

# Sintesis Material Piezoelektrik Bebas Timbal $x\text{KNN}-(1-x)\text{BCZT}$ Dengan Metode Reaksi Padat

Oleh:

Nahariatul Hikmah

1110100702

Pembimbing:

Prof. Suasmoro

# Pendahuluan

- **Latar Belakang**

Dewasa ini kemajuan teknologi semakin berkembang pesat. Salah satunya adalah material dielektrik keramik yang mempunyai sifat piezoelektrik. Dimana material tersebut merupakan material yang sering digunakan dalam aplikasi elektronik seperti *tranducer*, sensor dan aktuator.

- Material yang telah dikenal baik mempunyai sifat tersebut adalah  $\text{PbZrTiO}_3$  (PZT). Namun, Kandungan timbal (Pb) pada bahan tersebut sangat diwaspadai karena dampak negatifnya terhadap lingkungan
- Oleh karena itu dilakukan berbagai penelitian untuk menggantikan bahan tersebut

- Pada dasarnya material tersebut adalah material dengan struktur perovskite dengan rumus utamanya  $ABO_3$ .  $A^{2+}$  dan  $B^{4+}$  dapat disubstitusi dengan kation-kation yang tetap dapat mempertahankan struktur  $ABO_3$ . Untuk itu dilakukan pembuatan bahan berbasis  $(K_{0,5}, Na_{0,5})NbO_3$  (KNN) dan  $(Ba_{0,5}, Ca_{0,5})(Zr_{0,5}, Ti_{0,5})O_3$  (BCZT) dengan menggunakan metode reaksi padat.

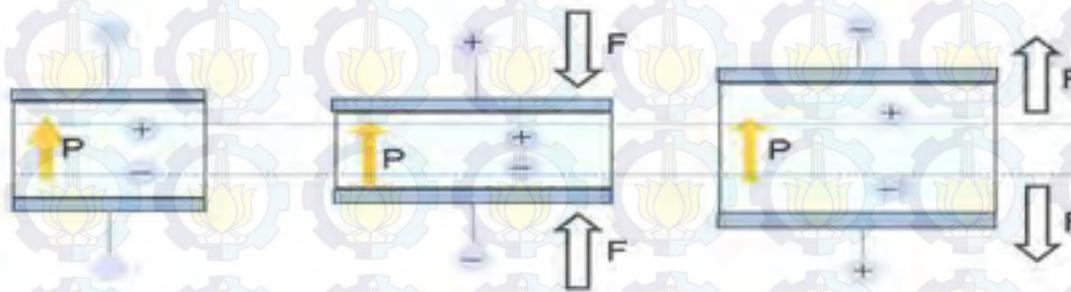
- **Tujuan Penelitian**

untuk membuat material piezoelektrik bebas timbal yang berbasis  $xKNN-(1-x)BCZT$  dengan menggunakan metode reaksi padat.

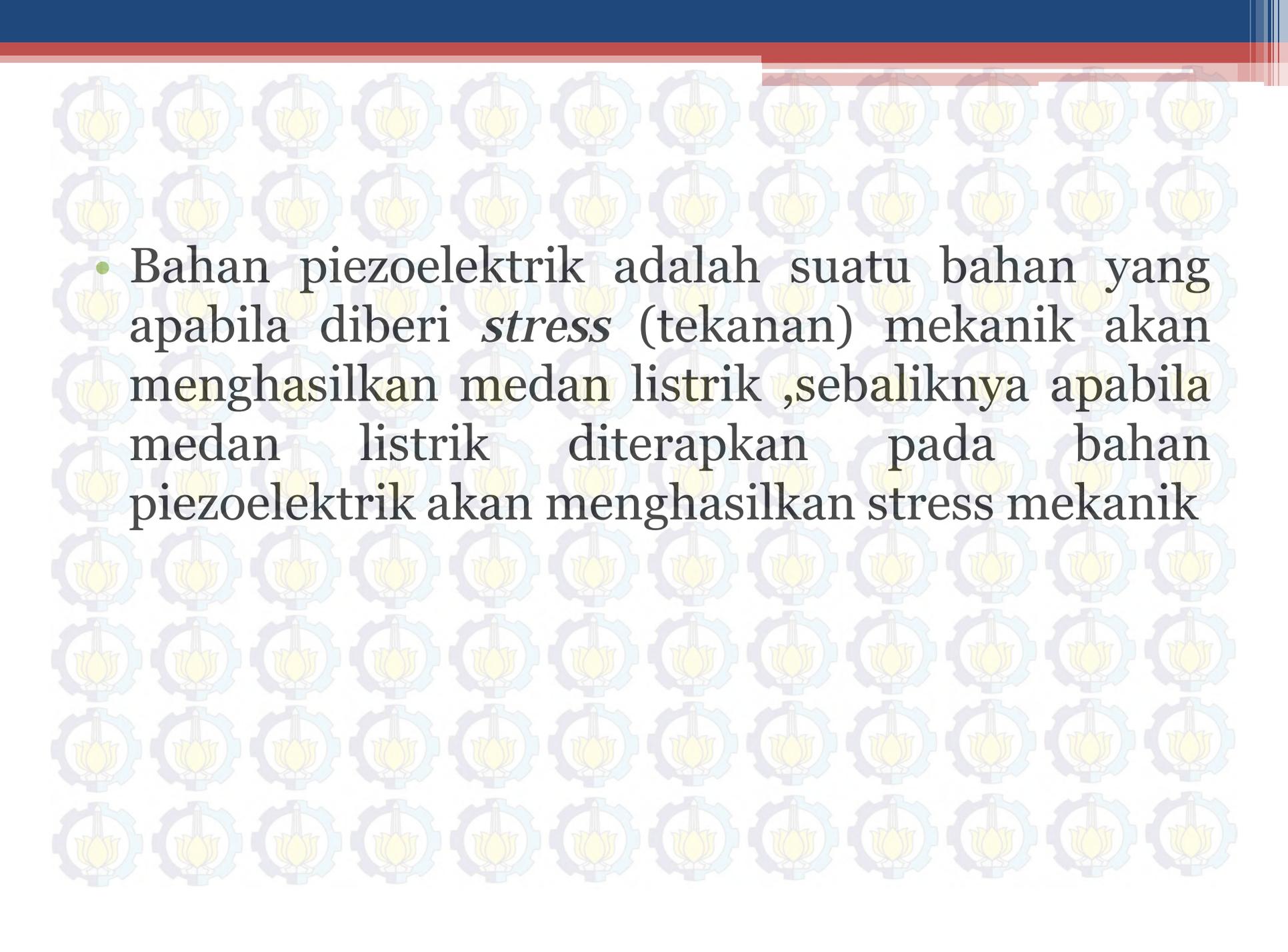
# Tinjauan Pustaka

- **Bahan Piezoelektrik**

Kristal piezoelektrik adalah bahan yang dapat terpolarisasi elektrik atau polarisasinya dapat berubah ketika diberikan stress (Barsoum, 1997).

