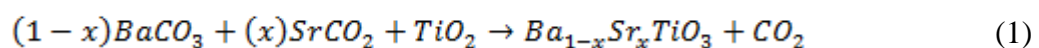
Barium Stronsium Titanat ($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$) atau BST merupakan salah satu material ferroelektrik yang dibentuk melalui penambahan atom Sr dalam $BaTiO_3$. Penambahan atom Sr berpengaruh pada struktur kristal dan fasa BST. Pada saat komposisi Barium sebesar $x=0,7$ sampai $x=1$ atau prosentase mol Sr $\leq 0,25\%$ fasanya berupa ferroelektrik dengan struktur tetragonal. Sedangkan pada saat komposisi Barium sebesar $x<0,7$ atau prosentase mol Sr $\geq 0,25\%$ fasanya berupa paraelektrik dengan struktur kubus^[7-8]. Komposisi Ba:Sr akan mempengaruhi sifat atau karakteristik $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$, salah satunya adalah perubahan nilai konstanta dielektrik. Penambahan atom Sr menyebabkan BST padat mempunyai konstanta dielektrik yang lebih tinggi dibandingkan dengan $BaTiO_3$ murni pada suhu transisi (T_c)^[6].

Beberapa metode yang dapat digunakan untuk mensintesis BST adalah metode sol-gel, hidrotermal, kopresipitasi dan metode reaksi padatan^[3,7]. Metode reaksi padatan merupakan metode yang digunakan untuk fabrikasi material dengan cara mencampur dua atau lebih material padat yang berbeda, yang melibatkan proses pemanasan sehingga campuran tersebut dapat bereaksi dan diperoleh material baru dalam fasa padat pula^[9-10]. Sintesis BST menggunakan metode reaksi padatan umumnya melibatkan bahan dasar Barium Karbonat ($BaCO_3$), Stronsium Karbonat ($SrCO_3$) dan Titanium Oxide (TiO_2) pada suhu di atas $1000^\circ C$ ^[10]. Dibanding dengan metode-metode yang lain, metode ini merupakan metode yang mudah, sederhana, serta hemat biaya. Akan tetapi metode ini mempunyai beberapa kelemahan yaitu ukuran partikel yang didapatkan besar, homogenitasnya kurang, dan adanya aglomerasi^[7,10,11]. Oleh karena itu dalam pencampuran material bahan dilakukan penggerusan agar dapat diperoleh ukuran yang semakin halus dan homogen^[12].

Pada penelitian ini dilakukan sintesis $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ menggunakan metode reaksi padatan. Pencampuran $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ dengan cara digerus di dalam mortar selama 6 jam dan 8 jam, kemudian di-*sintering* pada suhu $1200^\circ C$. Variasi waktu pencampuran dilakukan untuk mengetahui pengaruh waktu pencampuran terhadap struktur mikro dan nilai konstanta dielektrik.

METODE

Keramik $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ disintesis menggunakan metode reaksi padatan. Material dasar $BaCO_3$, $SrCO_3$ dan TiO_2 ditimbang sesuai dengan persamaan reaksi seperti Persamaan 1.



x merupakan komposisi Sr yang digunakan. Campuran material bahan dicampur selama 6 jam dan 8 jam dengan cara digerus di dalam mortar, di-press menjadi *bulk*, dan di-*sintering* selama 2 jam pada suhu 1200°C. Proses pencampuran bertujuan untuk membuat campuran BaCO₃, SrCO₃, dan TiO₂ menjadi homogen. Dan proses pengepressan bertujuan untuk membuat campuran kompak dan keras.

Bulk BST yang telah di-*sintering* kemudian diuji menggunakan instrumen X-Ray Diffraction (XRD) Bruker D8 Advance dengan λ_{Cu} sebesar 1,5406 Å untuk mengetahui struktur mikro. Hasil uji XRD kemudian dicocokkan dengan *database International Commission Data Diffraction (ICDD)*. Ukuran kristal dan derajat kristalinitas dicari menggunakan Persamaan 2 dan Persamaan 3.

$$D = \frac{k\lambda}{B\cos\theta} \quad (2)$$

$$\text{kristalinitas} = \frac{I_{\text{puncakmaks}} - I_{\text{puncakmin}}}{I_{\text{puncakmaks}}} \quad (3)$$

Dimana D merupakan nilai ukuran kristal, B merupakan nilai FWHM, λ merupakan panjang gelombang sumber sinar-X, θ merupakan sudut difraksi puncak yang akan dicari nilai ukuran kristalnya, dan k adalah konstanta Scherrer. Nilai konstanta Scherer untuk struktur kristal kubus adalah 0,94, sedangkan struktur yang lain adalah 1^[11,13].

