



TUGAS AKHIR - SF 141501

**PENGARUH PENAMBAHAN LITIUUM (Li) PADA
MATERIAL FEROELEKTRIK BEBAS TIMBAL
 $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ DENGAN METODE REAKSI
PADAT**

Nur Lailiyah Isnaini
NRP 1112 100 010

Dosen Pembimbing
Prof. Dr. Suasmoro, DEA

Jurusan Fisika
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Institut Teknologi Sepuluh Nopember
Surabaya 2016



FINAL PROJECT - SF 141501

**INFLUENCE OF ADDITIONAL LITHIUM (Li)
IN LEAD-FREE FERROELECTRIC MATERIAL
 $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ USING SOLID STATE
METHOD**

Nur Lailiyah Isnaini
NRP 1112 100 010

Advisor
Prof. Dr. Suasmoro, DEA

Department of Physics
Faculty of Mathematics and Natural Sciences
Institut Teknologi Sepuluh Nopember
Surabaya 2016

**PENGARUH PENAMBAHAN LITIUM (Li) PADA
MATERIAL FEROELEKTRIK BEBAS TIMBAL
 $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ DENGAN METODE REAKSI PADAT**

TUGAS AKHIR

Diajukan untuk Memenuhi Salah Satu Syarat
Memperoleh Gelar Sarjana Sains
pada
Bidang Fisika Material
Program Studi S-1 Jurusan Fisika
Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Oleh :

NUR LAILIYAH ISNAINI

NRP. 1112 100 010

Disetujui oleh Tim Pembimbing Tugas Akhir

Prof. Dr. Suasmoro, DEA
NIP. 19550210 198010 1 001



Surabaya, Juni 2016

PENGARUH PENAMBAHAN LITIMUM (Li) PADA MATERIAL FEROELEKTRIK BEBAS TIMBAL $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ DENGAN METODE REAKSI PADAT

Nama : Nur Lailiyah Isnaini
NRP : 1112100010
Jurusan : Fisika, FMIPA-ITS
Pembimbing : Prof. Dr. Suasmoro, DEA

Abstrak

Sintesis material keramik ($K_{0,5}Na_{0,5}$) NbO_3 (KNN) dan ($K_{0,5}Na_{0,4}Li_{0,1}$) NbO_3 (KNLN) telah berhasil dilakukan dengan metode reaksi padat. Fasa KNN terbentuk pada temperatur kalsinasi 700°C selama 2 jam dan sintering 1125°C selama 4 jam, sedangkan fasa KNLN terbentuk pada temperatur kalsinasi 750°C selama 2 jam dan sintering 1100°C selama 2 jam. Pola hasil XRD pada KNN sebelum dan sesudah ditambahkan Li telah diteliti. Dengan menggunakan metode Rietveld refinement, diketahui bahwa adanya doping Li pada KNN menyebabkan perubahan struktur kristal dari perovskite orthorombik ($a=3,955 \text{ \AA}$, $b=5,638 \text{ \AA}$, $c=5,678 \text{ \AA}$) menjadi perovskite tetragonal ($a=b=3,943 \text{ \AA}$, $c=4,011 \text{ \AA}$). Sifat listrik dari material ini telah dikarakterisasi dengan impedance analyzer. Ditunjukkan bahwa KNN memiliki dua temperatur Curie karena transisi fasa: orthorombik-tetragonal pada temperatur 220°C dan tetragonal-kubik pada temperatur 440°C . Sedangkan, KNLN hanya memiliki satu temperatur Curie karena transisi fasa dari tetragonal ke kubik pada temperatur 510°C . Doping Li pada KNN membuat sifat dielektrik menjadi lebih baik dibandingkan tanpa doping Li saat diukur pada temperatur ruang.

Kata kunci: *doping, perovskite, struktur kristal, temperatur Curie.*

INFLUENCE OF ADDITIONAL LITHIUM (Li) IN LEAD-FREE FERROELECTRIC MATERIAL $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ USING SOLID STATE METHOD

Name : Nur Lailiyah Isnaini
NRP : 1112100010
Department : Physics, FMIPA-ITS
Advisor : Prof. Dr. Suasmoro, DEA

Abstract

Synthesis of ceramic materials ($K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ (KNN) and ($K_{0,5}Na_{0,4}Li_{0,1}NbO_3$ (KNLN) was successfully prepared by solid state method. KNN phase is formed at calcined temperature 700°C during 2 hour and sintered 1125°C during 4 hour, while KNLN phase is formed at calcined temperature 750°C during 2 hour and sintered 1100°C during 2 hour. The result of XRD pattern of KNN before and after doped by Li was investigated. By using Rietveld refinement method, it is known that doping Li make KNN crystal structure changes from perovskite orthorhombic ($a=3,955 \text{ \AA}$, $b=5,638 \text{ \AA}$, $c= 5,678 \text{ \AA}$) to perovskite tetragonal ($a=b=3,943 \text{ \AA}$, $c=4,011 \text{ \AA}$). Electrical properties of these materials were investigated using impedance analyzer. KNN exhibited two Curie temperature due to its phase transition: orthorhombic-tetragonal at temperature 220°C and tetragonal-cubic at temperature 440°C . However KNLN only have one Curie temperature due to phase transition from tetragonal to cubic at temperature 510°C . Doping Li on KNN makes its dielectric properties better than without doping Li when measured at room temperature.

Keywords: *crystal structure, Curie temperature, doping, perovskite.*

DAFTAR ISI

Halaman Judul	i
Cover Page	ii
Lembar Pengesahan	iii
Abstrak	iv
Abstract	v
Kata Pengantar	vi
Daftar Isi	viii
Daftar Gambar	x
Daftar Tabel	xii
Daftar Lampiran	xiii

BAB I PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang	1
1.2 Rumusan Permasalahan.....	2
1.3 Batasan Masalah.....	2
1.4 Tujuan Penelitian	2
1.5 Manfaat Penelitian	3
1.6 Sistematika Penulisan	3

BAB II TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Feroelektrik	5
2.2 Struktur Perovskite	5
2.3 Material KNN.....	6
2.4 Karakterisasi Dielektrik dan Konduktivitas Keramik	8

BAB III METODOLOGI

3.1 Peralatan dan Bahan	13
3.2 Prosedur Pembuatan	13
3.2.1 Sintesis (K, Na)NbO ₃	13
3.2.2 Sintesis (K, Na, Li)NbO ₃	13
3.3 Karakterisasi Material	14
3.4 Diagram Alir	16

BAB IV ANALISA DATA DAN PEMBAHASAN	
4.1 Proses Sintesis KNN dan KNLN	19
4.2 Karakterisasi Listrik	32
BAB V KESIMPULAN	
5.1 Kesimpulan	41
5.2 Saran.....	41
DAFTAR PUSTAKA	43
LAMPIRAN.....	47
BIOGRAFI PENULIS	61

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1	Unit sel dari perovskite kubik ideal ABO_3	6
Gambar 2.2	Pola XRD serbuk KNN yang dikalsinasi pada suhu yang berbeda.....	7
Gambar 2.3	Perubahan nilai permitivitas relatif (real) dan permitivitas imajiner terhadap frekuensi.....	9
Gambar 2.4	Jenis-jenis mekanisme polarisasi	10
Gambar 3.1	Diagram alir sintesis $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$	16
Gambar 3.2	Diagram alir sintesis $K_{0,5}Na_{0,4}Li_{0,1}NbO_3$	17
Gambar 4.1	Kurva hasil pengujian TGA-DTA 50 mg KNN...	20
Gambar 4.2	Volatilitas beberapa unsur alkali sebagai fungsi temperatur	22
Gambar 4.3	Hasil pola difraksi pada KNLN (a) pelet <i>excess</i> disinter 1100°C selama 2 jam; (b) serbuk <i>excess</i> dikalsinasi 750°C selama 2 jam, dengan <i>excess</i> (2% mol K, 8% mol Na, 8% mol Li); dan pada KNN (c) pelet <i>excess</i> disinter 1125°C selama 4 jam; (d) serbuk <i>excess</i> dikalsinasi 700°C selama 2 jam, dengan <i>excess</i> (2% mol K, 8% mol Na)....	23
Gambar 4.4	Hasil <i>refinemet</i> pelet KNN yang disinter pada temperatur 1125°C dengan waktu penahanan selama 4 jam menggunakan metode normal	27
Gambar 4.5	Hasil <i>refinemet</i> pelet KNLN yang disinter pada temperatur 1100°C dengan waktu penahanan selama 2 jam menggunakan metode Le Bail.....	28
Gambar 4.6	Hasil SEM pada sampel KNN dengan temperatur sinter 1125°C selama 4 jam.....	31
Gambar 4.7	Hasil SEM pada sampel KNLN dengan temperatur sinter 1100°C selama 2 jam	32
Gambar 4.8	Hubungan antara log permitivitas relatif terhadap log frekuensi pada sampel KNN dan KNLN dengan frekuensi 0,1 Hz – 3,2 MHz.....	33
Gambar 4.9	Kebergantungan faktor disipasi (a) KNN dan (b) KNLN mulai dari frekuensi 0,1 Hz - 3,2 MHz	35

Gambar 4.10	Konduktivitas dielektrik ϵ_{ac} pada sampel (a) KNN dan (b) KNLN mulai dari frekuensi 0,1 Hz – 3,2 MHz.....	36
Gambar 4.11	Faktor ($Q \times f$) pada sampel (a) KNN dan (b) KNLN mulai dari frekuensi 0,1 Hz – 3,02 MHz..	37
Gambar 4.12	Hubungan antara temperatur, frekuensi, dan permitivitas relatif pada frekuensi yang berbeda dari sampel KNN.....	38
Gambar 4.13	Hubungan antara temperatur, frekuensi, dan permitivitas relatif pada frekuensi yang berbeda dari sampel KNLN	39

DAFTAR TABEL

Tabel 4.1	Parameter kecocokan hasil <i>refinement</i> serta informasi dan <i>view output</i> dari pelet KNN dan KNLN.....	29
Tabel 4.2	Hasil pengukuran densitas KNN excess 1 (2% mol K, 8% mol Na) dan KNLN (2% mol K, 8% mol Na, 8% mol Li) bentuk pelet.....	30
Tabel 4.3	Temperatur Curie (T_c) pada sampel KNN dan KNLN.....	39

DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran A	Data Unsur-unsur	47
Lampiran B	Data Jari-jari Ion (Å)	47
Lampiran C	Hasil Analisa Kualitatif dengan menggunakan <i>Software Match!</i>	48
Lampiran D	Data COD (<i>Crystallography Open Database</i>) Sampel KNN	50

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Sifat feroelektrik dan piezoelektrik pada material dielektrik banyak diaplikasikan dalam kemajuan teknologi. Material yang memiliki sifat feroelektrik dan piezoelektrik ini juga telah banyak menyita perhatian dalam dunia penelitian karena sifat yang dimilikinya. Material dielektrik dengan sifat feroelektrik dan piezoelektrik ini memiliki temperatur Curie yang berkisar pada daerah 250-400°C dengan d_{33} berkisar pada daerah 400-500 pC/N sehingga banyak digunakan dalam aplikasi elektronik seperti aktuator, sensor, transduser, serta perangkat permukaan gelombang akustik (Saito et al., 2004).

Berdasarkan penelitian Ren dkk (2009) diketahui bahwa material piezoelektrik dengan konstanta dielektrik yang unggul adalah PbZrTiO_3 (PZT). Tetapi, material ini memiliki dampak negatif bagi lingkungan dan kesehatan karena toksisitas dari oksida timbal selama proses preparasi. Karena sifatnya yang tidak ramah lingkungan, maka harus digantikan dengan material yang lebih ramah lingkungan. Oleh karena itu, dilakukan penelitian untuk menggantikan bahan timbal tersebut, namun tetap memiliki keunggulan yang baik dan setara dengan PZT.

Agar dihasilkan material piezoelektrik yang lebih ramah lingkungan dan tidak berbahaya bagi kesehatan, maka keramik mulai dipelajari secara intensif terutama mengenai alkali niobat. Pada penelitian Chen dkk (2013) menerangkan bahwa material yang memiliki sifat seperti PZT dan lebih ramah lingkungan yang telah dikembangkan pada saat ini adalah material $(\text{K}, \text{Na})\text{NbO}_3$ disingkat KNN yang bebas timbal.

Material KNN ini memiliki struktur perovskite dengan rumus utama ABO_3 . A^+ dan B^{5+} dapat disubstitusi dengan kation-kation yang tetap dapat mempertahankan struktur ABO_3 . Penelitian mengenai material KNN telah dilakukan sebelumnya oleh Ersya Desmelinda dan Amalia Ma'rifatul Maghfiroh. Oleh

karena itu, perlu dilakukan studi lanjut mengenai pengaruh penambahan Litium (Li) pada material berbasis KNN sebagai upaya untuk mendapatkan material feroelektrik yang lebih tangguh dan ramah lingkungan dengan struktur perovskite ABO_3 dengan $A = K, Na, Li$ dan $B = Nb$ menggunakan metode reaksi padat serta mengetahui perbandingan sifat listrik yang dihasilkan antara material KNN dan $(K, Na, Li)NbO_3$ disingkat KNLN.

1.2 Rumusan Permasalahan

Rumusan masalah yang akan dibahas pada penelitian ini adalah bagaimana pengaruh penambahan Litium terhadap struktur material perovskite fasa tunggal ABO_3 dengan $A = K, Na$ dan $B = Nb$ yang disintesis dengan menggunakan metode reaksi padat, serta bagaimana sifat listrik material perovskite fasa tunggal ABO_3 dengan $A = K, Na, Li$ dan $B = Nb$ serta $A = K, Na$ dan $B = Nb$ pada temperatur ruang yang disintesis menggunakan metode reaksi padat.

1.3 Batasan Masalah

Batasan masalah pada penelitian ini yaitu unsur yang ditambahkan pada penelitian ini adalah unsur Litium (Li) serta analisa yang dilakukan hanya mengenai struktur dan sifat listrik dari material perovskite fasa tunggal ABO_3 dengan $A = K, Na, Li$ dan $B = Nb$ serta $A = K, Na$ dan $B = Nb$ serta sifat listrik yang diukur hanya pada temperatur ruang saja.

1.4 Tujuan Penelitian

Tujuan dari dilakukannya penelitian ini yaitu untuk mengetahui pengaruh penambahan Litium (Li) terhadap struktur material perovskite fasa tunggal ABO_3 dengan $A = K, Na$ dan $B = Nb$ yang disintesis dengan menggunakan metode reaksi padat, serta menganalisa sifat listrik material perovskite fasa tunggal ABO_3 dengan $A = K, Na, Li$ dan $B = Nb$ serta $A = K, Na$ dan $B = Nb$ pada temperatur ruang yang disintesis menggunakan metode reaksi.

1.5 Manfaat Penelitian

Hasil dari penelitian ini diharapkan dapat digunakan sebagai material alternatif yang ramah lingkungan bagi dunia industri elektronik sehingga dapat dimanfaatkan secara nyata dalam kehidupan.

1.6 Sistematika Penulisan

Penulisan Tugas akhir ini terdiri dari abstrak yang berisi gambaran umum dari penelitian ini. Bab I pendahuluan yang memuat latar belakang, perumusan masalah, tujuan penelitian, manfaat penelitian, serta sistematika penulisan. Bab II tinjauan pustaka berisi tentang dasar-dasar teori yang digunakan sebagai acuan dari penelitian, Bab III metodologi penelitian, Bab IV hasil penelitian dan pembahasannya, dan Bab V kesimpulan dan saran.

