



TESIS SF092006

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI LISTRIK MATERIAL FERROELEKTRIK
BEBAS TIMBAL $0,8(\text{Ka}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3)$ - $0,2(\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3)$ DENGAN METODE
GABUNGAN REAKSI PADAT – KOPRESIPITASI OKSALAT**

Ersa Desmelinda

NRP 1113201002

Dosen Pembimbing

Prof. Dr. Suasgoro, DEA

PROGRAM MAGISTER

BIDANG KEAHLIAN MATERIAL

JURUSAN FISIKA

FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM

INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER

SURABAYA

2015



THESIS SF092006

**SYNTHESIS AND ELECTRICAL PROPERTIES OF LEAD FREE
FERROELECTRIC MATERIAL $0,8(\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3)$ - $0,2(\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3)$
USING COMBINATION OF SOLID STATE REACTION
-OKSALAT COPRECIPITATION METHOD**

Ersa Desmelinda
NRP 1113201002

Advisor
Prof. Dr. Suasmoro, DEA

**MASTER PROGRAM
STUDY OF MATERIAL SCIENCES
DEPARTMENT OF PHYSICS
FACULTY OF MATHEMATICS AND NATURAL SCIENCES
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER
SURABAYA
2015**

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI LISTRIK MATERIAL FERROELEKTRIK
BEBAS TIMBAL $0,8(\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3)-0,2(\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3)$ DENGAN METODE
GABUNGAN REAKSI PADAT – KOPRESIPITASI OKSALAT**

**Tesis ini disusun untuk memenuhi salah satu syarat memperoleh gelar
Magister Sains (M.Si)
di
Institut Teknologi Sepuluh Nopember**

Oleh:

**ERSA DESMELINDA
NRP. 1113201002**

**Tanggal Ujian
Periode Wisuda**

**: 26 Juni 2015
: September 2015**

Disetujui Oleh:

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

(Pembimbing)

**2. Prof. Suminar Pratapa, Ph.D.
NIP.19660224 199002 1 001**

(Penguji)

**3. Dr. M. Zainuri, M.Si.
NIP. 19640130 199002 1 001**

(Penguji)

Direktur Program Pascasarjana

**Prof. Dr. Ir. Adi Soeprijanto, MT.
NIP. 19640405 199002 1 001**

**SINTESIS DAN KARAKTERISASI LISTRIK MATERIAL FERROELEKTRIK
BEBAS TIMBAL $0,8(\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3)$ - $0,2(\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3)$ DENGAN METODE
GABUNGAN REAKSI PADAT – KOPRESIPITASI OKSALAT**

Nama Mahasiswa : Ersas Desmelinda
NRP : 1113201002
Pembimbing : Prof. Dr. Suasmoro, DEA

ABSTRAK

Material ferroelektrik bebas timbal dengan struktur ABO_3 perovskite ($\text{A} = \text{K}_{0,4}, \text{Na}_{0,4}, \text{Ba}_{0,16}, \text{Sr}_{0,04}$ and $\text{B} = \text{Nb}_{0,8}, \text{Ti}_{0,2}$) telah berhasil disintesis dengan menggunakan metode gabungan reaksi padat dan kopresipitasi oksalat. $\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3$ (KNN) yang disintesis dengan metode reaksi padat dan $\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3$ (BST) berupa prekursor dan bubuk kalsinasi yang disintesis dengan metode kopresipitasi oksalat dicampur dengan perbandingan mol 0,8KNN dan 0,2BST dengan dua rute sintesis yaitu: KNN (kalsinasi) – BST (kalsinasi) sebagai rute pertama dan KNN (kalsinasi) – BST (tanpa kalsinasi) sebagai rute kedua. Bubuk $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ dari setiap rute dikalsinasi berdasarkan hasil analisis termal (DTA-TGA). Fasa tunggal dari $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ terbentuk dengan kalsinasi 1100°C selama 2 jam untuk rute pertama dan 700°C selama 2 jam untuk rute kedua. Perlakuan sintering dilakukan berdasarkan hasil dilatometri. Pelet yang telah disinter menunjukkan pepadatan yang bagus dengan sintering pada suhu 1200°C selama 2 jam. Terkait dengan volatilitas dari unsur alkali, dilakukan penambahan 4% mol K - 16% mol Na untuk rute pertama dan 2% mol K - 8% mol Na untuk rute kedua sehingga fasa tunggal $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ dalam bentuk pelet berhasil terbentuk. Setelah dilakukan analisis struktur dengan metode Rietveld *refinement*, diketahui bahwa bubuk KNN berstruktur perovskite orthorombik dengan $a=3,572027 \text{ \AA}$, $b=3,570713 \text{ \AA}$, $c=3,565755 \text{ \AA}$ dan bubuk BST berstruktur perovskite tetragonal dengan $a=b=3,983412 \text{ \AA}$, $c=3,995775 \text{ \AA}$. Diketahui pula bahwa sampel $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ dalam bentuk pelet dari kedua rute sintesis berstruktur perovskite tetragonal dengan parameter kisi $a=b=3,956166 \text{ \AA}$, $c=3,981212 \text{ \AA}$ dari rute pertama dan $a=b=3,949728 \text{ \AA}$, $c=3,965926 \text{ \AA}$ dari rute kedua. Karakterisasi listrik dari kedua sampel diidentifikasi dengan *impedance analyser*. $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ dari rute pertama memiliki suhu Curie $\sim 440^\circ\text{C}$ sedangkan dari rute kedua memiliki suhu Curie $\sim 420^\circ\text{C}$. Terdapat dua daerah energi aktivasi berbeda untuk kedua sampel yaitu: 0,9297 eV ($\sim 200^\circ\text{C}$ - $\sim 400^\circ\text{C}$) dan 1,4271 eV ($\sim 450^\circ\text{C}$ - $\sim 850^\circ\text{C}$) untuk sampel dari rute pertama dan 0,6419 eV ($\sim 200^\circ\text{C}$ - $\sim 400^\circ\text{C}$) dan 1,0397 eV ($\sim 450^\circ\text{C}$ - $\sim 850^\circ\text{C}$) untuk sampel dari rute kedua.

Key words: dielektrisitas, kopresipitasi, *perovskite*, oksalat

SINTESIS DAN KARAKTERISASI LISTRIK MATERIAL FERROELEKTRIK BEBAS TIMBAL $0,8(\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3)$ - $0,2(\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3)$ DENGAN METODE GABUNGAN REAKSI PADAT – KOPRESIPITASI OKSALAT

Nama Mahasiswa : Ersya Desmelinda
NRP : 1113201002
Pembimbing : Prof. Dr. Suasmoro, DEA

ABSTRAK

Material ferroelektrik bebas timbal dengan struktur ABO_3 perovskite ($A = \text{K}_{0,4}, \text{Na}_{0,4}, \text{Ba}_{0,16}, \text{Sr}_{0,04}$ and $B = \text{Nb}_{0,8}, \text{Ti}_{0,2}$) telah berhasil disintesis dengan menggunakan metode gabungan reaksi padat dan kopresipitasi oksalat. $\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3$ (KNN) yang disintesis dengan metode reaksi padat dan $\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3$ (BST) berupa prekursor dan bubuk kalsinasi yang disintesis dengan metode kopresipitasi oksalat dicampur dengan perbandingan mol $0,8\text{KNN}$ dan $0,2\text{BST}$ dengan dua rute sintesis yaitu: KNN (kalsinasi) – BST (kalsinasi) sebagai rute pertama dan KNN (kalsinasi) – BST (tanpa kalsinasi) sebagai rute kedua. Bubuk $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ dari setiap rute dikalsinasi berdasarkan hasil analisis termal (DTA-TGA). Fasa tunggal dari $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ terbentuk dengan kalsinasi 1100°C selama 2 jam untuk rute pertama dan 700°C selama 2 jam untuk rute kedua. Perlakuan sintering dilakukan berdasarkan hasil dilatometri. Pelet yang telah disinter menunjukkan pepadatan yang bagus dengan sintering pada suhu 1200°C selama 2 jam. Terkait dengan volatilitas dari unsur alkali, dilakukan penambahan 4% mol K - 16% mol Na untuk rute pertama dan 2% mol K - 8% mol Na untuk rute kedua sehingga fasa tunggal $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ dalam bentuk pelet berhasil terbentuk. Setelah dilakukan analisis struktur dengan metode Rietveld *refinement*, diketahui bahwa bubuk KNN berstruktur perovskite orthorombik dengan $a=3,572027 \text{ \AA}$, $b=3,570713 \text{ \AA}$, $c=3,565755 \text{ \AA}$ dan bubuk BST berstruktur perovskite tetragonal dengan $a=b=3,983412 \text{ \AA}$, $c=3,995775 \text{ \AA}$. Diketahui pula bahwa sampel $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ dalam bentuk pelet dari kedua rute sintesis berstruktur perovskite tetragonal dengan parameter kisi $a=b=3,956166 \text{ \AA}$, $c=3,981212 \text{ \AA}$ dari rute pertama dan $a=b=3,949728 \text{ \AA}$, $c=3,965926 \text{ \AA}$ dari rute kedua. Karakterisasi listrik dari kedua sampel diidentifikasi dengan *impedance analyser*. $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ dari rute pertama memiliki suhu Curie $\sim 440^\circ\text{C}$ sedangkan dari rute kedua memiliki suhu Curie $\sim 420^\circ\text{C}$. Terdapat dua daerah energi aktivasi berbeda untuk kedua sampel yaitu: $0,9297 \text{ eV}$ ($\sim 200^\circ\text{C}$ - $\sim 400^\circ\text{C}$) dan $1,4271 \text{ eV}$ ($\sim 450^\circ\text{C}$ - $\sim 850^\circ\text{C}$) untuk sampel dari rute pertama dan $0,6419 \text{ eV}$ ($\sim 200^\circ\text{C}$ - $\sim 400^\circ\text{C}$) dan $1,0397 \text{ eV}$ ($\sim 450^\circ\text{C}$ - $\sim 850^\circ\text{C}$) untuk sampel dari rute kedua.

Key words: dielektrisitas, kopresipitasi, *perovskite*, oksalat

**SYNTHESIS AND ELECTRICAL PROPERTIES OF LEAD FREE
FERROELECTRIC MATERIAL 0.8(Ka_{0.5}Na_{0.5}NbO₃)-0.2(Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO₃)
USING COMBINATION OF SOLID STATE REACTION-OKSALAT
COPRECIPITATION METHOD**

Name : Ersma Desmelinda
NRP : 1113201002
Supervisor : Prof. Dr. Suasmoro, DEA

ABSTRACT

Lead free ferroelectric material behave ABO₃ perovskite structure (A = K_{0.4}, Na_{0.4}, Ba_{0.16}, Sr_{0.04} and B = Nb_{0.8}, Ti_{0.2}) has been successfully synthesized using a combination of solid state reaction and oxalate coprecipitation method. A batch of K_{0.5}Na_{0.5}NbO₃ (KNN) synthesized through solid state reaction and a batch of Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO₃ (BST) precursor-calcined prepared via oxalate coprecipitation were mixed by 0.8 mol KNN and 0.2 mol BST for sample synthesis into two different routes: KNN(calcined)-BST(calcined) as first route and KNN(calcined)-BST (non calcined) as second route. (K_{0.4}Na_{0.4}Ba_{0.16}Sr_{0.04})(Nb_{0.8}Ti_{0.2})O₃ powders from each route were calcined based on thermal analysis (DTA-TGA). Single phase of (K_{0.4}Na_{0.4}Ba_{0.16}Sr_{0.04})(Nb_{0.8}Ti_{0.2})O₃ was formed by calcinations at 1100°C-2 hours for first route and at 700°C-2 hours for second route. The study of sintering was conducted by mean dilatometry. Sinter pellet sample shows good densification when sintering was took place at 1200°C for 2 hours. Due to volatility of alkaline element, K and Na were taken essesively by increasing 4% mol K - 16% mol Na for first route and 2% mol K - 8% mol Na for second route. Single phase of (K_{0.4}Na_{0.4}Ba_{0.16}Sr_{0.04})(Nb_{0.8}Ti_{0.2})O₃ pellet has been obtained successfully. After structure analysis using Rietveld refinements, known that KNN powder behave perovskite orthorombic structure with a=3.572027 Å, b=3.570713 Å, c=3.565755 Å and BST powder behave perovskite tetragonal structure with a=b=3.983412 Å, c=3.995775 Å. It also known that (K_{0.4}Na_{0.4}Ba_{0.16}Sr_{0.04})(Nb_{0.8}Ti_{0.2})O₃ pellets from both routes behave perovskite tetragonal structure with lattice parameter a=b=3.956166 Å, c=3.981212 Å for first route and a=b=3.949728 Å, c=3.965926 Å for second route. Electrical properties was identified by impedance analyzer. Curie temperature of (K_{0.4}Na_{0.4}Ba_{0.16}Sr_{0.04})(Nb_{0.8}Ti_{0.2})O₃ from first route is ~440°C and ~420°C for second route. There are two activation energy region of both sample : -0.9297 eV (~200°C - ~400°C) and 1.4271 eV (~450°C - ~850°C) for sample by first route and 0.6419 eV (~200°C - ~400°C) and 1.0397 eV (~450°C - ~850°C) for sample by second route.

Keywords: dielectricity, coprecipitation, perovskite, oxalate

KATA PENGANTAR

Alhamdulillahirabbil'alamin. Puji syukur kepada Allah SWT yang Maha Pengasih dan Penyayang penulis ucapkan karena hanya dengan izin-Nya penulis dapat menyelesaikan penelitian yang berjudul "Sintesis dan Karakterisasi Listrik Material Ferroelektrik Bebas Timbal $0,8(\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3)-0,2(\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3)$ dengan Metode Gabungan Reaksi Padat-Kopresipitasi Oksalat".

Pada kesempatan ini penulis juga ingin menyampaikan terima kasih banyak kepada semua pihak yang telah banyak membantu penulis dalam penyelesaian tugas ini, diantaranya:

1. Prof. Dr. Suasmoro selaku dosen wali sekaligus dosen pembimbing tesis yang senantiasa memberikan bimbingan, wawasan, dan motivasi sejak awal penulis menjadi mahasiswa beliau hingga kini.
2. Prof. Drs. Suminar Pratapa, M.Sc., Ph.D selaku dosen penguji yang telah banyak memberikan masukan positif bagi penelitian dan penulisan laporan penelitian ini.
3. Dr. Drs. M. Zainuri, M.Si selaku dosen penguji yang telah banyak memberikan masukan positif bagi penelitian dan penulisan laporan penelitian ini.
4. Rekan satu tim penelitian: Bapak Imam Rofi'i, Mbak Rizki Noviani, Mas Anthon Thoim, adinda Dian Agustinawati, adinda Amalia Ma'rifatul Maghfiroh dan adinda Nur Lailiyah Isnaini yang telah mendampingi pelaksanaan penelitian sehingga dapat tersusunnya tesis ini.
5. Teman-teman satu angkatan Magister Fisika 2013 yang senantiasa memberi motivasi kepada penulis.

Penulis menyadari, bahwa proposal tesis ini tentunya banyak memiliki kekurangan di sana sini karena kurangnya pengalaman dan pengetahuan penulis sendiri. Oleh karena itu, kritik dan saran yang bersifat membangun terutama dari dosen pembimbing dan dosen-dosen penguji sangat penulis harapkan demi perbaikan di masa akan datang.

DAFTAR ISI

LEMBAR PENGESAHAN	i
ABSTRAK	ii
ABSTRACT	iii
KATA PENGANTAR	iv
DAFTAR ISI	v
DAFTAR GAMBAR	vii
DAFTAR TABEL	viii
DAFTAR LAMPIRAN	ix
BAB 1 PENDAHULUAN	1
1.1. Latar Belakang	1
1.2. Perumusan Masalah	2
1.3. Tujuan Penelitian.....	2
1.4. Manfaat Penelitian.....	2
BAB 2 LANDASAN TEORI	3
2.1. Struktur Material Berbasis Niobat dan Titanat	3
2.2. Karakterisasi Dielektrisitas dan Konduktivitas Material	8
BAB 3 METODE PENELITIAN	13
3.1. Material	13
3.2. Alat dan Bahan.....	13
3.3. Metode Sintesis	14
3.4. Metode Karakterisasi.....	17
BAB 4 HASIL DAN PEMBAHASAN	19
4.1. Sintesis KNN-BST.....	19
4.2. Karakterisasi Listrik KNN-BST.....	28

BAB 5 KESIMPULAN DAN SARAN	37
5.1. Kesimpulan.....	37
5.2. Saran.....	37
DAFTAR PUSTAKA	39
LAMPIRAN	41
BIODATA PENULIS	50

DAFTAR TABEL

Tabel 1. Struktur Kristal dan Parameter Kisi KNN dan BST.....	20
Tabel 2. Parameter Kisi Serbuk $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$	24
Tabel 3. Data Jari-Jari Ion	24
Tabel 4. Parameter Kisi Pelet $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$	26
Tabel 5. Densitas $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$	27
Tabel 6. Suhu Curie	28
Tabel 7. Energi Aktivasi $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$	34

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1. Struktur Perovskite.....	3
Gambar 2.2. Karakteristik Piezoelektrik dan Permittivitas Relatif (Saito).....	4
Gambar 2.3. Pola XRD KNN dan BST.....	5
Gambar 2.4. Suhu Transisi dan Tetragonalitas $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$	5
Gambar 2.5. Pola XRD dan SEM KNN-BCT.....	6
Gambar 2.6. Permittivitas Relatif dan Tangen <i>loss</i> KNN-BCT.....	7
Gambar 2.7. Variasi konstanta dielektrik dan <i>loss</i> terhadap frekuensi.....	8
Gambar 2.8. Plot konstanta dielektrik sebagai fungsi frekuensi.....	9
Gambar 2.9. Plot Cole-Cole impedansi $Z'-Z''$	10
Gambar 3.1. Diagram alir sintesis KNN.....	14
Gambar 3.2. Diagram alir sintesis BST.....	15
Gambar 3.3. Diagram Alir Penelitian.....	16
Gambar 4.1. Pola XRD KNN dan BST (Kalsinasi 700°C-2 Jam).....	19
Gambar 4.2. Kurva TGA-DTA.....	21
Gambar 4.3. Volatilitas Unsur Alkali.....	22
Gambar 4.4. Pola XRD serbuk KNN-BST.....	22
Gambar 4.5. Hasil Uji Dilatometri.....	25
Gambar 4.6. Pola XRD Pelet KNN-BST.....	26
Gambar 4.7. Struktur Perovskite KNN-BST.....	27
Gambar 4.8. Hubungan Permittivitas Relatif dan Suhu.....	28
Gambar 4.9. Hubungan Permittivitas Relatif dan Frekuensi.....	30
Gambar 4.10. Plot Cole-Cole $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ (K-K).....	31
Gambar 4.11. Plot Cole-Cole $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ (K-NK).....	32
Gambar 4.12. Faktor Disipasi $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$	33
Gambar 4.13. Konduktivitas KNN-BST.....	34

BAB I PENDAHULUAN

1.1.Latar Belakang

Material ferroelektrik merupakan salah satu jenis material yang memiliki peranan penting di dunia sains dan industri. Sebut saja beberapa contoh pemanfaatan material ferroelektrik pada rangkaian elektronik seperti: varator pada rangkaian *microwave*, modulator elektro-optik, bahan dielektrik yang baik untuk kapasitor, *FeRAM (ferroelectric RAM)*, *ferroelectric tunnel junction*, bahan *multiferroic*, tansduser piezoelektrik, detektor piroelektrik, PTC (*positive temperature coefficient*) dan sensor infra merah (Suasmoro, et al, 2000 dan Fu, J.S., 2009).

Material ferroelektrik yang telah digunakan secara meluas di dunia industri piranti elektronik adalah material berbasis timbal (Pb), khususnya PZT. Material berbasis timbal disukai oleh dunia industri karena sifat kelistrikannya yang unggul yaitu dengan temperatur Curie berkisar pada daerah 250-400°C dengan d_{33} berkisar pada 400-500 pC/N (Saito, Y., et al, 2004).

Fakta mengejutkan muncul saat diketahui bahwa industri timbal menimbulkan polusi yang berbahaya bagi kesehatan manusia dan lingkungan. Fakta ini memotivasi pencarian material ferroelektrik pengganti yang bebas timbal dan lebih ramah lingkungan. Banyak penelitian yang telah dilakukan sebagai bentuk upaya memenuhi kebutuhan ini. Sampai saat ini, berbagai macam material masih dikembangkan untuk mencari solusi yang paling tepat.

Pada penelitian ini akan disintesis material ferroelektrik berbasis niobat yaitu $\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3\text{-Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3$ (selanjutnya akan ditulis KNN-BST). Material keramik berbasis KaNbO_3 memiliki tanda-tanda sebagai material ferroelektrik. Hal ini diketahui dari banyak penelitian yang telah dilakukan sebelumnya. Wang, dkk melaporkan bahwa bahan keramik $0,7(\text{K}_{0,48}\text{Na}_{0,52})\text{NbO}_3\text{-}0,058(\text{K}_{2,9}\text{Li}_{1,95}\text{Nb}_{5,15}\text{O}_{15,3})$ yang disintesis dengan metode reaksi padat memiliki suhu Curie 495°C dengan permitivitas relatif yang cukup baik, yaitu $\epsilon_r = 478$ pada suhu ruang dengan ϵ_r maksimum bernilai 5067.

Di dalam penelitian lain, Hongliang Du, et al (2009) menemukan nilai maksimum permitivitas $\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3\text{-Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{TiO}_3$ mendekati 2500 pada rentang suhu 100°C-250°C dengan dielektrik *loss* kurang dari 4%.

Golmohammad, et al (2012) menemukan nilai konstanta dielektrik untuk bahan $Ba_{0,7}Sr_{0,3}TiO_3$ yang disintesis dengan metode sol gel pada suhu ruang berada pada rentang 6357 hingga 9447 pada frekuensi antara 120 Hz hingga 10 kHz.

Berdasarkan fakta-fakta yang telah dipaparkan, maka kami memutuskan untuk menyintesis material ferroelektrik berstruktur *perovskite* ABO_3 dengan $A = K, Na, Ba, Sr$ dan $B = Nb, Ti$ dan komposisi $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$. Hal ini dilakukan sebagai upaya untuk mendapatkan material ferroelektrik fasa tunggal berstruktur *perovskite* yang tangguh secara mekanik dan memiliki sifat listrik yang unggul.

1.2. Perumusan Masalah

Permasalahan yang mendasari penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Bagaimana struktur *perovskite* fasa tunggal ABO_3 dengan $A = K, Na, Ba, Sr$ dan $B = Nb, Ti$ yang disintesis dengan metode gabungan reaksi padat-kopresipitasi oksalat.
2. Bagaimana sifat listrik, khususnya dielektrisitas dan suhu Curie dari material bebas timbal fasa tunggal ABO_3 dengan $A = K, Na, Ba, Sr$ dan $B = Nb, Ti$ yang disintesis dengan metode gabungan reaksi padat-kopresipitasi oksalat.

1.3. Tujuan Penelitian

Penelitian ini dilakukan dengan tujuan:

1. Menyintesis material bebas timbal berstruktur *perovskite* fasa tunggal ABO_3 dengan $A = K, Na, Ba, Sr$ dan $B = Nb, Ti$ menggunakan metode gabungan reaksi padat-kopresipitasi oksalat.
2. Melakukan karakterisasi sifat listrik, khususnya dielektrisitas dan suhu Curie dari material yang disintesis.

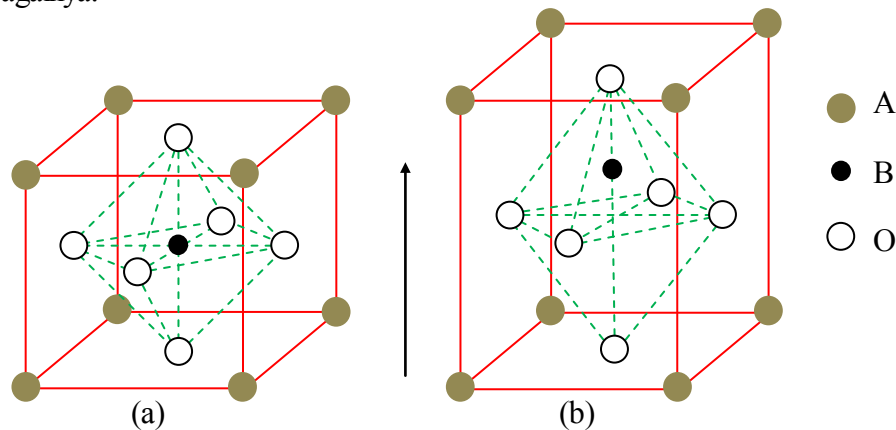
1.4. Manfaat Penelitian

Penelitian ini diharapkan mampu menghasilkan material ferroelektrik ramah lingkungan dengan sifat listrik yang baik sehingga dapat digunakan sebagai material alternatif pada berbagai aplikasi elektronik.

BAB II LANDASAN TEORI

1.1. Struktur Material Berbasis Niobat dan Titanat

Material berbasis niobat dan titanat diketahui memiliki struktur perovskite. Perovskite merupakan sebutan bagi 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.