Bulk Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO₃ kemudian diuji menggunakan instrumen LCR-800 Series Gwinstek untuk mengetahui nilai kapasitansi, yang kemudian digunakan untuk menghitung nilai konstanta dielektrik. Perhitungan nilai konstanta dielektrik sesuai dengan Persamaan 4 dibawah.

$$K = \frac{Cd}{\epsilon_0 A} \quad (4)$$

K merupakan nilai konstanta dielektrik Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO₃, C merupakan kapasitansi, d merupakan ketebalan bahan dielektrik (ketebalan *bulk* Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO₃), A merupakan luas permukaan sampel *bulk* Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO₃, dan ϵ_0 merupakan permitivitas ruang hampa yang besarnya 8,85x10⁻¹² F/m^[14].

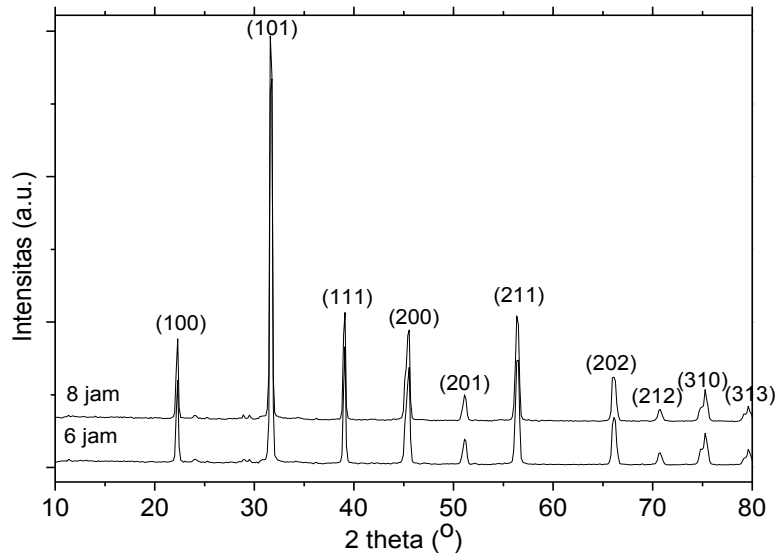
HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil XRD berupa difraktogram antara 2θ dan intensitas yang ditunjukkan pada Gambar 1. Puncak-puncak difraktogram dicocokkan dengan *database ICDD* yang menunjukkan bahwa puncak-puncak tersebut sesuai dengan #440093. Data XRD kemudian dianalisa menggunakan *software General Structure Analysis System (GSAS)* dengan metode Rietveld. Hal tersebut dilakukan untuk membuktikan bahwa puncak-puncak difraktogram benar milik Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO₃.

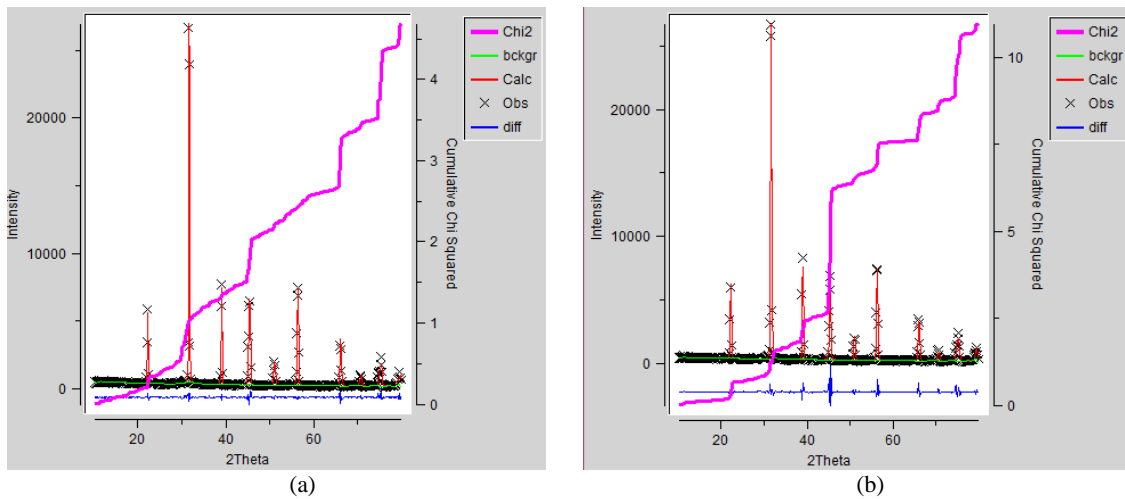
Hasil proses *refinement* ditunjukkan oleh Gambar 2 yang berupa grafik antara 2θ dengan intensitas dan garis *Chi-square* (χ^2). Grafik yang berwarna hitam adalah grafik yang diperoleh dari data pengujian menggunakan XRD yang dimasukkan ke dalam *software GSAS*. Grafik berwarna merah merupakan grafik hasil kalkulasi *software GSAS* yang diperoleh dari data ICDD yang dimasukkan ke dalam *software GSAS*. Garis berwarna biru merupakan perbedaan antara grafik input data awal dengan data kalkulasi. Garis berwarna hijau merupakan *background*. Dan garis yang berwarna jingga adalah *Chi-*