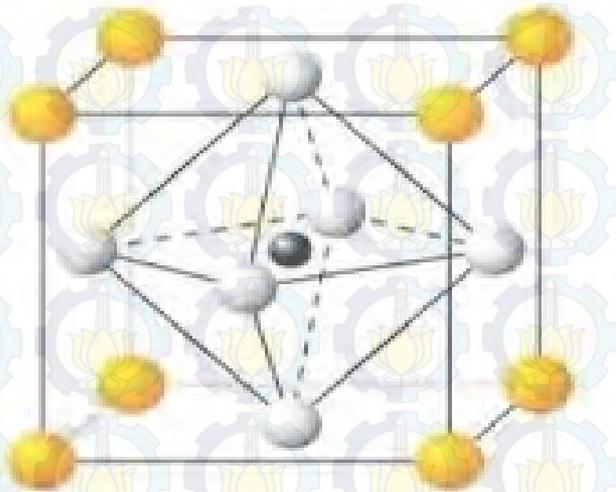


efek Reversibel material piezoelektrik

- 
- Bahan piezoelektrik adalah suatu bahan yang apabila diberi *stress* (tekanan) mekanik akan menghasilkan medan listrik, sebaliknya apabila medan listrik diterapkan pada bahan piezoelektrik akan menghasilkan stress mekanik

## • **Kristal Piezoelektrik**

Bahan piezoelektrik adalah bahan dengan struktur perovskite. Rumus utamanya adalah  $ABO_3$ .



Kation A



O



Kation B

## **$\text{KNaNbO}_3$ (KNN)**

- adalah bahan yang bebas timbal dan mempunyai sifat piezoelektrik yang baik (sifat piezoelektriknya mendekati PZT). Oleh karena itu disebut sebagai kandidat bahan yang dapat menggantikan PZT.
- Namun diketahui bahwa sintering KNN sulit dilakukan karena K dan Na bersifat volatil pada temperatur tinggi sehingga dapat menyimpang dari stoikiometrinya (J. Qiu, 2007)

## ***Doping***

- **Hongliang Du**, dkk. yang menggabungkan KNN dengan  $\text{LiNbO}_3$ . Dengan rumus kimia  $(1-x)(\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5})\text{NbO}_3-x\text{LiNbO}_3$ , menggunakan  $\text{LiNbO}_3$  sebesar 4-7 %mol menghasilkan struktur perovskite murni ( $\text{LiNbO}_3$  terdifusi sempurna ke dalam KNN)
- **Supattra** dkk. yang membuat  $((\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5})(1-x)\text{LiNbO}_3$ , bahwa penambahan Li memberikan perubahan fasa dari ortorombik menuju tetragonal dengan kisaran nilai x sebesar 0,06-0,065 dan temperatur curie-nya bergeser menjadi lebih tinggi dengan bertambahnya Li.

# BaCaZrTiO<sub>3</sub> (BCZT)

- Doping untuk KNN dapat dilakukan dengan menambahkan BaTiO<sub>3</sub>, SrTiO<sub>3</sub>, LiNbO<sub>3</sub>, LiTaO<sub>3</sub> untuk membentuk *solid-solution*.
- Penelitian Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>Zr<sub>0,04</sub>Ti<sub>0,96</sub>O<sub>3</sub> yang telah dilakukan oleh **K. Pengpat** melaporkan adanya transisi fasa dari orthorombic-tetragonal pada komposisi  $x \leq 0,03$ .

## **Metode Reaksi Padat (*solid state reaction*)**

- Yaitu metode pembuatan keramik yang dilakukan pada keadaan padat yang terjadi pada suhu tinggi.

### **Analisis Termal**

- Yaitu pengukuran sifat-sifat fisik dan kimia sebagai fungsi dari suhu.

**TGA**  
(thermogravimetrik  
analysis)



mengukur  
perubahan berat  
sampel sebagai  
fungsi dari suhu

**DTA**  
(differential  
Thermal  
Analysis)



mengukur  
perbedaan suhu  
antara sampel  
dengan material  
referen yang inert  
sebagai fungsi dari  
suhu

## Dilatometri

digunakan untuk mempelajari perubahan ukuran material terhadap proses fisika maupun kimia yang diberikan. Ketika material mengalami proses fisika, seperti pemanasan dan pendinginan, atau proses kimia, seperti reaksi kimia, maka material dapat mengalami perubahan ukurannya.

## • **Difraksi Sinar-X (XRD)**

XRD merupakan salah satu alat uji yang digunakan untuk mengetahui fasa yang terbentuk dalam suatu material padat.

Alat ini bekerja menggunakan prinsip difraksi yang memiliki panjang gelombang lebih besar atau sama dengan ukuran kisi atau celah. Hasil difraksi tersebut akan menghasilkan pola tertentu sesuai dengan hukum yang dikeluarkan oleh Lawrence dan Henry Bragg pada tahun 1915.

• menurut **Bragg** dapat dinyatakan:

$$n\lambda = 2d \sin \theta$$

n = orde difraksi

Dengan mempelajari jarak dari bidang kristalografi dengan metode difraksi ini, maka dapat ditentukan struktur kristal dari material.

Misalkan untuk kubik:

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}}$$

a : parameter kisi

Indeks miller (hkl) : rangkaian bidang paralel dalam kristal dengan jarak

# Metodologi



- Pencampuran dengan planetary Milling selama 1 jam
- Evaporasi dengan evaporator rotatif

Analisis termal (TGA-DTA)