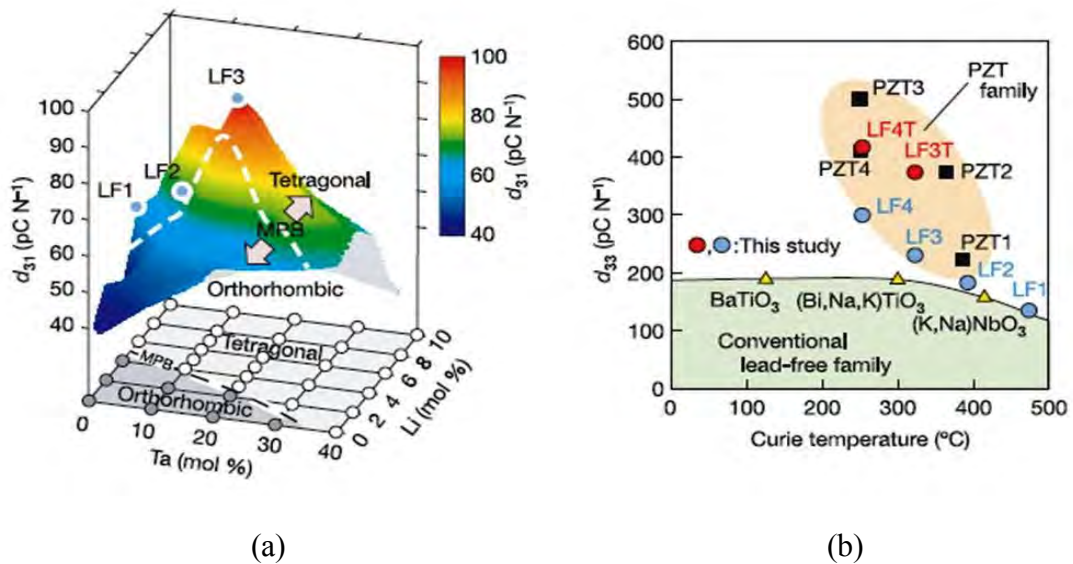


Gambar 2.1. Struktur Perovskite: a. pada fasa kubik, b. pada fasa tetragonal
(Chiang, Y.M., 1997)

Bahan ferroelektrik memiliki struktur perovskite. Material berstruktur perovskite ini dapat menjadi penyimpan muatan listrik yang baik akibat terbentuknya polarisasi pada bahan. Mekanisme terbentuknya polarisasi dapat dijelaskan akibat adanya transisi fasa kubik menjadi tetragonal pada suhu tertentu yang dikenal dengan suhu 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 membuatnya bersifat dipol sehingga pada skala makroskopis terjadi pemisahan muatan positif dan negatif atau dengan kata lain material bersifat dielektrik.

Dengan karakteristik dielektriknya, material perovskite memiliki potensi aplikasi yang cukup luas seperti pada kapasitor, termistor, peralatan elektro-optik, *non-volatile* DRAM (*dynamic random access memory*), aplikasi ultrasonik, *transducer* dan sebagainya. (Suasmoro, et al, 2000)

Ada banyak jenis metode sintesis material keramik seperti metode reaksi padat, sol-gel, *molten salt*, kopresipitasi, hidrotermal, CVD dan sebagainya, namun secara umum metode sintesis ini terbagi menjadi dua jenis yaitu *top-down process* dan *bottom-up process*. Metode reaksi padat adalah salah satu metode sintesis yang disukai karena prosedur dan pemilihan bahan dasarnya yang relatif lebih mudah. Metode reaksi padat tergolong kepada *top-down process*. Kopresipitasi (pengendapan) merupakan salah satu jenis dari *bottom up process*. Kopresipitasi oksalat adalah proses pengendapan dengan bantuan asam oksalat sebagai agen pengendap. Keunggulan metode sintesis jenis *bottom up process* adalah di dapat hasil sintesis yang lebih homogen dengan ukuran partikel yang lebih kecil.

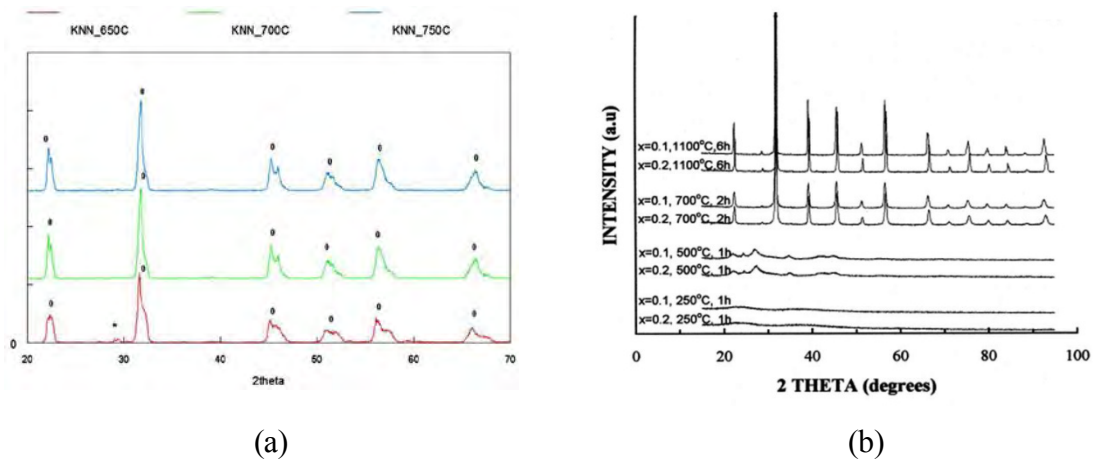


Gambar 2.2. Karakteristik piezoelektrik (a) konstanta d_{31} $(K_{0,5}Na_{0,5})_{1-x}Li_x(Nb_{1-y}Ta_y)O_3$ sebagai fungsi komposisi Li dan Ta dengan LF1 ($x=0,06;y=0$), LF2 ($x=0,04;y=0,10$), LF3 ($x=0,03;y=0,2$) dan (b) konstanta d_{33} berbagai material sebagai fungsi temperatur curie (Saito, Y., et al, 2004)

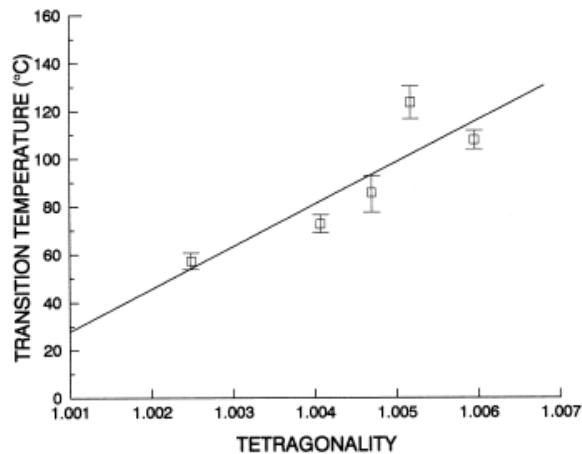
Dari perkembangan penelitian yang dilakukan, diketahui bahwa material berstruktur perovskite tidak hanya diperoleh dari kation bervalensi +2 pada situs A dan +4 pada situs B seperti pada $BaTiO_3$. Kation bervalensi +1 seperti Li, K, Na juga dapat berada di situs A perovskite dengan kation bervalensi +5 seperti Nb, Ta, Sb pada situs B. Penelitian yang dikembangkan oleh Saito dkk (2004) menghasilkan material dengan

komposisi MPB (*morphotropic phase boundary*) yang terdiri dari fasa tetragonal dan orthorombik dengan variasi komposisi Li dan Ta.

Melalui penelitiannya, Saito,dkk berhasil menemukan material LF4T dengan komposisi $(K_{0,44}Na_{0,52}Li_{0,04})(Nb_{0,84}Ta_{0,10}Sb_{0,06})O_3$ yang memiliki karakteristik piezoelektrik (d_{33}) unggul dan hampir setara dengan yang dimiliki material $PbZrTiO_3$ (Gambar 2.2). Hasil penelitian tersebut menjadi pemicu dikembangkannya material berbasis niobat lainnya.



Gambar 2.3. Pola XRD (a). KNN (Rohmah, N.A., 2014) (b). BST (S. Suasmoro, S. Pratapa, D. Hartanto, D. Setyoko dan U.M. Dani, 2000)

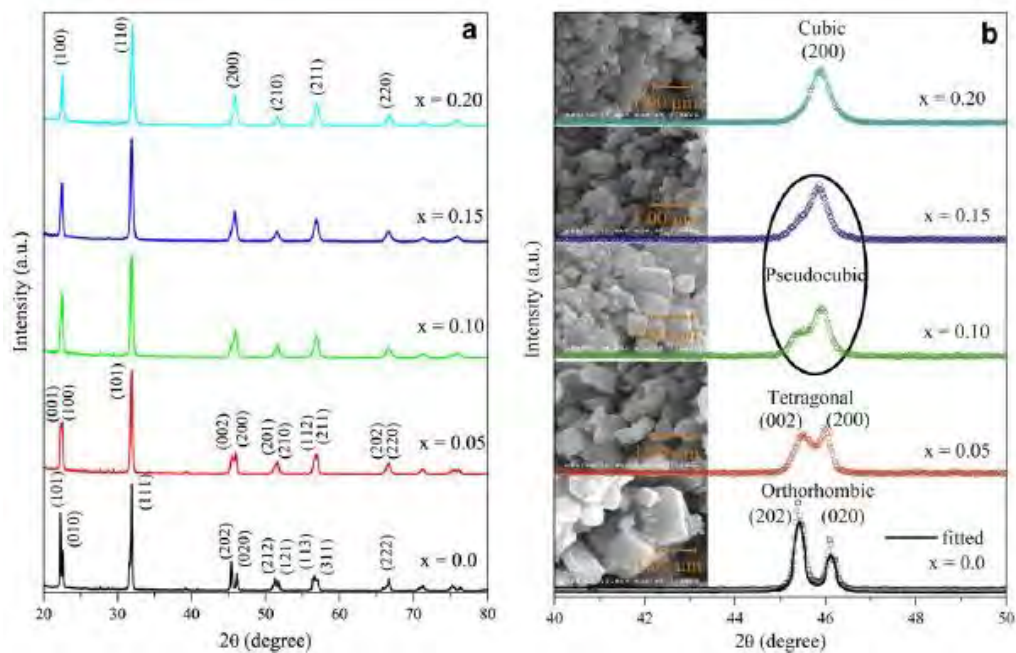


Gambar 2.4. Suhu Transisi dan Tetragonalitas $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ (S. Suasmoro, S. Pratapa, D. Hartanto, D. Setyoko dan U.M. Dani, 2000)

Dari penelitian yang telah dilakukan oleh Rohmah, N.A., kristal $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ fasa tunggal yang disintesis dengan metode reaksi padat terbentuk pada suhu kalsinasi

700°C selama 2 jam dengan struktur tertagonal *perovskite* dengan $a=b=3,9587 \text{ \AA}$ dan $c=4,0137 \text{ \AA}$.

Kristal fasa tunggal $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$ berstruktur *perovskite* yang disintesis dengan metode kopresipitasi oksalat terbentuk pada suhu 700°C selama 2 jam (Suasmoro, et alS. Pratapa, D. Hartanto, D. Setyoko dan U.M. Dani, 2000). Dari penelitian tersebut juga ditemukan fakta bahwa tetragonalitas berkurang dengan peningkatan konsentrasi ion Sr^{2+} yang berada di situs Ba^{2+} , dimana selanjutnya diketahui bahwa suhu transisi berbanding lurus terhadap tetragonalitas.

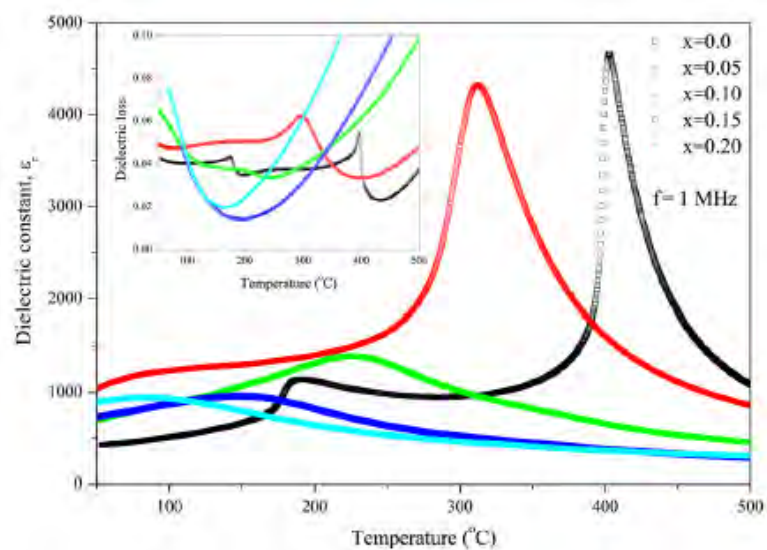


Gambar 2.5. (a). Pola XRD $(1-x)\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3-x\text{Ba}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{TiO}_3$ (b). Hasil SEM dan pola difraksi bidang 200 yang diperbesar sehingga menunjukkan perubahan fasa (Cho, C.W. et al, 2012)

Hongliang Du telah menyintesis material KNN berstruktur *perovskite* orthorombik, namun dengan penambahan $(\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$ terjadi perubahan struktur menjadi *perovskite* tetragonal, pseudokubik lalu kubik. Hasil serupa juga didapat oleh Cho, C.W. et al yang menyintesis $(1-x)\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3-x\text{Ba}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{TiO}_3$. Pada suhu ruang $\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3$ 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 $c=5,721 \text{ \AA}$. Dengan penambahan $\text{Ba}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{TiO}_3$, terjadi perubahan struktur pada sistem kristal $(1-x)\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3-x\text{Ba}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{TiO}_3$. Sistem kristal berstruktur tetragonal untuk $x=0,05$, pseudokubik

untuk $x=0,10$ dan $0,15$. Dengan $x=0,20$, terbentuk kristal dengan struktur kubik perovskite (Cho, C.W., et al, 2012).

Perubahan struktur akibat penambahan $Ba_{0,5}Ca_{0,5}TiO_3$ ini berhubungan dengan perbedaan ukuran dari jari-jari ion. Jari-jari ion rerata di situs A lebih kecil daripada $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ atau dengan kata lain jari-jari ion rerata di situs B lebih besar daripada $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$. Penambahan $Ba_{0,5}Ca_{0,5}TiO_3$ ke sistem $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ mengurangi perbedaan jari-jari ion rerata antara ion di situs A dan ion di situs B sehingga menurunkan tingkat asimetri sistem kristal (Cho,C.W.et al, 2012).



Gambar 2.6. Pengaruh suhu terhadap permitivitas dielektrik dan tangent loss dari $(1-x)K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3-xBa_{0,5}Ca_{0,5}TiO_3$ pada frekuensi 1 MHz (Cho,C.W.et al, 2012)

$K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ memiliki dua puncak dielektrik yang berhubungan dengan transisi fasa orthorombik-tetragonal pada suhu sekitar $200^{\circ}C$ dan transisi tetragonal-kubik pada suhu sekitar $400^{\circ}C$. Penambahan $Ba_{0,5}Ca_{0,5}TiO_3$ ke sistem KNN menimbulkan terbentuknya hanya satu puncak dielektrik dan dapat menurunkan suhu Curie. Konstanta dielektrik maksimum untuk $(1-x)K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3-xBa_{0,5}Ca_{0,5}TiO_3$ bernilai ~ 4500 dengan komposisi $x=0,05$ dan suhu curie $\sim 313^{\circ}C$. Untuk komposisi $x \geq 0,10$ konstanta dielektrik maksimum sampel berkisar di daerah ~ 1000 . Penambahan komposisi BCT menurunkan suhu Curie dan konstanta dielektrik.

1.2.Karakterisasi Dielektritas dan Konduktivitas Material

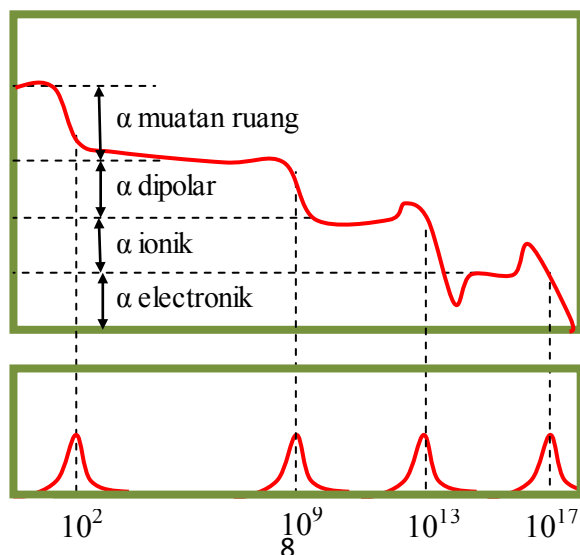
Sifat listrik material dielektrik $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ sebagai fungsi frekuensi dapat diperoleh dengan menggunakan *impedance analyzer* ataupun LCR meter. Parameter berupa nilai kapasitansi yang diperoleh dari hasil pengukuran listrik dapat digunakan untuk menentukan nilai permitivitas relatif atau konstanta dielektrik (k) material pada berbagai frekuensi dengan menggunakan persamaan:

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

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 menuruti hukum Curie-Weiss:

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

dimana A adalah tetapan yang bergantung pada jenis material dan θ_c 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 θ_c . Hal ini terkait dengan polarisasi maksimum yang terjadi di sekitar temperatur kritis tersebut akibat adanya perubahan fasa.



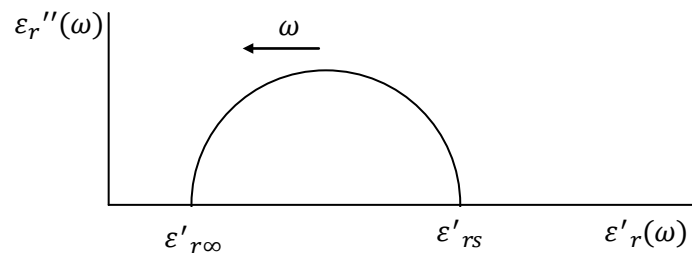
Gambar 2.7. Variasi konstanta dielektrik terhadap frekuensi (atas) dan variasi dielektrik loss terhadap frekuensi (bawah)

Terdapat beberapa jenis polarisasi yang mungkin terjadi pada material dielektrik yaitu polarisasi elektronik, atomik, dipolar, dan muatan ruang. Sebagaimana ditunjukkan pada Gambar 2.7, masing-masing jenis polarisasi ini akan memberikan respon terhadap frekuensi yang berbeda domainnya (Suasmoro, 2012). Persamaan polarisasi bergantung waktu untuk polarisasi dipolar yaitu:

$$P_d^* = k_s \exp\left(-\frac{t}{T}\right) + \frac{(k_s - k_\infty)}{1 + j\omega\tau} E_o \exp(j\omega\tau) \quad (2.3)$$

dimana k_s dan k_∞ secara berturut-turut merupakan konstanta dielektrik frekuensi rendah dan tinggi, τ adalah tetapan waktu relaksasi dan ω adalah frekuensi. Dari persamaan polarisasi tersebut diperoleh konstanta dielektrik sebagai besaran kompleks yang memenuhi persamaan:

$$k^* = k_\infty + \frac{k_s - k_\infty}{1 + j\omega\tau} \quad (2.4)$$



Gambar 2.8. Plot konstanta dielektrik $\epsilon_r' - \epsilon_r''(k' - k'')$ sebagai fungsi frekuensi ω

Dari besaran kompleks tersebut dapat dijabarkan komponen real dan imajiner (persamaan 2.5 dan 2.6) sedangkan plot konstanta dielektrik $k' - k''$ berbentuk semisirkel atau plot Cole-Cole (Gambar 2.8). Bila pada plot dihasilkan suatu semisirkel sempurna, ini berarti hanya ada satu polarisasi pada material dielektrik. Bila pada plot terdapat ekor maka hal ini mengindikasikan lebih dari satu polarisasi pada material dan menunjukkan adanya *loss factor*. Adanya *loss factor* (δ) merupakan akibat dari disipasi energi listrik menjadi panas dan biasanya ditampilkan sebagai faktor

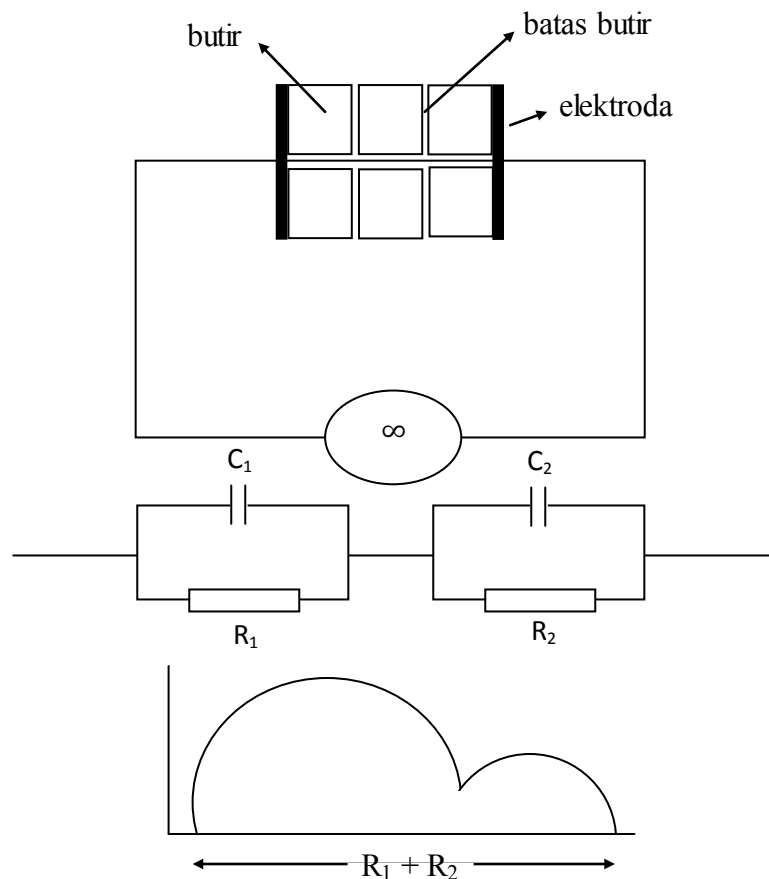
disipasi ($\tan \delta$) yang merupakan rasio antara konstanta dielektrik imajiner dan riil (persamaan 2.7).

$$k' = k_{\infty} + \frac{k_s - k_{\infty}}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (2.5)$$

$$k'' = (k_s - k_{\infty}) \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (2.6)$$

$$\tan \delta = \frac{k''}{k'} = \frac{(k_s - k_{\infty}) \omega \tau}{k_s + k_{\infty} \omega^2 \tau^2} \quad (2.7)$$

Disamping dielektrisitas, dapat pula dilakukan analisis impedansi kompleks pada material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$. Dalam hal ini, bahan dielektrik dimodelkan sebagai rangkaian listrik ekivalen dari rangkaian seri-paralel resistor dan kapasitor dari plat sejajar seperti diilustrasikan pada Gambar 2.9. Plat sejajar yang berisi bahan dielektrik kemudian dihubungkan dengan LCR meter untuk memperoleh respon impedansi kompleks terhadap sumber arus bolak-balik.



Gambar 2.9. Model Rangkaian Bahan Ferroelektrik dan Plot Cole-Cole

Dari model rangkaian pada Gambar 2.9 tersebut akan diperoleh plot Cole-Cole impedansi $ZZ'-ZZ''$ berupa kurva setengah lingkaran (*semicircle*) dimana tiap semisirkel merupakan respon dari sebuah rangkaian paralel R-C (Suasmoro, 2012) dimana semisirkel pertama berkaitan dengan kontribusi butir (*bulk*) pada frekuensi tinggi dan semisirkel kedua berkaitan dengan kontribusi batas butir (*grain boundary*) pada frekuensi rendah. Respon listrik tersebut memenuhi persamaan berikut:

$$Z^* = R(1 - j\omega RC)/(1 + \omega^2 R^2 C^2) \quad (2.8)$$

Sebagai material dielektrik, $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ memiliki konduktivitas yang cukup kecil yaitu berkisar antara 10^{-10} hingga $10^{-20} (\Omega.m)^{-1}$ dan nilainya dapat diperoleh dari pengukuran diameter *semicircle* $Z' - Z''$ plot Cole-Cole impedansi. Konduktivitas juga dipengaruhi oleh temperatur dan memenuhi persamaan Arrhenius:

$$\sigma = \sigma_0 \exp\left(-\frac{\Delta E}{kT}\right) \quad (2.9)$$

dimana σ_0 adalah tetapan yang tidak bergantung temperatur, k tetapan Boltzmann ($1,38 \times 10^{-23} \text{ J/K}$) dan ΔE adalah energi aktivasi yang dapat dihitung dari gradien persamaan pada grafik plot $\log \sigma$ terhadap $1/T$.

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

BAB III METODE PENELITIAN

3.1. Material

Material yang akan disintesis adalah bahan keramik $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ dan $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ dengan perbandingan mol 0,8 mol $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ dan 0,2 mol $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ sehingga membentuk keramik larutan padat $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dengan struktur perovskite.