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Feroelektrik

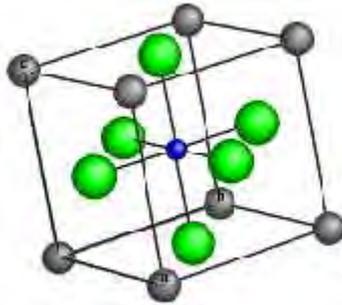
Feroelektrik merupakan jenis material dielektrik yang menunjukkan polarisasi spontan. Polarisasi spontan adalah polarisasi yang terjadi ketika tidak adanya medan listrik. Polarisasi spontan merupakan efek dari penempatan ion Ba^{2+} , Ti^{4+} , dan O^{2-} dalam sel unit. Polarisasi spontan material feroelektrik merupakan hasil dari interaksi antara dipol-dipol magnet yang berdekatan dengan semua arah dipol yang sama. Contoh material feroelektrik yaitu kalium niobat (KNbO_3), kalium dihidrogen fosfat (KH_2PO_4), dan timbal zirkonat-titanat ($\text{Pb}[\text{ZrO}_3, \text{TiO}_3]$). Feroelektrik memiliki konstanta dielektrik yang tinggi jika diaplikasikan pada frekuensi medan yang relatif rendah, contohnya pada temperatur ruang, ϵ_r untuk barium titanat sebesar 5000. Oleh karena itu, kapasitor dibuat dari material dielektrik dengan sifat feroelektrik (Callister, 2008).

2.2 Struktur Perovskite

Material berbasis niobat diketahui memiliki struktur perovskite. Perovskite merupakan nama dari kristal dengan rumus umum ABO_3 . Model struktur perovskite standar berbasis kubik dengan atom oksigen berada di setiap muka kubus, atom A berada di setiap pojok kubus dan atom B berada di pusat kubus. Namun, material berstruktur perovskite dapat memiliki basis kisi kubik, tetragonal, orthorombik dan sebagainya (Suasmoro, 2000).

Bahan feroelektrik memiliki struktur perovskite. Material dengan struktur perovskite dapat menyimpan muatan listrik dengan baik akibat terbentuknya polarisasi pada bahan. Mekanisme terbentuknya polarisasi dapat dijelaskan akibat adanya transisi fasa kubik menjadi tetragonal pada temperatur tertentu yang dikenal dengan temperatur Curie. Sehingga dengan pemberian medan listrik yang relatif kecil saja, akan terjadi pergeseran kation di pusat kisi akibat interaksi coulomb sehingga

terjadi polarisasi pada bahan. Polarisasi akan menimbulkan distorsi Kristal yang membuat material tersebut bersifat dipol sehingga pada skala makroskopis terjadi pemisahan muatan positif dan negatif yang menyebabkan material bersifat dielektrik. Karakteristik dielektrik material perovskite menjadikan material tersebut berpotensi diaplikasikan secara luas seperti pada kapasitor, termistor, peralatan elektro-optik, *non-volatile* DRAM (*dynamic random access memory*), aplikasi ultrasonik, *transducer* dan sebagainya (Suasmoro, 2000).

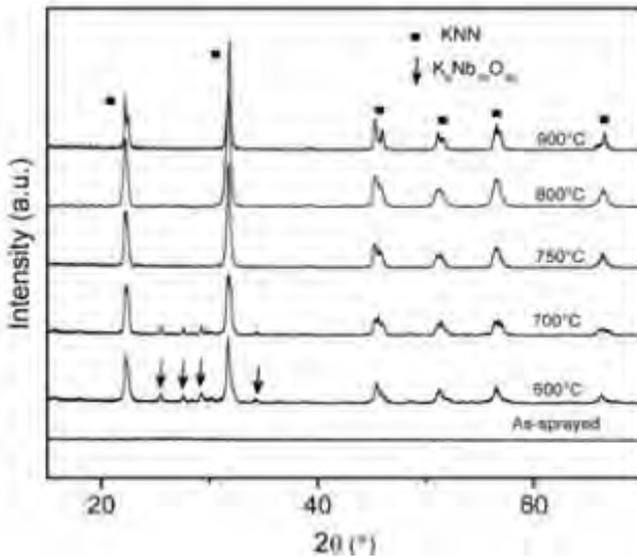


Gambar 2.1 Unit sel dari perovskite kubik ideal ABO_3 (Sumber: López-Juárez et al., 2011).

2.3 Material KNN

Penelitian tentang $(K,Na)NbO_3$ disingkat KNN telah banyak dilakukan oleh para ilmuwan. Berdasarkan hasil laporan diketahui bahwa bahan KNN memiliki sifat feroelektrik yang baik. Dari penelitian yang telah dilakukan oleh Saito dkk (2004) menyatakan bahwa komposisi dengan nilai d_{31} yang tinggi didapatkan pada fase antara orthorombik dan tetragonal, yaitu pada alkali-niobat dengan sistem perovskite. Berdasarkan hasil yang telah didapatkan oleh Saito dkk (2014), memotivasi para peneliti lain untuk berusaha mengembangkan dengan berbagai inovasi. Dalam sebuah artikel lain yang ditulis oleh Weon-Pil Tai (2010) menyatakan bahwa KNN mempunyai nilai $d_{33}= 80$ pC/N dan $k_p= 36\%$. $(K,Na)NbO_3$ merupakan komposisi khusus pada

complete solid solution dari antiferoelektrik NaNbO_3 dan feroelektrik KNbO_3 , yakni 50:50. Komposisi ini mendekati MPB (*morphotropic phase boundary*) antara dua fase orthorombik yang menyerupai PZT (López-Juárez et al., 2011).



Gambar 2.2 Pola XRD serbuk KNN yang dikalsinasi pada suhu yang berbeda (Sumber: López-Juárez et al., 2011).

Penelitian $(\text{K},\text{Na})\text{NbO}_3$ yang banyak dilakukan yaitu melalui senyawa yang dibuat dari karbonatnya meliputi K_2CO_3 , Na_2CO_3 dan Nb_2O_5 . $\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3$ pada suhu ruang memiliki struktur orthorombik perovskite dengan parameter kisi $a=5,635 \text{ \AA}$, $b=3,938 \text{ \AA}$ dan $c=5,667 \text{ \AA}$, sedangkan KNaNbO_3 dengan struktur yang sama memiliki parameter kisi $a=5,697 \text{ \AA}$, $b=3,971 \text{ \AA}$ dan $c=5,721 \text{ \AA}$ (Cho et al., 2012).

2.4 Karakterisasi Dielektrik dan Konduktivitas Keramik

Bahan dielektrik adalah bahan yang tidak memiliki muatan bebas yang berpengaruh penting terhadap sifat kelistrikan bahan tersebut (Utomo, 2013). Salah satu contoh bahan dielektrik adalah KNN. $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ (disingkat KNN) memiliki dua puncak dielektrik yang berhubungan dengan transisi fasa orthorombik-tetragonal pada suhu sekitar $200^{\circ}C$ dan transisi tetragonal-kubik pada suhu sekitar $400^{\circ}C$. Sifat listrik material dielektrik KNN sebagai fungsi frekuensi dapat diperoleh dengan menggunakan *impedance analyzer* ataupun LCR meter. Parameter berupa nilai kapasitansi yang diperoleh dari hasil pengukuran listrik dapat digunakan untuk menentukan nilai permitivitas relatif atau konstanta dielektrik (k) material pada berbagai frekuensi dengan menggunakan persamaan berikut:

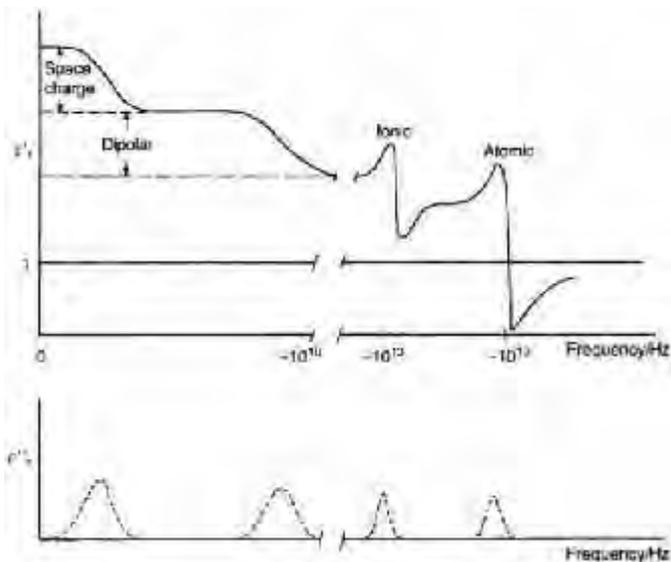
$$k = \frac{C}{\epsilon_0 A} \quad (2.1)$$

dengan C adalah nilai kapasitansi, d adalah tebal material dielektrik yang memisahkan dua plat sejajar atau elektroda, ϵ_0 adalah permitivitas ruang hampa dan A adalah luas penampang material dielektrik. Selain frekuensi, konstanta dielektrik juga dipengaruhi oleh suhu yang mengikuti hukum Curie-Weiss:

$$k = \frac{A}{T - \theta_C} \quad (2.2)$$

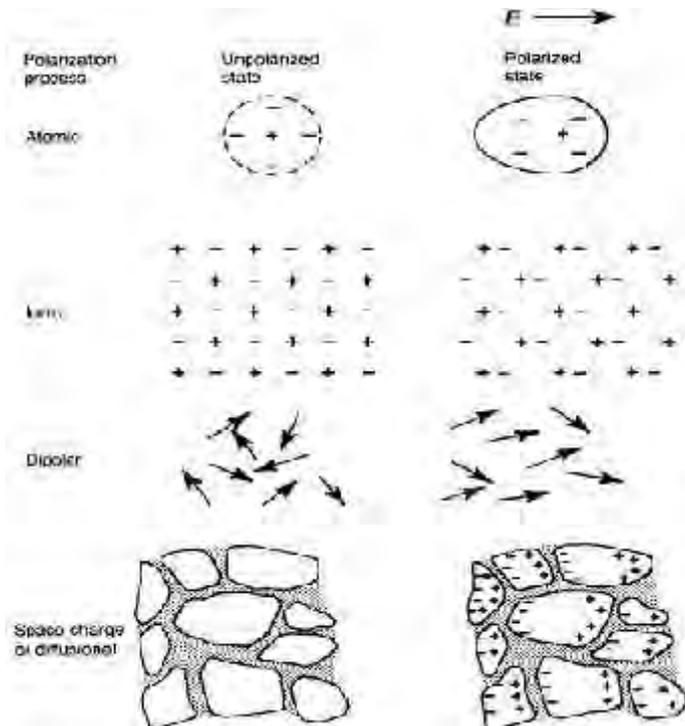
dimana A adalah tetapan yang bergantung pada jenis material dan ϵ adalah temperatur yang mendekati temperatur curie T_C . Berdasarkan persamaan 2.2, konstanta dielektrik mengalami peningkatan seiring bertambahnya temperatur dan mencapai maksimum ketika T mendekati ϵ . Hal ini terkait dengan polarisasi maksimum yang terjadi di sekitar temperatur kritis tersebut akibat adanya perubahan fasa (Suasmoro, 2000).

Polarisasi terjadi pada material keramik ketika suatu medan listrik mengenai suatu material. Atom-atom yang ada pada keramik akan bergeser sesuai dengan arah medan listrik yang diberikan. Muatan yang bermuatan negatif cenderung bergerak berlawanan arah dengan medan listrik dan begitu juga sebaliknya. Proses pergeseran atom-atom ini menghasilkan dipol-dipol yang dikenal dengan polarisasi. Polarisasi pada material dielektrik dapat dibagi menurut frekuensi gelombang listrik yang diberikan pada material, antara lain polarisasi atomik, polarisasi dipolar, dan polarisasi muatan ruang. Gambar 2.3 menunjukkan perubahan permitivitas suatu material dielektrik jika diberikan frekuensi yang berbeda-beda. Gambar atas menunjukkan polarisasi yang terjadi ketika frekuensi medan listrik berbeda diberikan. Gambar bawah menunjukkan puncak Debye pada berbagai frekuensi untuk berbagai jenis polarisasi.



Gambar 2.3 Perubahan nilai permitivitas relatif (real) dan permitivitas imajiner terhadap frekuensi (Sumber: Moulson, A.J., 2002).

Polarisasi dari atom atau ion dalam satu unit sel dapat dibagi menjadi beberapa bagian. Pertama, polarisasi atomik atau dikenal dengan polarisasi elektron merupakan perubahan pusat gravitasi dari awan elektron terhadap inti dalam medan listrik. Kedua, polarisasi ionik merupakan perpindahan dari suatu ion terhadap posisi kesetimbangannya baik ion negatif maupun ion positif. Ketiga, polarisasi dipolar merupakan perubahan orientasi dari dipol permanen karena adanya medan listrik. Dan yang keempat adalah polarisasi *space charge* merupakan polarisasi yang berasal dari muatan yang bergerak diakibatkan karena terhalangi oleh batas butir (Moulson, A.J., 2003).



Gambar 2.4 Jenis-jenis mekanisme polarisasi (Sumber: Moulson, A.J., 2002)

Faktor kehilangan atau faktor disipasi (*loss factor*) merupakan kriteria yang penting dan berguna pada dielektrik yang digunakan sebagai material insulator. *Loss factor* merupakan sifat material yang mendeskripsikan sebaik apa material tersebut dapat menyerap energi pada gelombang mikro. Jika material memiliki faktor disipasi yang tinggi, maka material tersebut dapat menyerap energi dengan cepat sehingga lebih cepat panas. Apabila sebuah material memiliki faktor disipasi yang rendah, penyerapan energinya berjalan lambat sehingga panas yang dihasilkan berjalan lambat pula. Secara umum, material keramik memiliki faktor disipasi yang rendah sehingga penyerapan energinya berjalan lambat dan bukan penghantar panas yang baik. *Loss factor* pada material dielektrik ditunjukkan dari persamaan (2.3) sebagai berikut:

$$\tan \delta = \epsilon'' / \epsilon' \quad (2.3)$$

Apabila diberikan medan listrik AC pada bahan dielektrik, maka energi yang hilang (*loss energy*) pada bahan dielektrik tersebut merupakan hasil perkalian antara konstanta dielektrik dan tangen dari δ . Energi yang hilang akan diubah menjadi panas pada bahan dielektrik tersebut. Sering digunakan invers dari $\tan \delta$, $Q = 1/\tan \delta$, disebut dengan factor Q (Kingery, 1976).

Nilai konduktivitas suatu material bergantung dari sifat material tersebut. Semakin konduktif suatu material, maka nilai konduktivitas dari material tersebut semakin tinggi. Pada material dielektrik, nilai konduktivitasnya semakin rendah. Hal ini disebabkan karena material dielektrik bersifat resistif atau menghambat. Berikut merupakan persamaan (2.4) yang digunakan untuk menghitung besarnya nilai konduktivitas dielektrik pada suatu material (Moulson, A.J., 2003):

$$\sigma_{d.e.} = \omega \epsilon'' \epsilon_T \tan \delta \quad (2.4)$$

Keterangan : $\epsilon = 2 f$
 ϵ_0 = permitivitas pada ruang hampa
 ϵ_r = permitivitas relatif

BAB III METODOLOGI

3.1 Peralatan dan Bahan

Peralatan yang digunakan pada penelitian ini adalah spatula, gelas beaker, timbangan digital *O'haus* PA214, *laboratory planetary mill* "Pulverisette 5" (Fritsch GmbH), evaporator rotatif "VV Micro" (Heidolph), furnace "Carbolite" tipe RHF1400 (Barnstead), *crucible*, batu tahan api, plat alumina, cetakan pelet diameter 13 mm, dan *impedance analyzer* "Solartron". Untuk bahan yang digunakan dalam penelitian ini terdiri dari serbuk K_2CO_3 , Na_2CO_3 , Li_2CO_3 , dan Nb_2O_5 (*merck*), alkohol 96%, aquades, serta *silver conductive paste*.