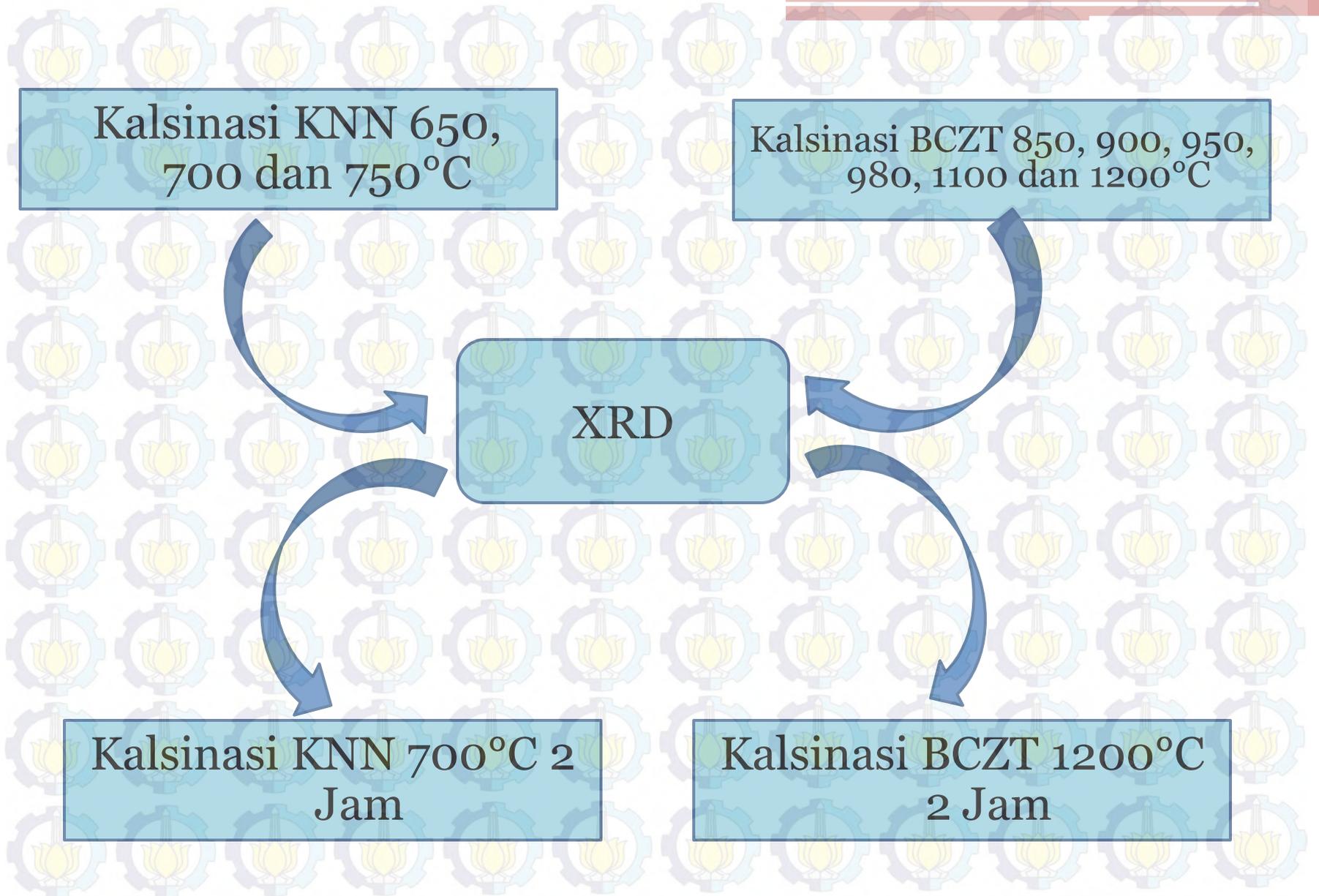
Kalsinasi KNN 650,  
700 dan 750°C

Kalsinasi BCZT 850, 900, 950,  
980, 1100 dan 1200°C

XRD

Kalsinasi KNN 700°C 2  
Jam

Kalsinasi BCZT 1200°C  
2 Jam



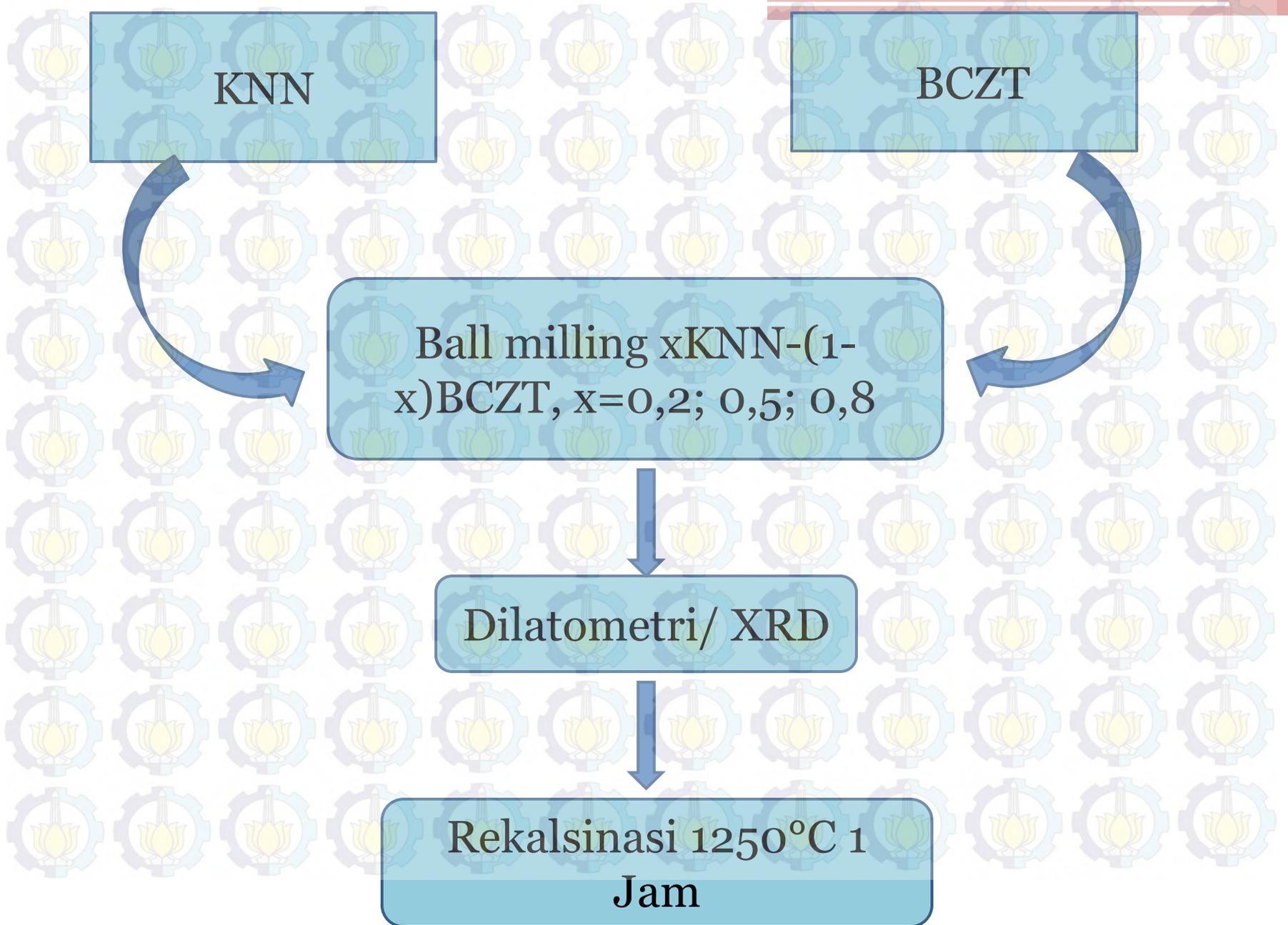