3.2. Alat dan Bahan

Peralatan yang digunakan pada penelitian ini diantaranya adalah:

1. *Laboratory planetary milling* “Pulverisette 5” (Fritsch GmbH)
2. *Evaporator rotatif* “VV Micro” (Heidolph)
3. Oven (pengering sampel) dan *furnace*
4. Spatula, mortal dan gelas baker
5. Timbangan digital
6. Magnetik *stirrer*
7. Termometer
8. *Crucible* dan plat alumina
9. Cetakan pelet diameter 13 mm

Bahan-bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah:

1. K_2CO_3 , Na_2CO_3 dan Nb_2O_5
2. Asam oksalat ($H_2C_2O_4$)
3. Titanium Klorida ($TiCl_4$)
4. $BaCl_2 \cdot 2H_2O$ dan $SrCl_2 \cdot 2H_2O$
5. Akuades
6. Alkohol

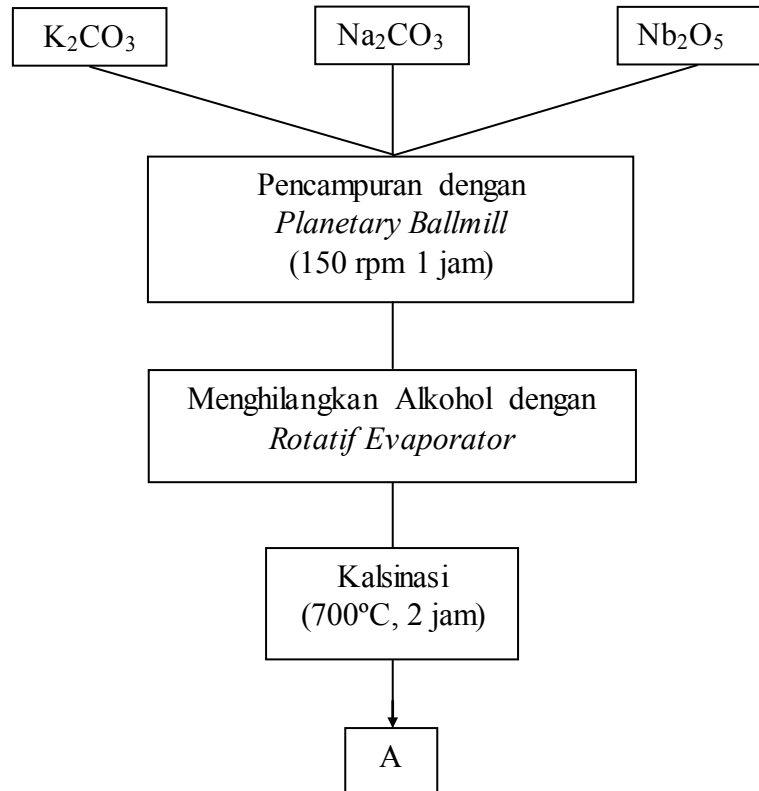
Sedangkan untuk karakterisasi digunakan:

1. *Thermal Gravimetry Analysis* dan *Differential Scanning Calorimetry* (TGA/DSC)
2. *X-Ray Diffractometer* (XRD)
3. Dilatometer
4. *Impedance Analyzer* Solartron

3.3. Metode Sintesis

3.3.1. Sintesis KNN

Metode yang digunakan untuk menyintesis $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ adalah metode reaksi padat. Secara lebih rinci dapat dilihat pada diagram alir pada gambar berikut:



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

3.3.2. Sintesis BST

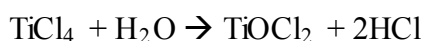
Material $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ disintesis dengan metode kopresipitasi oksalat. Pada proses sintesis $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ dengan metode ini, dilakukan penyiapan beberapa larutan. Langkah-langkah sintesis $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ adalah:

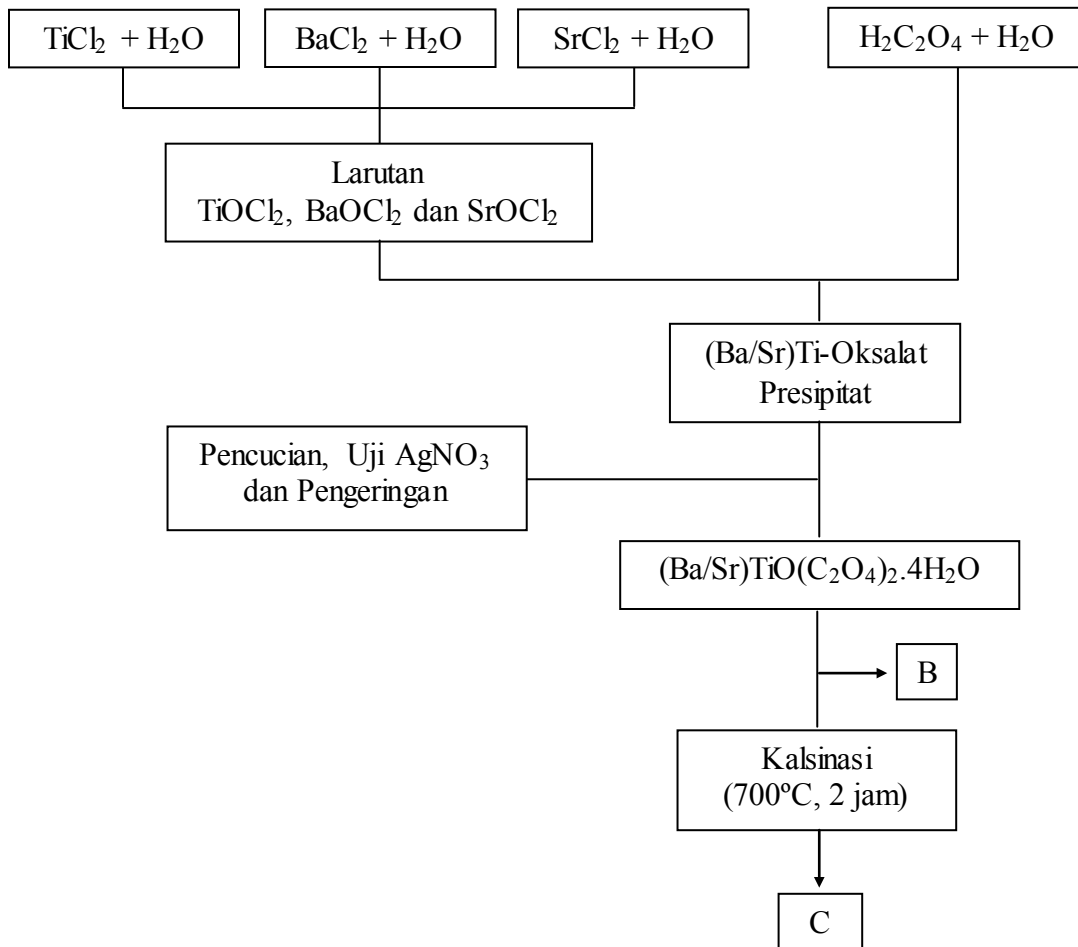
1. Penyiapan larutan A: larutan asam oksalat

Asam oksalat dilarutkan di dalam akuades pada suhu 40°C dengan bantuan magnetik *stirrer*. Perbandingan: 170 ml akuades untuk setiap 50,5 gr asam oksalat.

2. Penyiapan larutan B: larutan $TiOCl_2$

Cairan $TiCl_4$ dicampur ke dalam akuades dengan perbandingan 2 mol $TiCl_4$ untuk setiap liter akuades.



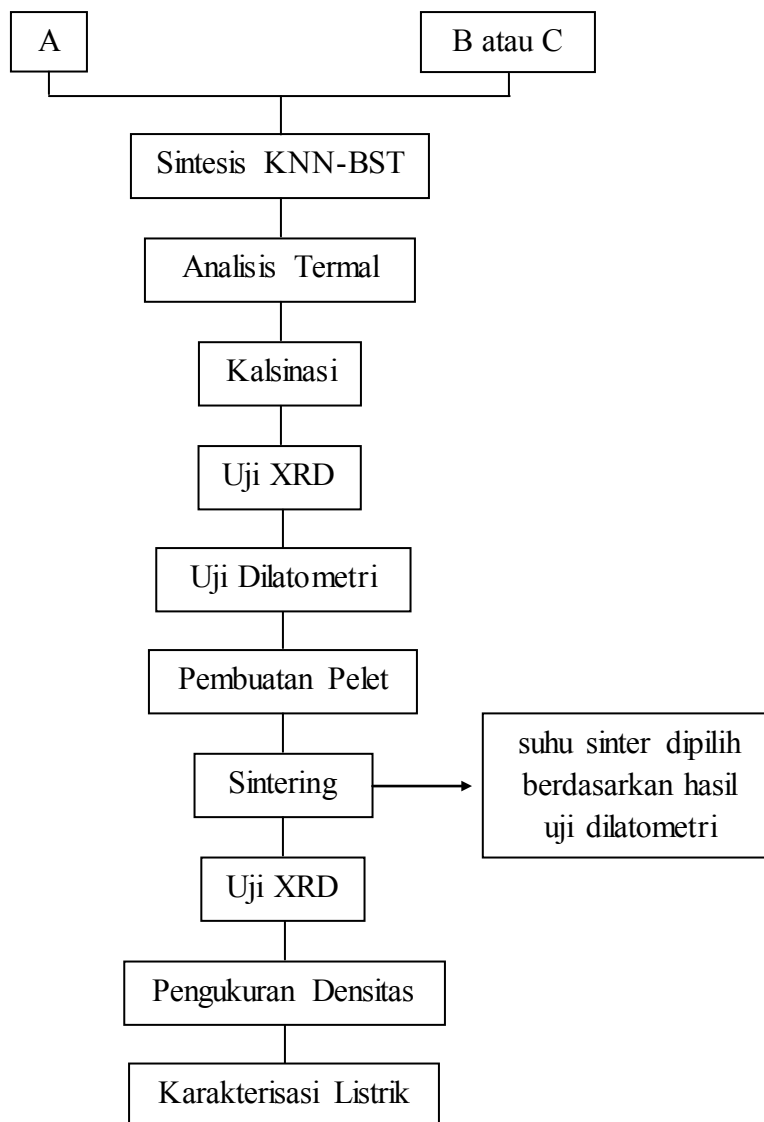


Gambar 3.2. Diagram alir sintesis BST (Suasmoro, 2012)

3. Larutan C: prekursor $\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3$
 Penambahan serbuk $\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ dan serbuk $\text{SrCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ke dalam larutan B dengan perbandingan 1 mol untuk setiap 0,5 liter larutan B. Kemudian encerkan dengan penambahan akuades sebanyak 1600 ml untuk setiap mol penambahan $\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ maupun $\text{SrCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$. Lakukan pelarutan dengan menjaga suhu antara 40°C - 45°C hingga bening.
4. Bila telah bening, tambahkan larutan A ke dalam larutan C. Biarkan dalam keadaan tetap diaduk dan tetap dipanaskan hingga terbentuk penggumpalan berwarna putih yang telah jenuh.
5. Saring dan cuci berkali-kali untuk menghilangkan ion Cl^- . Lakukan uji AgNO_3 untuk melihat apakah masih terdapat ion Cl^- pada endapan atau tidak.

3.3.3. Sintesis $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$

Bubuk KNN dan BST yang telah dikalsinasi ditimbang sesuai perbandingan stoikiometri, lalu dicampur menggunakan *planetary milling* dengan medium alkohol selama 2 jam dengan kecepatan putar 150 rpm untuk memperoleh campuran 0,8KNN-0,2BST. Medium *milling* alkohol diuapkan dengan bantuan rotatif evaporator dan dikeringkan di dalam oven. Hasil sintesis yang diharapkan adalah bahan keramik larutan padat $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$.



Gambar 3.3. Diagram alir penelitian,
A-B untuk variasi 1 dan A-C untuk variasi 2

3.4. Metode Karakterisasi

Bahan yang telah disintesis akan dikarakterisasi dengan beberapa metode yaitu:

1. Analisis termal melalui uji TGA-DTA. Hal ini dilakukan untuk memperoleh informasi mengenai perubahan massa yang terjadi pada rentang temperatur tertentu (analisis TGA) serta fenomena endotermik atau eksotermik (analisis DTA) yang menyertai perubahan massa tersebut. Selanjutnya hasil analisis termal TGA-DTA menjadi landasan untuk menentukan temperatur kalsinasi suatu bahan.
2. Difraksi sinar-X dilakukan untuk memperoleh pola XRD yang selanjutnya dianalisis untuk mengetahui fasa yang terkandung dalam suatu bahan. Pengujian difraksi sinar-X menggunakan difraktometer tipe *Philips X'Pert MPD (Multi Purpose Diffractometer)* di Laboratorium Difraksi Sinar-X RC (*Research Center*) LPPM ITS Surabaya atau di Laboratorium Teknik Material ITS. Pengukuran dilakukan pada tegangan 40 kV dan arus 30 mA dengan logam target Cu ($\lambda=1,54056 \text{ \AA}$). Analisis fasa dari pola XRD dilakukan dengan menggunakan program *Match!*. Dari data XRD juga dapat diperoleh parameter kisi bahan yang dilakukan melalui penghalusan pola terhitung dan terukur menggunakan program *Rietica* yang berbasis metode pencocokan Rietveld.
3. Kajian dilatometri dilakukan untuk mengetahui karakteristik penyusutan (*shrinkage*) suatu bahan dalam bentuk *green compact* pada rentang temperatur tertentu. Hasil analisis dilatometri dapat dijadikan pertimbangan dalam tahap densifikasi bahan.
4. Pengukuran densitas dilakukan dengan menggunakan metode Archimedes yaitu dengan mengukur massa kering, massa basah dan massa di dalam air dari pelet sampel. Nilai densitas sampel ρ 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.

5. Karakterisasi listrik dilakukan dengan menggunakan alat *Impedance Analyzer* Solartron. Penyiapan sampel sebelum karakterisasi listrik adalah pelapisan sampel pelet dengan pasta perak sebagai elektroda. Pemanasan dilakukan untuk menguapkan koloid toluena yang digunakan sebagai pengencer pasta perak. Pelet yang telah dilapisi elektroda dikarakterisasi sifat listriknya dengan *impedance analyzer* Solartron dengan data keluaran berupa:

- a. Impedansi real (Z)
- b. Impedansi kompleks (Z^*)
- a. Konstanta dielektrik (k)
- b. Faktor disipasi ($\tan \delta$)

sebagai fungsi suhu dan frekuensi tegangan AC. Variasi suhu dilakukan dari suhu ruang $\sim 27^\circ\text{C}$ hingga $\sim 850^\circ\text{C}$ dengan rentang pengukuran 50°C pada suhu $< 200^\circ\text{C}$ dan 10°C pada suhu $> 200^\circ\text{C}$. Variasi frekuensi tegangan AC dilakukan dari 0,1 Hz hingga $3,2 \times 10^7$ Hz. Dari pengolahan data keluaran selanjutnya akan diperoleh:

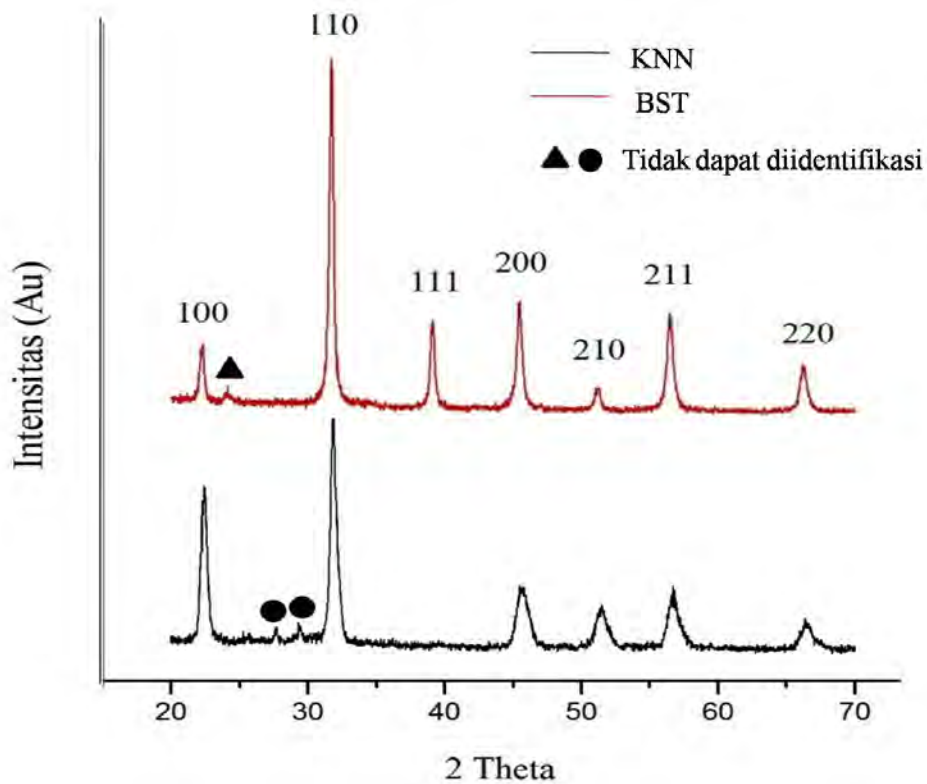
- a. Suhu Curie (dari plot k dan T)
- b. Konduktivitas listrik σ (dari pengukuran diameter *semicircle* $Z' - Z''$)
- c. Energi aktivasi (dari plot $\log \sigma$ terhadap $1/T$) sesuai persamaan 2.9

BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1.Sintesis KNN-BST

Penelitian ini dimulai dengan menguji ulang informasi bahwa fasa tunggal kristal $\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3$ yang disintesis dengan metode reaksi padat dan fasa tunggal kristal $\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3$ yang disintesis dengan metode kopresipitasi oksalat terbentuk dengan kalsinasi pada suhu 700°C selama 2 jam (Suasmoro, 2012 dan Rohmah, N.A., 2014).

Analisis kualitatif dilakukan terhadap pola difraksi kedua sampel menggunakan software Match! dan diketahui bahwa telah terbentuk kristal $\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3$ dan $\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3$ dengan struktur perovskite (KNN: 00-077-0037 dan BST: 00-044-0093). Namun, pada kedua sampel masih terdapat sejumlah kecil fasa yang tidak teridentifikasi yaitu pada ($2\theta = 27,6^\circ$ dan $29,3^\circ$ untuk KNN dan $2\theta = 24,1^\circ$ untuk BST). Dengan metode Rietveld *refinement* diketahui bahwa kristal $\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3$ memiliki struktur kristal perovskite orthorombik dan kristal $\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3$ memiliki struktur kristal perovskite tetragonal dengan parameter kisi pada Tabel 1.

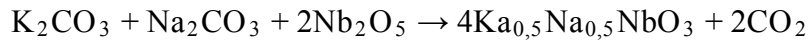


Gambar 4.1. Pola XRD KNN dan BST setelah kalsinasi 700°C selama 2 jam

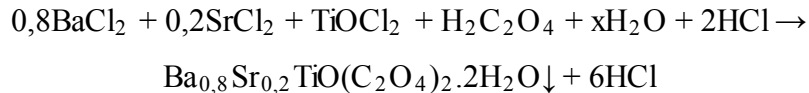
Tabel 1. Struktur Kristal dan Parameter Kisi KNN dan BST Hasil Analisis Struktur Menggunakan Software Rietica dengan Metode Rietveld *Refinement*

No	Material	Parameter Kisi (Å)			Struktur Kristal
		A	B	C	
1	KNN	3,572027	3,570513	3,565755	perovskite orthorombik
2	BST	3,983412	3,983412	3,995775	perovskite tetragonal

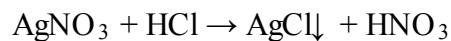
Kristal $Ka_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ yang disintesis dengan reaksi padat berhasil terbentuk dengan pemberian panas yang mengakibatkan penguapan gas CO_2 dengan reaksi pembentukan (Rohmah, N.A., 2014):



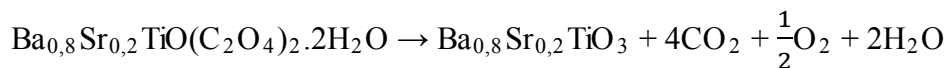
Metode kopresipitasi oksalat digunakan pada penyiapan prekursor $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$. Reaksi kimia yang menyertai proses kopresipitasi oksalat adalah (Suasmoro, 2012):



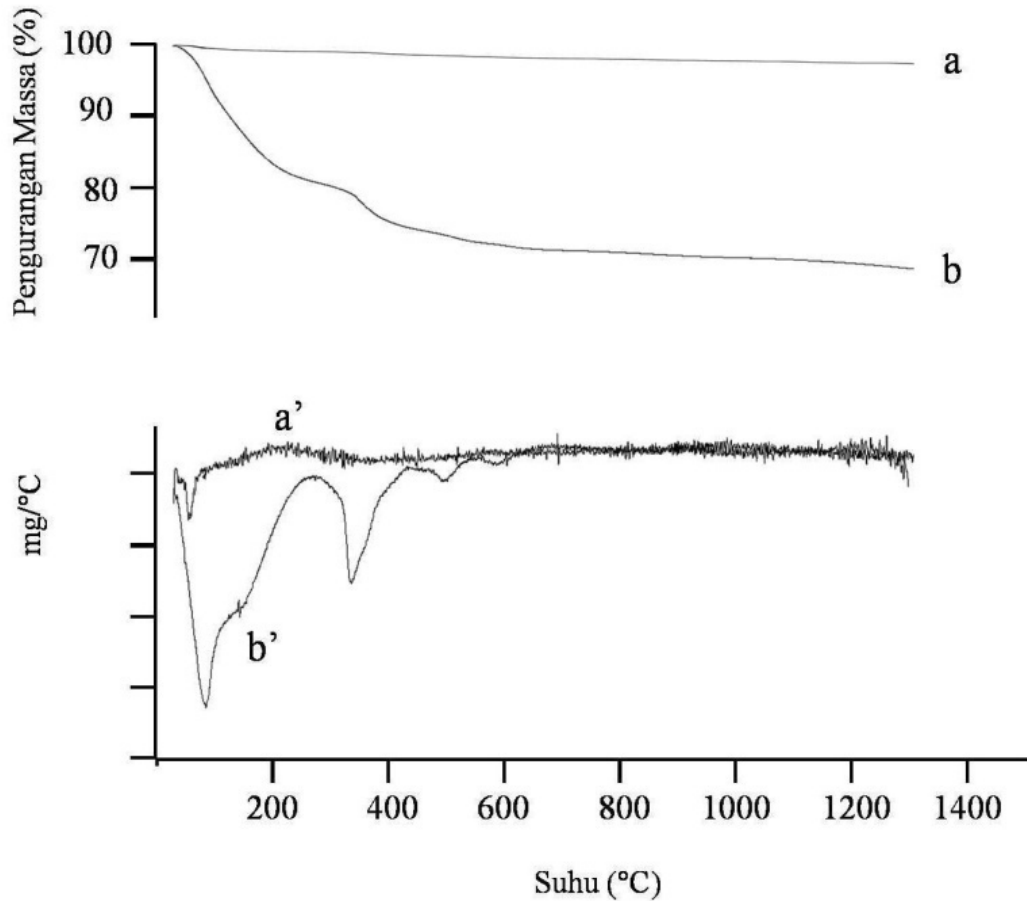
$AgNO_3$ ditambahkan pada air sisa pencucian untuk melihat apakah masih terdapat ion Cl^- pada sampel. Reaksi kimia yang terjadi pada pengujian $AgNO_3$ adalah:



Pada saat kalsinasi di suhu $700^\circ C$ selama 2 jam, terjadi penguapan hidrat, oksigen dan gas CO_2 dari prekursor oksalat sehingga membentuk kristal $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ dengan reaksi dekomposisi (Suasmoro, 2012):

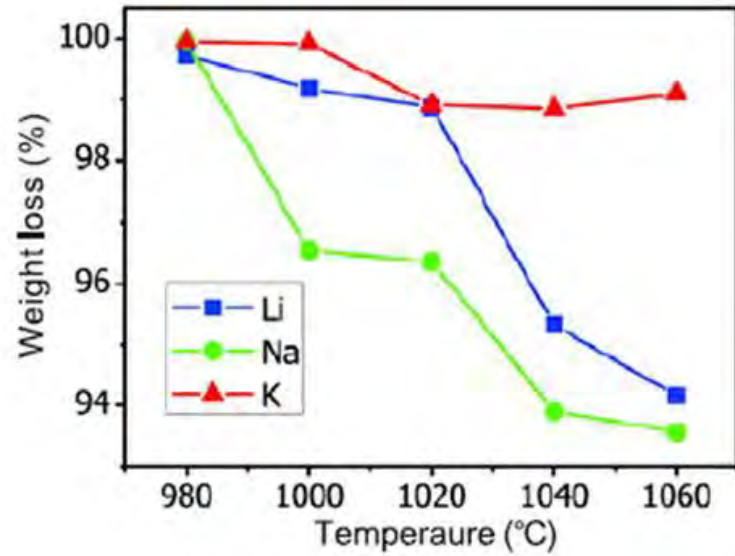


Analisis termal TGA-DTA dilakukan untuk mengetahui terjadinya reaksi yang diindikasikan oleh adanya pengurangan massa dan fenomena baik endotermik maupun eksotermik yang menyertainya pada rentang suhu tertentu. Gambar 4.2 menampilkan hasil analisis termal DTA-TGA 0,8KNN-0,2BST dari kedua rute.

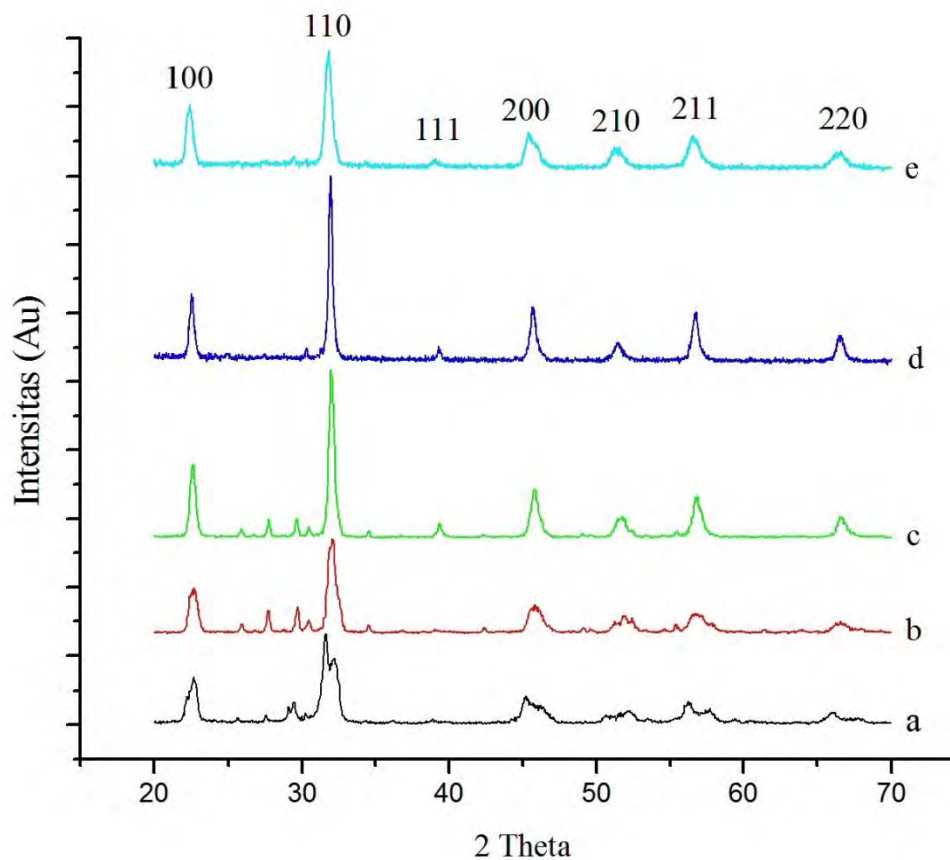


Gambar 4.2. Kurva TGA-DTA dari 0,8KNN(K)-0,2BST(K) (aa') dan 0,8KNN(K)-0,2BST(NK) (bb')

Fenomena termal tidak terdeteksi pada sampel dengan bahan dasar KNN (kalsinasi) - BST (kalsinasi). Oleh karena itu, sampel dikalsinasi selama 2 jam pada beberapa suhu yang berbeda yaitu: 700°C, 900°C dan 1100°C. Suhu optimal untuk pembentukan $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ adalah 1100°C. Namun, terdapat fase sekunder yang diduga terbentuk akibat volatilitas dari unsur alkali seperti pada gambar 4.3 sebagaimana yang dilaporkan oleh Wang, Y.L., et al, 2012. Oleh karena itu dilakukan penambahan unsur K^+ dan Na^+ pada saat sintesis KNN. Gambar 4.4d menunjukkan bahwa fasa tunggal s erbuk $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ terbentuk dengan jumlah excess 2% molar K and 8% molar Na.