3.2 Prosedur Pembuatan

3.2.1 Sintesis (K, Na)NbO₃

Sintesis (K, Na)NbO₃ diawali dengan menimbang serbuk K_2CO_3 , Na_2CO_3 , dan Nb_2O_5 (*merck*) sesuai dengan takaran yang telah dihitung berdasarkan perhitungan stokiometri. Kemudian, dilakukan pencampuran ketiga serbuk tersebut dengan alkohol (96%) dalam *planetary milling* yang dilengkapi *zirconia balls* selama 1 jam dengan kecepatan putaran 150 *rpm*. Setelah dicampur, bahan ini kemudian dimasukkan ke dalam evaporator rotatif "VV Micro" (Heidolph) dengan tujuan agar alkohol yang terdapat di dalam bahan menguap sehingga didapatkan serbuk KNN. Selanjutnya, dilakukan kalsinasi. Apabila bahan yang telah disintesis tersebut memiliki fasa tunggal, maka dibentuk pelet kemudian disinter. Tahap selanjutnya dilakukan preparasi untuk pengujian listrik dan dilanjutkan pengujian SEM.

3.2.2 Sintesis (K, Na, Li)NbO₃

Langkah awal untuk mensintesis (K, Na, Li)NbO₃ yaitu menimbang masing-masing serbuk K_2CO_3 , Na_2CO_3 , Li_2CO_3 dan Nb_2O_5 (*merck*) sesuai dengan takaran yang sudah dihitung dengan menggunakan perhitungan stokiometri. Setelah itu dilakukan pencampur keempat serbuk dengan alkohol (96%) dalam

planetary milling yang dilengkapi *zirconia balls* selama 1 jam dengan kecepatan putaran 150 rpm. Setelah dicampur, bahan ini kemudian dimasukkan ke dalam evaporator rotatif “VV Micro” (Heidolph) dengan tujuan agar alkohol yang terdapat di dalam bahan menguap sehingga didapatkan serbuk KNLN. Setelah itu dilakukan kalsinasi. Apabila sudah *single phase*, maka dibuat pelet kemudian disinter. Selanjutnya dilakukan preparasi untuk pengujian listrik dan pengujian SEM..

3.3 Karakterisasi Material

Karakterisasi dan analisa yang digunakan pada penelitian ini meliputi:

1. Analisa Termal

Analisa termal dilakukan melalui uji TGA-DTA untuk mengetahui suhu kalsinasi dari material yang telah dibuat. Hasil dari pengujian ini berupa grafik perubahan massa terhadap temperatur sehingga dapat diketahui pada temperatur berapa bahan tersebut memiliki massa yang konstan.

2. Analisa Fasa dan Parameter Kisi

Karakterisasi dengan XRD dilakukan setelah bahan dicampur dan dipanaskan dalam *furnace*. Uji XRD ini dilakukan untuk mengetahui apakah fasa yang diinginkan telah terbentuk. Pola yang dihasilkan berupa perbandingan antara intensitas dan sudut difraksi. Dari hasil karakterisasi ini, data yang telah didapatkan kemudian dianalisa dengan menggunakan *software* untuk dicocokkan dengan *database* yang telah ada (*Match!*). Dari data XRD juga dapat diperoleh parameter kisi bahan yang dilakukan melalui penghalusan pola terhitung dan terukur menggunakan program *Rietica* yang berbasis metode Rietveld.

3. Pengukuran Densitas

Pengukuran densitas dilakukan setelah sampel dipelet dan disinter. Pengukuran densitas ini dilakukan dengan menggunakan metode Archimedes yaitu dengan

menimbang massa kering, massa basah, dan massa di dalam air dari pelet sampel. Nilai densitas sampel dihitung dengan persamaan:

$$\rho = \frac{m_k}{m_b - m_a} \times \rho_a \quad (3.1)$$

dengan m_k adalah massa sampel saat kering, m_b adalah massa sampel saat basah, m_a adalah massa sampel saat berada di dalam air dan ρ_a adalah massa jenis air (1 gr/cc).

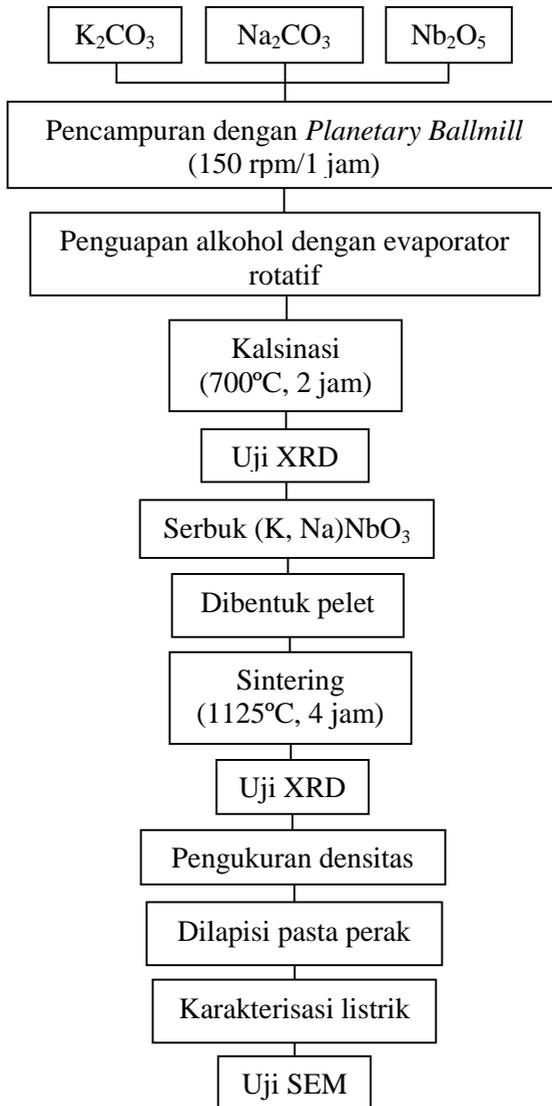
4. SEM

Uji SEM dilakukan untuk mengetahui morfologi (bentuk) dan memperkirakan ukuran partikel. Pengujian ini dilakukan setelah melakukan preparasi dengan cara menghaluskan permukaan sampel yang telah dipelet kemudian dietsa pada suhu 1025°C selama 10 menit.

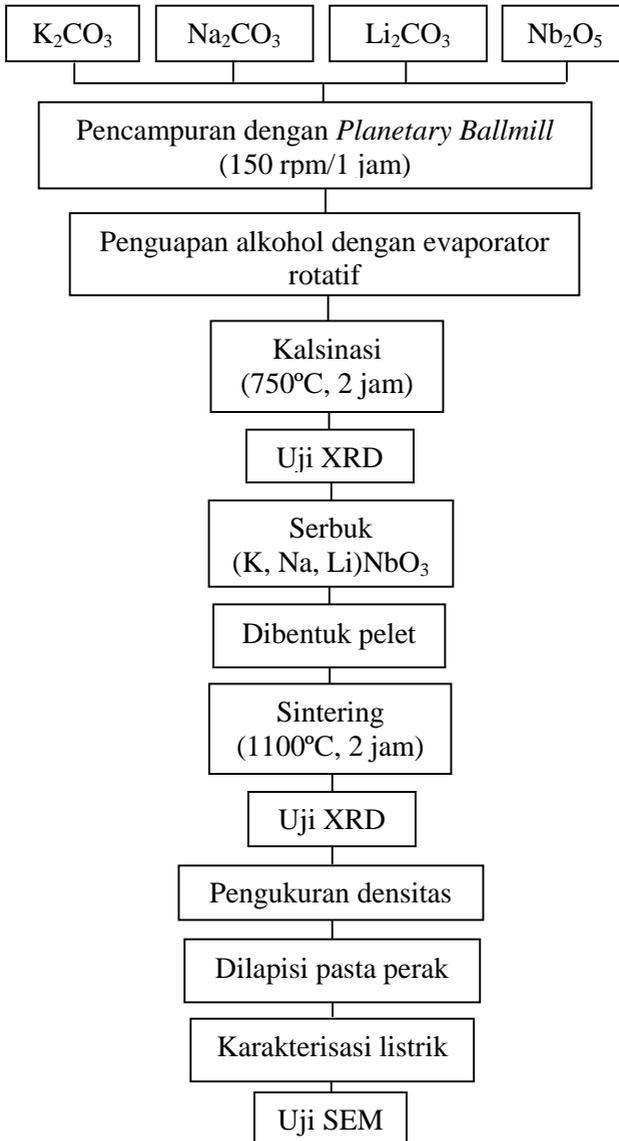
5. Karakterisasi Listrik

Karakterisasi listrik dilakukan dengan menggunakan alat *Impedance Analyzer* “Solartron”. Persiapan sampel sebelum dilakukan karakterisasi listrik yaitu pelapisan sampel yang telah dibentuk pelet menggunakan pasta perak sebagai elektroda. Kemudian, setelah pelet dilapisi pasta perak dipanaskan 900°C selama 15 menit untuk menguapkan koloid toluena yang digunakan sebagai pengencer pasta perak. Setelah itu, dipasang kawat dengan cara dilapisi pasta perak dan dipanasi kembali pada temperatur 500°C selama 15 menit. Kawat ini dipasang pada sampel yang berfungsi untuk menghubungkan sampel di dalam *furnace* dan *Impedance Analyzer* “Solartron”. Frekuensi yang digunakan yaitu dari rentang 0,1 Hz sampai 3,2 MHz. Karakterisasi listrik ini dilakukan untuk mengetahui temperatur Curie (T_c), daerah polarisasi muatan ruang dan polarisasi dipol, *dielectric loss* atau faktor disipasi, *quality factor*, dan konduktivitas dielektrik dari suatu material.

3.4 Diagram Alir



Gambar 3.1 Diagram alir sintesis $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$.



Gambar 3.2 Diagram alir sintesis $K_{0,5}Na_{0,4}Li_{0,1}NbO_3$.

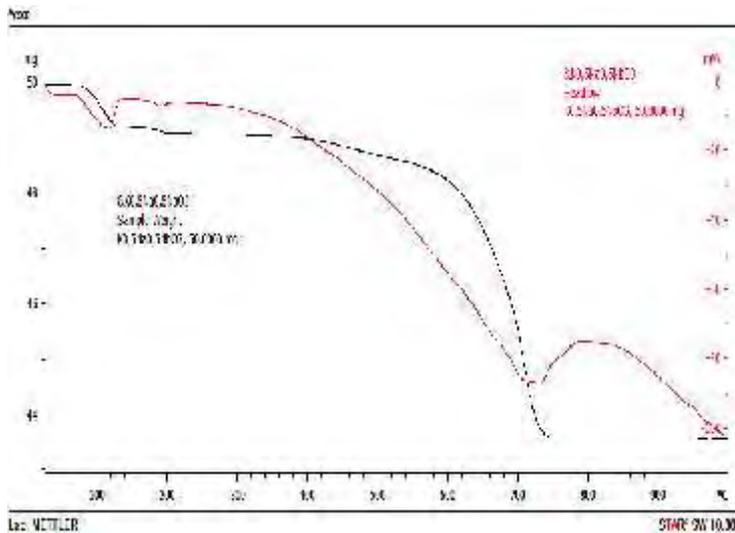
“Halaman ini sengaja dikosongkan”

BAB IV

ANALISA DATA DAN PEMBAHASAN

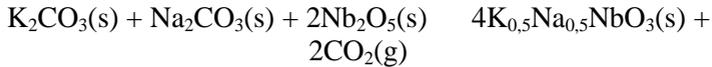
4.1 Proses Sintesis KNN dan KNLN

Proses sintesis KNN ($K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$) dilakukan dengan menggunakan metode reaksi padat. Digunakan metode reaksi padat karena bahan dasar yang direaksikan berupa serbuk K_2CO_3 , Na_2CO_3 , dan Nb_2O_5 . Awalnya serbuk K_2CO_3 , Na_2CO_3 , dan Nb_2O_5 ditimbang berdasarkan perhitungan stokiometri. Setelah ketiga serbuk tersebut ditimbang, dicampurkan di dalam *Planetary Milling* yang dilengkapi bola zirkonia dengan medium alkohol 96% selama 1 jam dengan kecepatan 150 rpm. Hasil dari pencampuran ketiga serbuk tersebut masih mengandung alkohol. Untuk menghilangkan alkohol, maka hasil penacampuran dari ketiga serbuk tersebut dikeringkan dengan menggunakan evaporator rotatif. Fungsi dari evaporator rotatif yaitu untuk menguapkan alkohol yang masih terkandung di dalam material KNN yang disintesis dengan tujuan mendapatkan serbuk KNN dengan ukuran butir yang sama. Tahap selanjutnya, dilakukan analisa termal (TGA-DTA) dengan tujuan untuk mengetahui terjadinya reaksi yang diindikasikan oleh adanya pengurangan massa serta fenomena secara endotermik maupun eksotermik pada rentang temperatur tertentu sehingga dapat diketahui temperatur kalsinasinya. Kalsinasi ini diperlukan sebagai tahap awal persiapan serbuk untuk diproses lebih lanjut, mendapatkan ukuran partikel yang optimum, serta membentuk fasa kristal yang diinginkan. Gambar 4.1 merupakan grafik dari analisa termal berupa pengujian TGA-DTA pada campuran serbuk K_2CO_3 , Na_2CO_3 , dan Nb_2O_5 yaitu sebagai berikut:



Gambar 4.1 Kurva hasil pengujian TGA-DTA 50 mg KNN (Maghfiroh, A.M., 2015).

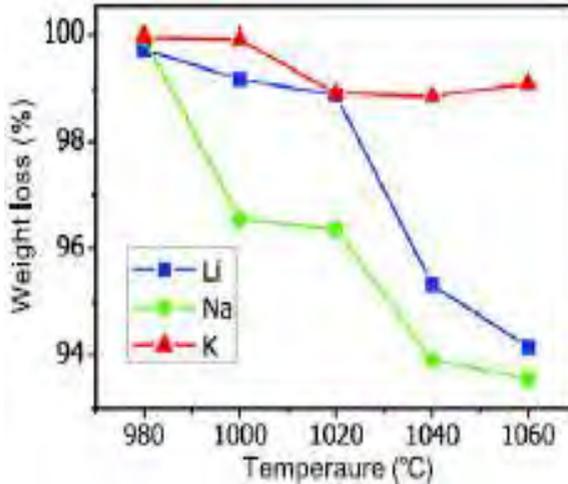
Berdasarkan hasil analisa TGA-DTA yang ditunjukkan pada Gambar 4.1 diketahui bahwa campuran serbuk K_2CO_3 , Na_2CO_3 , dan Nb_2O_5 yang telah disintesis mengalami penurunan massa pada temperatur $100^\circ C$ dan $650^\circ C$ - $750^\circ C$. Pengurangan massa yang terjadi pada temperatur sekitar $100^\circ C$ mengindikasikan terjadinya penguapan air yang masih terkandung di dalam campuran serbuk karena proses pengeringan campuran serbuk yang belum sepenuhnya kering. Sedangkan, pada saat temperatur $650^\circ C$ - $750^\circ C$ campuran serbuk mengalami kehilangan massa sebesar 11,56%. Pada temperatur lebih dari $750^\circ C$ tidak terjadi pengurangan massa. Pengurangan massa sebesar 11,56% pada campuran serbuk yang terjadi pada temperatur $650^\circ C$ - $750^\circ C$ diduga karena karbon dioksida (CO_2) terlepas dari karbonat saat reaksi pembentukan KNN dengan persamaan reaksi sebagai berikut:



Dari reaksi pembentukan KNN di atas, diketahui bahwa gas karbon dioksida (CO_2) dihasilkan dari karbonat dengan bahan dasar karbonat berupa padatan (serbuk). Karbon dioksida yang dilepaskan ke udara tidak dapat diukur massanya dan dianggap sebagai massa yang hilang. Dari hasil pengujian analisa termal yang telah dilakukan, dipastikan bahwa pada temperatur 650°C sampai 750°C terjadi reaksi pembentukan material KNN. Setelah dilakukan analisa termal pada campuran serbuk K_2CO_3 , Na_2CO_3 , dan Nb_2O_5 , kemudian campuran serbuk tersebut dikalsinasi pada suhu 700°C dengan waktu tahan 2 jam yang diyakini dapat membentuk reaksi KNN (Maghfiroh, A.M., 2015). Tahap selanjutnya yaitu dilakukan pengujian XRD pada serbuk campuran yang telah dikalsinasi. Pengujian XRD ini dilakukan dengan tujuan untuk mengetahui apakah sudah terbentuk fasa yang diinginkan pada serbuk KNN. Sudut yang digunakan pada pengujian XRD serbuk KNN adalah sudut pendek mulai dari 20° hingga 70° .