KNN

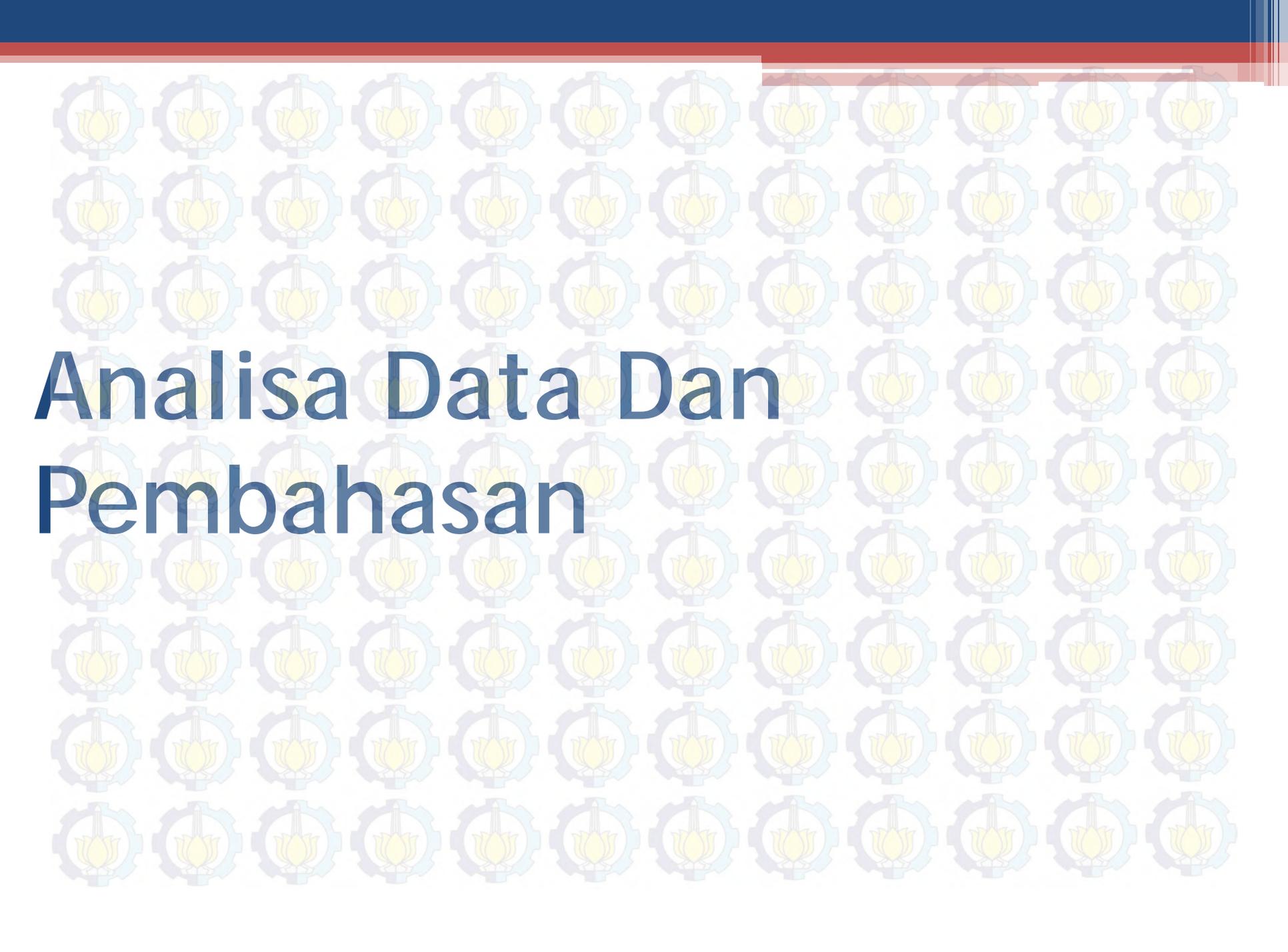
BCZT

Ball milling  $x$ KNN-(1- $x$ )BCZT,  $x=0,2; 0,5; 0,8$

Dilatometri/ XRD

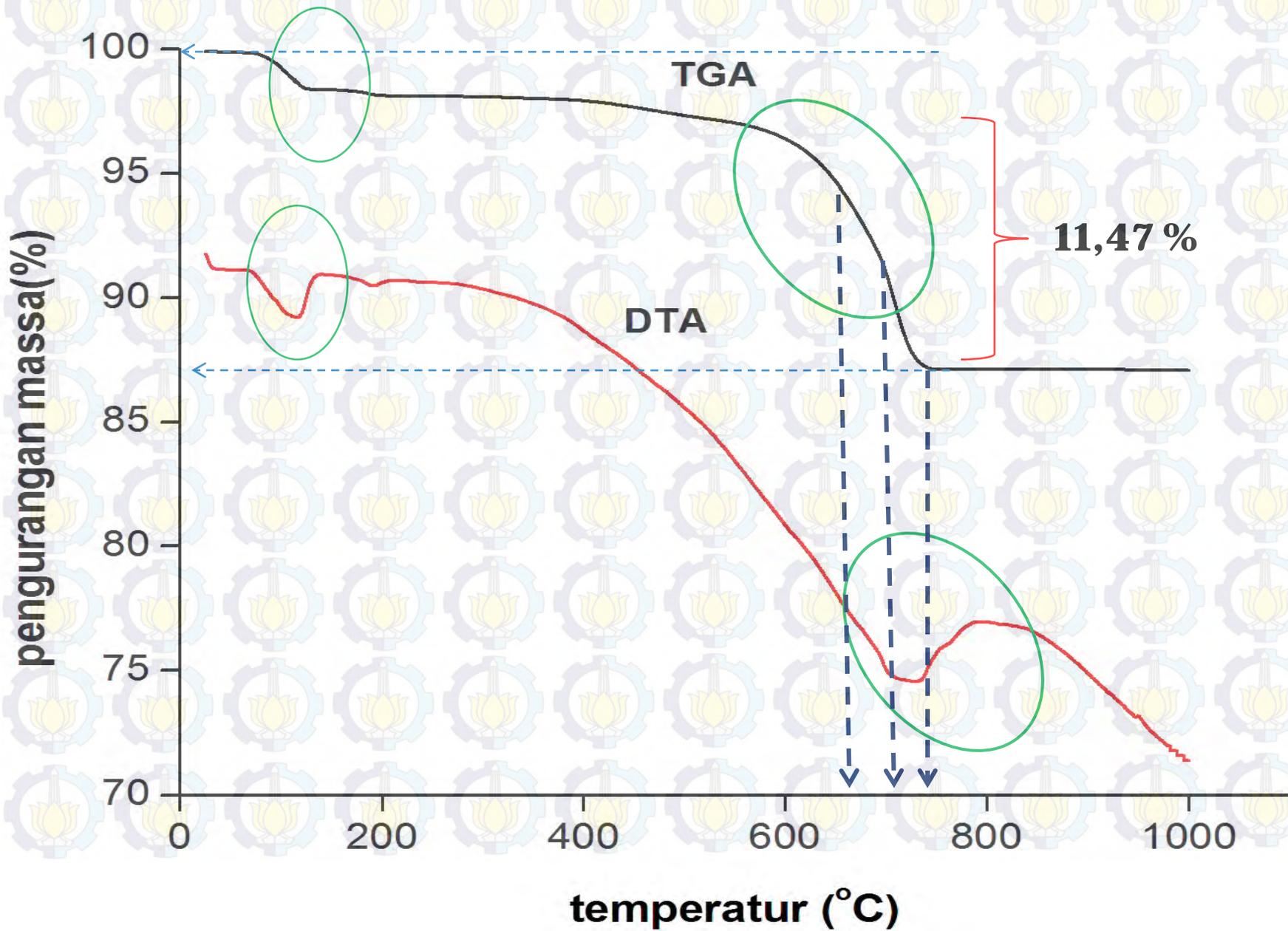
Rekalsinasi  $1250^{\circ}\text{C}$  1  
Jam