Gambar 4.3. Volatilitas Unsur Alkali (Wang, Y.L., et al, 2012)



Gambar 4.4. Pola XRD dari serbuk $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ setelah dikalsinasi dari kedua rute sintesis: a. K-K pada 700°C; b. K-K pada 900°C; c. K-K pada 1100°C; d. K-K pada 1100°C dengan persentase excess 2 mol % K dan 8 mol % Na; e. K-NK pada 700°C

Gambar 4.2.bb' menunjukkan bahwa pada sampel KNN-BST rute sintesis kedua terdapat tiga fenomena termal. Fenomena termal yang pertama, yaitu di bawah suhu 250°C berhubungan dengan penguapan air yang terperangkap di rongga dan proses dehidrasi untuk membentuk $Ba/SrTi(C_2O_4)_2$. Fenomena termal kedua berhubungan dengan pemutusan ikatan oksalat dan pelepasan gas CO_2 . Fenomena termal yang terakhir terkait dengan dekarbonasi (Suasmoro, 2012). Fenomena termal berakhir pada suhu sekitar 700°C. Gambar 4.4e menunjukkan terbentuknya fasa tunggal $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dengan kalsinasi pada suhu 700°C selama 2 jam.

Membandingkan kedua rute sintesis ini, diketahui bahwa material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ lebih sulit terbentuk dengan rute sintesis pertama (KNN kalsinasi-BST kalsinasi). Hal ini diduga akibat kedua material awal $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ dan $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ telah berada di keadaan stabil dengan struktur perovskite. Sehingga ketika ingin dibentuk larutan padat $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$, dibutuhkan energi lebih agar atom Ba dan Sr dapat terlepas dari struktur perovskite $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ dan menggantikan posisi atom K dan atom Na di situs A. Begitu pula saat atom Ti harus menggantikan posisi atom Nb di situs B. Dalam hal ini pemberian energi dalam bentuk panas tersebut digunakan untuk melepaskan ikatan kimia atom-atom di kristal perovskite agar saling mensubstitusi membentuk larutan padat $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$. Hal ini dapat dilihat pada pola XRD Gambar 4.4a dengan suhu kalsinasi 700°C terlihat bahwa material $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ dan $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ masih berdiri sendiri-sendiri, artinya energi panas yang diberikan belum cukup untuk pelepasan atom dan pergerakannya sehingga belum bisa terjadi peristiwa substitusi.

Dengan rute sintesis kedua (KNN kalsinasi-BST non kalsinasi), larutan padat $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dapat lebih mudah terbentuk. Hal ini diduga akibat prekursor oksalat $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ yang masih berada dalam keadaan amorf masih lebih mudah untuk bergerak menyusun diri. Dengan keadaan $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ yang telah berada dalam kondisi kristalin berstruktur perovskite, dimana atom K dan Na adalah atom alkali yang bersifat *volatile* atau relatif tidak stabil sehingga lebih mudah tergantikan oleh atom Ba dan Sr.

Gambar 4.4b dan 4.4c memperlihatkan kemunculan fasa sekunder akibat volatilitas unsur alkali di atas suhu 900°C. Karena penguapan unsur K dan Na pada struktur kristal perovskite mengganggu keseimbangan muatan dan gaya yang awalnya telah terbentuk. Hal ini memaksa atom-atom kembali menyusun diri membentuk struktur kristal baru.

Pada kristal perovskite ABO_3 ($K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$, ion Ba^{2+} , Sr^{2+} , K^+ dan Na^+ berada di situs A sedangkan ion Ti^{4+} dan Nb^{5+} berada di situs B. Setelah analisis Rietveld *refinement*, diketahui bahwa serbuk ($K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dari kedua rute memiliki struktur tetragonal perovskite dengan parameter kisi dapat dilihat di Tabel 2. Memperhatikan hasil analisis Rietveld *refinement*, teramati bahwa terjadi pergeseran parameter kisi menjadi lebih besar bila dibandingkan dengan $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$. Hal ini berkaitan dengan jari-jari ion Ba^{2+} , Sr^{2+} yang lebih besar daripada jari-jari ion K^+ , Na^+ dan jari-jari ion Ti^{4+} yang juga lebih besar daripada jari-jari ion Nb^{5+} . Penambahan BST ke dalam KNN juga menurunkan tingkat asimetri struktur kristal. Hal serupa juga ditemukan oleh Cho, C.W., et al (2012).

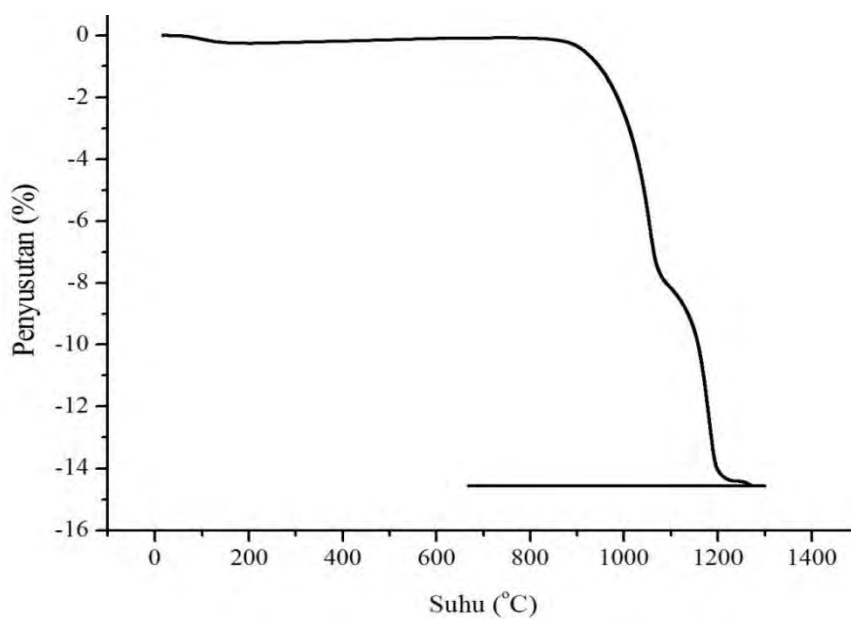
Tabel 2. Parameter kisi dari serbuk ($K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$

No	Rute Sintesis	Parameter Kisi (Å)			Sistem Kristal
		a=b	c	c/a	
1	KNN (kalsinasi)- BST (kalsinasi)	3,983805	3,999475	1,0039	perovskite tetragonal
2	KNN (kalsinasi)- BST (non kalsinasi)	3,984844	4,022710	1,0095	perovskite tetragonal

Tabel 3. Data Jari-Jari Ion (Å)

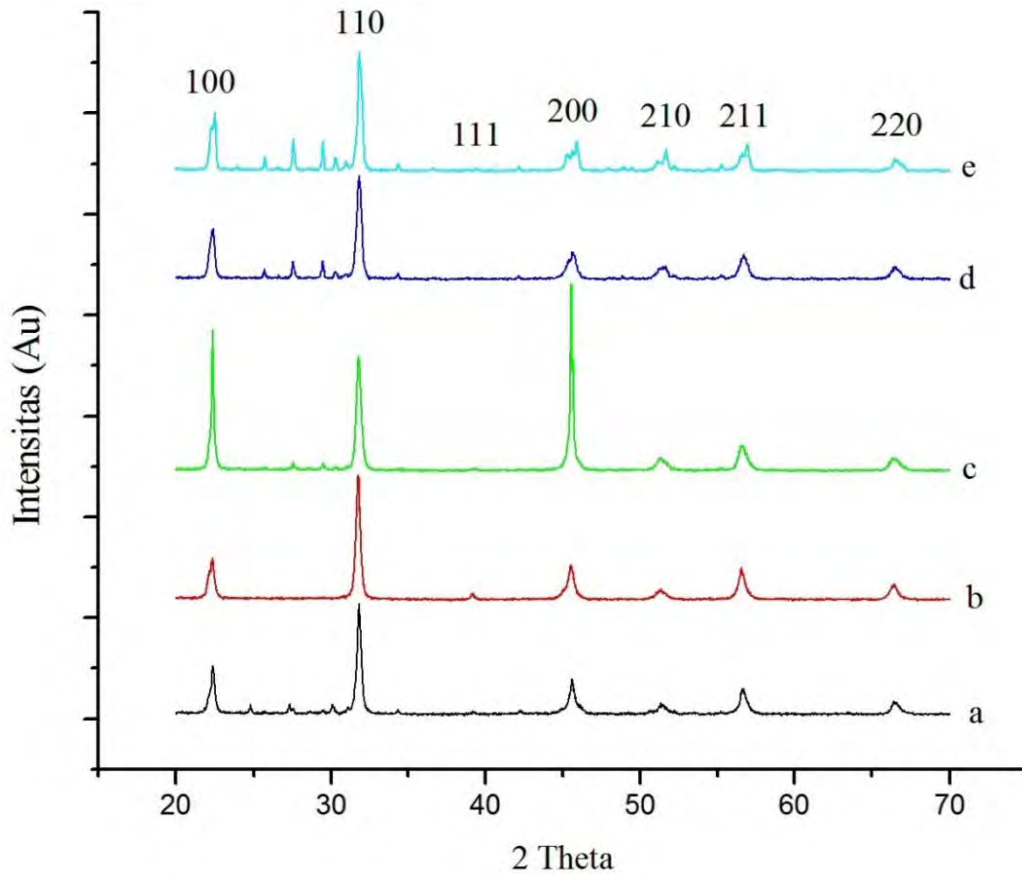
Ion	Jari-Jari Ion (Å)
K^+	0,138
Na^+	0,102
Ba^{2+}	0,135
Sr^{2+}	0,118
Ti^{4+}	0,086
Nb^{5+}	0,064

Serbuk yang telah dikalsinasi dan berhasil membentuk fasa tunggal dikompaksi dengan tekanan 350 N/cm^2 selama 10 detik lalu dilanjutkan dengan 650 N/cm^2 selama 2 detik. Untuk mendapatkan sampel pelet dengan densitas yang baik, perlakuan sintering harus diberikan kepada sampel. Pengujian dilatometri dilakukan untuk mengetahui perilaku penyusutan bahan. Gambar 4.5 merupakan kurva dilatometri yang menunjukkan terjadinya perlambatan penyusutan bahan pada suhu $1050^\circ\text{C} - 1150^\circ\text{C}$. Hal ini diduga sebagai akibat dari penguapan unsur alkali. Dari hasil uji ini juga diketahui bahwa penyusutan sampel telah optimal pada suhu 1200°C . Oleh karena itu pelet $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ disinter pada suhu 1200°C selama 2 jam.



Gambar 4.5. Hasil uji dilatometri dari $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$
Rute ke 1 dengan excess 2% K dan 8% Na

Sehubungan dengan volatilitas dari unsur alkali (Wang, Y.L., et al. 2012), dilakukan penambahan fraksi mol K dan Na agar dapat menggantikan sebagian kecil unsur alkali yang menguap. Dengan persentase excess 2 % mol Na dan 8 % mol K, masih terdapat fase sekunder, maka persentase excess digandakan menjadi 4 % mol Na dan 16 % mol K pada sampel rute pertama. Gambar 4.6b memperlihatkan bahwa dengan peningkatan persentase excess unsur alkali, fasa tunggal kristal perovskite $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ dari rute pertama berhasil terbentuk. Gambar 4.6c memperlihatkan bahwa persentase excess yang terbaik untuk sampel rute kedua adalah 2 % mol Na dan 8 % mol K.

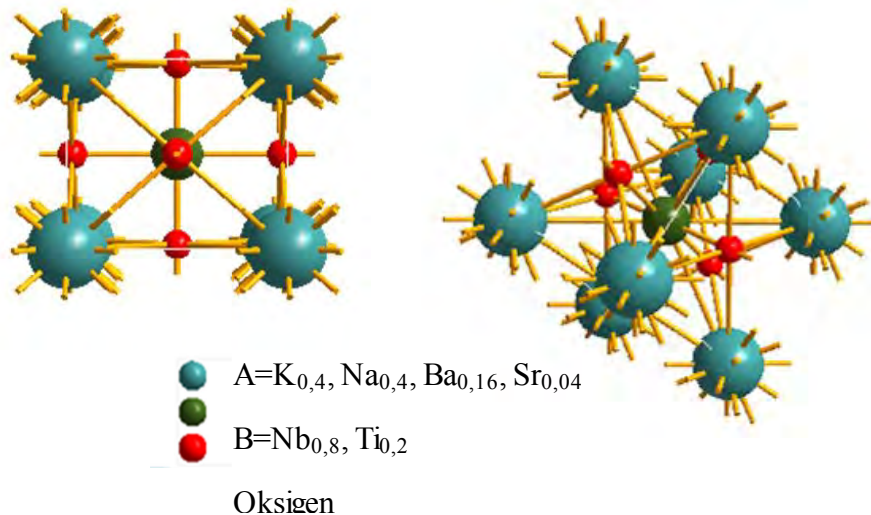


Gambar 4.6. Pola XRD Pelet: a. K-K exc 2%K-8%Na; b. K-K exc 4%K-16%Na; c. K-NK exc 2%K-8%Na; d. K-NK exc 3%K-12%Na; e. K-NK exc 1%K-4%Na

Analisis struktur kristal dilakukan dengan metode Rietveld *refinement* dengan hasil ditampilkan pada Tabel 4. Gambar 4.7 memperlihatkan sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ memiliki struktur perovskite tetragonal. Dalam hal ini dapat dikonfirmasi bahwa atom Ba dan Sr telah berhasil mensubstitusi atom K dan Na dan atom Ti telah berhasil mensubstitusi atom Nb. Sehingga material ferroelektrik bebas timbal KNN-BST yang disintesis telah mencapai fasa tunggal perovskite tetragonal.

Tabel 4. Parameter Kisi dari $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ setelah disinter

No	Rute Sintesis	Parameter Kisi (Å)			Sistem Kristal
		a=b	c	c/a	
1	K-K	3,956166	3,981212	1,0063	perovskite tetragonal
2	K-NK	3,949728	3,965926	1,0041	perovskite tetragonal



Gambar 4.7. Struktur Perovskite $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$

Pengukuran densitas dilakukan dengan metode Archimedes. Hasil pengukuran densitas ditampilkan pada Tabel 5. Hasil pengukuran densitas dibandingkan dengan densitas teoritis. Pengaruh densitas bahan $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ terhadap karakterisasi listrik dibahas pada sub bab 4.2.

Tabel 5. Densitas $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dengan Sintering 1200°C - 2 jam

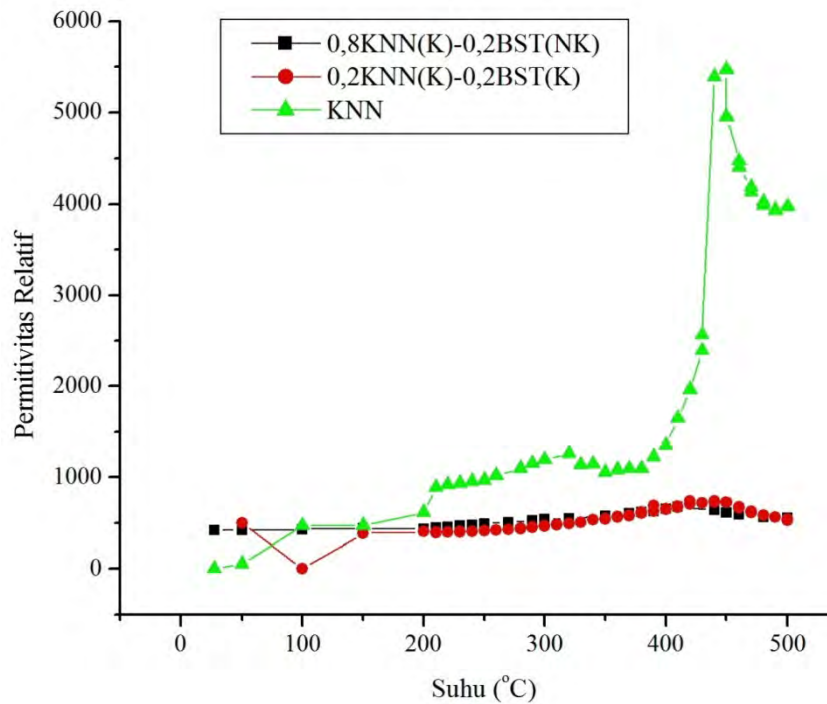
Rute Sintesis	Densitas Archimedes	Perbandingan Terhadap Densitas Teoritis
K-K	4,3369 gr/cc	89,28%
K-NK	4,1752 gr/cc	85,34%

Sampel yang akan dilanjutkan pada pengujian sifat listrik adalah sampel pelet fasa tunggal $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ yang disinter pada suhu 1200°C selama 2 jam dengan persentase excess 4 % mol Na dan 16 % mol K untuk sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ yang disintesis dengan rute pertama (Kalsinasi-Kalsinasi) dan persentase excess 2 % mol Na dan 8 % mol K untuk sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ yang disintesis dengan rute kedua (Kalsinasi-Non Kalsinasi) dengan pola XRD terlihat pada Gambar 4.6b dan 4.6c. Terdapat perbedaan pola XRD struktur perovskite 4.6c dengan pola XRD struktur perovskite pada gambar 4.6 lainnya yaitu intensitas yang lebih tinggi dari hamburan bidang kristal 100 dan 200.

Hal ini diduga akibat adanya bidang kristal 100 dan 200 yang dominan pada permukaan sampel pelet yang diuji XRD.

4.2. Karakterisasi Listrik Keramik Padat KNN-BST

Karakterisasi listrik material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ meliputi analisis dielektrik, impedansi kompleks dan konduktivitas. Gambar 4.8 menunjukkan hubungan permitivitas relatif sampel terhadap suhu.



Gambar 4.8. Hubungan Permitivitas Relatif terhadap Suhu dari sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ pada Frekuensi 12739,43 Hz

Tabel 6. Suhu Curie

Sampel	KNN	KNN(K)-BST(K)	KNN(K)-BST(NK)
Suhu Surie	310°C dan 450°C	440°C	420°C

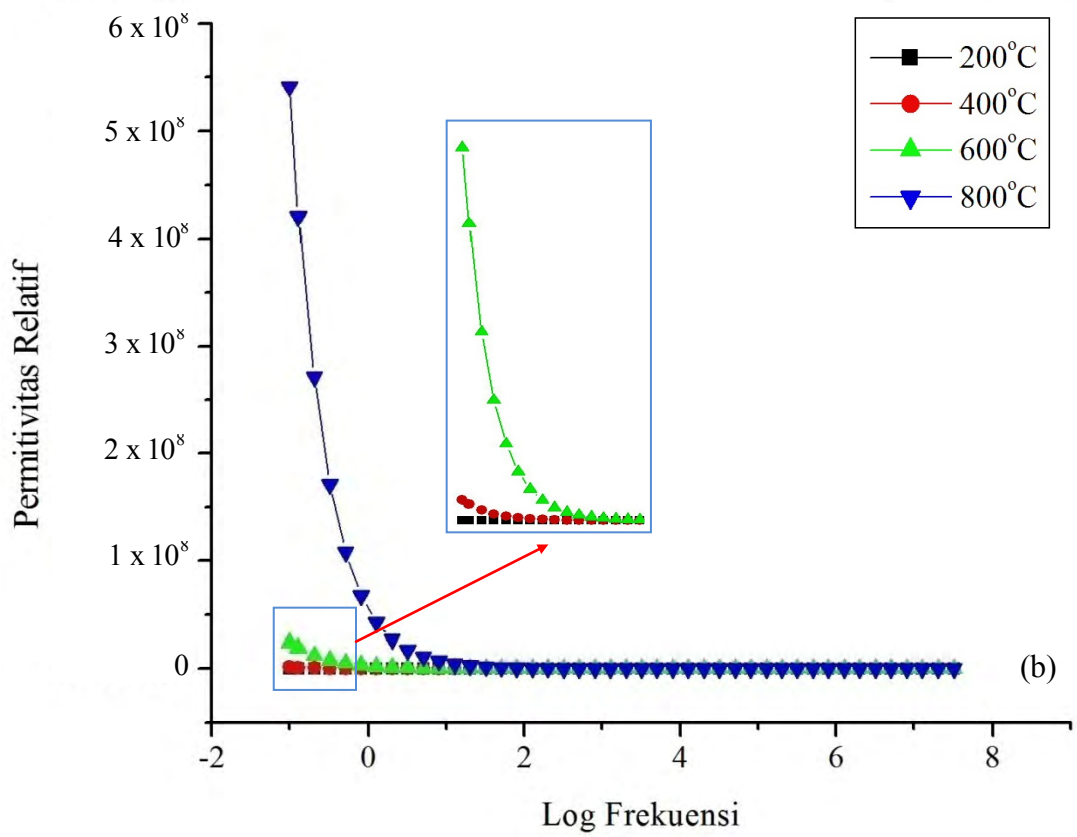
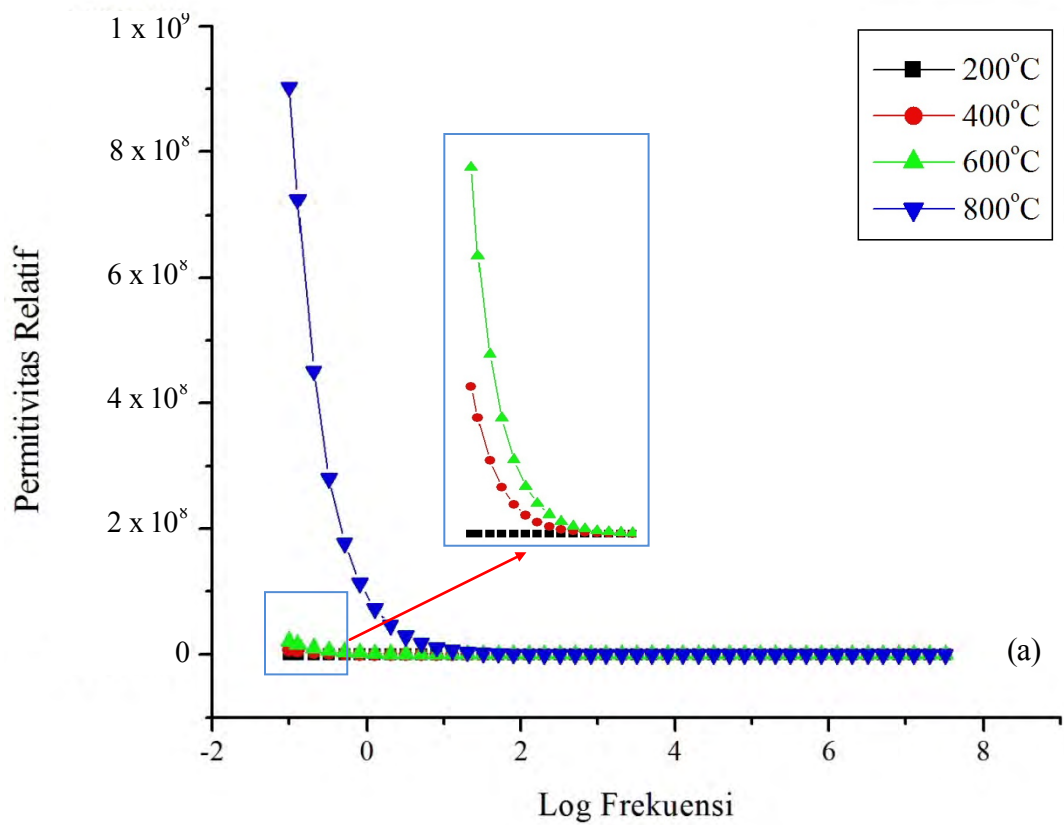
Pada temperature Curie diyakini terjadi optimasi polarisasi akibat perubahan fasa dari tetragonal (fasa ferroelektrik) ke kubik (fasa paraelektrik) yang mengakibatkan dielektrisitas material mencapai maksimum kemudian turun pada temperatur yang lebih tinggi sesuai dengan hukum Curie-Weiss (Kittel, 2005). Suhu Curie dari sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ rute kedua lebih rendah. Hal ini diprediksi berhubungan dengan nilai tetragonalitasnya yang lebih rendah bila dibandingkan dengan sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dari rute pertama.

Hal ini sesuai dengan hasil penelitian Suasmoro, et al. (2000) bahwa suhu Curie berbanding lurus dengan tetragonalitas bahan $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$.

Dielektrisitas pada bahan $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ terjadi karena terdapatnya dipol pada struktur kristal perovskite akibat pergeseran atom pada situs B yang menjadi searah saat berada dalam pengaruh medan listrik. Dari Gambar 4.8 terlihat bahwa sampel $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ memiliki permitivitas relatif yang lebih tinggi daripada sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$. Hal yang sama juga ditemukan oleh Cho, C.W., et al., (2012). Hal ini diprediksi akibat valensi kation di situs B pada bahan $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ yaitu +5 bernilai lebih besar daripada valensi kation di situs B pada bahan $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ yaitu +4 sehingga menghasilkan polarisasi total bahan yang lebih besar pada $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$.