Hampir sama dengan proses sintesis KNN, proses sintesis KNLN ($\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,4}\text{Li}_{0,1}\text{NbO}_3$) dilakukan dengan metode reaksi padat. Awalnya serbuk K_2CO_3 , Na_2CO_3 , Li_2CO_3 dan Nb_2O_5 ditimbang berdasarkan perhitungan stokiometri. Setelah ke-empat serbuk tersebut ditimbang, dicampurkan di dalam *Planetary Milling* yang dilengkapi bola zirkonia dengan medium alkohol 96% selama 1 jam dengan kecepatan 150 rpm. Hasil dari pencampuran ke-empat serbuk tersebut masih mengandung alkohol. Untuk menghilangkan alkohol, maka hasil penacampuran dari ke-empat serbuk tersebut dikeringkan dengan menggunakan evaporator rotatif. Tujuannya yaitu untuk menghilangkan alkohol dan mendapatkan serbuk KNLN dengan ukuran butir yang sama. Setelah itu, serbuk KNLN dikalsinasi pada suhu 750°C selama 2 jam (Jeong et al., 2014). Serbuk KNLN yang telah dikalsinasi, kemudian dilakukan pengujian

XRD. Sudut yang digunakan pada pengujian XRD serbuk KNLN yaitu sama seperti KNN.

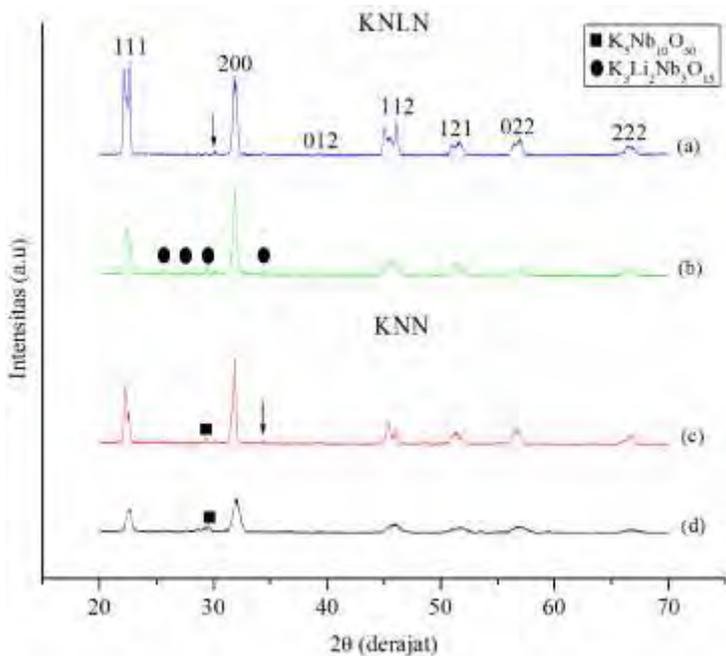


Gambar 4.2 Volatilitas beberapa unsur alkali sebagai fungsi temperatur (Wang, 2012).

Berdasarkan penelitian yang dilakukan oleh Wang dkk (2012) diketahui bahwa volatilitas dari beberapa unsur alkali berbeda-beda terhadap fungsi temperatur. Volatilitas merupakan kecenderungan suatu material untuk menguap sehingga terjadi pengurangan massa pada material tersebut. Urutan volatilitas dari beberapa unsur alkali mulai dari yang terbesar hingga terkecil yaitu Natrium (Na), Litium (Li), dan Kalium (K). Pada penelitian sebelumnya yang dilakukan oleh Nur Amaliya (2014) dilakukan penambahan mol (*excess*) pada unsur K dan Na berturut-turut yaitu sebesar 2% dan 8%. Kemudian untuk unsur Li dilakukan penambahan mol sebesar 8% karena unsur Li memiliki volatilitas yang mendekati unsur Na.

Pada penelitian ini, KNN yang disintesis adalah KNN dengan *excess* 2% mol K dan 8% mol Na. Untuk KNLN yang disintesis yaitu KNLN dengan *excess* 2% mol K, 8% mol Na, dan

8% mol Li. Setelah dilakukan sintesis dan kalsinasi pada KNN dan KNLN, kemudian dilakukan pengujian XRD pada kedua material tersebut. Pada pengujian XRD ini, sampel yang diuji yaitu berupa serbuk yang telah dikalsinasi pada temperatur dan waktu penahanan tertentu.



Gambar 4.3 Hasil pola difraksi pada KNLN (a) pelet *excess* disinter 1100°C selama 2 jam; (b) serbuk *excess* dikalsinasi 750°C selama 2 jam, dengan *excess* (2% mol K, 8% mol Na, 8% mol Li); dan pada KNN (c) pelet *excess* disinter 1125°C selama 4 jam; (d) serbuk *excess* dikalsinasi 700°C selama 2 jam, dengan *excess* (2% mol K, 8% mol Na).

Dari pola hasil XRD yang didapatkan, kemudian dianalisa secara kualitatif dengan menggunakan *software Match!*. Analisa

secara kualitatif ini dilakukan untuk mengetahui apakah fasa pada KNN dan KNLN telah terbentuk. Diketahui bahwa telah terbentuk kristal KNN (*entry number*: 96-210-4386) dan KNLN (*entry number*: 96-210-4389) pada temperatur ruang. Berdasarkan Gambar 4.3, pada sampel KNN masih terdapat fasa $K_5Nb_{10}O_{30}$ yang teridentifikasi pada $2\theta = 29,57^\circ$ sedangkan pada sampel KNLN, masih terdapat sejumlah kecil fasa $K_3Li_2Nb_5O_{15}$ yang teridentifikasi pada $2\theta = 25,66^\circ; 27,60^\circ; 29,37^\circ; \text{ dan } 34,35^\circ$ (López-Juárez et al., 2011). Karena fasa pada KNN dan KNLN telah terbentuk, maka dibuatlah pelet KNN dan KNLN. Sebelum dibuat pelet, serbuk KNN dan KNLN yang telah dikalsinasi masing-masing ditimbang dengan massa 0,8 gram. Setelah itu, kedua serbuk yang telah ditimbang dikompaksi dengan tekanan sebesar 75 MPa sehingga terbentuk sebuah pelet. Pelet inilah yang nantinya akan disinter dan digunakan untuk uji densitas, uji SEM, dan uji listrik. Berdasarkan jurnal yang ditulis oleh Du dkk (2006) didapatkan informasi bahwa temperatur sinter yang digunakan untuk pelet KNN yaitu mulai dari temperatur 1100°C - 1120°C . Oleh karena itu, pada penelitian ini pelet KNN disinter pada temperatur 1125°C dengan waktu penahanan selama 4 jam. Sedangkan, pelet KNLN disinter pada temperatur 1100°C dengan waktu penahanan selama 2 jam (Zhen et al., 2006). Pelet KNN dan KNLN yang telah disinter, kemudian dilakukan uji XRD. Gambar 4.3 merupakan pola hasil XRD dari pelet KNN dan KNLN yang disinter pada temperatur 1125°C dan 1100°C dengan waktu penahanan berturut-turut yaitu 4 jam dan 2 jam. Berdasarkan Gambar 4.3 diketahui bahwa pelet KNN yang disinter pada temperatur 1125°C dengan lama penahanan 4 jam menghasilkan perovskite berstruktur ABO_3 dengan $A = K, Na$ dan $B = Nb$. Hal ini menunjukkan bahwa terjadi *solid solution* pada komposisi KNN yang diakibatkan adanya substitusi parsial pada ion situs A ($K_{0,5}Na_{0,5}$)⁺ dan ion situs B (Nb)⁵⁺. Hasil ini diperkuat karena pada dasarnya material berbasis niobat diketahui memiliki struktur perovskite (Suasmoro, 2000). Meskipun telah dilakukan sintering, masih terdapat fasa $K_5Nb_{10}O_{30}$ yang

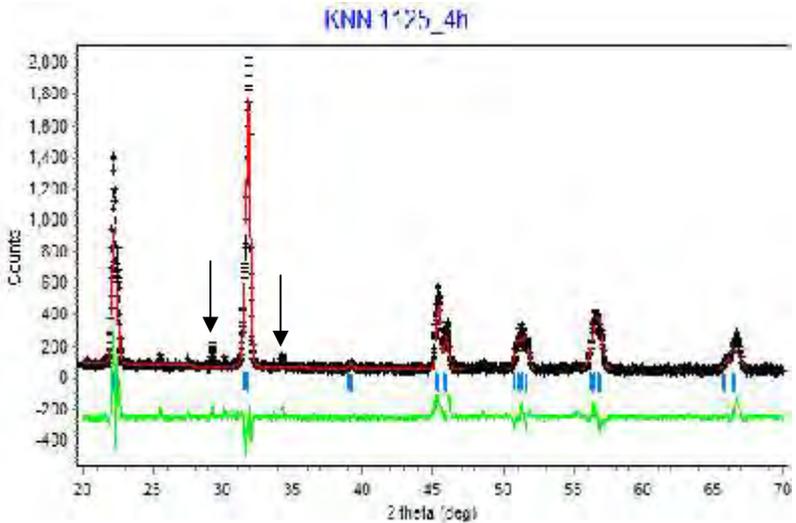
teridentifikasi pada $2\theta = 29,57^\circ$. Sedangkan, pada $2\theta = 34,23^\circ$ tidak teridentifikasi fasanya diduga fasa tersebut muncul karena adanya tambahan mol K dan Na yang belum sepenuhnya menguap dengan sempurna. Pelet KNLN yang disinter pada temperatur 1100°C dengan lama penahanan 2 jam juga menghasilkan perovskite berstruktur ABO_3 dengan $\text{A} = \text{K}, \text{Na}, \text{Li}$ dan $\text{B} = \text{Nb}$. Hal ini dikarenakan bahwa Li^+ berdifusi ke dalam kisi KNN yang ditandai dengan masuknya Li^+ ke dalam situs $(\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5})^+$ untuk membentuk *solid solution* yang lebih homogen. Hasil ini serupa dengan penelitian yang dilakukan sebelumnya oleh Rani dkk (2011). Meskipun telah dilakukan sintering, masih terdapat fasa yang tidak teridentifikasi pada $2\theta = 30,04^\circ$. Munculnya fasa tersebut diduga karena adanya penambahan mol pada K, Na, dan Li yang masih belum menguap dengan sempurna.

Selain dilakukan analisa secara kualitatif pada pelet hasil XRD, dilakukan pula analisa secara kuantitatif. Analisa secara kuantitatif ini dilakukan untuk mengetahui kebenaran dari data XRD yang telah diperoleh melalui teknik penghalusan (*refinement*). Analisa secara kuantitatif yang sering digunakan yaitu analisis Rietveld. Analisis Rietveld merupakan metode pencocokan pola difraksi terhitung (model) dengan pola difraksi terukur yang didasarkan pada data kristalografi yang sesuai yang berasal dari *database* ICSD (Pratapa, 2011). Selain *database* ICSD bisa juga digunakan *database* lain yang berasal dari *Crystallography Open Database* (COD) dengan data yang berekstensi cif (*.cif). Metode Rietveld ini digunakan untuk menghaluskan parameter kisi dari struktur kristal material dengan menggunakan perangkat lunak *Rietica*.

Refinement pada sampel KNN dilakukan dengan memasukkan model KNN yang didekati dengan struktur orthorombik (Am2) yang berasal dari COD. Sudut yang digunakan pada KNN sama dengan KNLN yaitu mulai dari 20° - 70° . Selain itu, parameter a, b, c, dan z juga disesuaikan dengan model yang digunakan. Sampel KNN ini diuji XRD pada

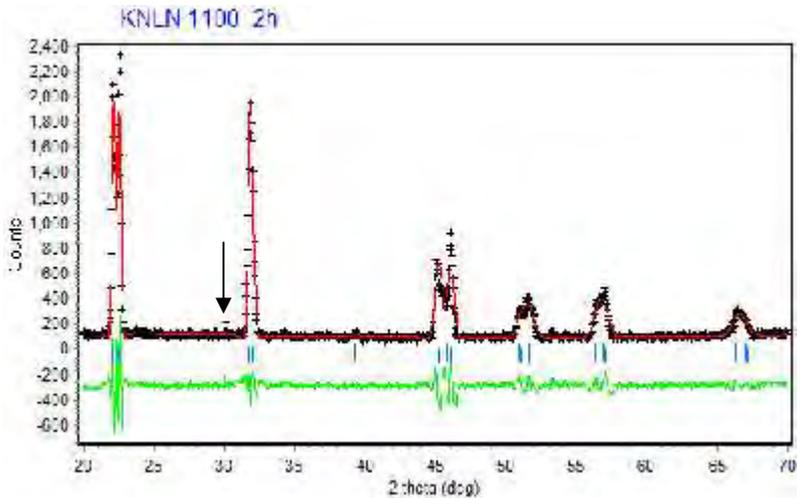
laboratorium Teknik Material dan Metalurgi ITS. Sehingga, parameter berupa *data step*, *zero*, *wavelength 1*, *wavelength 2*, U, V dan W harus diubah sesuai dengan parameter yang ditetapkan oleh laboratorium di Teknik Material dan Metalurgi ITS. Setelah semua parameter dimasukkan, kemudian buka pola difraksi sampel KNN dengan ekstensi data berupa *.xy (merupakan data sampel KNN). Pada sampel KNLN, *refinement* dilakukan dengan memasukkan model KNLN yang didekati dengan model KNN dengan struktur tetragonal (P4mm) yang berasal dari COD. *Refinement* pada sampel KNLN dilakukan dengan menggunakan metode Le Bail. Pada metode Le Bail, parameter yang diubah hanyalah parameter a, b, c, dan z saja. Setelah semua parameter dimasukkan, kemudian buka pola difraksi sampel KNLN dengan ekstensi data berupa *.xy (merupakan data sampel KNLN). Tahap selanjutnya yaitu dilakukan *refinement* antara model yang dibuat terhadap data terhitung (disebut data). Di dalam *refinement* ini, model dicocokkan (*fitting*) terhadap data. Hasil *refinement* yang baik yaitu model hampir mendekati data. Secara umum, pencocokan (*fitting*) dengan metode Rietveld bisa dinyatakan selesai apabila memenuhi dua kriteria utama. Pertama, plot selisih antara pola terhitung (data) dan pola terukur (model) memiliki fluktuasi yang relatif kecil yang hanya dapat diamati secara visual, tidak dapat dikuantifikasi (Pratapa, 2011). Kedua, nilai GoF kurang dari 4 (Kisi, 1994).