The background of the slide features a repeating pattern of a light blue gear with a yellow lotus flower inside it, set against a white background. The pattern is arranged in a grid that covers the entire slide area. At the top, there is a dark blue horizontal bar with a thin red line underneath it.

# Analisa Data Dan Pembahasan

# Analisa Termal KNN



## Reaksi:



11,33 %

Kehilangan massa : 5,735 mg dari

50 mg

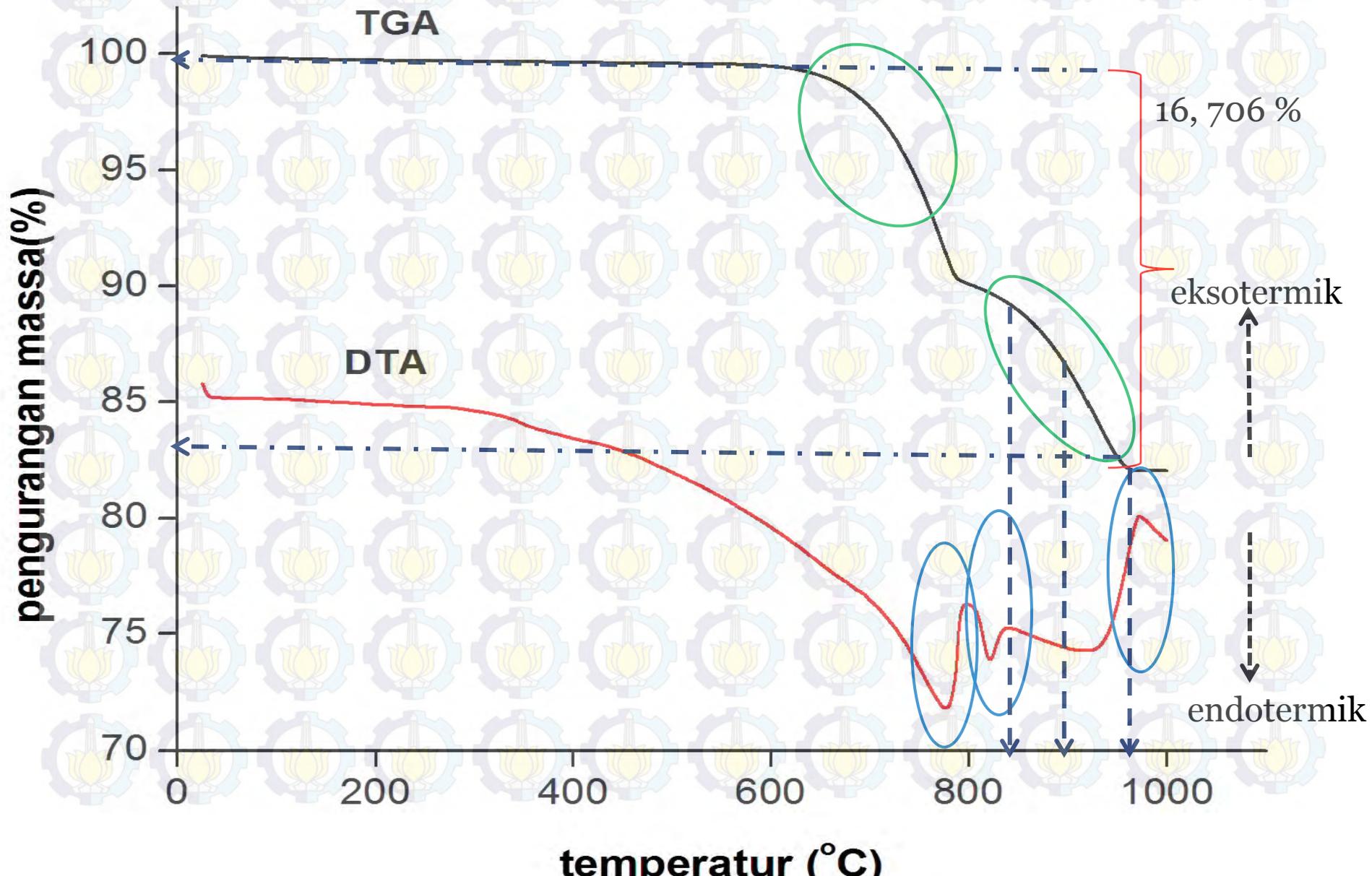
± 11,47 %



Analisa kuantitatif pola difraksi sinar-X dilakukan dengan menggunakan *software* Rietica, berupa tetragonal dengan:

Parameter	Nilai
Parameter kisi	a: 3,9587 Å ± 0,0022 c: 4,0136 Å ± 0,0022
Volume kisi	62,8997 Å <sup>3</sup> ± 0,0616
R <sub>p</sub>	17,47 %
R <sub>wp</sub>	12,84 %
Gof	0,5650 %
R <sub>B</sub>	0,23