Kajian permitivitas relatif menunjukkan material $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ (KNN) memiliki dua suhu Curie yaitu di $\sim 310^\circ C$ dan $\sim 450^\circ C$. Hasil serupa ditemukan oleh Cho, C.W., et al (2012) dan dijelaskan bahwa hal tersebut terkait dengan transisi fasa orthorombik menuju tetragonal dan transisi fasa tetragonal menuju kubik. Dengan penambahan 20% mol $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ (BST) terjadi penurunan suhu Curie pada sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ menjadi $440^\circ C$ untuk rute pertama dan $420^\circ C$ untuk rute kedua. Fenomena Curie pada $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ terkait dengan transisi fasa tetragonal menjadi kubik. Penurunan suhu Curie pada material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dapat dipahami sebagai akibat penambahan material $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ yang memiliki suhu Curie yang relatif jauh lebih rendah bila dibandingkan dengan material $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ yaitu $\sim 80^\circ C$ (Suasmoro, et al., 2000).

Hubungan permitivitas relatif dan frekuensi tegangan AC untuk kedua sampel dapat dilihat pada Gambar 4.9. Untuk kedua sampel berperilaku sama yaitu permitivitas relatif meningkat seiring dengan penurunan frekuensi tegangan AC. Permitivitas relatif sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dengan rute kalsinasi-kalsinasi lebih tinggi bila dibandingkan dengan sampel dari rute kalsinasi-non kalsinasi. Hal ini sesuai dengan hasil pengukuran densitas kedua sampel (Tabel 5). Sampel dengan densitas yang tinggi dapat menghasilkan rapat polarisasi yang lebih besar sehingga memiliki permitivitas relatif yang lebih besar pula. Sebagai perbandingan, pada frekuensi 0,1 Hz sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dari rute sintesis kalsinasi-kalsinasi memiliki permitivitas relatif maksimum $\sim 9 \times 10^8$ sedangkan sampel dari rute sintesis kalsinasi-non kalsinasi memiliki permitivitas relatif maksimum $\sim 5,5 \times 10^8$.



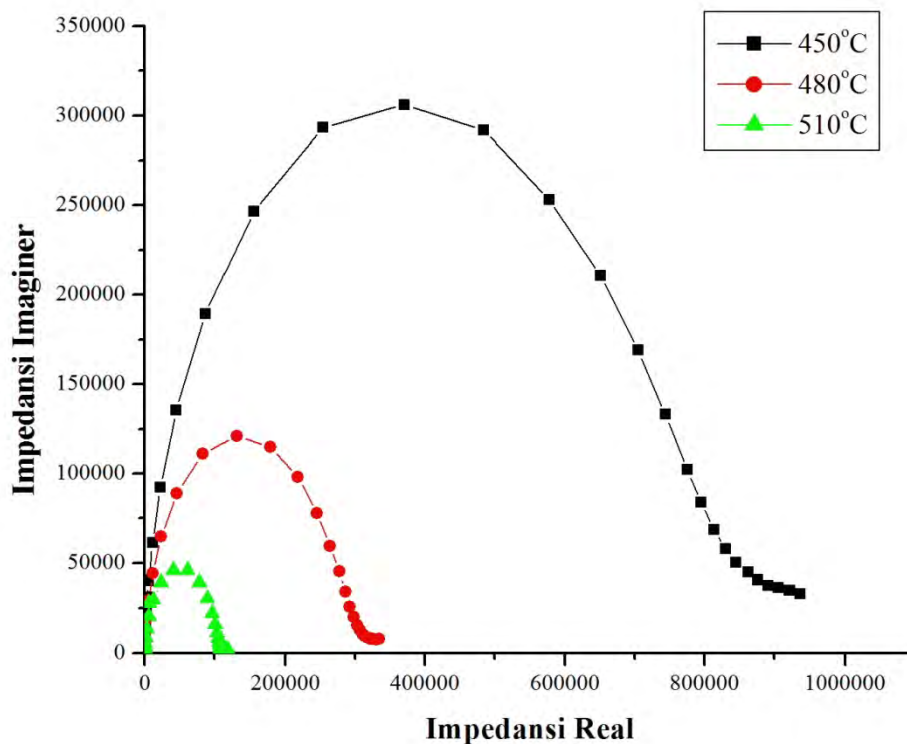
Gambar 4.9. Hubungan Permittivitas Relatif dan Frekuensi: a. Sampel Route Pertama

(K-K) dan b. Sampel Rute Kedua (K-NK)

Gambar 4.9 memperlihatkan bahwa pada frekuensi yang tinggi (~ 32 MHz hingga ~ 10 Hz), nilai permitivitas relatif tidak banyak mengalami perubahan. Pada daerah ini tipe polarisasi yang terjadi adalah polarisasi dipol. Namun pada frekuensi yang lebih rendah yaitu dengan frekuensi $< \sim 10$ Hz terjadi peningkatan permitivitas relatif yang besar pada kedua sampel. Hal ini terjadi akibat ikut terpolarisasinya muatan-muatan ruang pada sampel dengan pemberian tegangan AC frekuensi rendah tersebut (Moulson, A.J dan Herbert, J.M., 2003).

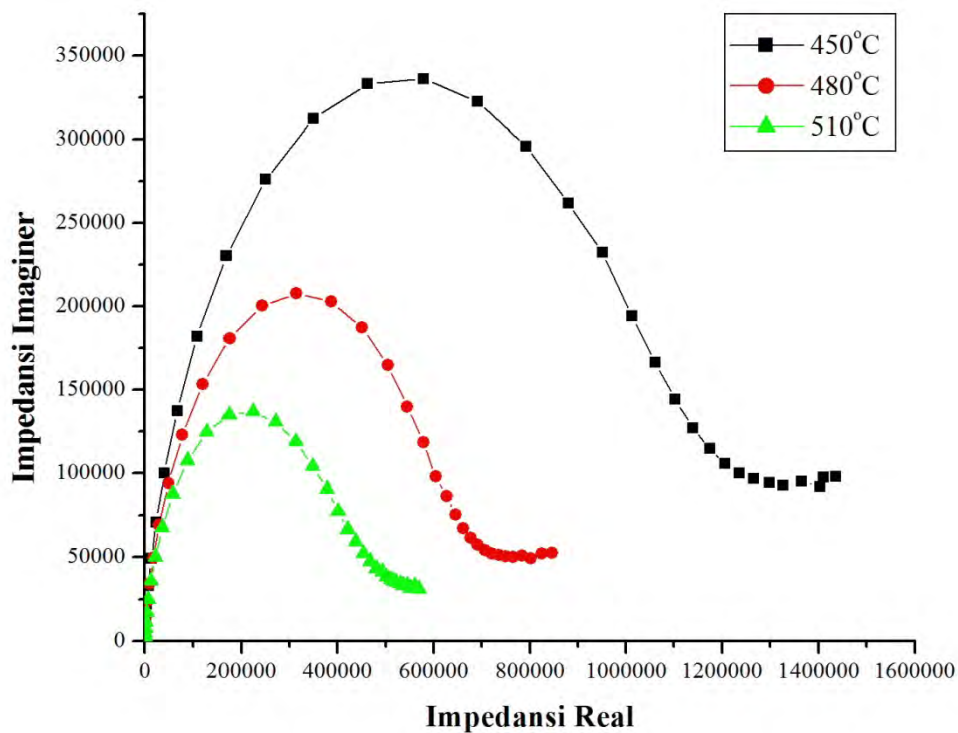
Gambar 4.9 juga memperlihatkan bahwa pada suhu tinggi muatan ruang pada sampel menjadi lebih mudah terpolarisasi. Terlihat pada suhu 800°C muatan-muatan ruang telah ikut terpolarisasi pada frekuensi < 10 Hz. Namun pada suhu 600°C dan 400°C muatan-muatan ruang hanya dapat terpolarisasi bila diberi tegangan AC berfrekuensi < 1 Hz. Bahkan pada suhu 200°C polarisasi muatan-muatan ruang baru teramati dengan pemberian tegangan AC $\sim 0,1$ Hz.

Selanjutnya dari Gambar 4.9 dapat diamati bahwa terjadi peningkatan permitivitas relatif seiring dengan peningkatan suhu. Hal ini dapat dipahami sebagai konsekuensi dari peningkatan konsentrasi defek instrinsik pada suhu yang lebih tinggi (Chiang, Y.M., 1997).



Gambar 4.10. Plot Cole-Cole Sampel $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$

dari Rute Sintesis Pertama (Kalsinasi-Kalsinasi)



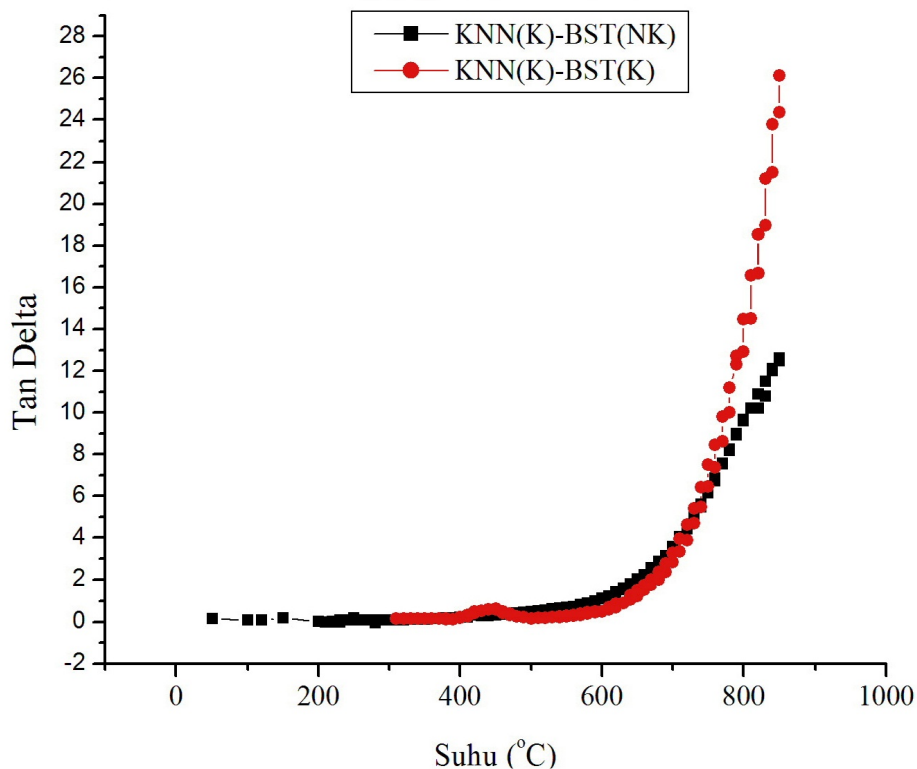
Gambar 4.11. Plot Cole-Cole Sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dari Rute Sintesis Kedua (Kalsinasi-Non Kalsinasi)

Rentang frekuensi tegangan AC yang diberikan pada pengukuran ini adalah dari 0,1 Hz hingga $3,2 \times 10^7$ Hz. Gambar 4.10 dan 4.11 memperlihatkan hanya terdapat satu semisirkel untuk kedua sampel. Hal ini menandakan pada rentang frekuensi ini hanya terjadi polarisasi pada *grain*. Sedangkan polarisasi pada *grain boundary* belum terdeteksi dimana secara teori akan terjadi pada frekuensi tegangan AC yang lebih rendah. Plot Cole-Cole sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dari rute sintesis kedua (kalsinasi-non kalsinasi) memiliki ‘ekor’ yang lebih panjang. Kehadiran ‘ekor’ pada plot Cole-Cole menunjukkan hampir terjadinya lebih dari satu tipe polarisasi bahan. Artinya, pada bahan hampir terjadi polarisasi pada *grain boundary*. Selain itu ‘ekor’ plot Cole-Cole juga mengindikasikan adanya *loosy factor* (Suasmoro, 2012).

Plot Cole-Cole pada Gambar 4.10 dan 4.11 menunjukkan bahwa kedua sampel menunjukkan perilaku yang sama yaitu diameter semisirkel menjadi lebih kecil pada suhu yang semakin tinggi. Hal ini menunjukkan resistivitas bahan berkurang seiring dengan meningkatnya suhu atau dengan kata lain bahan

$(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ memiliki konduktivitas yang meningkat seiring dengan meningkatnya suhu.

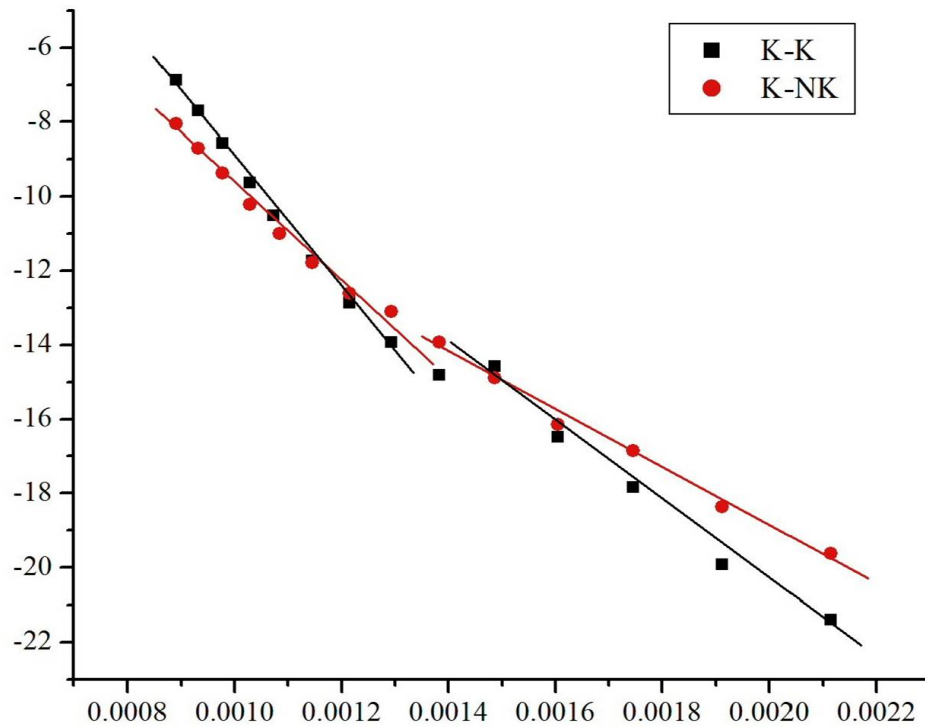
Peningkatan konduktivitas pada suhu tinggi dapat dipahami sebagai konsekuensi peningkatan konsentrasi defek intrinsik pada bahan. Konduktivitas menjadi lebih besar pada suhu tinggi sehingga terjadi peningkatan rapat arus pada bahan dan material menjadi semakin konduktif. Dalam hal ini suhu menjadi gaya penggerak tambahan selain medan listrik. Untuk aplikasi bahan ferroelektrik, dapat dipahami pula bahwa faktor disipasi akan semakin besar pada suhu tinggi akibat meningkatnya kebocoran arus pada bahan ferroelektrik (Barsoum, 2003). Hal ini dapat teramati pada Gambar 4.12 di mana faktor disipasi meningkat seiring dengan meningkatnya suhu. Pada daerah transisi struktur kristal tetragonal-kubik juga terjadi peningkatan faktor disipasi. Hal ini menunjukkan kualitas bahan $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ sebagai penyimpan muatan listrik berkurang pada suhu tinggi.



Gambar 4.12. Faktor Disipasi $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$

Analisis konduktivitas selanjutnya dilakukan untuk melengkapi analisis impedansi kompleks. Gambar 4.13 menampilkan plot hubungan konduktivitas (σ) dan

temperature ($1/T$) untuk bahan $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ pada rentang suhu $200^\circ C$ hingga $850^\circ C$.



Gambar 4.13. Kebergantungan Konduktivitas $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dan Temperature

Dari plot hubungan konduktivitas dan temperature tersebut diperoleh fenomena berbeda pada temperature di bawah dan di atas $\sim 425^\circ C$. Berdasarkan hal ini analisis konduktivitas dibagi menjadi dua rezim, rezim pertama pada rentang temperature $200^\circ C$ - $400^\circ C$ dan rezim kedua pada rentang temperature $450^\circ C$ - $850^\circ C$.

Hasil konduktivitas yang diperoleh memiliki kemiripan dengan penelitian Rohmah, N.A yang menyintesis $0,8K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ - $0,2Ba_{0,5}Ca_{0,5}Zr_{0,5}Ti_{0,5}O_3$ dan dijelaskan bahwa perubahan konduktivitas terkait dengan mobilitas dan pembawa muatan dalam bahan. Energi aktivasi dihitung dari persamaan hukum aktivasi termal arhenius dengan hasil pada Tabel 7.

Tabel 7. Energi Aktivasi Keramik $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$

Rentang Suhu	Rute 1 (Kalsinasi – Kalsinasi)	Rute 2 (Kalsinasi – Non Kalsinasi)
--------------	--------------------------------	------------------------------------

~200°C – ~400°C	0,9297 eV	0,6419 eV
~450°C – ~850°C	1,4271 eV	1,03965 eV

Energi aktivasi pada suhu rendah untuk kedua sampel relatif rendah bila dibandingkan dengan energi aktivasi pada suhu tinggi. Perubahan energi aktivasi terjadi pada suhu ~400°C - ~450°C yaitu bertepatan dengan daerah transisi fasa dari tetragonal menuju kubik. Grafik 4.13 memberikan informasi bahwa kemungkinan terdapat perbedaan pembawa muatan pada sampel untuk dua daerah suhu yang berbeda tersebut yang dalam hal ini belum dapat diketahui jenisnya.

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

BAB V KESIMPULAN DAN SARAN

5.1. Kesimpulan

Berdasarkan hasil analisis sintesis dan sifat listrik material bebas timbal $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ diperoleh kesimpulan sebagai berikut:

1. Material perovskite fasa tunggal ABO_3 dengan $A=K_{0,4}, Na_{0,4}, Ba_{0,16}, Sr_{0,04}$ dan $B=Nb_{0,8}, Ti_{0,2}$ telah berhasil disintesis dengan gabungan metode reaksi padat dan kopresipitasi oksalat. Hasil ini dicapai untuk komposisi dengan alkali berlebih sebesar 4% mol K dan 16% mol Na untuk rute pertama dan 2% mol K dan 8% mol Na untuk rute kedua melalui densifikasi pada suhu $1200^\circ C$ selama 2 jam.
2. Material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ yang disintesis memiliki suhu Curie $\sim 440^\circ C$ untuk sampel rute sintesis 1 dan $\sim 420^\circ C$ untuk sampel dari rute sintesis 2.
3. Pada material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ terjadi peningkatan permitivitas relatif, faktor disipasi dan konduktivitas listrik seiring dengan penambahan suhu.
4. Pada material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ terdapat dua rezim konduktivitas yang menunjukkan perbedaan tipe pembawa muatan listrik untuk masing-masing rezim.

5.2. Saran

Hasil penelitian ini dapat dikembangkan lebih lanjut baik dari segi modifikasi sifat kelistrikannya dengan perubahan kombinasi material, optimalisasi sintesis material maupun pada tahap pengaplikasian material ferroelektrik bebas timbal $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ itu sendiri.

Ada beberapa bagian pada pembahasan penelitian ini yang masih berupa dugaan sementara. Dapat dilakukan kajian lebih lanjut untuk menguji kebenaran dugaan-dugaan sementara pada penelitian ini.

Karakterisasi sifat kelistrikan dari sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ yang dilakukan pada penelitian ini dilakukan pada lingkungan udara bebas. Untuk mempelajari lebih lanjut tipe pembawa muatan listrik pada material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dapat dilakukan karakterisasi sifat listrik dengan variasi tekanan oksigen yaitu dengan pengaliran gas *inert*.

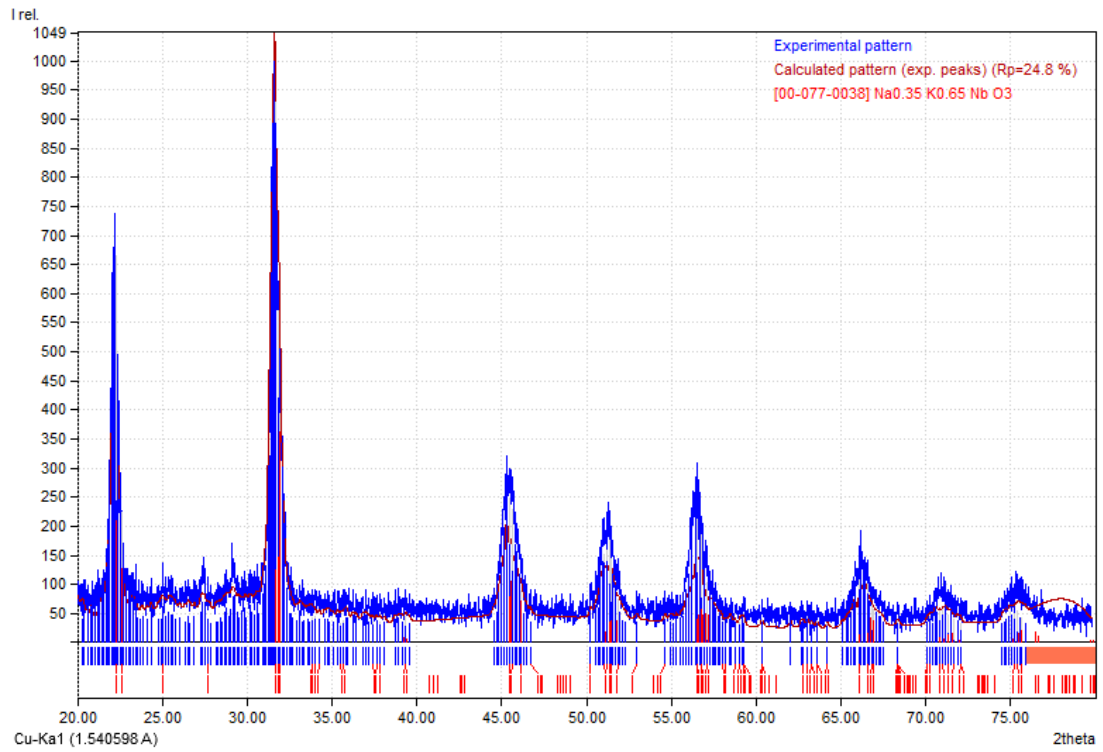
“Halaman ini sengaja dikosongkan”

DAFTAR LAMPIRAN

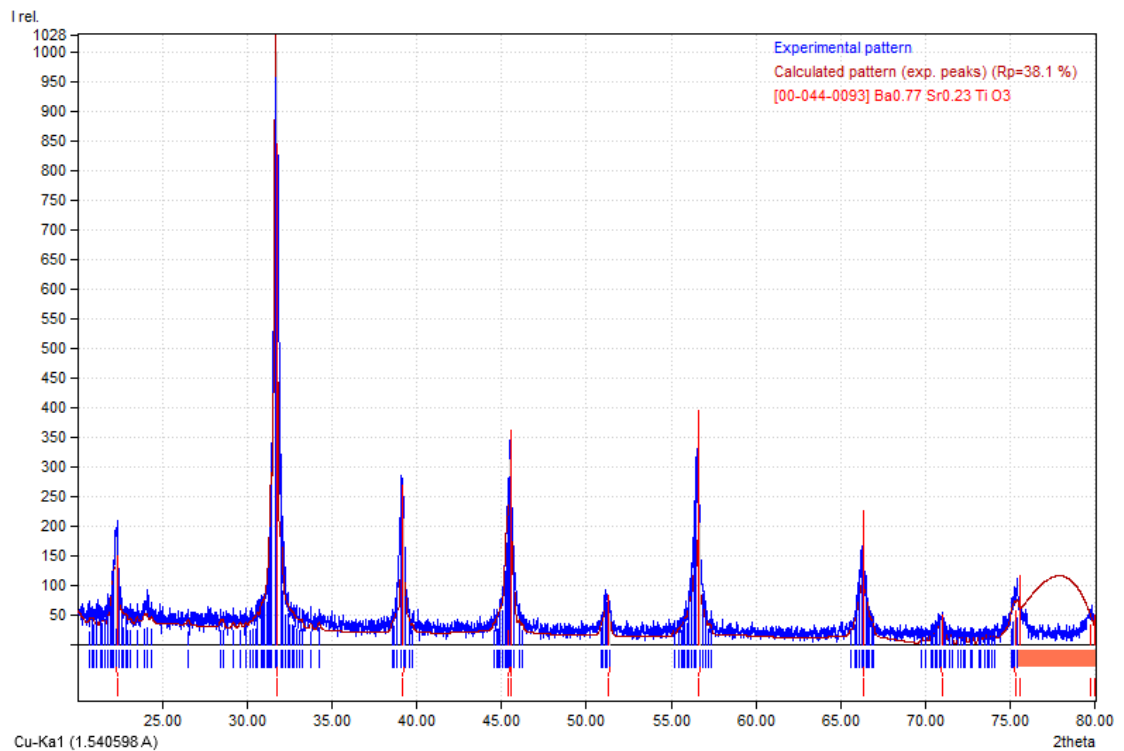
Lampiran A. Hasil Analisis Kualitatif dengan Software Match!.....	41
Lampiran B. COD	42
Lampiran C. Data Unsur-Unsur	46
Lampiran D. Rekapitulasi Parameter <i>Refinement</i>	46
Lampiran F. Pola XRD Hasil <i>Refinement</i>	47
Lampiran G. Perhitungan Energi Aktivasi.....	53

LAMPIRAN A. HASIL ANALISIS KUALITATIF DENGAN SOFTWARE MATCH!