Dari hasil *refinement* sampel KNN (Gambar 4.4) diketahui bahwa pada sudut 2θ yaitu sekitar 22° , 32° , dan 46° terdapat puncak data (tanda "+") lebih tinggi dibandingkan dengan model (garis merah terhubung). Sehingga antara data dengan model belum sepenuhnya cocok. Akibatnya timbul plot selisih antara data dan model yang ditunjukkan oleh garis yang berwarna hijau dan garis yang berwarna biru menunjukkan adanya puncak yang terdeteksi oleh *software Rietica* yang didapatkan dari model. Hal inilah yang menyebabkan nilai GoF yang dihasilkan lebih dari 4.



Gambar 4.4 Hasil *refinement* pelet KNN yang disinter pada temperatur 1125°C dengan waktu penahanan selama 4 jam menggunakan metode normal.

Pada Gambar 4.4 terlihat bahwa pada sudut $2\theta = 29,57^{\circ}$ (fasa $\text{K}_5\text{Nb}_{10}\text{O}_{30}$) dan $34,23^{\circ}$ (tidak teridentifikasi) yang masih muncul dalam hasil *refinement*. Hal ini dikarenakan berdasarkan data pola hasil XRD juga menunjukkan adanya fasa $\text{K}_5\text{Nb}_{10}\text{O}_{30}$ yang teridentifikasi pada sudut $2\theta = 29,57^{\circ}$, sedangkan pada sudut $2\theta = 34,23^{\circ}$ tidak dapat diidentifikasi fasanya. Dalam hasil *refinement* ini, pelet KNN hasil sinter didekati dengan struktur orthotombik.



Gambar 4.5 Hasil *refinement* pelet KNLN yang disinter pada temperatur 1100°C dengan waktu penahanan selama 2 jam menggunakan metode Le Bail.

Keterangan:

- +++++++ Data
- Model
- Selisih antara data dan model (error)

Hasil *refinement* sampel KNLN dengan menggunakan metode Le Bail (Gambar 4.5) diketahui pada sudut 2θ yaitu sekitar 22° dan 46° terdapat puncak data (tanda “+”) lebih tinggi dibandingkan dengan model (garis merah terhubung). Akan tetapi, *fitting* antara model dan data tidak begitu jauh dibandingkan dengan hasil *fitting* dari sampel KNN. Sehingga antara data dengan model belum sepenuhnya cocok. Akibatnya timbul plot selisih antara data dan model yang ditunjukkan oleh garis yang berwarna hijau dengan fluktuasi yang sedikit rendah dibandingkan dengan sampel KNN dari hasil *refinement*. Karena hasil *fitting* antara data dengan model belum sepenuhnya sama menyebabkan nilai

GoF yang dihasilkan mendekati nilai 3. Pada Gambar 4.5 terlihat bahwa pada sudut $2\theta = 30,04^\circ$ (tidak teridentifikasi) yang masih muncul dalam hasil *refinement*. Hal ini dikarenakan berdasarkan data pola hasil XRD juga menunjukkan adanya fasa yang tidak teridentifikasi pada sudut $2\theta = 30,04^\circ$. Dalam hasil *refinement* ini, pelet KNLN hasil sinter didekati dengan struktur tetragonal. Adanya fasa yang tidak teridentifikasi pada KNN dan KNLN dari hasil *refinement* diduga akibat adanya penambahan mol pada K, Na, dan Li yang tidak sepenuhnya menguap dengan sempurna saat proses sintering.

Berdasarkan hasil *refinement* yang telah dilakukan dengan menggunakan data hasil XRD dari pelet KNN dan KNLN yang telah disinter diperoleh data yang ditunjukkan pada Tabel 4.1 sebagai berikut:

Tabel 4.1 Parameter kecocokan hasil *refinement* serta informasi dan *view output* dari pelet KNN dan KNLN.

Parameter Kecocokan	KNN	KNLN
	Sinter 1125°C/4 jam (Metode normal)	Sinter 1100°C/2 jam (Metode Le Bail)
R_p	15,06	12,54
R_{wp}	19,56	16,44
GoF	4,05	3,11
R-Bragg	10,34	1,09
Informasi dan <i>View Output</i>		
Struktur	Orthorombik	Tetragonal
Parameter Kisi (Å)	a = 3,95523 ± 0,00148 b = 5,63766 ± 0,00226 c = 5,67845 ± 0,00215	a = 3,94249 ± 0,00052 b = 3,94249 ± 0,00052 c = 4,01120 ± 0,00055

Berdasarkan informasi yang disajikan pada Tabel 4.1 diketahui bahwa KNN memiliki struktur orthorombik dengan grup ruang Amm2 dengan parameter kisi a b c dengan sudut = = = 90°. Hasil yang didapatkan dari metode *refinement* ini mendekati hasil penelitian yang dilakukan oleh Orayech dkk (2015) dengan parameter kisi a=3,9551Å, b=5,6573Å, c=5,6717Å. Sedangkan,

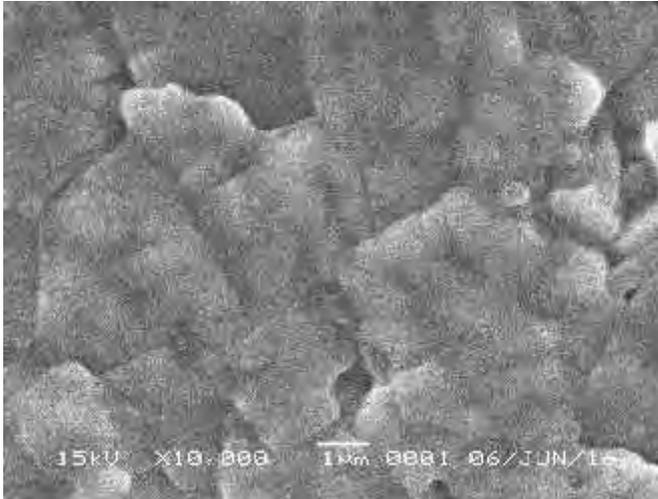
KNLN memiliki struktur tetragonal dengan grup ruang $P4mm$ dengan parameter kisi $a = b = c$ dengan sudut $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$. Gambar 4.4 dan 4.5 merupakan hasil *refinement* pelet KNN dan KNLN yang telah disinter pada temperatur 1125°C selama 4 jam dan 1100°C selama 2 jam.

Sampel KNN dan KNLN yang telah disinter, kemudian dilakukan pengukuran densitas. Pengukuran densitas ini dilakukan dengan menggunakan metode Archimedes. Tabel 4.2 menunjukkan hasil pengukuran densitas dibandingkan dengan densitas teoritis.

Tabel 4.2 Hasil pengukuran densitas KNN excess 1 (2% mol K, 8% mol Na) dan KNLN (2% mol K, 8% mol Na, 8% mol Li) bentuk pelet.

Material	Densitas Archimedes (gr/cc)	Perbandingan Terhadap Densitas Teoritis
KNN excess 1 sinter 1125°C 4 jam	3,78	84,37%
KNLN excess 1 sinter 1100°C 2 jam	4,15	91,39%

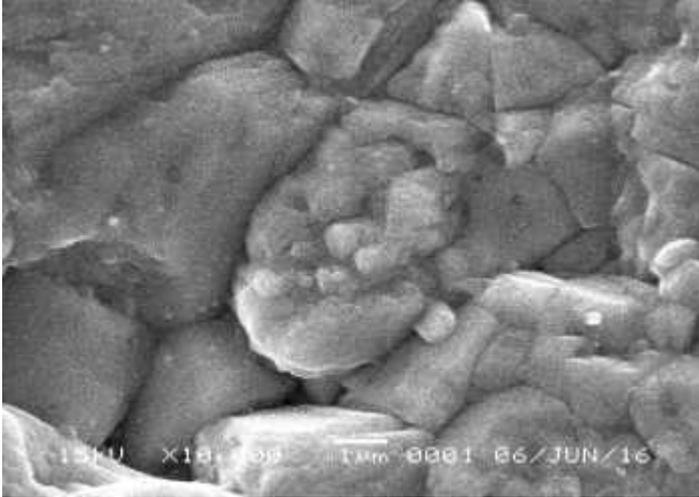
Dari Tabel 4.2 diketahui bahwa sampel KNLN yang disinter pada temperatur 1100°C selama 2 jam lebih *dense* (padat) dibandingkan dengan sampel KNN yang disinter pada temperatur 1125°C selama 4 jam. Hal ini dikarenakan adanya difusi ion Li^+ pada situs $(\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5})^+$ yang membantu mempercepat *shrinkage* (penyusutan) pada sampel KNLN. Selain mempercepat densifikasi, adanya penambahan litium pada KNN juga menyebabkan turunnya temperatur sintering.



Gambar 4.6 Hasil SEM pada sampel KNN dengan temperatur sinter 1125°C selama 4 jam.

Analisa mikrostruktur pada sampel KNN yang ditunjukkan pada Gambar 4.6 dengan perbesaran 10.000 kali menunjukkan bahwa pada gambar SEM tersebut teramati beragam ukuran butir. Untuk mengetahui ukuran butir digunakan metode *cross section* yaitu dengan membagi gambar menjadi beberapa bagian dan diukur menggunakan penggaris dengan satuan sentimeter (cm) kemudian diubah ke dalam satuan mikrometer (μm). Dari metode *cross section* didapatkan ukuran butir (*grain*) berkisar antara $0,22\text{-}3,33 \mu\text{m}$, dengan rata-rata persebaran *grain* yaitu sekitar $1,20 \mu\text{m}$.

Sama halnya dengan KNN, analisa mikrostruktur pada sampel KNLN yang ditunjukkan pada Gambar 4.7 dengan perbesaran 10.000 kali juga menunjukkan bahwa pada gambar SEM tersebut teramati beragam ukuran butir. Berdasarkan metode *cross section* didapatkan ukuran butir (*grain*) berkisar antara $0,22\text{-}3,67 \mu\text{m}$, dengan rata-rata persebaran *grain* yaitu sekitar $1,15 \mu\text{m}$.



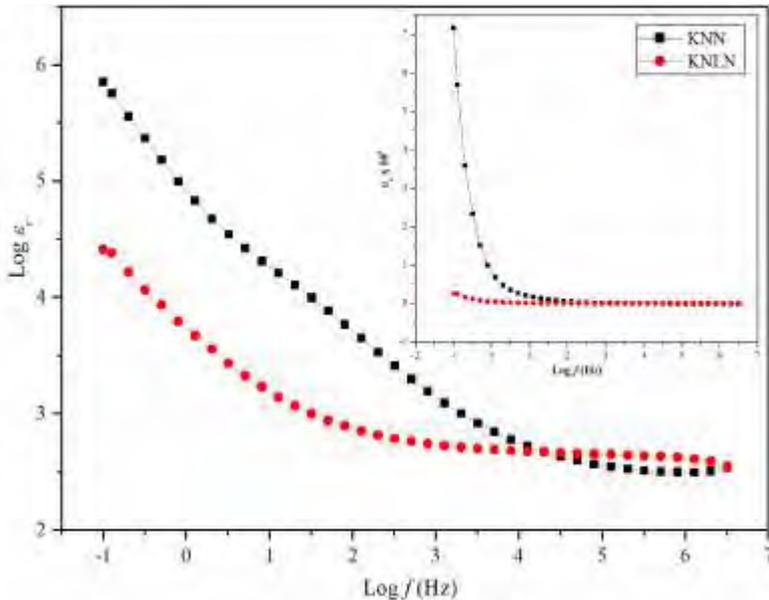
Gambar 4.7 Hasil SEM pada sampel KNLN dengan temperatur sinter 1100°C selama 2 jam.

Berdasarkan ukuran rata-rata butir pada KNN, diketahui bahwa adanya doping ion Li^+ menyebabkan perubahan rata-rata ukuran butir pada KNLN. Hal ini dikarenakan ion Li^+ berdifusi pada situs $(\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5})^+$. Sehingga terjadi perubahan ukuran butir pada material keramik KNLN menjadi lebih kecil $0,05\mu\text{m}$ dibandingkan dengan ukuran rata-rata butir pada sampel KNN.

4.2 Karakterisasi Listrik

Karakterisasi listrik dilakukan pada sampel KNN yang disinter pada temperatur 1125°C selama 4 jam dan juga pada sampel KNLN yang disinter pada temperatur 1100°C selama 2 jam. Adapun tujuan dari dilakukannya karakterisasi listrik yaitu untuk mengetahui daerah polarisasi muatan ruang dan polarisasi dipol, *dielectric loss* atau faktor disipasi, faktor $(Q \times f)$, konduktivitas dielektrik yang diuji pada temperatur ruang (27°C), dan untuk mengetahui temperatur Curie (T_c) yang diukur mulai dari temperatur 60°C - 500°C untuk sampel KNN dan temperatur

60°C-600°C untuk sampel KNLN. Gambar 4.8 menunjukkan daerah polarisasi muatan ruang dan polarisasi dipol. Gambar 4.9 menunjukkan faktor disipasi ($\tan \delta$). Gambar 4.10 menunjukkan konduktivitas dielektrik ($\sigma_{a.c.}$) yang dihitung dengan menggunakan persamaan (2.4). Dan Gambar 4.11 mempresentasikan faktor ($Q \times f$), dimana f adalah frekuensi dan Q adalah *quality factor*. Gambar 4.8-4.11 diukur pada rentang frekuensi 0,1 Hz – 3,2 MHz pada sampel KNN dan KNLN. Gambar 4.12 menunjukkan temperatur Curie (T_c) yang diukur pada beberapa frekuensi dari sampel KNN dan KNLN.



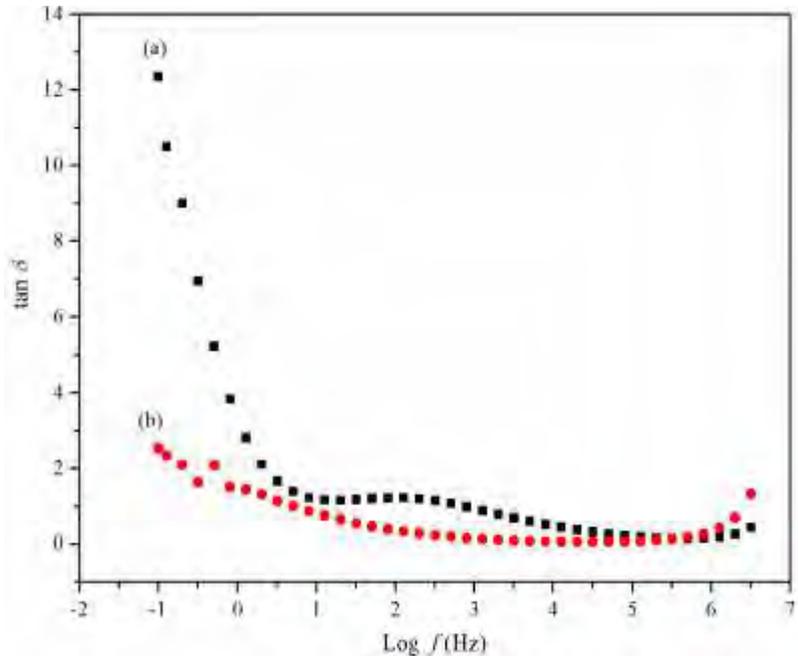
Gambar 4.8 Hubungan antara log permitivitas relatif terhadap log frekuensi pada sampel KNN dan KNLN dengan frekuensi 0,1 Hz – 3,2 MHz.