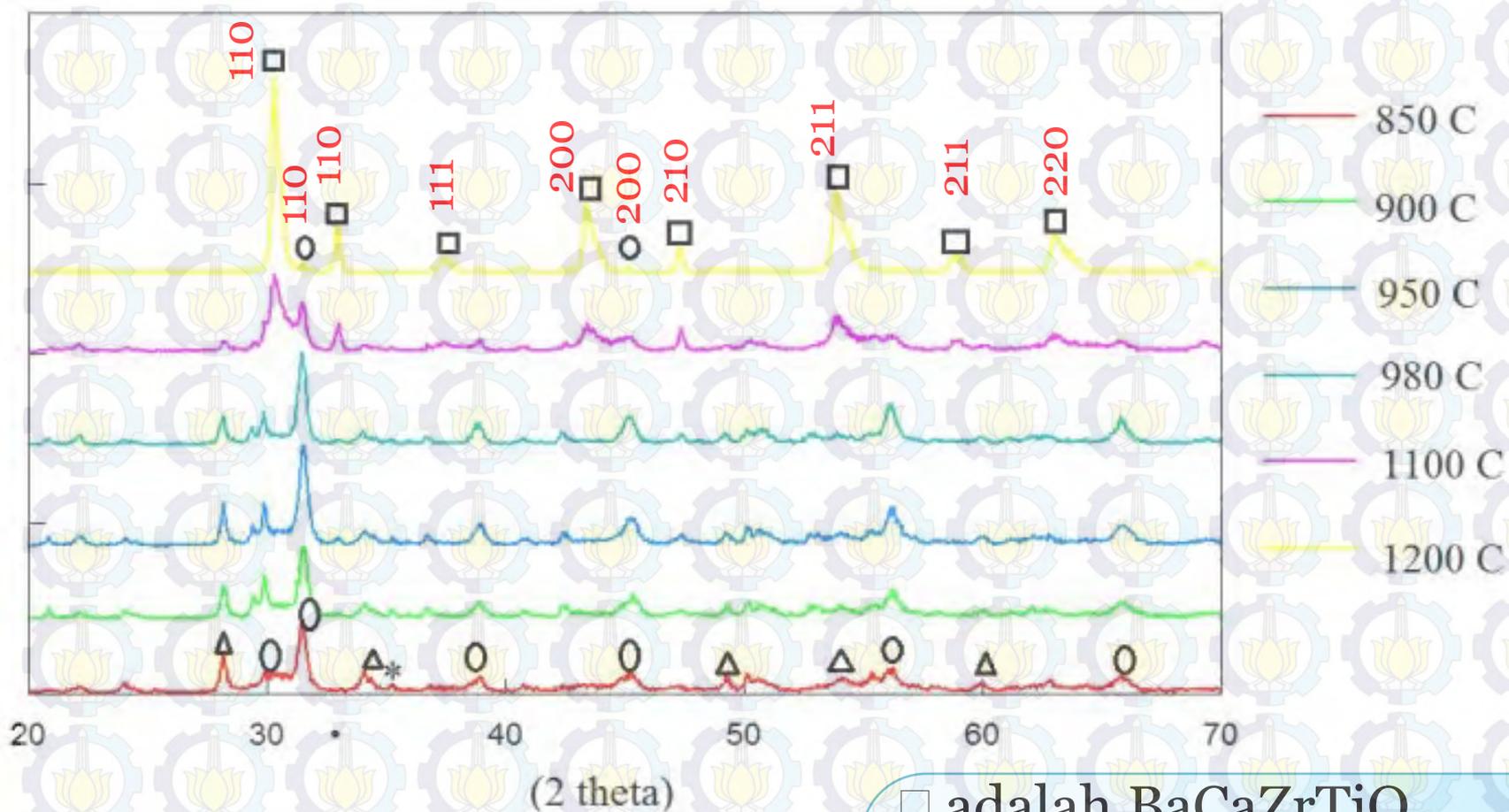
# Analisis termal TGA-DTA BCZT



Dari grafik TGA, dapat dilihat bahwa pengurangan massa yang terjadi kurang lebih sebesar 16,706% (8,53 mg dari 50 mg ) sebanding dengan hilangnya CO<sub>2</sub> pada reaksi:



17,58%



**Perbandingan Pola Difraksi Bubuk  
BCZT T= 850, 900, 950, 980, 1100  
dan 1200° C selama 1 jam**

□ adalah  $\text{BaCaZrTiO}_3$   
○ adalah  $\text{BaTiO}_3$  atau  
 $\text{CaTiO}_3$   
△ adalah  $\text{ZrO}_2$   
\* adalah  $\text{CaO}$

□ adalah  $\text{BaZrO}_3$ ,  $\text{CaZrO}_3$ ,  $\text{BaTiO}_3$  dan  $\text{CaTiO}_3$  yang menempati tempat yang sama. Sehingga dikatakan bahwa fasa yang terbentuk tersebut adalah  $(\text{Ba}_{0,5}\text{Ca}_{0,5})(\text{Zr}_{0,5}\text{Ti}_{0,5})\text{O}_3$ , karena Ba bersubstitusi dengan Ca menempati posisi A dan Zr bersubstitusi dengan Ti menempati posisi B pada  $\text{ABO}_3$ .