square (χ^2). Jika data kalkulasi semakin mendekati dengan data observasi, maka garis *Chi-Square* (χ^2) akan semakin lurus dan nilainya semakin kecil atau mendekati 1. *Chi-square* (χ^2) hasil *refinement* pada $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ dengan waktu pencampuran 6 jam dan 8 jam, masing-masing adalah 4,694 dan 10,980.

Dari proses *refinement* dapat diketahui dugaan awal benar bahwa puncak-puncak tersebut milik $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ dengan struktur kristal tetragonal, yaitu $a = b \neq c$ dan $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$. Struktur tetragonal pada $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ mengindikasikan bahwa material tersebut merupakan material ferroelektrik.



Gambar 1. Difraktogram $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ dengan waktu pencampuran 6 jam dan 8 jam



Gambar 2. (Color Online) Hasil *refinement* data XRD $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ menggunakan *software* GSAS dengan waktu pencampuran (a) 8 jam (b) 6 jam

Hasil proses *refinement* juga menampilkan parameter kisi $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ seperti yang ditunjukkan pada Tabel 1. Dari Tabel 1 dapat diketahui bahwa perbedaan waktu pencampuran mengakibatkan nilai parameter kisi $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ berubah pula. Parameter kisi $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ dengan waktu pencampuran selama 6 jam adalah $a=b=3,988 \text{ \AA}$ dan $c=3,998 \text{ \AA}$. Sedangkan dengan waktu pencampuran selama 8 jam parameter kisi $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ adalah $a=b=3,976 \text{ \AA}$ dan $c=4,000 \text{ \AA}$. Semakin lama waktu pencampuran menyebabkan panjang kisi (c) semakin besar, sedangkan panjang kisi ($a=b$) semakin kecil.

Gambar 1 menunjukkan bahwa waktu pencampuran tidak berpengaruh terhadap sudut difraksi $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$, namun berpengaruh pada intensitasnya, meskipun tidak signifikan. Intensitas $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ pada orientasi bidang (1 0 1) dengan waktu pencampuran 6 jam dan 8 jam, masing-masing adalah 26720 (cacah/detik) dan 26681 (cacah/detik). Melalui puncak-puncak difraktogram dapat diketahui parameter-parameter berupa, parameter kisi, ukuran kristal, serta derajat kristalinitas kristal $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$.