Apabila dilakukan analisa pada data permitivitas relatif (ϵ_r), maka akan didapatkan hubungan mengenai terjadinya dua mekanisme polarisasi yaitu polarisasi muatan ruang (*space*

charge) dan polarisasi dipol. Polarisasi muatan ruang terjadi pada rentang frekuensi yang rendah, sedangkan polarisasi dipol terjadi pada rentang frekuensi yang tinggi. Untuk memperlihatkan secara detail mengenai daerah polarisasi muatan ruang dan polarisasi dipole, dibuatlah grafik log permitivitas relatif. Dari hasil grafik log permitivitas relatif tersebut terlihat jelas bahwa pada sampel KNN daerah polarisasi muatan ruang terbentang dari frekuensi 0,1 Hz hingga kira-kira 8,04 kHz. Nilai konstanta dielektrik saat 0,1 Hz yaitu $7,18 \times 10^5$ dan secara signifikan akan turun menjadi $6,02 \times 10^2$ pada frekuensi 8,04 kHz. Polarisasi dipol terjadi pada rentang frekuensi 12 kHz hingga 3,2 MHz. Pada sampel KNLN daerah polarisasi muatan ruang terbentang dari frekuensi 0,1 Hz hingga kira-kira 32 Hz. Nilai konstanta dielektrik saat 0,1 Hz yaitu $2,58 \times 10^4$ dan secara signifikan akan turun menjadi $1,0 \times 10^3$ pada frekuensi 32 Hz. Polarisasi dipol terjadi pada rentang frekuensi 50,7 Hz hingga 3,2 MHz. Pada sampel keramik KNN polarisasi muatan ruang lebih mendominasi dibandingkan dengan polarisasi dipol. Sedangkan pada sampel KNLN, polarisasi dipol lebih mendominasi dibandingkan dengan polarisasi muatan ruang.

Berdasarkan Gambar 4.8 jika dilihat lebih detail diketahui bahwa pada sampel keramik KNN pada frekuensi 32 kHz – 3,2 MHz mengalami penurunan konstanta dielektrik. Sedangkan, pada sampel KNLN pada frekuensi tersebut mengalami kenaikan nilai konstanta dielektrik. Hal ini dikarenakan adanya pengaruh penambahan Li pada KNN menyebabkan naiknya nilai konstanta dielektrik. Dari Gambar 4.8 diketahui bahwa sampel KNLN memiliki rentang daerah polarisasi dipol (daerah konstan) yang lebih panjang dibandingkan dengan sampel KNN. Hal ini dikarenakan nilai densitas pada sampel KNLN lebih tinggi dibandingkan dengan densitas sampel KNN (lihat Tabel 4.2). Semakin tinggi nilai tingkat kerapatan (*dense*) suatu material, tidak terdapat celah atau jarak antar partikel dari material tersebut yang mengakibatkan material lebih mudah mengalami polarisasi dipol. Sedangkan, apabila tingkat kerapatan suatu material

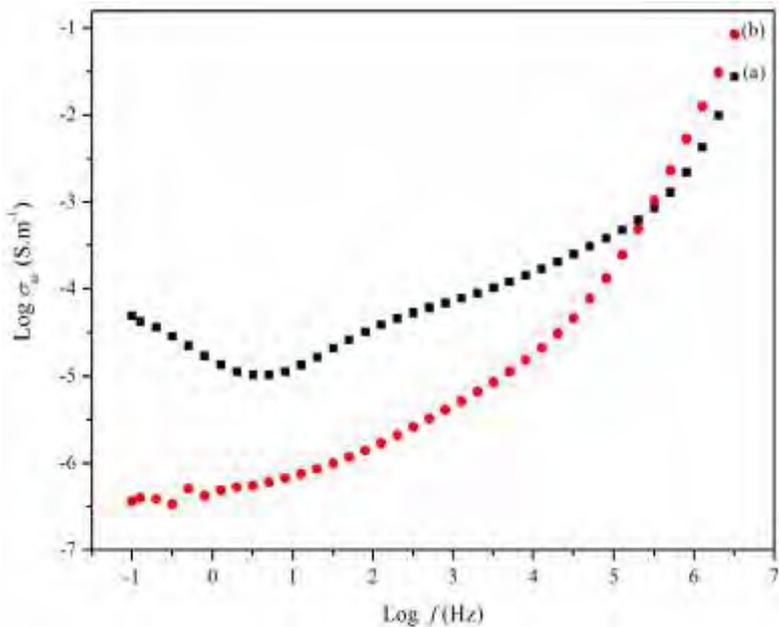
semakin rendah, maka terdapat banyak celah pada material tersebut yang mengakibatkan porositas semakin besar sehingga peluang material tersebut mengalami polarisasi muatan ruang lebih besar dibandingkan mengalami polarisasi dipol.



Gambar 4.9 Kebergantungan faktor disipasi (a) KNN dan (b) KNLN mulai dari frekuensi 0,1 Hz - 3,2 MHz.

Faktor disipasi (*loss factor*) merupakan sifat material yang mendeskripsikan sebaik apa material tersebut dapat menyerap energi pada gelombang mikro. Bahan keramik memiliki faktor disipasi yang rendah sehingga penyerapan energinya berjalan lambat dan bukan penghantar panas yang baik (Kingery, 1976). Gambar 4.9 menunjukkan kebergantungan faktor disipasi ($\tan \delta$) dengan frekuensi pada sampel KNN dan KNLN. Faktor disipasi pada frekuensi 0,1 Hz untuk sampel KNN yaitu sebesar 12,35 dan

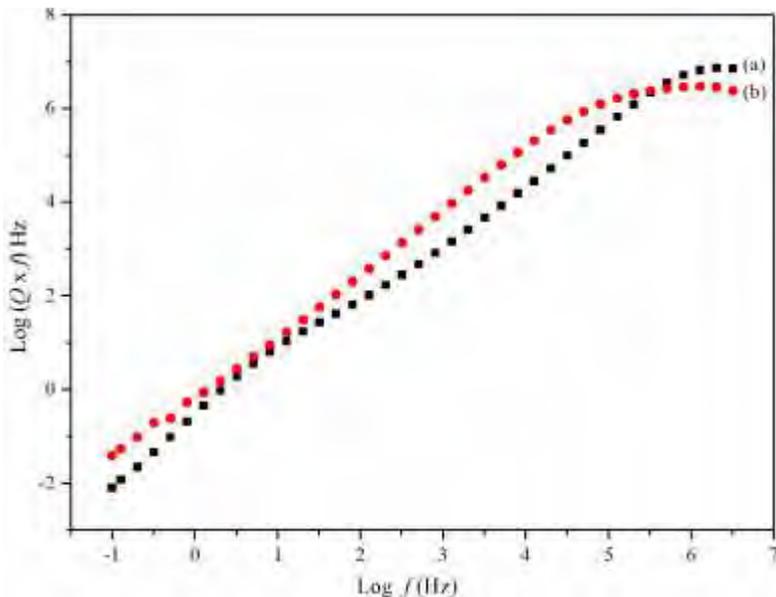
sampel KNLN sebesar 2,54. Secara keseluruhan faktor disipasi dari sampel KNLN lebih kecil dibandingkan dengan KNN, kecuali pada frekuensi lebih dari 10^6 Hz. Nilai faktor disipasi dari sampel KNLN akan bertambah naik apabila frekuensi yang diberikan $< 0,1$ Hz dan $> 10^6$ Hz, sedangkan pada KNN nilai faktor disipasi bertambah turun apabila frekuensi yang diberikan $> 10^6$ Hz. Faktor disipasi dari KNLN lebih konstan dibandingkan dengan KNN.



Gambar 4.10 Konduktivitas dielektrik $_{a.c}$ pada sampel (a) KNN dan (b) KNLN mulai dari frekuensi 0,1 Hz – 3,2 MHz.

Nilai minimum dari log konduktivitas dielektrik ($_{a.c}$) berkaitan dengan daerah transisi antara dua daerah polarisasi. Pada Gambar 4.10, nilai minimum log $_{a.c}$ dari sampel KNLN masih belum diketahui karena nilai minimum log $_{a.c}$ diprediksi

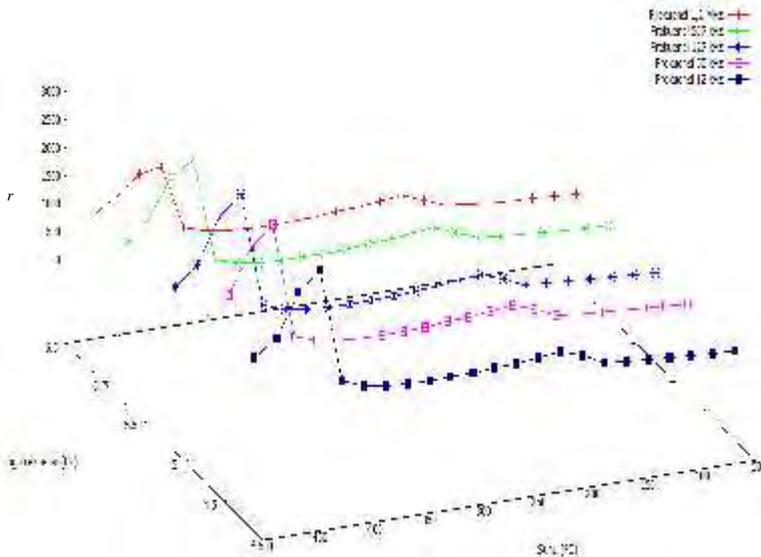
terletak pada frekuensi $< 0,1$ Hz. Sedangkan, nilai minimum $\log_{a.c.}$ dari sampel KNN terletak pada frekuensi 3,2 Hz dengan nilai konduktivitas dielektrik ($a.c.$) yaitu sebesar $1,03 \times 10^{-5} \text{ S.m}^{-1}$. Besarnya nilai konduktivitas dielektrik ($a.c.$) dari sampel dapat dihitung dengan menggunakan persamaan (2.4). Nilai minimum dari \log konduktivitas dielektrik ($a.c.$) menunjukkan perubahan daerah dari polarisasi muatan ruang ke polarisasi dipol. Berdasarkan kajian di atas, diketahui bahwa sampel KNLN memiliki nilai konduktivitas yang lebih kecil dibandingkan dengan KNN. Jadi, sampel KNLN lebih resistif dibandingkan sampel KNN. Sehingga sampel KNLN lebih cocok digunakan sebagai bahan dielektrik pada frekuensi < 100 kHz dan sampel KNN dapat digunakan sebagai bahan dielektrik pada frekuensi > 100 kHz. Selain nilai konduktivitas, faktor ($Q \times f$) juga mempengaruhi kualitas dari bahan dielektrik.



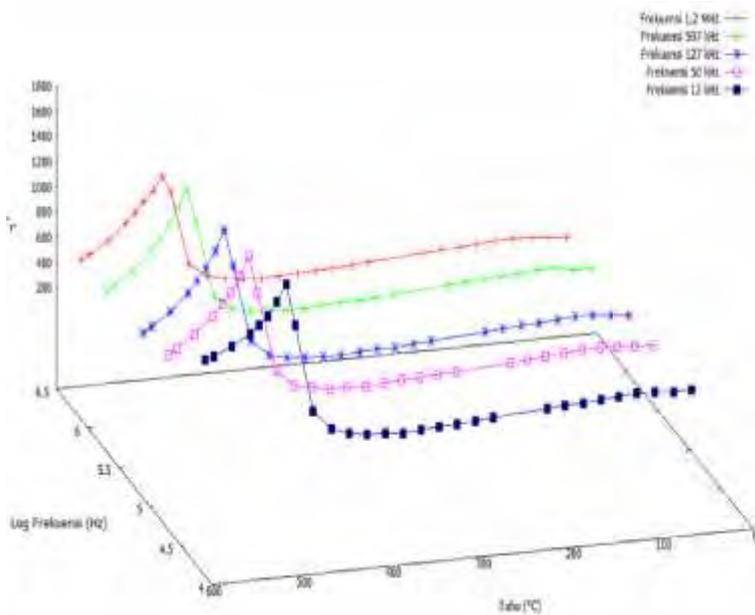
Gambar 4.11 Faktor ($Q \times f$) pada sampel (a) KNN dan (b) KNLN mulai dari frekuensi 0,1 Hz – 3,2 MHz.

Gambar 4.11 menunjukkan hubungan antara faktor ($Q \times f$) dengan frekuensi. Dengan Q merupakan $1/\tan \delta$. Dari Gambar 4.11 diketahui bahwa sampel KNLN lebih konstan dibandingkan dengan sampel KNN. Serta faktor ($Q \times f$) dari KNLN lebih besar dibandingkan dengan KNN. Hal ini mengindikasikan bahwa sampel KNLN memiliki sifat dielektrik yang lebih baik dibandingkan dengan sampel KNN pada frekuensi 0,1 Hz – 0,2 MHz. Pada frekuensi 0,32 MHz faktor ($Q \times f$) dari sampel KNLN lebih rendah dari KNN. Berdasarkan analisa tersebut, sampel KNLN lebih baik diaplikasikan pada frekuensi rendah dengan rentang 0,1 Hz – 0,2 MHz. Sedangkan, sampel KNN lebih baik diaplikasikan pada frekuensi 0,32 MHz.

Gambar 4.12 dan 4.13 merupakan gambar tiga dimensi yang menunjukkan hubungan antara temperatur, permitivitas relatif, dan frekuensi pada sampel KNN dan KNLN.



Gambar 4.12 Hubungan antara temperatur, frekuensi, dan permitivitas relatif pada frekuensi yang berbeda dari sampel KNN.



Gambar 4.13 Hubungan antara temperatur, frekuensi, dan permitivitas relatif pada frekuensi yang berbeda dari sampel KNLN.

Tabel 4.3 Temperatur Curie (T_c) pada sampel KNN dan KNLN.

Sampel	KNN	KNLN
Temperatur Curie (T_c)	~220°C dan ~440°C	~510°C

Dari Gambar 4.12 dan 4.13 terlihat bahwa pada frekuensi 12 kHz – 1,2 MHz bentuk plot grafik temperatur terhadap permitivitas relatif dan frekuensi pada sampel KNN dan KNLN masing-masing memiliki bentuk yang sama pada setiap frekuensi. Pada sampel keramik KNN, konstanta dielektrik secara cepat naik dari temperatur ~180°C dan mencapai puncak pada temperatur Curie yaitu ~440°C. Puncak dua dielektrik dari sampel keramik KNN yaitu pada temperatur ~220°C dan ~440°C pada tiap frekuensi. Dari Gambar 4.12 juga terlihat bahwa terdapat dua transisi fasa

dari orthorombik ke tetragonal (T_{O-T}) dan dari tetragonal ke kubik (T_{T-K}) pada sampel keramik KNN. Pada sampel keramik KNLN (Gambar 4.13), konstanta dielektrik dari temperatur 60°C - 400°C mengalami penurunan kemudian naik secara cepat pada temperatur 400°C hingga mencapai puncak pada temperatur Curie yaitu $\sim 510^{\circ}\text{C}$. Puncak dielektrik dari sampel keramik KNLN yaitu pada temperatur $\sim 510^{\circ}\text{C}$. Pada sampel KNLN ini hanya terdapat transisi dari tetragonal ke kubik (T_{T-K}). Pada sampel KNN, adanya transisi fasa dari orthorombik ke tetragonal dan dari tetragonal ke kubik sesuai dengan pola hasil XRD dari KNN yang menyatakan bahwa KNN berstruktur orthorombik. Begitu pula dengan KNLN, adanya transisi fasa dari tetragonal ke kubik menyebabkan KNLN memiliki struktur tetragonal. Dari hasil penelitian yang dilakukan pada sampel keramik KNN dan KNLN diyakini terjadi optimasi polarisasi akibat perubahan fasa dari tetragonal (fasa ferroelektrik) ke kubik (fasa paraelektrik) yang mengakibatkan dielektrisitas material mencapai maksimum kemudian turun pada temperatur yang lebih tinggi sesuai dengan hukum Curie-Weiss (Kittel, 2005).