# Hasil Analisa Kuantitatif Pola Difraksi Sinar-X BCZT dengan Menggunakan Metode Rietveld, menunjukkan:

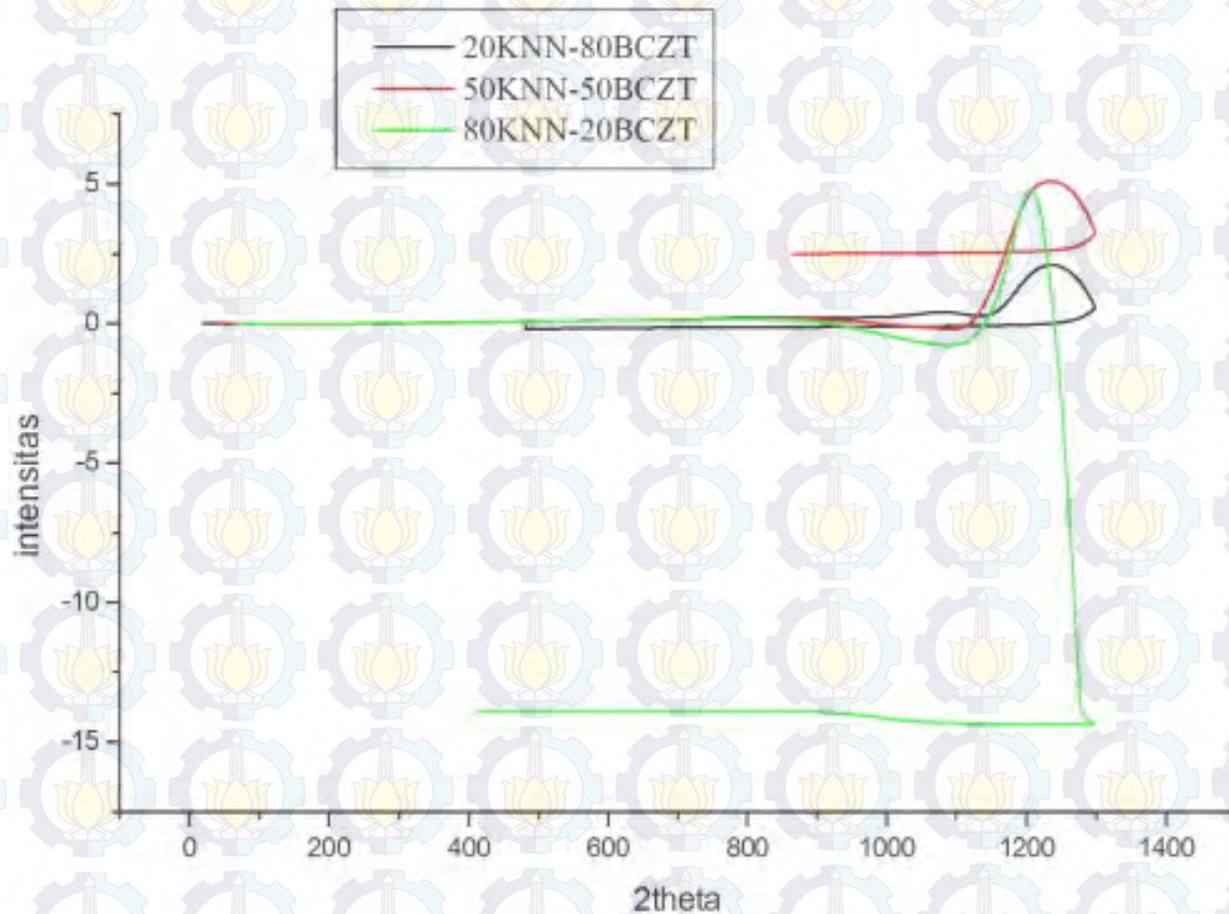
Orthorombik dengan:

Parameter	Nilai
Parameter kisi	a: $5,2614 \text{ \AA} \pm 0,0088$
	b: $5,8048 \text{ \AA} \pm 0,0044$
	c: $7,9454 \text{ \AA} \pm 0,0035$
Volume kisi	$242,6692 \text{ \AA}^3 \pm 0,4591$
R <sub>p</sub>	32,24 %
R <sub>wp</sub>	21,20 %
Gof	0,4336 %
R <sub>B</sub>	0,12

- $x\text{KNN}-(1-x)\text{BCZT}$

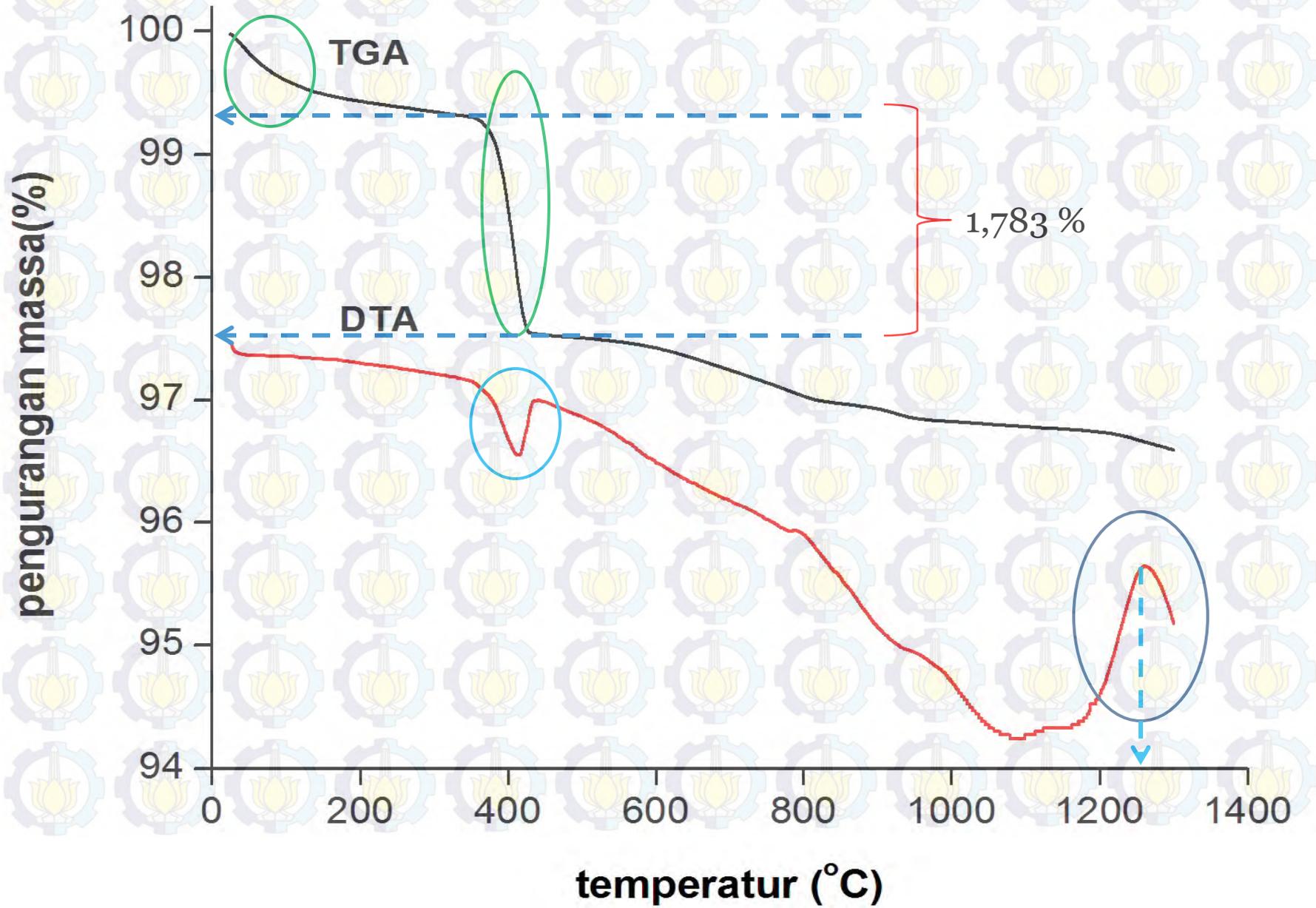
Setelah masing-masing bubuk KNN dan BCZT terbentuk, maka dilakukan pencampuran terhadap keduanya. Perbandingan mol yang digunakan dalam pencampuran ini adalah 20:80 ; 50:50 ; dan 80:20 %mol.