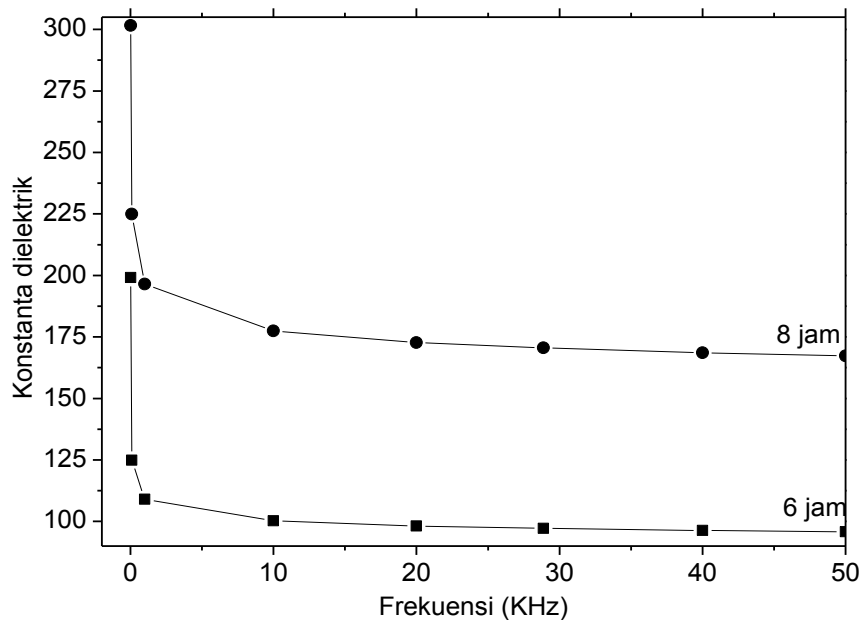
Pengaruh waktu pencampuran terhadap ukuran kristal dan tingkat kekristalan ditunjukkan pada Tabel 2. Ukuran kristal $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ pada orientasi bidang (1 0 1) dengan waktu pencampuran selama 6 jam dan 8 jam, masing-masing adalah 38 nm dan 39 nm. Ukuran kristal $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ semakin besar seiring dengan semakin lamanya waktu pencampuran.

Tabel 1. Parameter kisi $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ dengan waktu pencampuran 6 jam dan 8 jam menggunakan proses *refinement software* GSAS

Waktu pencampuran (jam)	Parameter kisi (Å)	
	a=b	C
6 jam	3,988	3,998
8 jam	3,976	4,000

Tabel 2. Ukuran kristal pada orientasi bidang (101) dan parameter kisi $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ dengan waktu pencampuran 6 jam dan 8 jam

Waktu pencampuran (jam)	Ukuran kristal (nm)	Kekristalan (%)
6 jam	38	96
8 jam	39	96



Gambar 3. Grafik perubahan konstanta dielektrik terhadap perubahan frekuensi

Setelah pengujian menggunakan instrumen XRD, sampel $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ kemudian diuji menggunakan instrumen LCR meter untuk memperoleh data konstanta dielektrik. Pada pengujian tersebut, data masukkan yang berupa frekuensi divariasikan dari 0,1 KHz sampai 50 KHz. Hal tersebut dilakukan untuk mengetahui respon konstanta dielektrik terhadap perubahan frekuensi. Gambar 3 merupakan grafik hubungan antara perubahan frekuensi terhadap konstanta dielektrik $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$. Frekuensi berpengaruh pada kapasitansi, semakin tinggi frekuensi yang diberikan, maka semakin rendah kapasitansinya. Ketika kapasitansi semakin rendah, maka konstanta dielektrik juga semakin rendah. Pada material

ferroelektrik konstanta dielektrik akan semakin turun seiring dengan meningkatnya frekuensi, akan tetapi cenderung semakin stabil^[1].

Konstanta dielektrik $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ pada frekuensi 1 KHz untuk waktu pencampuran 6 jam dan 8 jam, masing-masing adalah 115 dan 196. Semakin lama waktu pencampuran menyebabkan konstanta dielektrik $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ semakin meningkat. Pada kristal material ferroelektrik terdapat domain, atau daerah dengan arah polarisasi yang sama. Domain ferroelektrik akan semakin luas seiring dengan semakin besarnya kristal, sehingga semakin kuat polarisasi pada material tersebut^[1]. Meningkatnya konstanta dielektrik $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ pada waktu pencampuran 8 jam diduga karena pada waktu pencampuran tersebut ukuran kristalnya menjadi lebih besar dibandingkan dengan ukuran kristal pada waktu pencampuran 6 jam. Ketika ukuran kristal semakin besar, maka domain ferroelektrik akan semakin luas dan polarisasinya semakin kuat. Ketika polarisasi semakin kuat, maka kemampuan material dalam menyimpan muatan semakin besar, atau dengan kata lain konstanta dielektriknya semakin tinggi.