Dari Gambar 4.12 dan 4.13, sampel $\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3$ ($r = 2983,17$) memiliki konstanta dielektrik yang lebih tinggi daripada sampel $\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,4}\text{Li}_{0,1}\text{NbO}_3$ ($r = 1656,03$). Hal ini diprediksi akibat adanya difusi ion Li^+ pada situs A yang mengakibatkan situs A ditempati 3 kation yaitu $(\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,4}\text{Li}_{0,1})^+$ pada sampel KNLN, sedangkan pada sampel keramik KNN situs A hanya ditempati 2 kation yaitu $(\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5})^+$. Adanya difusi ion Li^+ pada sampel KNLN menyebabkan konstanta dielektrik dari sampel keramik KNN lebih besar dari sampel keramik KNLN. Selain itu, adanya penambahan Li pada KNN menyebabkan peningkatan temperatur Curie. Hal ini dikarenakan berkurangnya unsur Na akibat tergantikan oleh unsur Li yang akan menaikkan temperatur Curie.

BAB V

KESIMPULAN DAN SARAN

5.1 Kesimpulan

Kesimpulan yang diperoleh dari penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Adanya penambahan Litium (Li) pada KNN menyebabkan turunnya temperatur *sintering*, densitas semakin tinggi, mempercepat proses densifikasi, serta memperkecil ukuran *grain*.
2. Akibat penambahan Litium (Li) pada material KNN, maka situs A pada KNN ditempati oleh atom (K, Na, Li) dan merubah fasa KNN yang awalnya orthorombik menjadi tetragonal, dengan struktur yang dihasilkan perovskite dengan rumus kimia ABO_3 .
3. Adanya difusi ion Li^+ pada material KNN mengakibatkan temperatur Curie yang dihasilkan lebih tinggi yaitu $\sim 510^\circ C$.
4. Konstanta dielektrik dari material KNN lebih tinggi dibandingkan dengan KNLN jika diukur pada temperatur $60^\circ C - 500^\circ C$.

5.2 Saran

Material $K_{0,5}Na_{0,4}Li_{0,1}NbO_3$ telah dipelajari proses sintesis maupun karakterisasinya. Dari hasil penelitian ini perlu dilakukan penelitian lebih lanjut baik dari segi modifikasi sifat kelistrikannya maupun pengaplikasiannya supaya dihasilkan material berstruktur perovskite dengan karakterisasi listrik yang lebih baik sehingga dapat berguna bagi keberlangsungan kehidupan yang lebih baik.

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

DAFTAR PUSTAKA

- Barsoum, M., Barsoum, M.W., 2002. *Fundamentals of Ceramics*. CRC Press.
- Callister, William. D. 2008. *Materials science and engineering 3rd edition: an introduction/* William D. Callister. John Wiley & Sons, Inc. United State.
- Chen, T., Wang, H., Zhang, T., Wang, G., Zhou, J., Zhang, J., Liu, Y., 2013. *Piezoelectric behavior of $(1-x)K_{0.50}Na_{0.50}NbO_3-xBa_{0.80}Ca_{0.20}ZrO_3$ lead-free ceramics*. Ceram. Int. 39, 6619–6622. doi:10.1016/j.ceramint.2013.01.098
- Cho, C.W., Cha, M.R., Jang, J.Y., Lee, S.H., Kim, D.J., Park, S., et al., 2012. *Ferroelectric relaxor properties of $(1-x)K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3-xBa_{0.5}Ca_{0.5}TiO_3$ ceramics*. Current Applied Physics, 12, 1266–1271.
- Du, H., Li, Z., Tang, F., Qu, S., Pei, Z., Zhou, W., 2006. *Preparation and piezoelectric properties of $(K_{0.5}Na_{0.5})NbO_3$ lead-free piezoelectric ceramics with pressure-less sintering*. Mater. Sci. Eng. B 131, 83–87. doi:10.1016/j.mseb.2006.03.039
- Jeong, C.K., Park, K.-I., Ryu, J., Hwang, G.-T., Lee, K.J., 2014. *Large-Area and Flexible Lead-Free Nanocomposite Generator Using Alkaline Niobate Particles and Metal Nanorod Filler*. Adv. Funct. Mater. 24, 2620–2629. doi:10.1002/adfm.201303484
- Kingery, W.D., 1976. *Introduction to Ceramics*, 2nd Edition, 2 edition. ed. Wiley-Interscience, New York.
- Kisi, E. H. 1994, 'Rietveld Analysis of Powder Diffraction Pattern', Materials Forum, Vol. 18, pp. 135-153.
- Kittel, C., 2005. *Introduction to Solid State Physics*. John Wiley & Sons.
- Maghfiroh, A.M., 2015. Sintesis dan Karakterisasi Material Feroelektrik Bebas Timbal $0,8(K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3)$ -

- 0,2(Ba_{0,8}Ca_{0,2}Zr_{0,5}TiO₃) dengan Metode Gabungan Reaksi Padat dan Kopresipitasi. Tugas Akhir Jurusan Fisika Institut Teknologi Sepuluh Nopember.
- Moulson, A.J dan Herbert, J.M., 2003. *Electroceramics: Material, Properties and Applications Second Edition*. England: John Wiley and Sons.
- Orayech, B., Faik, A., López, G.A., Fabelo, O., Igartua, J.M., 2015. *Mode-crystallography analysis of the crystal structures and the low- and high-temperature phase transitions in Na_{0,5}K_{0,5}NbO₃*. J. Appl. Crystallogr. 48, 318–333. doi:10.1107/S1600576715000941
- Park, B.C., Hong, I.K., Jang, H.D., Tran, V.D.N., Tai, W.P., Lee, J.-S., 2010. *Highly enhanced mechanical quality factor in lead-free (K_{0,5}Na_{0,5})NbO₃ piezoelectric ceramics by co-doping with K_{5,4}Cu_{1,3}Ta₁₀O₂₉ and CuO*. Mater. Lett. 64, 1577–1579. doi:10.1016/j.matlet.2010.04.031
- Pratapa, S., 2011. Analisis Data Difraksi menggunakan Metode Rietveld. Fisika FMIPA ITS, Surabaya.
- Rani, R., Sharma, S., 2011. *Influence of Sintering Temperature on Densification, Structure and Microstructure of Li and Sb Co-Modified (K,Na)NbO₃-Based Ceramics*. Mater. Sci. Appl. 2, 1416. doi:10.4236/msa.2011.210191
- Ren, X.B., Liu, W.F., 2009. *Large Piezoelectric Effect in Pb-Free Ceramics*. Physics, 103.
- Rigoberto López-Juárez. *Lead-Free Ferroelectric Ceramics with Perovskite Structure*. www.intechopen.com. Universidad Autónoma Metropolitana-Iztapalapa. México.
- Rohmah, N.A., 2014. Sintesis dan Karakterisasi Material 0,8K_{0,5}Na_{0,5}NbO₃-0,2Ba_{0,5}Ca_{0,5}Zr_{0,5}Ti_{0,5}O₃ Bebas Timbal dengan Metode Reaksi Padat. Tesis Jurusan Fisika Institut Teknologi Sepuluh Nopember.
- Saito, Y., Takao, H., Tani, T., Nonoyama, T, et al., 2004. *Lead-Free Piezoceramics*. Nature, 432, 84–87.

- Suasromo, 2012. Feroelektrik Barium Strontium Titanat ($\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$)-Struktur, Sintesis, Karakteristik Elektrik. Surabaya: ITS Press.
- Utomo, H.P., 2013. Pengaruh Lama Penggerusan Terhadap Konstanta Dielektrik, Kekerasan, dan Mikrostruktur Keramik Oksida $\text{SiO}_2\text{-MgO}$. SKRIPSI Jur. Fis.-Fak. MIPA UM.
- Wang, K. dan Li, J.F., 2012. *(K, Na)NbO₃-Based Lead-Free Piezoceramics: Phase Transition, Sintering and Property Enhancement*. Journal of Advanced Ceramics ISSN 2226-4108.
- Wang, Y. L., Lu, Y. Q., Wu, M. J., Wang, D. dan Li, Y.X., 2012. *Low-temperature sintering and electrical properties of (K,Na)NbO₃ based lead-free ceramics with high curie temperature*. Ceramics International, 38S S295-S299.
- Zhen, Y., Li, J.-F., 2006. *Normal Sintering of (K,Na)NbO₃-Based Ceramics: Influence of Sintering Temperature on Densification, Microstructure, and Electrical Properties*. J. Am. Ceram. Soc. 89, 3669–3675. doi:10.1111/j.1551-2916.2006.01313.x

"Halaman ini sengaja dikosongkan"

**LAMPIRAN A
DATA UNSUR-UNSUR**

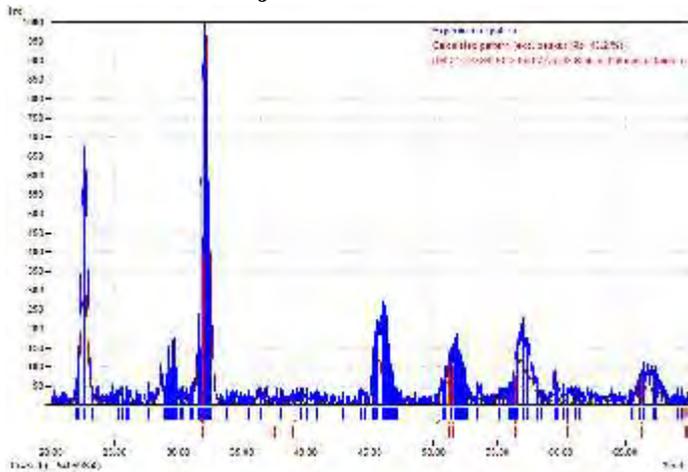
Unsur	Nomor Atom	Nomor Massa	Valensi Ion
K	19	39,102	+1
Na	11	22,9898	+1
Li	3	6,941	+1
Nb	41	92,906	+5
O	8	15,9994	-2

**LAMPIRAN B
DATA JARI-JARI ION (Å)**

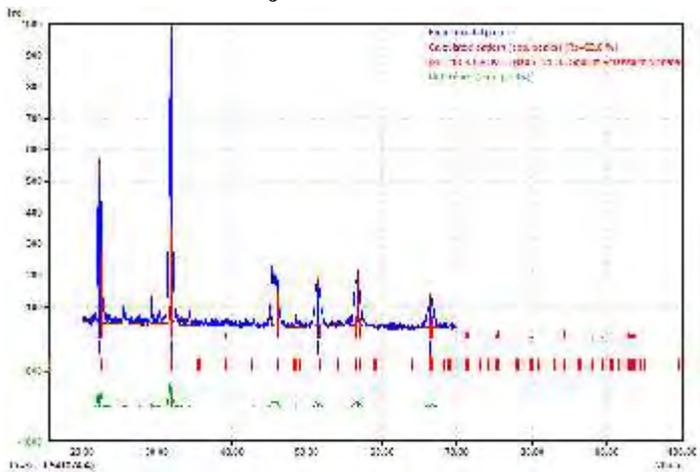
Ion	Jari-jari Ion (Å)
K ⁺	0,133
Na ⁺	0,95
Li ⁺	0,60
Nb ⁵⁺	0,064
O ²⁻	1,40

LAMPIRAN C HASIL ANALISA KUALITATIF DENGAN MENGUNAKAN *SOFTWARE MATCH!*

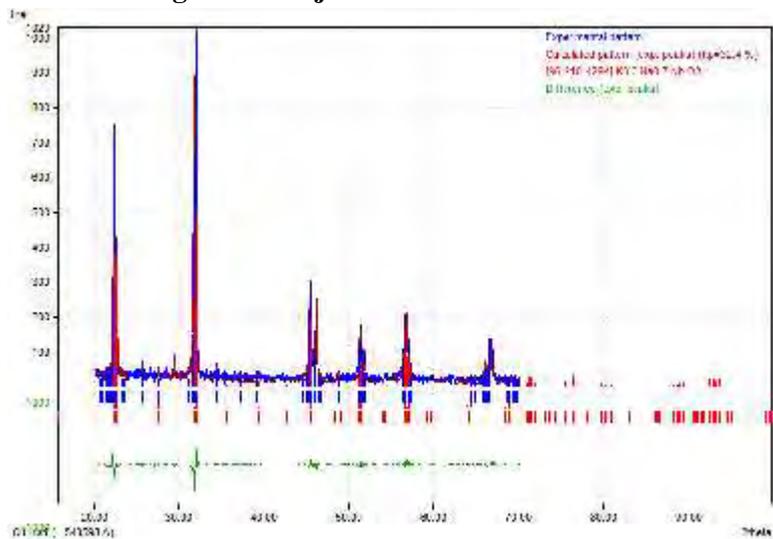
KNN kalsinasi 700°C/2 jam



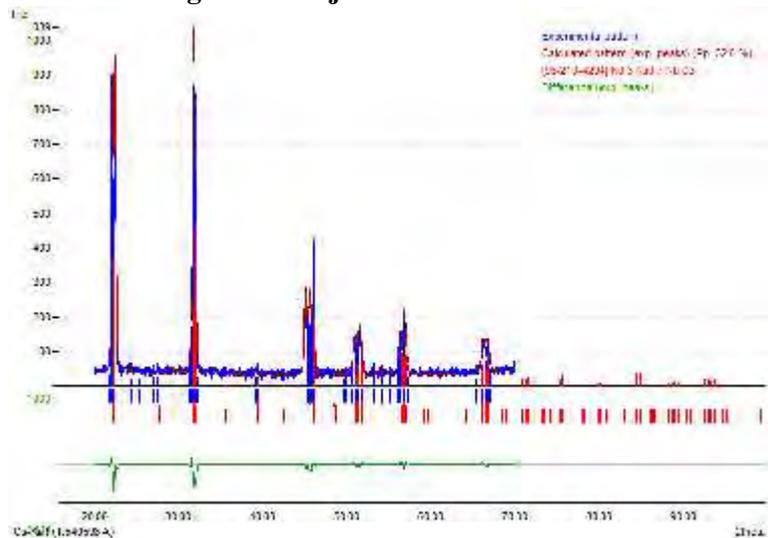
KNLN kalsinasi 750°C/2 jam



KNN sintering 1125°C/4 jam



KNLN sintering 1100°C/2 jam



LAMPIRAN D
DATA COD (CRYSTALLOGRAPHY OPEN
DATABASE) SAMPEL KNN

Perovskite Orthorombik

```
#-----  
-----  
#$Date: 2016-02-14 14:26:36 +0000 (Sun, 14  
Feb 2016) $  
#$Revision: 176435 $  
#$URL: file:///home/coder/svn-  
repositories/cod/cif/2/30/04/2300499.cif $  
#-----  
-----  
#  
# This file is available in the  
Crystallography Open Database (COD),  
# http://www.crystallography.net/. The  
original data for this entry  
# were provided by IUCr Journals,  
http://journals.iucr.org/.  
#  
# The file may be used within the scientific  
community so long as  
# proper attribution is given to the journal  
article from which the  
# data were obtained.  
#  
data_2300499  
loop_  
_publ_author_name  
'Orayech, B.'  
'Faik, A.'  
'L\lopez, G. A.'  
'Fabelo, O.'
```

```

'Igartua, J. M.'
_publ_section_title
;
  Mode-crystallography analysis of the
  crystal structures and the low- and
  high-temperature phase transitions in
  Na~0.5~K~0.5~NbO~3~
;
_journal_coeditor_code          NB5132
_journal_issue                  2
_journal_name_full              'Journal of
Applied Crystallography'
_journal_page_first
;
;
_journal_paper_doi              10.1107/S1600576715000941
_journal_volume                 48
_journal_year                   2015
_chemical_formula_structural    'Na K (Nb
O)3'
_chemical_formula_sum          'K0.5 Na0.5
Nb O3'
_chemical_formula_weight        171.94
_chemical_name_common          'Sodium
Potassium Niobate oxide'
_chemical_name_systematic      'Sodium
Potassium Niobate oxide'
_space_group_IT_number          38
_symmetry_cell_setting         orthorhombic
_symmetry_space_group_name_Hall 'A 2 -2'
_symmetry_space_group_name_H-M 'A m m 2'
_cell_angle_alpha               90.00000
_cell_angle_beta                90.00000
_cell_angle_gamma               90.00000