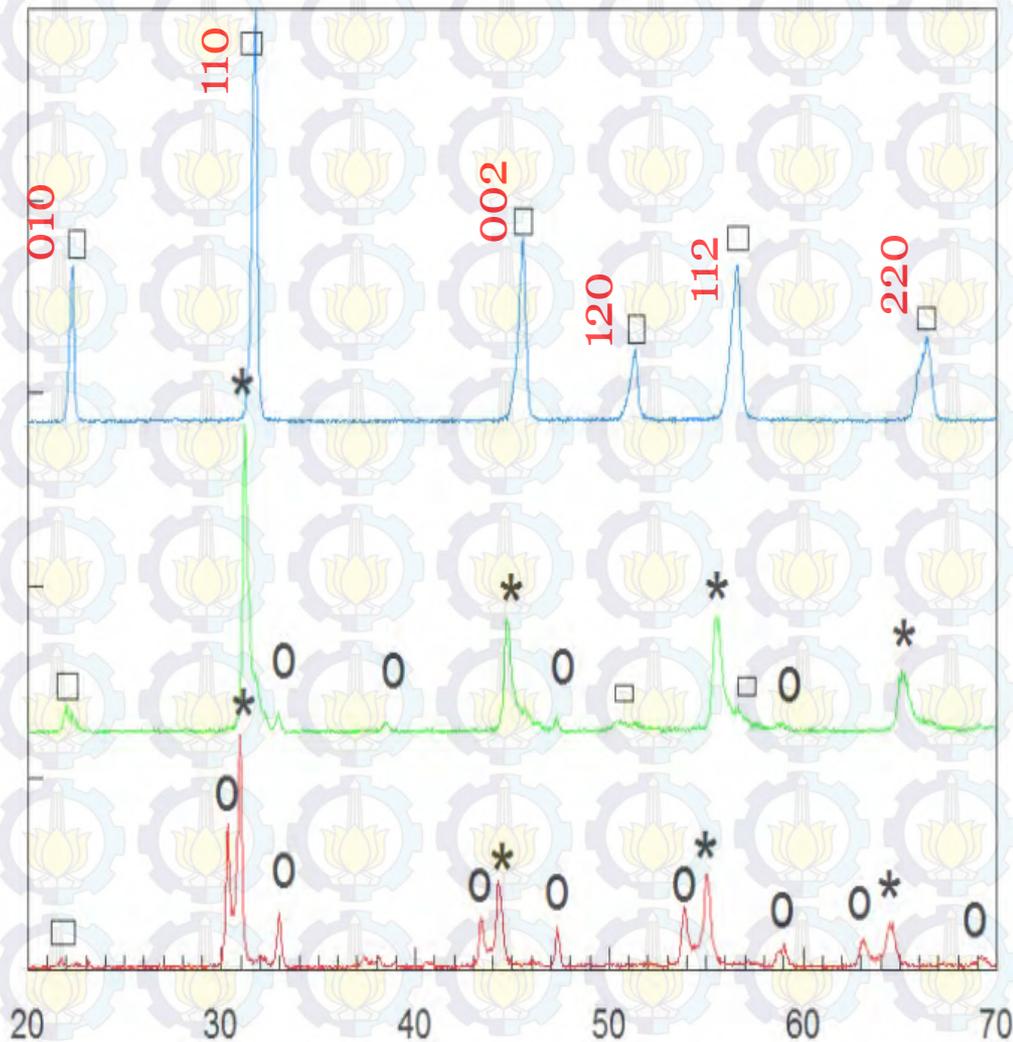
- Hasil analisis termal dilatometri menunjukkan:



- Pada pelet campuran  $x\text{KNN}-(1-x)\text{BCZT}$  dengan  $x=20$  dan  $x=50$  %mol menunjukkan pemuaian yang tidak lazim pada sampel peletnya, kurang lebih mencapai 5% di atas temperatur  $1100^{\circ}\text{C}$ .
- Sedangkan campuran dengan  $x=80$  %mol menunjukkan pemuaian pada temperatur di atas  $1100^{\circ}\text{C}$  dan maksimum pada temperatur  $1250^{\circ}\text{C}$  kemudian menyusut hingga  $\pm 14\%$ .

# Analisis termal TGA-DTA KNN-BCZT





— x=20  
 — x=50  
 — x=80

o adalah fasa BCZT  
 \* adalah fasa inntermediet  
 □ adalah fasa KNN

- Fasa intermediet yang terbentuk adalah  $\text{BaNb}_{3,47}\text{Ti}_{0,53}\text{O}_6$  dan  $\text{BaNbO}_3$
- Fasa tunggal yang terbentuk ini adalah fasa dimana komposisi KNN dominan terhadap BCZT, sehingga dikatakan bubuk campuran dengan  $x = 80$  %mol ini memiliki struktur *perovskite* ( $\text{ABO}_3$ ) menghasilkan vakansi kation dengan A ditempati oleh K, Na, Ba dan Ca; B ditempati oleh Nb, Zr dan Ti.

- Analisa dengan menggunakan rietica ini menghasilkan kristal perovskite tetragonal dengan:

Parameter	Nilai
Parameter kisi	a: 3,9873 Å ± 0,0023 c: 3,9857 Å ± 0,0006
Volume kisi	63,3698 Å <sup>3</sup> ± 0,0531
R <sub>p</sub>	15,39 %
R <sub>wp</sub>	11,26 %
Gof	0,4342 %
R <sub>B</sub>	0,43

# Kesimpulan

- Material  $\text{KNaNbO}_3$  dengan struktur perovskite tetragonal terbentuk pada temperatur  $700^\circ\text{C}$  dengan parameter kisi  $a: 3,9587 \text{ \AA} \pm 0,0022$   $c: 4,0136 \text{ \AA} \pm 0,0022$
- Material  $\text{BaCaZrTiO}_3$  dengan struktur perovskite orthorombic terbentuk pada temperatur  $1200^\circ\text{C}$  dengan parameter kisi  **$a: 5,2614 \text{ \AA} \pm 0,0088$**   $b: 5,8048 \text{ \AA} \pm 0,0044$   $c: 7,9454 \text{ \AA} \pm 0,0035$
- Material  $x\text{KNN}-(1-x)\text{BCZT}$  terbentuk dengan komposisi  $x=80 \text{ \%mol}$
- Rekalsinasi material  $0,8\text{KNN}-0,2\text{BCZT}$  pada temperatur  $1250^\circ\text{C}$  mampu menghasilkan fasa tunggal  $\text{ABO}_3$  dengan  $A= \text{K, Na, Ba dan Ca}$  sedangkan  $B= \text{Nb, Zr dan Ti}$ .



**TERIMAKASIH**