KNN:



BST:



LAMPIRAN B. COD

Perovskite Tetragonal:

```
#-----  
-----  
#$Date: 2013-12-28 13:58:47 +0000 (Sat, 28 Dec 2013) $  
#$Revision: 91933 $  
#$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  $K_{1-x}Na_xNbO_3$  (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_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_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
_[local]_cod_data_source_file    kd5027.cif
_[local]_cod_data_source_block   523K
_[local]_cod_chemical_formula_sum_orig '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_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_
_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_
_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

```

```

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
_journal_paper_doi 10.1107/S0108768108037361

```

Perovskite Orthorombik:

```

#-----
#
#$Date: 2015-01-27 19:58:39 +0000 (Tue, 27 Jan 2015) $
#$Revision: 130149 $
#$URL: file:///home/coder/svn-repositories/cod/cif/1/00/00/1000022.cif $
#-----
#
# This file is available in the Crystallography Open Database
# (COD),
# http://www.crystallography.net/
#
# All data on this site have been placed in the public domain by
# the
# contributors.
#
##data_calcium titanate
data_1000022
loop_
_publ_author_name
'Beran, A'
'Libowitzky, E'
'Armbruster, T'
_publ_section_title;
A single-crystal infrared spectroscopic and X-ray diffraction study
of
untwinned San Benito perovskite containing O H groups;
_journal_codен_ASTM CAMIA6
_journal_name_full 'Canadian Mineralogist'
_journal_page_first 803
_journal_page_last 809
_journal_volume 34
_journal_year 1996
_chemical_compound_source;
from Benitoite Gem mine, San Benito Co., California,USA;
_chemical_formula_structural 'Ca (Ti O3)'
_chemical_formula_sum 'Ca O3 Ti'
_chemical_name_mineral Perovskite
_chemical_name_systematic 'Calcium titanate'

```

```

_space_group_IT_number          62
_symmetry_cell_setting          orthorhombic
_symmetry_Int_tables_number     62
_symmetry_space_group_name_Hall '-P 2c 2ab'
_symmetry_space_group_name_H-M  'P b n m'
_cell_angle_alpha              90
_cell_angle_beta               90
_cell_angle_gamma              90
_cell_formula_units_Z          4
_cell_length_a                 5.380(1)
_cell_length_b                 5.440(1)
_cell_length_c                 7.639(1)
_cell_volume                   223.6
_exptl_crystal_density_meas    4.03
_refine_ls_R_factor_all        0.027
_cod_database_code             1000022
loop_
_symmetry_equiv_pos_as_xyz
x,y,z
1/2-x,1/2+y,1/2-z
-x,-y,1/2+z
1/2+x,1/2-y,-z
-x,-y,-z
1/2+x,1/2-y,1/2+z
x,y,1/2-z
1/2-x,1/2+y,z
loop_
_atom_site_aniso_label
_atom_site_aniso_U_11
_atom_site_aniso_U_12
_atom_site_aniso_U_13
_atom_site_aniso_U_22
_atom_site_aniso_U_23
_atom_site_aniso_U_33
Ti1 0.0059(2) .0000(1) .0000(1) 0.0052(2) 0.00025(9) 0.0045(2)
Ca1 0.0082(2) 0.0016(2) 0. 0.0083(2) 0. 0.0079(2)
O1 0.0082(6) 0.0002(5) 0. 0.0086(7) 0. 0.0045(5)
O2 0.0065(4) 0.0020(4) -0.0008(3) 0.0060(4) -0.0010(3) 0.0095(4)
loop_
_atom_site_label
_atom_site_type_symbol
_atom_site_symmetry_multiplicity
_atom_site_Wyckoff_symbol
_atom_site_fract_x
_atom_site_fract_y
_atom_site_fract_z
_atom_site_occupancy
_atom_site_attached_hydrogens
_atom_site_calc_flag
Ti1 Ti4+ 4 b 0. 0.5 0. 1. 0 d
Ca1 Ca2+ 4 c 0.00648(8) 0.0356(1) 0.25 1. 0 d
O1 O2- 4 c 0.5711(3) -0.0161(3) 0.25 1. 0 d
O2 O2- 8 d 0.2897(2) 0.2888(2) 0.0373(2) 1. 0 d loop_
_atom_type_symbol
_atom_type_oxidation_number
Ti4+ 4.000
Ca2+ 2.000
O2- -2.000

```

LAMPIRAN C. DATA UNSUR-UNSUR

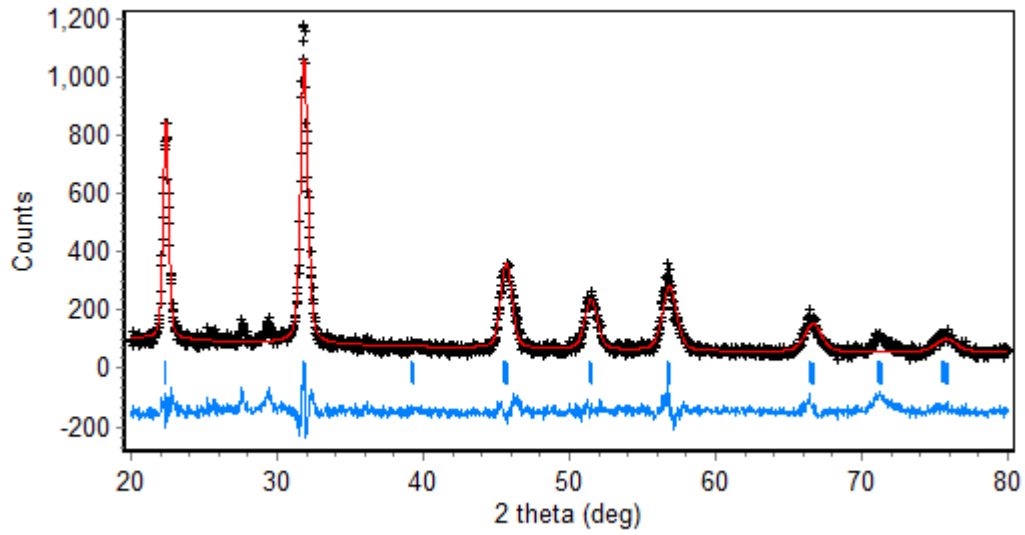
Unsur	Nomor Atom	Nomor Massa	Valensi Ion
K	19	39,102	+1
Na	11	22,9898	+1
Ba	56	137,34	+2
Sr	38	87,62	+2
Nb	41	92,906	+5
Ti	22	47,90	+5
O	8	15,9994	-2

LAMPIRAN D. REKAPITULASI PARAMETER *REFINEMENT*

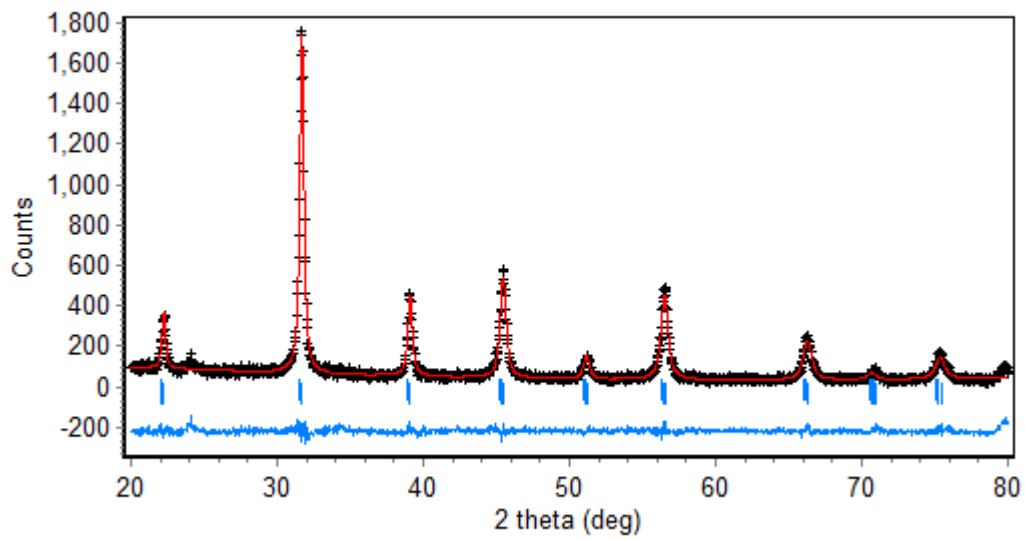
Sampel	a (Å)	b (Å)	c (Å)	Rp	Rwp	GoF	R-Bragg
KNN	3.572027	3.570713	3.565755	11,423	10,302	0,264	0,52
BST	3.983412	3.983412	3.995775	9,588	6,838	0,104	0,21
KNN-BST Serbuk Rute Sintesis 1	3.983805	3.983805	3.999475	9,441	9,314	0,143	0,28
KNN-BST Serbuk Rute Sintesis 2	3.984844	3.984844	4.022710	10,186	9,298	0,120	0,42
KNN-BST Pelet Rute Sintesis 1	3.956166	3.956166	3.981212	9,386	8,878	0,439	0,82
KNN-BST Pelet Rute Sintesis 2	3.949728	3.949728	3.965926	13,800	13,965	2,057	0,36

LAMPIRAN E. POLA XRD HASIL *REFINEMENT*

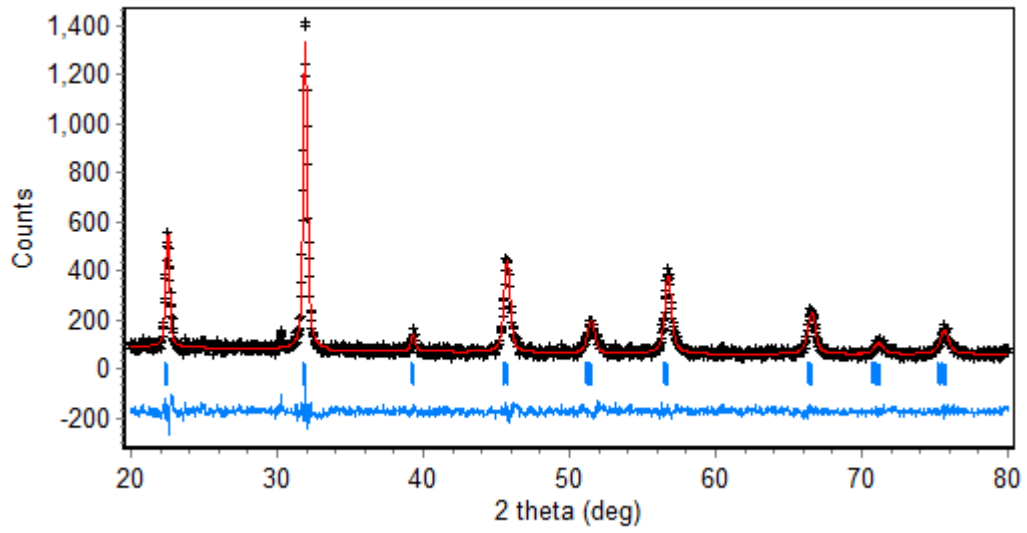
KNN:



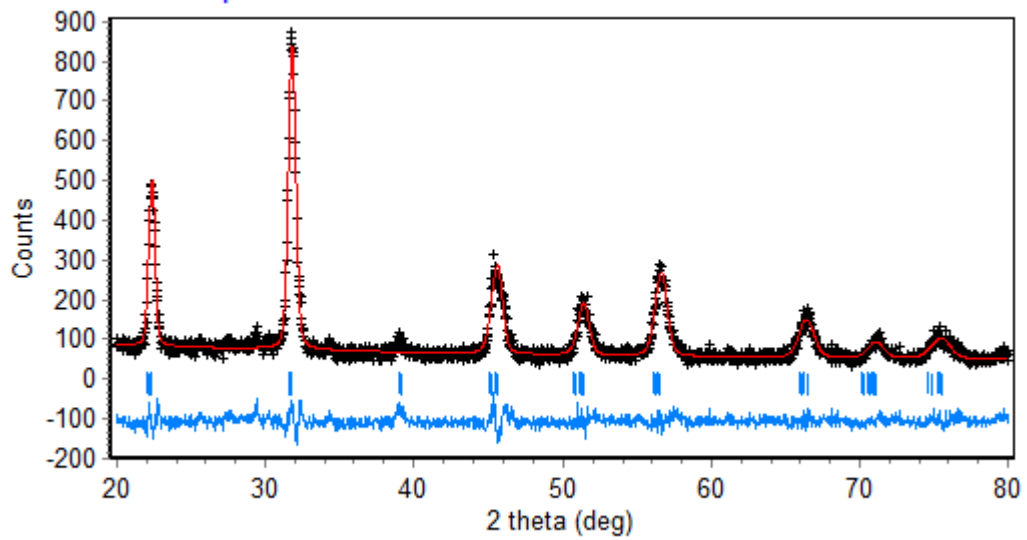
BST:



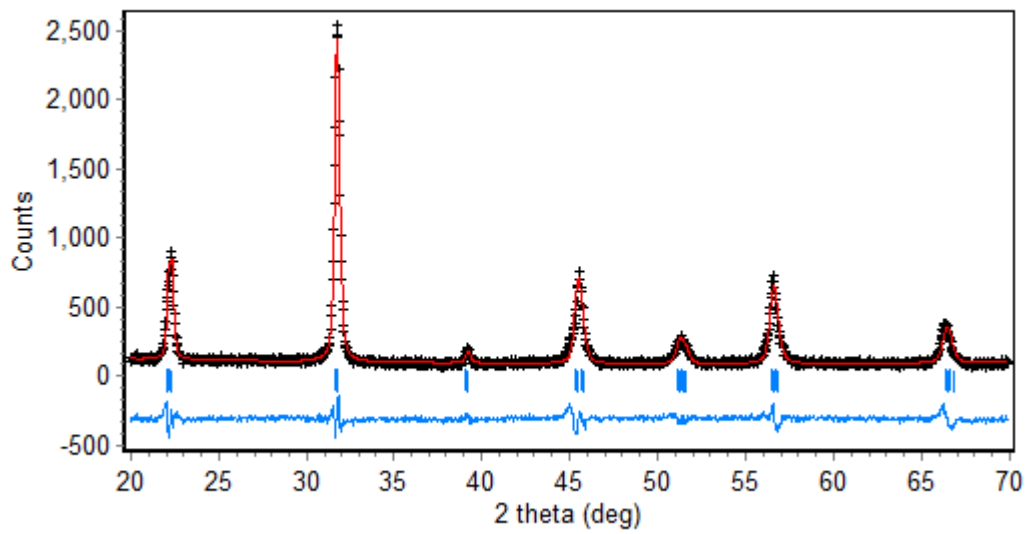
KNN-BST Powder Rute Sintesis 1:



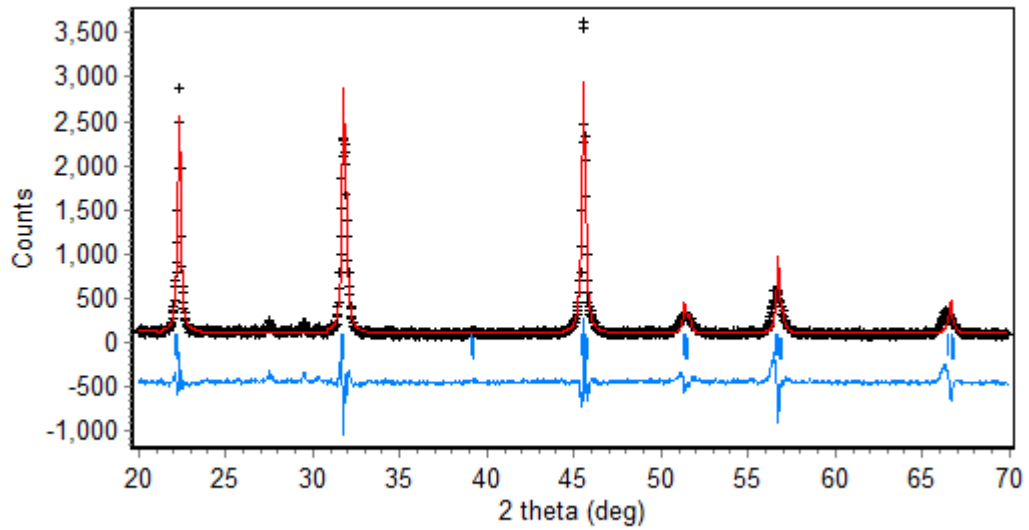
KNN-BST Powder Rute Sintesis 2:



KNN-BST Pelet Rute Sintesis 1:



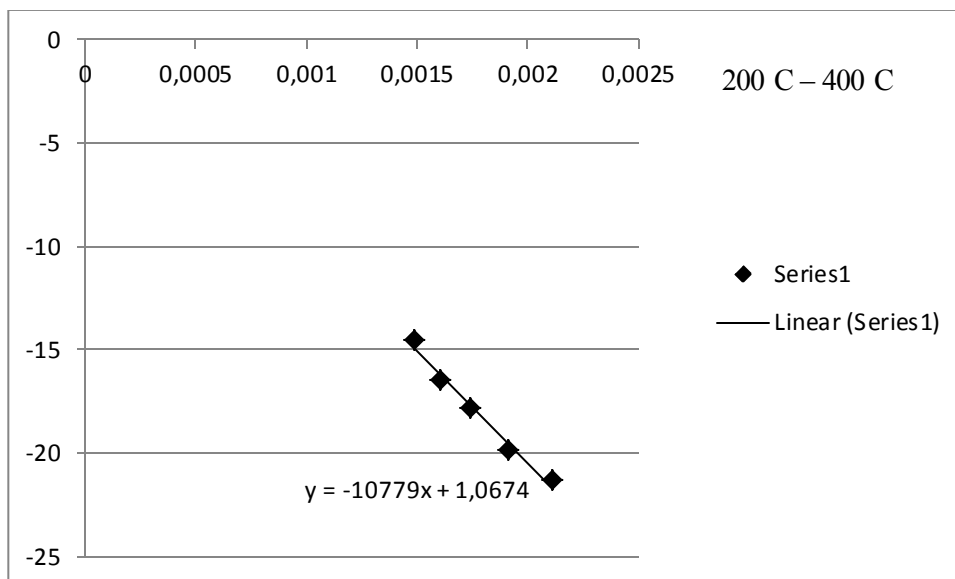
KNN-BST Pelet Rute Sintesis 2:

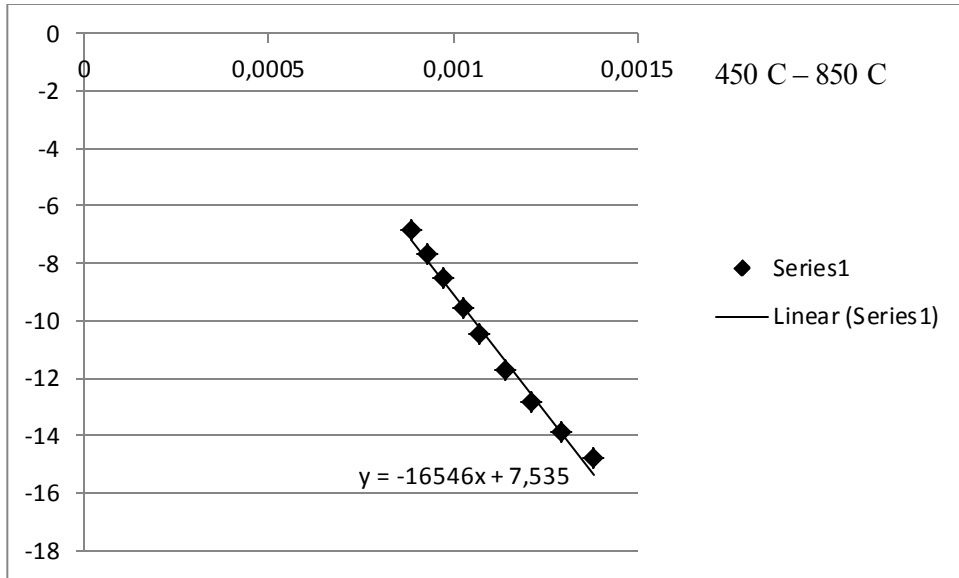


LAMPIRAN F. PERHITUNGAN ENERGI AKTIVASI

Sampel Rute 1 (Kalsinasi-Kalsinasi):

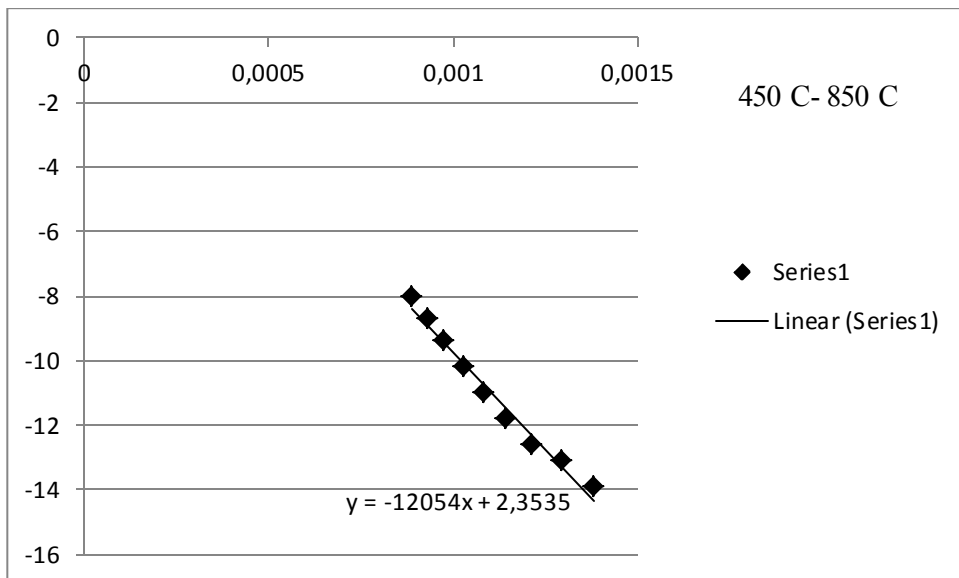
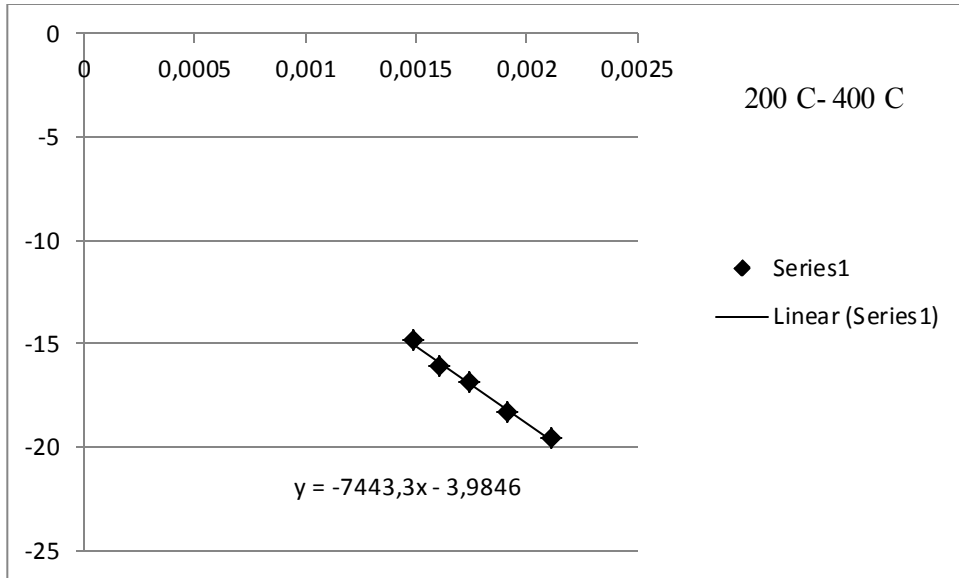
T	1/T	Ln Konduktivitas
200	0.002114165	-21.38532243
250	0.001912046	-19.91764712
300	0.001745201	-17.83221649
350	0.001605136	-16.47337897
400	0.001485884	-14.58320247
450	0.001383126	-14.81647982
500	0.001293661	-13.9262972
550	0.001215067	-12.86906545
600	0.001145475	-11.73382144
650	0.001071811	-10.50728562
700	0.001027749	-9.617802457
750	0.000977517	-8.559922699
800	0.000931966	-7.690954145
850	0.000890472	-6.873087047





Sampel Rute 2 (Kalsinasi-Non Kalsinasi):

T	1/T	Ln Konduktivitas
200	0.002114165	-19.62465355
250	0.001912046	-18.37089008
300	0.001745201	-16.85768282
350	0.001605136	-16.14341346
400	0.001485884	-14.89255867
450	0.001383126	-13.92000113
500	0.001293661	-13.09743997
550	0.001215067	-12.61461942
600	0.001145475	-11.78850452
650	0.001083424	-10.98919644
700	0.001027749	-10.20496295
750	0.000977517	-9.365633258
800	0.000931966	-8.703267099
850	0.000890472	-8.056721455



Energi aktivasi dihitung dengan persamaan:

$$\sigma = \sigma_o \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right)$$

$$\ln \sigma = \ln \sigma_o - \frac{E_a}{kT}$$

$$E_a = \tan \theta \times \text{konstanta Boltzman}$$

Sampel	Rentang Suhu	Tan θ	Energi Aktivasi
Rute 1 K-K	200°C – 400°C	10779	0,9297 eV
	450°C – 850°C	16546	1,4271 eV
Rute 2 K-NK	200°C – 400°C	7443	0,6419 eV
	450°C – 850°C	12054	1,03965 eV

**SYNTHESIS AND ELECTRICAL PROPERTIES OF LEAD FREE
FERROELECTRIC MATERIAL $0.8(\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3)$ - $0.2(\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3)$
USING COMBINATION OF SOLID STATE REACTION-OKSALAT
COPRECIPITATION METHOD**

Name : Ersma Desmelinda
NRP : 1113201002
Supervisor : Prof. Dr. Suasmoro, DEA

ABSTRACT

Lead free ferroelectric material behave ABO_3 perovskite structure ($A = \text{K}_{0.4}, \text{Na}_{0.4}, \text{Ba}_{0.16}, \text{Sr}_{0.04}$ and $B = \text{Nb}_{0.8}, \text{Ti}_{0.2}$) has been successfully synthesized using a combination of solid state reaction and oxalate coprecipitation method. A batch of $\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3$ (KNN) synthesized through solid state reaction and a batch of $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3$ (BST) precursor-calcined prepared via oxalate coprecipitation were mixed by 0.8 mol KNN and 0.2 mol BST for sample synthesis into two different routes: KNN(calcined)-BST(calcined) as first route and KNN(calcined)-BST (non calcined) as second route. $(\text{K}_{0.4}\text{Na}_{0.4}\text{Ba}_{0.16}\text{Sr}_{0.04})(\text{Nb}_{0.8}\text{Ti}_{0.2})\text{O}_3$ powders from each route were calcined based on thermal analysis (DTA-TGA). Single phase of $(\text{K}_{0.4}\text{Na}_{0.4}\text{Ba}_{0.16}\text{Sr}_{0.04})(\text{Nb}_{0.8}\text{Ti}_{0.2})\text{O}_3$ was formed by calcinations at 1100°C -2 hours for first route and at 700°C -2 hours for second route. The study of sintering was conducted by mean dilatometry. Sinter pellet sample shows good densification when sintering was took place at 1200°C for 2 hours. Due to volatility of alkaline element, K and Na were taken essesively by increasing 4% mol K - 16% mol Na for first route and 2% mol K - 8% mol Na for second route. Single phase of $(\text{K}_{0.4}\text{Na}_{0.4}\text{Ba}_{0.16}\text{Sr}_{0.04})(\text{Nb}_{0.8}\text{Ti}_{0.2})\text{O}_3$ pellet has been obtained successfully. After structure analysis using Rietveld refinements, known that KNN powder behave perovskite orthorombic structure with $a=3.572027 \text{ \AA}$, $b=3.570713 \text{ \AA}$, $c=3.565755 \text{ \AA}$ and BST powder behave perovskite tetragonal structure with $a=b=3.983412 \text{ \AA}$, $c=3.995775 \text{ \AA}$. It also known that $(\text{K}_{0.4}\text{Na}_{0.4}\text{Ba}_{0.16}\text{Sr}_{0.04})(\text{Nb}_{0.8}\text{Ti}_{0.2})\text{O}_3$ pellets from both routes behave perovskite tetragonal structure with lattice parameter $a=b=3.956166 \text{ \AA}$, $c=3.981212 \text{ \AA}$ for first route and $a=b=3.949728 \text{ \AA}$, $c=3.965926 \text{ \AA}$ for second route. Electrical properties was identified by impedance analyzer. Curie temperature of $(\text{K}_{0.4}\text{Na}_{0.4}\text{Ba}_{0.16}\text{Sr}_{0.04})(\text{Nb}_{0.8}\text{Ti}_{0.2})\text{O}_3$ from first route is $\sim 440^\circ\text{C}$ and $\sim 420^\circ\text{C}$ for second route. There are two activation energy region of both sample: -0.9297 eV ($\sim 200^\circ\text{C}$ - $\sim 400^\circ\text{C}$) and 1.4271 eV ($\sim 450^\circ\text{C}$ - $\sim 850^\circ\text{C}$) for sample by first route and 0.6419 eV ($\sim 200^\circ\text{C}$ - $\sim 400^\circ\text{C}$) and 1.0397 eV ($\sim 450^\circ\text{C}$ - $\sim 850^\circ\text{C}$) for sample by second route.