KESIMPULAN

$Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ telah disintesis menggunakan metode reaksi padatan dengan pencampuran selama 6 jam dan 8 jam. Perbedaan waktu pencampuran menyebabkan terjadi perubahan parameter kisi pada kristal $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$. Ukuran kristal, derajat kristalinitas, dan konstanta dielektrik $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ dengan pencampuran 6 jam, masing-masing adalah 38 nm, 96%, dan 115 pada frekuensi 1 KHz. Sedangkan pada $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ dengan waktu pencampuran 8 jam, masing-masing adalah 39 nm, 96%, dan 196. Sehingga dapat disimpulkan bahwa perbedaan waktu pencampuran menyebabkan terjadi perubahan parameter kisi pada kristal $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$. Semakin lama waktu pencampuran menyebabkan ukuran kristal, kristalinitas, dan konstanta dielektrik $Ba_{0,9}Sr_{0,1}TiO_3$ meningkat.

UCAPAN TERIMAKASIH

Penulis mengucapkan terimakasih kepada Hibah Pascasarjana 2015 dengan nomor kontrak 624/UN27.11/PL/2015 yang telah memberikan dana hibah penelitian. Sehingga dengan adanya dana tersebut, penulis dapat melakukan penelitian ini.

DAFTAR PUSTAKA

1. Vijatovic, M. M., Bobic, J. D., Stojanovic, B. D. 2008. History and Challenges of Barium Titanate: Part II. *Science of Sintering*, Vol. 40, pp. 235-244.
2. Yadav, A. K., Gautam, C. R., & Mishra, A. 2014. Mechanical and Dielectric Behaviors of Perovskite $(Ba,Sr)TiO_3$ Borosilicate Glass Ceramics. *Journal of Advanced Ceramics*, Vol. 3(2), pp. 137-146. ISSN 2226-4108
3. Kongtaweelert, S., Sinclair, D.C., & Panichphant, S. 2006. Phase and Morphology Investigation of $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ ($x = 0.6, 0.7$ and 0.8) Powders. *Current Applied Physics*, Vol. 6, pp. 474-477.
4. Kholodkova, A., Danchevskaya, M., & Fionov, A. 2012. Study of Nanocrystalline Barium Titanate Formation in Water Vapour Conditions. *Nanocon2012*, Vol. 10, pp.
5. Modani, U. S., & Jagrawal, G. 2012. A Survey on Application of Ferroelectric Materials for Fabrication of Microstrip Patch Antennas. *International Journal of Recent Technology and Engineering (IJRTE)*, Vol. 1, pp. 65-72. ISSN: 2277-3878.
6. Manavalan, S. G. 2005. Structural and Electrical Properties of Barium Strontium Titanate Thin Films for Tunable Microwave Applications. *Thesis*. University of South Florida.

7. Kosanovic, D., Obradovi, N., Zivojinovic, J., Filipovic, C., Maricic, A., Pavlovic, V., Tang, Y., & Ristic, M. M. 2012. Mechanical-Chemical Synthesis $Ba_{0.77}Sr_{0.23}TiO_3$. *Science of Sintering*, Vol. 44, pp. 47-55.
8. Morintale, E., Scarisoreanu, N., Dinescu, M., & Rotaru, P. 2010. Thermal Stability of BST in a Vast Range Temperature. *Physics AUC*, Vol. 20 (part 1), pp. 83-89.
9. Ismunandar. 2006. *Padatan Oksida Logam, Struktur, Sintesis dan Sifat-sifatnya*. Bandung : Institut Teknologi Bandung
10. Kim, H., Kim, J., Jung, W., & Yoon, D. 2009. Effect of Starting Materials on The Properties of Solid-State Reacted Barium Titanate Powder. *Journal of Ceramic Processing Research*. Vol. 10, No. 6, pp. 753-757.
11. Maharsi, R., Jamaludin, A., Iriani, Y. 2014. Karakterisasi Kekristalan dan Konstanta Dielektrik $Ba_{0.9}Sr_{0.1}TiO_3$ yang Dibuat dengan Metode *Solid State Reaction*. *Jurnal Fisika Indonesia*, No: 52, Vol XVIII. ISSN : 1410-2994
12. Kao, C., & Yang, W. 1999. Preparation of Barium Strontium Titanate Powder from Citrate Precursor. *Applied Organometallic Chemistry*, Vol. 13, pp. 383-397.
13. Suryanarayana, C., & Grant Norton, M. *X-Ray Diffraction (XRD) : A practical approach*. Washington: Washington State University
14. Serway, R. A., & Jewet, J. W. 2010. *Fisika untuk Sains dan Teknik* (Terjemahan Chriswan Sungkono). Salemba Teknika: Jakarta.