```

_cell_formula_units_Z	2
_cell_length_a	3.9443(3)
_cell_length_b	5.6425(6)
_cell_length_c	5.6763(6)
_cell_measurement_temperature	295
_cell_volume	126.33(2)
_computing_structure_refinement	FULLPROF
_diffrn_ambient_temperature	295
_diffrn_radiation_type	'Cu K\alpha'
_diffrn_radiation_wavelength	1.540560
_diffrn_source_target	Cu
_pd_instr_location	' ?'
_pd_meas_2theta_range_inc	0.033344
_pd_meas_2theta_range_max	110.00202
_pd_meas_2theta_range_min	8.50000
_pd_meas_number_of_points	3046
_pd_meas_scan_method	step
_pd_proc_2theta_range_inc	0.033344
_pd_proc_2theta_range_max	109.8246
_pd_proc_2theta_range_min	8.3226
_pd_proc_ls_background_function	'Set of
experimental background points'	
_pd_proc_ls_pref_orient_corr	' ?'
_pd_proc_ls_profile_function	pseudo-
Voigt	
_pd_proc_ls_prof_R_factor	14.7186
_pd_proc_ls_prof_wR_expected	6.0316
_pd_proc_ls_prof_wR_factor	18.8044
_pd_proc_wavelength	1.540560
_pd_spec_mounting	' ?'
_refine_ls_number_parameters	6
_refine_ls_number_reflns	181
_refine_ls_number_restraints	0
_refine_ls_R_I_factor	20.2129
_cod_data_source_file	
nb5132supl.cf	

```
_cod_data_source_block          II
_cod_depositor_comments
```

```
;
```

The following automatic conversions were performed:

```
'_symmetry_cell_setting' value
'Orthorhombic' changed to
'orthorhombic' according to
/usr/data/users/saulius/crontab/automatic-
downloads/rss-
feeds/IUCr/lib/dictionaries/cif_core.dic
dictionary named 'cif_core.dic' version
2.4.2 from 2011-04-26.
```

Automatic conversion script

```
Id: cif_fix_values 3008 2015-01-20 13:52:24Z
robertas
```

```
;
```

```
_cod_original_formula_sum      'K0.50
Na0.50 Nb1 O3'
```

```
_cod_database_code            2300499
```

```
#BEGIN Tags that were not found in
dictionaries:
```

```
_pd_proc_ls_prof_cr_factor    31.0684
```

```
_pd_proc_ls_prof_cwr_factor   30.6076
```

```
_pd_proc_ls_prof_cwr_expected 9.8175
```

```
_pd_proc_ls_prof_chi2         9.7197
```

```
_pd_proc_ls_prof_echi2       9.7197
```

```
#END Tags that were not found in
dictionaries
```

```
loop_
```

```
_symmetry_equiv_pos_as_xyz
```

```
x,y,z
```

```
-x,-y,z
```

```
-x,y,z
```

```
x,-y,z
x,y+1/2,z+1/2
-x,-y+1/2,z+1/2
-x,y+1/2,z+1/2
x,-y+1/2,z+1/2
loop_
  _atom_site_label
  _atom_site_fract_x
  _atom_site_fract_y
  _atom_site_fract_z
  _atom_site_U_iso_or_equiv
  _atom_site_occupancy
  _atom_site_adp_type
  _atom_site_type_symbol
Na1 0.00000 0.00000 0.0453(11) 0.01092
0.50000 Uiso NA
K1 0.00000 0.00000 0.0453(11) 0.01092
0.50000 Uiso K
Nb1 0.50000 0.00000 0.5251(11) 0.00758
1.00000 Uiso NB
O1 0.00000 0.00000 0.4727(11) 0.00665
1.00000 Uiso O
O1_2 0.50000 0.7535(8) 0.2285(8) 0.00665
1.00000 Uiso O
loop_
  _geom_angle_atom_site_label_1
  _geom_angle_atom_site_label_2
  _geom_angle_atom_site_label_3
  _geom_angle
  _geom_angle_site_symmetry_1
  _geom_angle_site_symmetry_3
O1 Na1 O1 98.3(3) 1_555 5_544
O1 Na1 O1 98.3(3) 1_555 5_554
O1 Na1 O1_2 66.7(3) 1_555 1_445
O1 Na1 O1_2 66.7(3) 1_555 1_545
O1 Na1 O1_2 126.4(3) 1_555 5_444
```

01 Na1 01_2 126.4(3) 1_555 5_544
01 Na1 01 163.38(4) 5_544 5_554
01 Na1 01_2 62.19(13) 5_544 1_445
01 Na1 01_2 62.19(13) 5_544 1_545
01 Na1 01_2 125.52(19) 5_554 1_445
01 Na1 01_2 125.52(19) 5_554 1_545
01 Na1 01_2 56.41(13) 5_554 5_444
01 Na1 01_2 56.41(13) 5_554 5_544
01_2 Na1 01_2 97.27(12) 1_445 1_545
01_2 Na1 01_2 89.8(2) 1_445 5_444
01_2 Na1 01_2 166.9(2) 1_445 5_544
01_2 Na1 01_2 166.9(2) 1_545 5_444
01_2 Na1 01_2 89.8(2) 1_545 5_544
01_2 Na1 01_2 81.28(14) 5_444 5_544
01 K1 01 98.3(3) 1_555 5_544
01 K1 01 98.3(3) 1_555 5_554
01 K1 01_2 66.7(3) 1_555 1_445
01 K1 01_2 66.7(3) 1_555 1_545
01 K1 01_2 126.4(3) 1_555 5_444
01 K1 01_2 126.4(3) 1_555 5_544
01 K1 01 163.38(4) 5_544 5_554
01 K1 01_2 62.19(13) 5_544 1_445
01 K1 01_2 62.19(13) 5_544 1_545
01 K1 01_2 125.52(19) 5_554 1_445
01 K1 01_2 125.52(19) 5_554 1_545
01 K1 01_2 56.41(13) 5_554 5_444
01 K1 01_2 56.41(13) 5_554 5_544
01_2 K1 01_2 97.27(12) 1_445 1_545
01_2 K1 01_2 89.8(2) 1_445 5_444
01_2 K1 01_2 166.9(2) 1_445 5_544
01_2 K1 01_2 166.9(2) 1_545 5_444
01_2 K1 01_2 89.8(2) 1_545 5_544
01_2 K1 01_2 81.28(14) 5_444 5_544
01 Nb1 01 162.85(6) 1_555 1_655
01 Nb1 01_2 83.4(2) 1_555 1_545
01 Nb1 01_2 95.4(3) 1_555 5_545

O1 Nb1 O1_2 83.4(2) 1_655 1_545
O1 Nb1 O1_2 95.4(3) 1_655 5_545
O1_2 Nb1 O1_2 168.5(4) 1_545 5_545
O1 Nb1 O1_2 83.4(2) 1_555 1_545
O1 Nb1 O1_2 95.4(3) 1_555 5_545
loop_
_geom_bond_atom_site_label_1
_geom_bond_atom_site_label_2
_geom_bond_distance
_geom_bond_site_symmetry_2
Na1 O1 2.8512(13) 5_544
Na1 O1 2.8512(13) 5_554
Na1 O1_2 2.628(4) 1_445
Na1 O1_2 2.628(4) 1_545
Na1 O1_2 3.028(5) 5_444
Na1 O1_2 3.028(5) 5_544
Nb1 O1 1.9945(13) 1_555
Nb1 O1 1.9945(13) 1_655
Nb1 O1_2 2.184(7) 1_545
Nb1 O1_2 1.838(6) 5_545
Nb1 O1_2 1.838(6) 5_545
Nb1 O1_2 2.184(7) 1_545
K1 O1 2.8512(13) 5_544
K1 O1 2.8512(13) 5_554
K1 O1_2 2.628(4) 1_445
K1 O1_2 2.628(4) 1_545
K1 O1_2 3.028(5) 5_444
K1 O1_2 3.028(5) 5_544

Perovskite Tetragonal

```

#-----
#-----
#$Date: 2016-02-14 14:26:36 +0000 (Sun, 14
Feb 2016) $
#$Revision: 176435 $
#$URL: file:///home/coder/svn-
repositories/cod/cif/2/10/42/2104294.cif $
#-----
#-----
#
# This file is available in the
Crystallography Open Database (COD),
# http://www.crystallography.net/. The
original data for this entry
# were provided by IUCr Journals,
http://journals.iucr.org/.
#
# The file may be used within the scientific
community so long as
# proper attribution is given to the journal
article from which the
# data were obtained.
#
data_2104294
loop_
  _publ_author_name
    'Baker, D. W.'
    'Thomas, P. A.'
    'Zhang, N.'
    'Glazer, A. M.'
  _publ_section_title
;
  Structural study of  $K_xNa_{1-x}NbO_3$  (KNN) for

```

compositions in the range $x = 0.24$ --
 0.36

```

;
_journal_issue                1
_journal_name_full            'Acta
Crystallographica Section B'
_journal_page_first          22
_journal_page_last           28
_journal_paper_doi           10.1107/S0108768108037361
_journal_volume              65
_journal_year                2009
_chemical_formula_iupac      'K0.3 Na0.7
Nb O3'
_chemical_formula_moiety     'Nb O3,
8(K0.0375 Na0.0875)'
_chemical_formula_sum        'K0.3 Na0.7
Nb O3'
_chemical_formula_weight     168.73
_space_group_crystal_system  tetragonal
_space_group_IT_number       99
_symmetry_space_group_name_Hall 'P 4 -2'
_symmetry_space_group_name_H-M 'P 4 m m'
_cell_angle_alpha            90
_cell_angle_beta             90
_cell_angle_gamma            90
_cell_formula_units_Z        1
_cell_length_a               3.950920(10)
_cell_length_b               3.950920(10)
_cell_length_c               4.00852(2)
_cell_measurement_temperature 523
_cell_volume                 62.5721(4)
_diffrn_ambient_temperature  523
_diffrn_measurement_device_type HRPD

```

```
_diffrn_radiation_probe      neutron
_diffrn_radiation_source     spallation
_diffrn_radiation_type       neutron
_exptl_crystal_density_diffrn 4.478
_exptl_crystal_F_000         78.4
_refine_ls_goodness_of_fit_all 0.526
_refine_ls_number_parameters  24
_cod_data_source_file         kd5027.cif
_cod_data_source_block        523K
_cod_original_formula_sum     'K0.30
Na0.70 Nb O3'
_cod_database_code            2104294
loop_
_symmetry_equiv_pos_site_id
_symmetry_equiv_pos_as_xyz
1 x,y,z
2 -y,x,z
3 -x,-y,z
4 y,-x,z
5 -x,y,z
6 -y,-x,z
7 x,-y,z
8 y,x,z
loop_
_atom_site_aniso_label
_atom_site_aniso_U_11
_atom_site_aniso_U_22
_atom_site_aniso_U_33
_atom_site_aniso_U_12
_atom_site_aniso_U_13
_atom_site_aniso_U_23
Na1 0.0307(11) 0.0307(11) 0.046(3) 0 0 0
K1 0.0307(11) 0.0307(11) 0.046(3) 0 0 0
Nb1 0.0101(4) 0.0101(4) 0.014(3) 0 0 0
O1 0.0248(8) 0.0248(8) 0.023(3) 0 0 0
```

```
O2 0.0175(7) 0.0175(7) 0.031(3) -0.0014(6) 0
0
loop_
  _atom_site_type_symbol
  _atom_site_label
  _atom_site_fract_x
  _atom_site_fract_y
  _atom_site_fract_z
  _atom_site_U_iso_or_equiv
  _atom_site_occupancy
Na Na1 0 0 0 0.0357 0.7
K K1 0 0 0 0.0357 0.3
Nb Nb1 0.5 0.5 0.492(11) 0.0114 1
O O1 0.5 0.5 0.038(10) 0.0241 1
O O2 0.5 0 0.539(10) 0.0221 1
loop_
  _geom_angle_atom_site_label_1
  _geom_angle_atom_site_label_2
  _geom_angle_atom_site_label_3
  _geom_angle_site_symmetry_1
  _geom_angle_site_symmetry_2
  _geom_angle_site_symmetry_3
  _geom_angle
  _geom_angle_publ_flag
O1 Nb1 O1 1_556 . . 180 y
O2 Nb1 O2 2_555 . 2_655 169.(3) y
O2 Nb1 O2 1_555 . 1_565 169.(3) y
loop_
  _geom_bond_atom_site_label_1
  _geom_bond_atom_site_label_2
  _geom_bond_site_symmetry_1
  _geom_bond_site_symmetry_2
  _geom_bond_distance
  _geom_bond_publ_flag
Nb1 O1 . . 1.82(6) y
Nb1 O2 . . 1.984(6) y
```

BIOGRAFI PENULIS



Penulis “Nur Lailiyah Isnaini” merupakan anak ke 2 dari 2 bersaudara yang lahir di Kota Gresik pada 22 Juli 1993. Semasa kecil penulis menempuh pendidikan formal antara lain di TK Kartika V-85, SD Negeri Sidomoro IV, SMP Negeri 1 Gresik, dan SMA Negeri 1 Gresik. Semasa kecil penulis mendapatkan pendidikan non formal di Taman Pendidikan Al-Qur’an (TPQ) Al-Ikhsan Gresik.

Penulis memulai pendidikan S1 di Jurusan Fisika ITS pada tahun 2012 dan menyelesaikan Tugas Akhir pada semester 8.

Selama mengenyam pendidikan S1 di Jurusan Fisika ITS, penulis turut berkontribusi dalam hal pengembangan Laboratorium Fisika Madya dan Laboratorium Fisika Bahan yaitu sebagai Asisten Fisika Modern dan Gelombang (2014-2016) dan Asisten Laboratorium Fisika Bahan (2015). Penulis juga berpartisipasi dalam bidang pengabdian masyarakat dan penelitian yaitu dalam hal program hibah PKM DIKTI maupun dalam bidang kewirausahaan yaitu PMW yang dibuktikan dengan didanainya PKM Pengabdian Masyarakat pada pendanaan DIKTI 2014 dan PKM Penelitian pada pendanaan DIKTI 2015 serta lolos seleksi PMW tahun 2014. Selain itu, penulis juga aktif dalam Organisasi Intra Kampus yaitu menjabat sebagai Staf HRD pada WE&T ITS (2012-2014) dan Staf Bendahara BEM FMIPA (2013-2014).

Dengan adanya tulisan Tugas Akhir ini, penulis berharap akan adanya pengembangan penelitian material berstruktur perovskite lebih lanjut sehingga dapat berguna bagi

keberlangsungan kehidupan yang lebih baik. Kritik dan saran dapat ditujukan ke email: nurlaiyahisnaini51@gmail.com.