Keywords: dielectricity, coprecipitation, perovskite, oxalate

KATA PENGANTAR

Alhamdulillah rabbil'alamin. Puji syukur kepada Allah SWT yang Maha Pengasih dan Penyayang penulis ucapkan karena hanya dengan izin-Nya penulis dapat menyelesaikan penelitian yang berjudul "Sintesis dan Karakterisasi Listrik Material Ferroelektrik Bebas Timbal $0,8(Ka_{0,5}Na_{0,5}NbO_3)-0,2(Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3)$ dengan Metode Gabungan Reaksi Padat-Kopresipitasi Oksalat".

Pada kesempatan ini penulis juga ingin menyampaikan terima kasih banyak kepada semua pihak yang telah banyak membantu penulis dalam penyelesaian tugas ini, diantaranya:

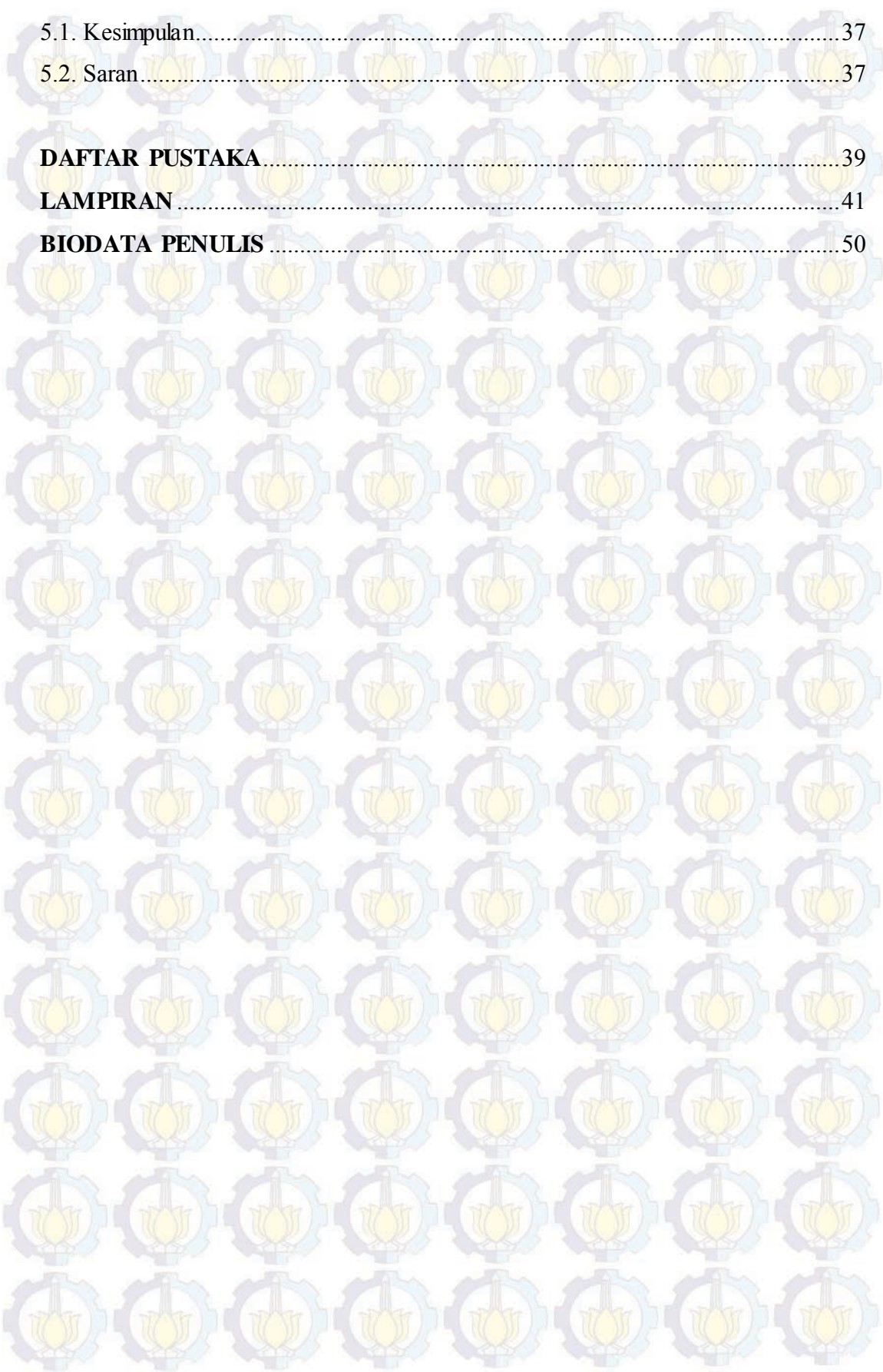
1. Prof. Dr. Suasmoro selaku dosen wali sekaligus dosen pembimbing tesis yang senantiasa memberikan bimbingan, wawasan, dan motivasi sejak awal penulis menjadi mahasiswa beliau hingga kini.
2. Prof. Drs. Suminar Pratapa, M.Sc., Ph.D selaku dosen penguji yang telah banyak memberikan masukan positif bagi penelitian dan penulisan laporan penelitian ini.
3. Dr. Drs. M. Zainuri, M.Si selaku dosen penguji yang telah banyak memberikan masukan positif bagi penelitian dan penulisan laporan penelitian ini.
4. Rekan satu tim penelitian: Bapak Imam Rofi'i, Mbak Rizki Noviani, Mas Anthon Thoim, adinda Dian Agustinawati, adinda Amalia Ma'rifatul Maghfiroh dan adinda Nur Lailiyah Isnaini yang telah mendampingi pelaksanaan penelitian sehingga dapat tersusunnya tesis ini.
5. Teman-teman satu angkatan Magister Fisika 2013 yang senantiasa memberi motivasi kepada penulis.

Penulis menyadari, bahwa proposal tesis ini tentunya banyak memiliki kekurangan di sana sini karena kurangnya pengalaman dan pengetahuan penulis sendiri. Oleh karena itu, kritik dan saran yang bersifat membangun terutama dari dosen pembimbing dan dosen-dosen penguji sangat penulis harapkan demi perbaikan di masa akan datang.

DAFTAR ISI

LEMBAR PENGESAHAN	i
ABSTRAK	ii
ABSTRACT	iii
KATA PENGANTAR	iv
DAFTAR ISI	v
DAFTAR GAMBAR	vii
DAFTAR TABEL	viii
DAFTAR LAMPIRAN	ix
BAB 1 PENDAHULUAN	1
1.1. Latar Belakang	1
1.2. Perumusan Masalah	2
1.3. Tujuan Penelitian	2
1.4. Manfaat Penelitian	2
BAB 2 LANDASAN TEORI	3
2.1. Struktur Material Berbasis Niobat dan Titanat	3
2.2. Karakterisasi Dielektrisitas dan Konduktivitas Material	8
BAB 3 METODE PENELITIAN	13
3.1. Material	13
3.2. Alat dan Bahan	13
3.3. Metode Sintesis	14
3.4. Metode Karakterisasi	17
BAB 4 HASIL DAN PEMBAHASAN	19
4.1. Sintesis KNN-BST	19
4.2. Karakterisasi Listrik KNN-BST	28

BAB 5 KESIMPULAN DAN SARAN	37
5.1. Kesimpulan.....	37
5.2. Saran.....	37
DAFTAR PUSTAKA	39
LAMPIRAN	41
BIODATA PENULIS	50



DAFTAR TABEL

Tabel 1. Struktur Kristal dan Parameter Kisi KNN dan BST.....	20
Tabel 2. Parameter Kisi Serbuk $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$	24
Tabel 3. Data Jari-Jari Ion.....	24
Tabel 4. Parameter Kisi Pelet $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$	26
Tabel 5. Densitas $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$	27
Tabel 6. Suhu Curie.....	28
Tabel 7. Energi Aktivasi $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$	34

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1. Struktur Perovskite.....	3
Gambar 2.2. Karakteristik Piezoelektrik dan Permittivitas Relatif (Saito).....	4
Gambar 2.3. Pola XRD KNN dan BST.....	5
Gambar 2.4. Suhu Transisi dan Tetragonalitas $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$	5
Gambar 2.5. Pola XRD dan SEM KNN-BCT.....	6
Gambar 2.6. Permittivitas Relatif dan Tangen <i>loss</i> KNN-BCT.....	7
Gambar 2.7. Variasi konstanta dielektrik dan <i>loss</i> terhadap frekuensi.....	8
Gambar 2.8. Plot konstanta dielektrik sebagai fungsi frekuensi.....	9
Gambar 2.9. Plot Cole-Cole impedansi $Z''-Z'$	10
Gambar 3.1. Diagram alir sintesis KNN.....	14
Gambar 3.2. Diagram alir sintesis BST.....	15
Gambar 3.3. Diagram Alir Penelitian.....	16
Gambar 4.1. Pola XRD KNN dan BST (Kalsinasi 700°C-2 Jam).....	19
Gambar 4.2. Kurva TGA-DTA.....	21
Gambar 4.3. Volatilitas Unsur Alkali.....	22
Gambar 4.4. Pola XRD serbuk KNN-BST.....	22
Gambar 4.5. Hasil Uji Dilatometri.....	25
Gambar 4.6. Pola XRD Pelet KNN-BST.....	26
Gambar 4.7. Struktur Perovskite KNN-BST.....	27
Gambar 4.8. Hubungan Permittivitas Relatif dan Suhu.....	28
Gambar 4.9. Hubungan Permittivitas Relatif dan Frekuensi.....	30
Gambar 4.10. Plot Cole-Cole $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ (K-K).....	31
Gambar 4.11. Plot Cole-Cole $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ (K-NK).....	32
Gambar 4.12. Faktor Disipasi $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$	33
Gambar 4.13. Konduktivitas KNN-BST.....	34

DAFTAR PUSTAKA

- Barsoum, M.W., 2003. *Fundamental of Ceramics*. IOP Publishing.
- Blennow, P., Hagen, A., Hansen, K.K., Wallenberg, L.R. and Mogensen, M., 2008. Defect and Electrical Transport Properties of Nb-doped SrTiO₃. *Solid State Ionics* 179: 2047-2058.
- Cho, C.W., Cha, M.R., Jang, J.Y., Lee, S.H., Kim, D.J., Park, S., Bae, J.S., Bu, S.D., Lee, S. and Huh, J., 2012. Ferroelectric Relaxor Properties of (1-x)K_{0.5}Na_{0.5}NbO₃-xBa_{0.5}Ca_{0.5}TiO₃ Ceramics. *Current Applied Physics* 12 1266-1271.
- Chiang, Y.M., 1997. *Principles for Ceramic Science and Engineering*. Dunbar Birnie 3, W. David Kingery: John Wiley and Son.
- Du, H., Zhou, W., Luo, F., Zhu, D., Qu, S. dan Pei, Z., 2009. Phase structure, dielectric properties, and relaxor behavior of (K_{0.5}Na_{0.5})NbO₃-(Ba_{0.5}Sr_{0.5})TiO₃ lead-free solid solution for high temperature applications. *Journal of Applied Physics*, 105, 124104.
- Fu, J. S., 2009. *Ferroelectric materials and their applications in electronic circuits*. Taiwan: National Central University Press.
- Golmohammad, M., Nemati, A. dan Sani, M.A.F., 2012. Synthesis and Dielectric Properties of Nanocrystalline BaSrTiO₃. *International Journal of Modern Physics: Conference Series* Vol.5-188-195.
- Kittel, C., 2005. *Introduction to Solid State Physics*. John Wiley and Sons.
- Li, Y., Chen, W., Zhou, J., Xu, Q., Sun, H. dan Xu, R., 2004. Dielectric and piezoelectric properties of lead-free (Na_{0.5}Bi_{0.5})TiO₃-NaNbO₃ ceramics. *Material Science and Engineering B* 112 (5-9)
- Moulson, A.J dan Herbert, J.M., 2003. *Electroceramics: Material, Properties and Applications* Second Edition. England: John Wiley and Sons.
- 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., Takatori, K., Homma, T., Nagaya, T. dan Nakamura, M., 2004. Lead-Free Piezoceramics. *Nature*, 432, 84–87.

S. Suasmoro, S. Pratapa, D. Hartanto, D. Setyoko dan U.M. Dani, 2000. The characterization of mixed titanate $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ phase formation from oxalate coprecipitated precursor. *Journal of European Ceramic Society* 20 309-314.

Suasmoro, 2012. *Feroelektrik Barium Strontium Titanat $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ Struktur, Synthesis, Karakteristik Elektrik*. Surabaya: ITS Press.

Wang, Y. L., Lu, Y. Q., Wu, M. J., Wang, D. dan Li, Y.X., 2012. Low-temperature sintering and electrical properties of $(K,Na)NbO_3$ based lead-free ceramics with high curie temperature. *Ceramics International*, 38S S295-S299.

Wang, K. dan Li, J.F., 2012. $(K, Na)NbO_3$ -Bades Lead-Free Piezoceramics: Phase Transition, Sintering and Property Enhancement. *Journal of Advanced Ceramics* ISSN 2226-4108.

BIODATA PENULIS



Ersa Desmelinda, lahir pada tanggal 22 Desember 1990 di Desa Pulau Jambu, Kec. Bangkinang Barat, Kampar-Riau. Anak pertama dari bapak Saleh dan ibu Eryani. Penulis menempuh pendidikan formal di TK Aisyah Kec. Tebing Tinggi, SD Muallimin Kec. Tebing Tinggi (kelas 1 – kelas 4), SDN 1 Kec. Tebing Tinggi (kelas 5 – kelas 6), SMPN 1 Kec. Tebing Tinggi, SMAN Plus Prop. Riau, S1 Pendidikan Fisika

Universitas Riau dan S2 Fisika Institut Teknologi Sepuluh Nopember tahun 2013 dengan NRP 1113201002. Di jurusan Fisika ITS penulis mengambil konsentrasi di bidang fisika material. Publikasi penelitian ini pernah dilakukan di ICRIEMS 2015 di UNY Yogyakarta. Kritik dan saran dapat ditujukan ke email: e.desmelinda@yahoo.com.

BAB I PENDAHULUAN

1.1.Latar Belakang

Material ferroelektrik merupakan salah satu jenis material yang memiliki peranan penting di dunia sains dan industri. Sebut saja beberapa contoh pemanfaatan material ferroelektrik pada rangkaian elektronik seperti: varator pada rangkaian *microwave*, modulator elektro-optik, bahan dielektrik yang baik untuk kapasitor, *FeRAM (ferroelectric RAM)*, *ferroelectric tunnel junction*, bahan *multiferroic*, tansduser piezoelektrik, detektor piroelektrik, PTC (*positive temperature coefficient*) dan sensor infra merah (Suasmoro, et al, 2000 dan Fu, J.S., 2009).

Material ferroelektrik yang telah digunakan secara meluas di dunia industri piranti elektronik adalah material berbasis timbal (Pb), khususnya PZT. Material berbasis timbal disukai oleh dunia industri karena sifat kelistrikannya yang unggul yaitu dengan temperatur Curie berkisar pada daerah 250-400°C dengan d_{33} berkisar pada 400-500 pC/N (Saito, Y., et al, 2004).

Fakta mengejutkan muncul saat diketahui bahwa industri timbal menimbulkan polusi yang berbahaya bagi kesehatan manusia dan lingkungan. Fakta ini memotivasi pencarian material ferroelektrik pengganti yang bebas timbal dan lebih ramah lingkungan. Banyak penelitian yang telah dilakukan sebagai bentuk upaya memenuhi kebutuhan ini. Sampai saat ini, berbagai macam material masih dikembangkan untuk mencari solusi yang paling tepat.

Pada penelitian ini akan disintesis material ferroelektrik berbasis niobat yaitu $Ka_{0,5}Na_{0,5}NbO_3-Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ (selanjutnya akan ditulis KNN-BST). Material keramik berbasis $KaNaNbO_3$ memiliki tanda-tanda sebagai material ferroelektrik. Hal ini diketahui dari banyak penelitian yang telah dilakukan sebelumnya. Wang, dkk melaporkan bahwa bahan keramik $0,7(K_{0,48}Na_{0,52})NbO_3-0,058(K_{2,9}Li_{1,95}Nb_{5,15}O_{15,3})$ yang disintesis dengan metode reaksi padat memiliki suhu Curie 495°C dengan permitivitas relatif yang cukup baik, yaitu $\epsilon_r = 478$ pada suhu ruang dengan ϵ_r maksimum bernilai 5067.

Di dalam penelitian lain, Hongliang Du, et al (2009) menemukan nilai maksimum permitivitas $Ka_{0,5}Na_{0,5}NbO_3-Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ mendekati 2500 pada rentang suhu 100°C-250°C dengan dielektrik *loss* kurang dari 4%.

Golmohammad, et al (2012) menemukan nilai konstanta dielektrik untuk bahan $Ba_{0,7}Sr_{0,3}TiO_3$ yang disintesis dengan metode sol gel pada suhu ruang berada pada rentang 6357 hingga 9447 pada frekuensi antara 120 Hz hingga 10 kHz.

Berdasarkan fakta-fakta yang telah dipaparkan, maka kami memutuskan untuk menyintesis material ferroelektrik berstruktur *perovskite* ABO_3 dengan $A = K, Na, Ba, Sr$ dan $B = Nb, Ti$ dan komposisi $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$. Hal ini dilakukan sebagai upaya untuk mendapatkan material ferroelektrik fasa tunggal berstruktur *perovskite* yang tangguh secara mekanik dan memiliki sifat listrik yang unggul.

1.2. Perumusan Masalah

Permasalahan yang mendasari penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Bagaimana struktur *perovskite* fasa tunggal ABO_3 dengan $A = K, Na, Ba, Sr$ dan $B = Nb, Ti$ yang disintesis dengan metode gabungan reaksi padat-kopresipitasi oksalat.
2. Bagaimana sifat listrik, khususnya dielektrisitas dan suhu Curie dari material bebas timbal fasa tunggal ABO_3 dengan $A = K, Na, Ba, Sr$ dan $B = Nb, Ti$ yang disintesis dengan metode gabungan reaksi padat-kopresipitasi oksalat.

1.3. Tujuan Penelitian

Penelitian ini dilakukan dengan tujuan:

1. Menyintesis material bebas timbal berstruktur *perovskite* fasa tunggal ABO_3 dengan $A = K, Na, Ba, Sr$ dan $B = Nb, Ti$ menggunakan metode gabungan reaksi padat-kopresipitasi oksalat.
2. Melakukan karakterisasi sifat listrik, khususnya dielektrisitas dan suhu Curie dari material yang disintesis.

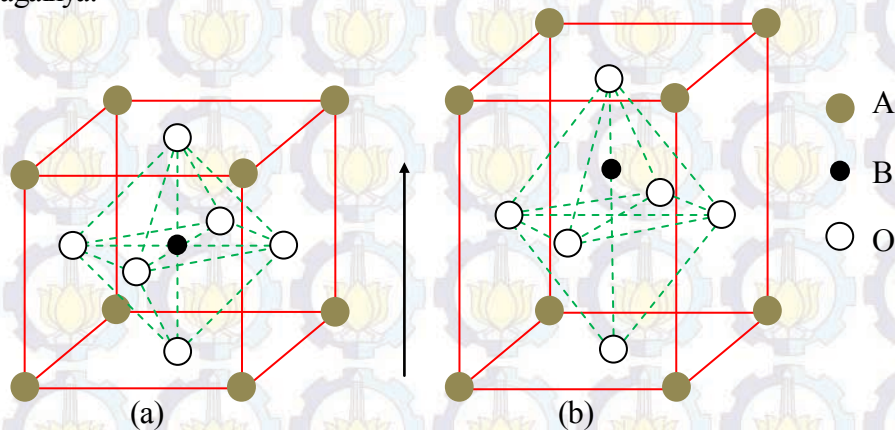
1.4. Manfaat Penelitian

Penelitian ini diharapkan mampu menghasilkan material ferroelektrik ramah lingkungan dengan sifat listrik yang baik sehingga dapat digunakan sebagai material alternatif pada berbagai aplikasi elektronik.

BAB II LANDASAN TEORI

1.1. Struktur Material Berbasis Niobat dan Titanat

Material berbasis niobat dan titanat diketahui memiliki struktur perovskite. Perovskite merupakan sebutan bagi 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.

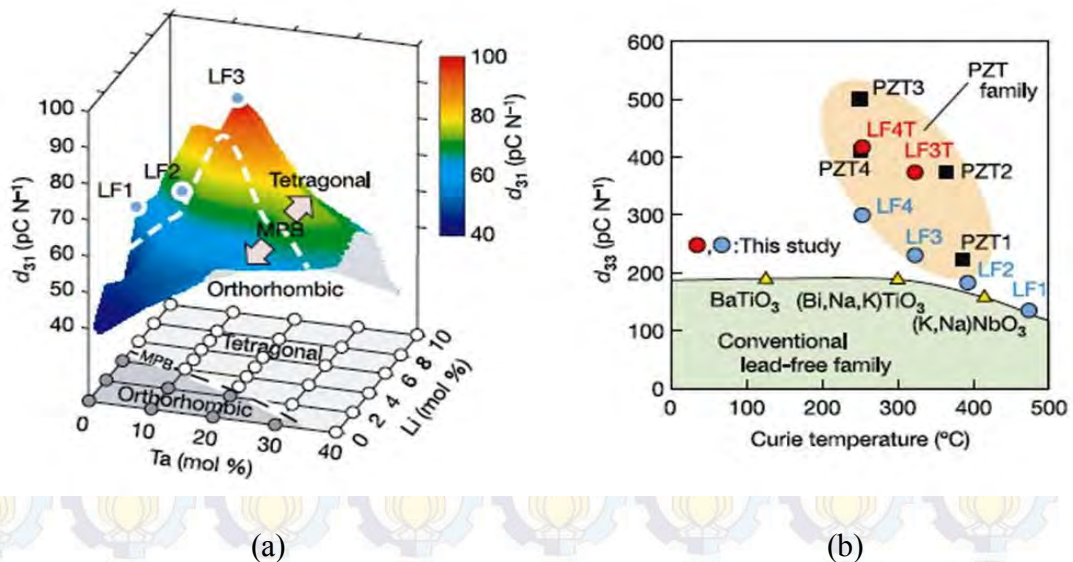


Gambar 2.1. Struktur Perovskite: a. pada fasa kubik, b. pada fasa tetragonal
(Chiang, Y.M., 1997)

Bahan ferroelektrik memiliki struktur perovskite. Material berstruktur perovskite ini dapat menjadi penyimpan muatan listrik yang baik akibat terbentuknya polarisasi pada bahan. Mekanisme terbentuknya polarisasi dapat dijelaskan akibat adanya transisi fasa kubik menjadi tetragonal pada suhu tertentu yang dikenal dengan suhu 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 membuatnya bersifat dipol sehingga pada skala makroskopis terjadi pemisahan muatan positif dan negatif atau dengan kata lain material bersifat dielektrik.

Dengan karakteristik dielektriknya, material perovskite memiliki potensi aplikasi yang cukup luas seperti pada kapasitor, termistor, peralatan elektro-optik, *non-volatile* DRAM (*dynamic random access memory*), aplikasi ultrasonik, *transducer* dan sebagainya. (Suasmoro, et al, 2000)

Ada banyak jenis metode sintesis material keramik seperti metode reaksi padat, sol-gel, *molten salt*, kopresipitasi, hidrotermal, CVD dan sebagainya, namun secara umum metode sintesis ini terbagi menjadi dua jenis yaitu *top-down process* dan *bottom-up process*. Metode reaksi padat adalah salah satu metode sintesis yang disukai karena prosedur dan pemilihan bahan dasarnya yang relatif lebih mudah. Metode reaksi padat tergolong kepada *top-down process*. Kopresipitasi (pengendapan) merupakan salah satu jenis dari *bottom up process*. Kopresipitasi oksalat adalah proses pengendapan dengan bantuan asam oksalat sebagai agen pengendap. Keunggulan metode sintesis jenis *bottom up process* adalah di dapat hasil sintesis yang lebih homogen dengan ukuran partikel yang lebih kecil.

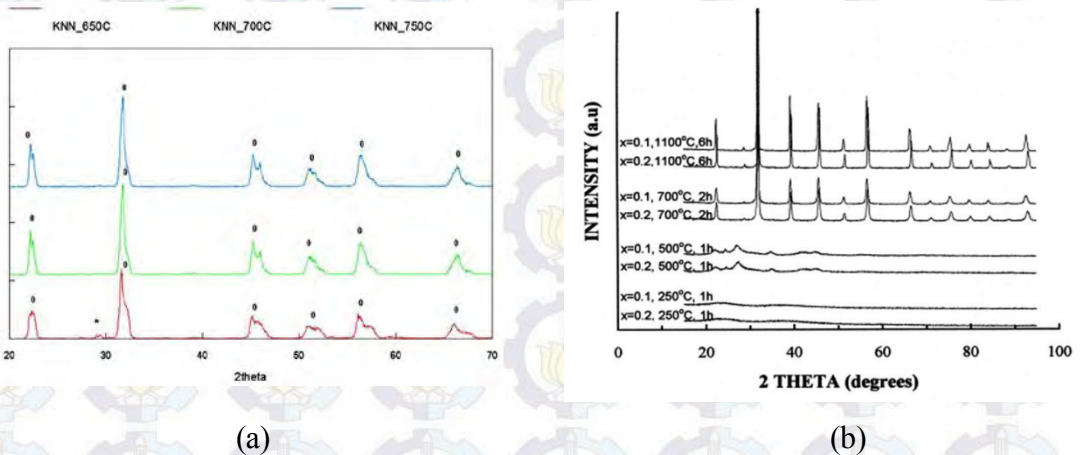


Gambar 2.2. Karakteristik piezoelektrik (a) konstanta d_{31} $(K_{0,5}Na_{0,5})_{1-x}Li_x(Nb_{1-y}Ta_y)O_3$ sebagai fungsi komposisi Li dan Ta dengan LF1 ($x=0,06;y=0$), LF2 ($x=0,04;y=0,10$), LF3 ($x=0,03;y=0,2$) dan (b) konstanta d_{33} berbagai material sebagai fungsi temperatur curie (Saito, Y., et al, 2004)

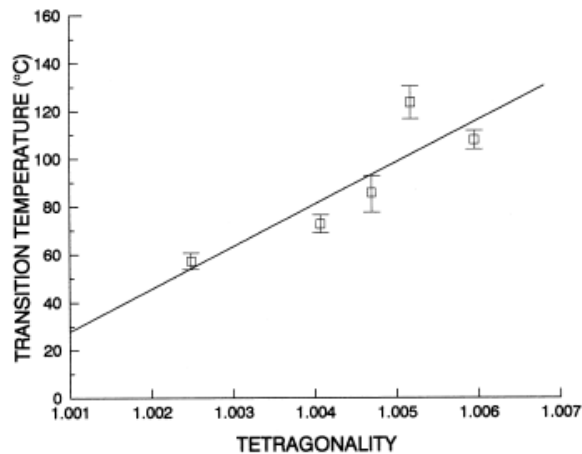
Dari perkembangan penelitian yang dilakukan, diketahui bahwa material berstruktur perovskite tidak hanya diperoleh dari kation bervalensi +2 pada situs A dan +4 pada situs B seperti pada $BaTiO_3$. Kation bervalensi +1 seperti Li, K, Na juga dapat berada di situs A perovskite dengan kation bervalensi +5 seperti Nb, Ta, Sb pada situs B. Penelitian yang dikembangkan oleh Saito dkk (2004) menghasilkan material dengan

komposisi MPB (*morphotropic phase boundary*) yang terdiri dari fasa tetragonal dan orthorombik dengan variasi komposisi Li dan Ta.

Melalui penelitiannya, Saito, dkk berhasil menemukan material LF4T dengan komposisi $(K_{0,44}Na_{0,52}Li_{0,04})(Nb_{0,84}Ta_{0,10}Sb_{0,06})O_3$ yang memiliki karakteristik piezoelektrik (d_{33}) unggul dan hampir setara dengan yang dimiliki material $PbZrTiO_3$ (Gambar 2.2). Hasil penelitian tersebut menjadi pemicu dikembangkannya material berbasis niobat lainnya.



Gambar 2.3. Pola XRD (a). KNN (Rohmah, N.A., 2014) (b). BST (S. Suasmoro, S. Pratapa, D. Hartanto, D. Setyoko dan U.M. Dani, 2000)

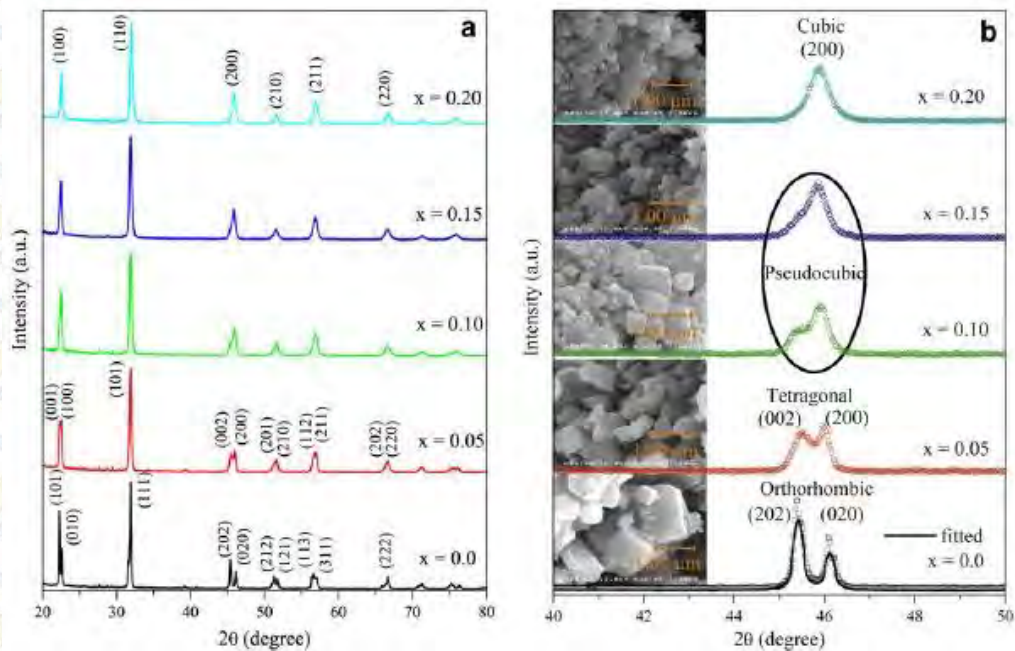


Gambar 2.4. Suhu Transisi dan Tetragonalitas $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ (S. Suasmoro, S. Pratapa, D. Hartanto, D. Setyoko dan U.M. Dani, 2000)

Dari penelitian yang telah dilakukan oleh Rohmah, N.A., kristal $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ fasa tunggal yang disintesis dengan metode reaksi padat terbentuk pada suhu kalsinasi

700°C selama 2 jam dengan struktur tertagonal *perovskite* dengan $a=b=3,9587 \text{ \AA}$ dan $c=4,0137 \text{ \AA}$.

Kristal fasa tunggal $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$ berstruktur *perovskite* yang disintesis dengan metode kopresipitasi oksalat terbentuk pada suhu 700°C selama 2 jam (Suasmoro, et alS. Pratapa, D. Hartanto, D. Setyoko dan U.M. Dani, 2000). Dari penelitian tersebut juga ditemukan fakta bahwa tetragonalitas berkurang dengan peningkatan konsentrasi ion Sr^{2+} yang berada di situs Ba^{2+} , dimana selanjutnya diketahui bahwa suhu transisi berbanding lurus terhadap tetragonalitas.

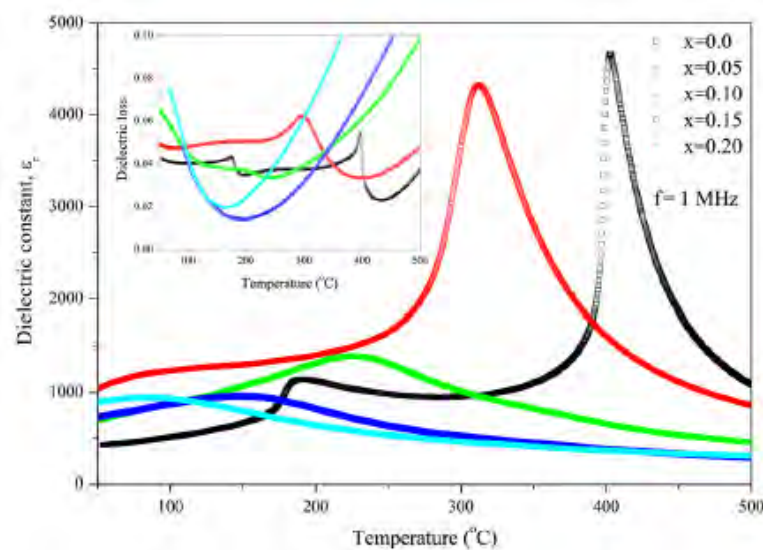


Gambar 2.5. (a). Pola XRD $(1-x)\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3-x\text{Ba}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{TiO}_3$ (b). Hasil SEM dan pola difraksi bidang 200 yang diperbesar sehingga menunjukkan perubahan fasa (Cho, C.W. et al, 2012)

Hongliang Du telah menyintesis material KNN berstruktur *perovskite* orthorombik, namun dengan penambahan $(\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$ terjadi perubahan struktur menjadi *perovskite* tetragonal, pseudokubik lalu kubik. Hasil serupa juga didapat oleh Cho, C.W. et al yang menyintesis $(1-x)\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3-x\text{Ba}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{TiO}_3$. Pada suhu ruang $\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3$ 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 $c=5,721 \text{ \AA}$. Dengan penambahan $\text{Ba}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{TiO}_3$, terjadi perubahan struktur pada sistem kristal $(1-x)\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3-x\text{Ba}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{TiO}_3$. Sistem kristal berstruktur tetragonal untuk $x=0,05$, pseudokubik

untuk $x=0,10$ dan $0,15$. Dengan $x=0,20$, terbentuk kristal dengan struktur kubik perovskite (Cho, C.W., et al, 2012).

Perubahan struktur akibat penambahan $Ba_{0,5}Ca_{0,5}TiO_3$ ini berhubungan dengan perbedaan ukuran dari jari-jari ion. Jari-jari ion rerata di situs A lebih kecil daripada $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ atau dengan kata lain jari-jari ion rerata di situs B lebih besar daripada $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$. Penambahan $Ba_{0,5}Ca_{0,5}TiO_3$ ke sistem $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ mengurangi perbedaan jari-jari ion rerata antara ion di situs A dan ion di situs B sehingga menurunkan tingkat asimetri sistem kristal (Cho,C.W.et al, 2012).



Gambar 2.6. Pengaruh suhu terhadap permitivitas dielektrik dan tangent loss dari $(1-x)K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3-xBa_{0,5}Ca_{0,5}TiO_3$ pada frekuensi 1 MHz (Cho,C.W.et al, 2012)

$K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ memiliki dua puncak dielektrik yang berhubungan dengan transisi fasa orthorombik-tetragonal pada suhu sekitar $200^\circ C$ dan transisi tetragonal-kubik pada suhu sekitar $400^\circ C$. Penambahan $Ba_{0,5}Ca_{0,5}TiO_3$ ke sistem KNN menimbulkan terbentuknya hanya satu puncak dielektrik dan dapat menurunkan suhu Curie. Konstanta dielektrik maksimum untuk $(1-x)K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3-xBa_{0,5}Ca_{0,5}TiO_3$ bernilai ~ 4500 dengan komposisi $x=0,05$ dan suhu curie $\sim 313^\circ C$. Untuk komposisi $x \geq 0,10$ konstanta dielektrik maksimum sampel berkisar di daerah ~ 1000 . Penambahan komposisi BCT menurunkan suhu Curie dan konstanta dielektrik.

1.2. Karakterisasi Dielektritas dan Konduktivitas Material

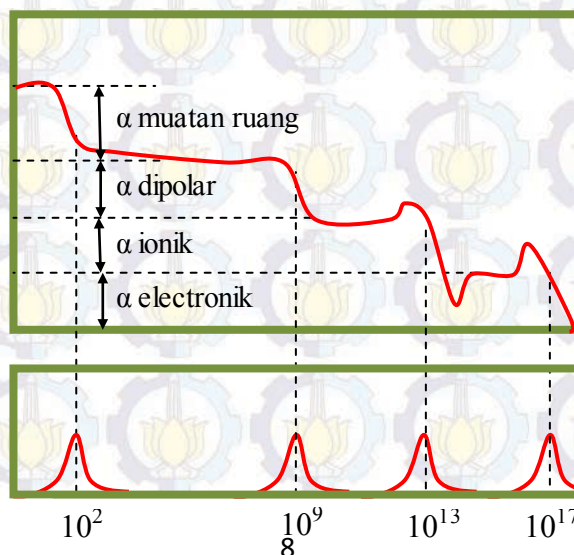
Sifat listrik material dielektrik $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ sebagai fungsi frekuensi dapat diperoleh dengan menggunakan *impedance analyzer* ataupun LCR meter. Parameter berupa nilai kapasitansi yang diperoleh dari hasil pengukuran listrik dapat digunakan untuk menentukan nilai permitivitas relatif atau konstanta dielektrik (k) material pada berbagai frekuensi dengan menggunakan persamaan:

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

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 menuruti hukum Curie-Weiss:

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

dimana A adalah tetapan yang bergantung pada jenis material dan θ_c 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 θ_c . Hal ini terkait dengan polarisasi maksimum yang terjadi di sekitar temperatur kritis tersebut akibat adanya perubahan fasa.



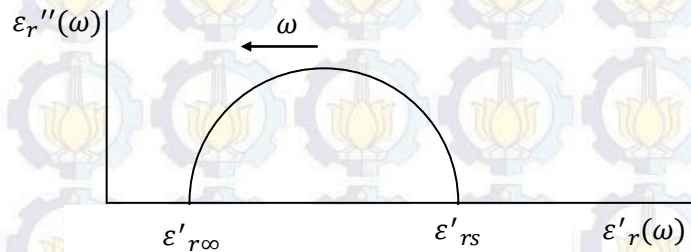
Gambar 2.7. Variasi konstanta dielektrik terhadap frekuensi (atas) dan variasi dielektrik loss terhadap frekuensi (bawah)

Terdapat beberapa jenis polarisasi yang mungkin terjadi pada material dielektrik yaitu polarisasi elektronik, atomik, dipolar, dan muatan ruang. Sebagaimana ditunjukkan pada Gambar 2.7, masing-masing jenis polarisasi ini akan memberikan respon terhadap frekuensi yang berbeda domainnya (Suasmoro, 2012). Persamaan polarisasi bergantung waktu untuk polarisasi dipolar yaitu:

$$P_d^* = k_s \exp\left(-\frac{t}{T}\right) + \frac{(k_s - k_\infty)}{1 + j\omega\tau} E_o \exp(j\omega\tau) \quad (2.3)$$

dimana k_s dan k_∞ secara berturut-turut merupakan konstanta dielektrik frekuensi rendah dan tinggi, τ adalah tetapan waktu relaksasi dan ω adalah frekuensi. Dari persamaan polarisasi tersebut diperoleh konstanta dielektrik sebagai besaran kompleks yang memenuhi persamaan:

$$k^* = k_\infty + \frac{k_s - k_\infty}{1 + j\omega\tau} \quad (2.4)$$



Gambar 2.8. Plot konstanta dielektrik $\epsilon_r' - \epsilon_r''(k' - k'')$ sebagai fungsi frekuensi ω

Dari besaran kompleks tersebut dapat dijabarkan komponen real dan imajineranya (persamaan 2.5 dan 2.6) sedangkan plot konstanta dielektrik $kk' - kk''$ berbentuk semisirkel atau plot Cole-Cole (Gambar 2.8). Bila pada plot dihasilkan suatu semisirkel sempurna, ini berarti hanya ada satu polarisasi pada material dielektrik. Bila pada plot terdapat ekor maka hal ini mengindikasikan lebih dari satu polarisasi pada material dan menunjukkan adanya *loss factor*. Adanya *loss factor* (δ) merupakan akibat dari disipasi energi listrik menjadi panas dan biasanya ditampilkan sebagai faktor

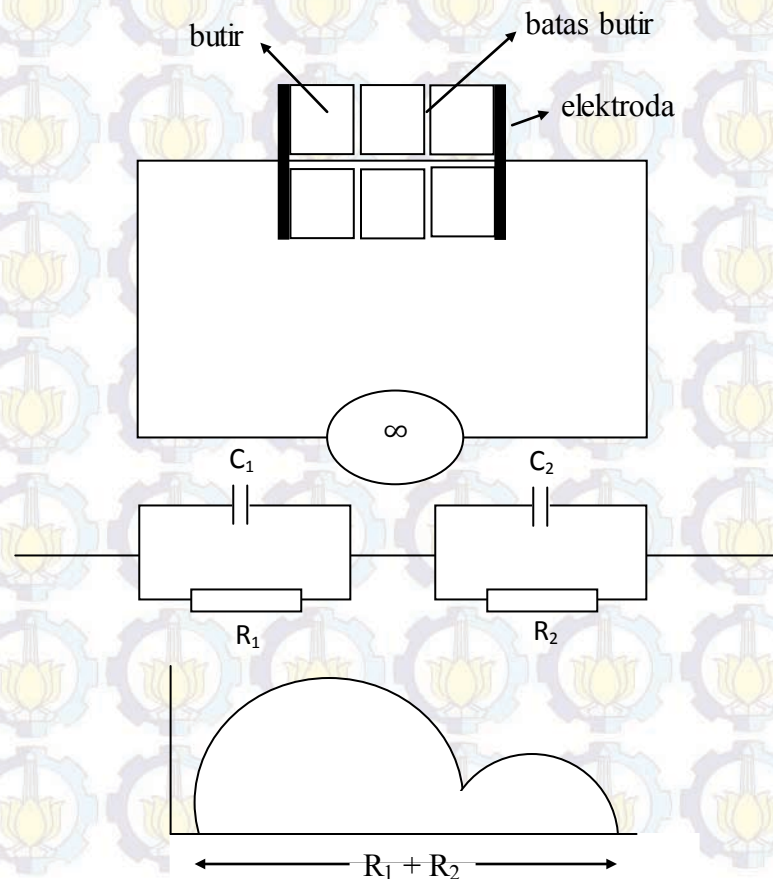
disipasi ($\tan \delta$) yang merupakan rasio antara konstanta dielektrik imajiner dan riil (persamaan 2.7).

$$k' = k_{\infty} + \frac{k_s - k_{\infty}}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (2.5)$$

$$k'' = (k_s - k_{\infty}) \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (2.6)$$

$$\tan \delta = \frac{k''}{k'} = \frac{(k_s - k_{\infty}) \omega \tau}{k_s + k_{\infty} \omega^2 \tau^2} \quad (2.7)$$

Disamping dielektrisitas, dapat pula dilakukan analisis impedansi kompleks pada material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$. Dalam hal ini, bahan dielektrik dimodelkan sebagai rangkaian listrik ekivalen dari rangkaian seri-paralel resistor dan kapasitor dari plat sejajar seperti diilustrasikan pada Gambar 2.9. Plat sejajar yang berisi bahan dielektrik kemudian dihubungkan dengan LCR meter untuk memperoleh respon impedansi kompleks terhadap sumber arus bolak-balik.



Gambar 2.9. Model Rangkaian Bahan Ferroelektrik dan Plot Cole-Cole

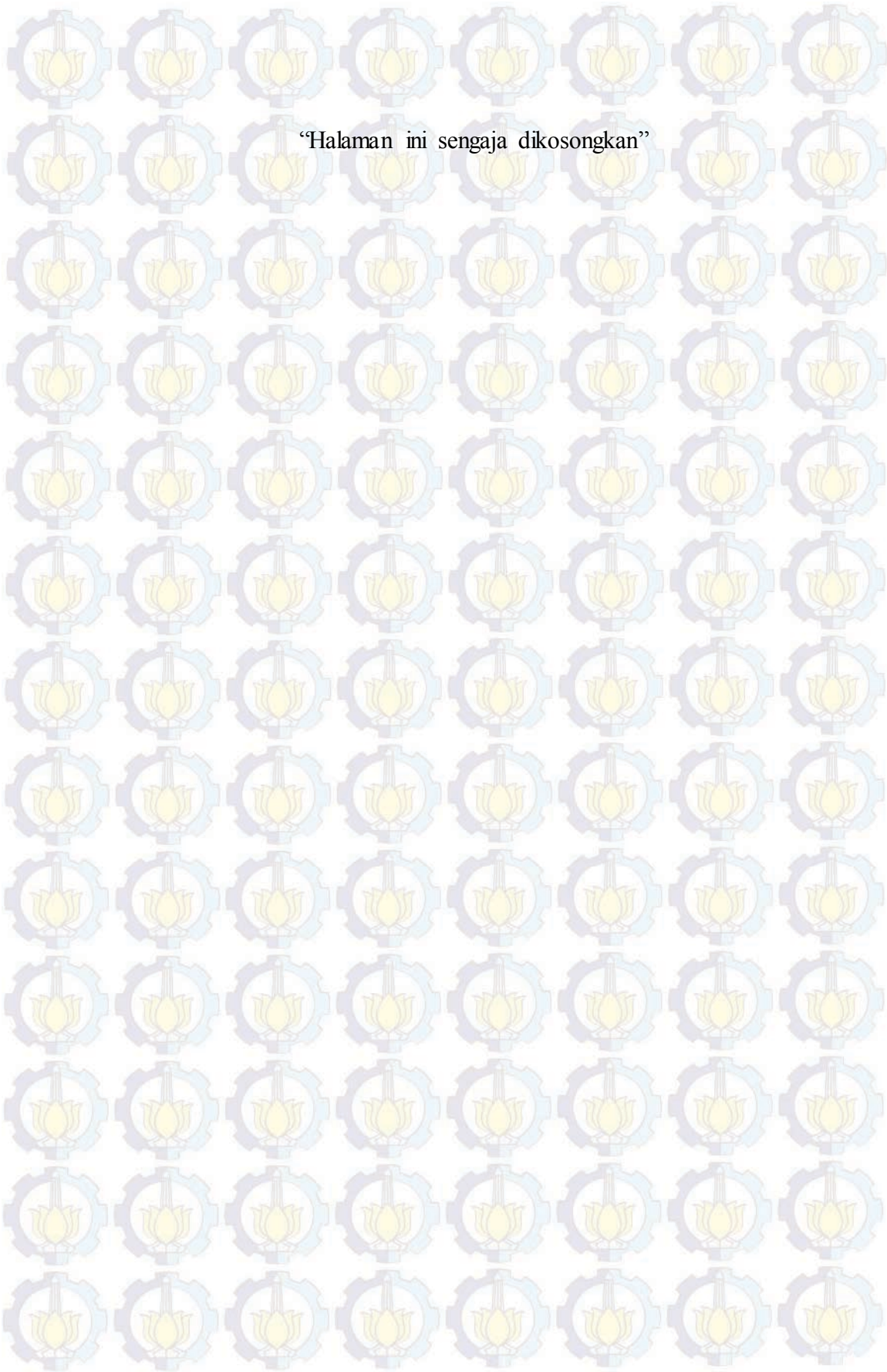
Dari model rangkaian pada Gambar 2.9 tersebut akan diperoleh plot Cole-Cole impedansi $ZZ'-ZZ''$ berupa kurva setengah lingkaran (*semicircle*) dimana tiap semisirkel merupakan respon dari sebuah rangkaian paralel R-C (Suasmoro, 2012) dimana semisirkel pertama berkaitan dengan kontribusi butir (*bulk*) pada frekuensi tinggi dan semisirkel kedua berkaitan dengan kontribusi batas butir (*grain boundary*) pada frekuensi rendah. Respon listrik tersebut memenuhi persamaan berikut:

$$Z^* = R(1 - j\omega RC)/(1 + \omega^2 R^2 C^2) \quad (2.8)$$

Sebagai material dielektrik, $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ memiliki konduktivitas yang cukup kecil yaitu berkisar antara 10^{-10} hingga $10^{-20} (\Omega.m)^{-1}$ dan nilainya dapat diperoleh dari pengukuran diameter *semicircle* $Z' - Z''$ plot Cole-Cole impedansi. Konduktivitas juga dipengaruhi oleh temperatur dan memenuhi persamaan Arrhenius:

$$\sigma = \sigma_0 \exp\left(-\frac{\Delta E}{kT}\right) \quad (2.9)$$

dimana σ_0 adalah tetapan yang tidak bergantung temperatur, k tetapan Boltzmann ($1,38 \times 10^{-23}$ J/K) dan ΔE adalah energi aktivasi yang dapat dihitung dari gradien persamaan pada grafik plot $\log \sigma$ terhadap $1/T$.



“Halaman ini sengaja dikosongkan”

BAB III METODE PENELITIAN

3.1. Material

Material yang akan disintesis adalah bahan keramik $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ dan $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ dengan perbandingan mol 0,8 mol $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ dan 0,2 mol $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ sehingga membentuk keramik larutan padat $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dengan struktur perovskite.

3.2. Alat dan Bahan

Peralatan yang digunakan pada penelitian ini diantaranya adalah:

1. *Laboratory planetary milling* “Pulverisette 5” (Fritsch GmbH)
2. *Evaporator rotatif* “VV Micro” (Heidolph)
3. Oven (pengering sampel) dan *furnace*
4. Spatula, mortal dan gelas baker
5. Timbangan digital
6. Magnetik *stirrer*
7. Termometer
8. *Crucible* dan plat alumina
9. Cetakan pelet diameter 13 mm

Bahan-bahan yang digunakan pada penelitian ini adalah:

1. K_2CO_3 , Na_2CO_3 dan Nb_2O_5
2. Asam oksalat ($H_2C_2O_4$)
3. Titanium Klorida ($TiCl_4$)
4. $BaCl_2 \cdot 2H_2O$ dan $SrCl_2 \cdot 2H_2O$
5. Akuades
6. Alkohol

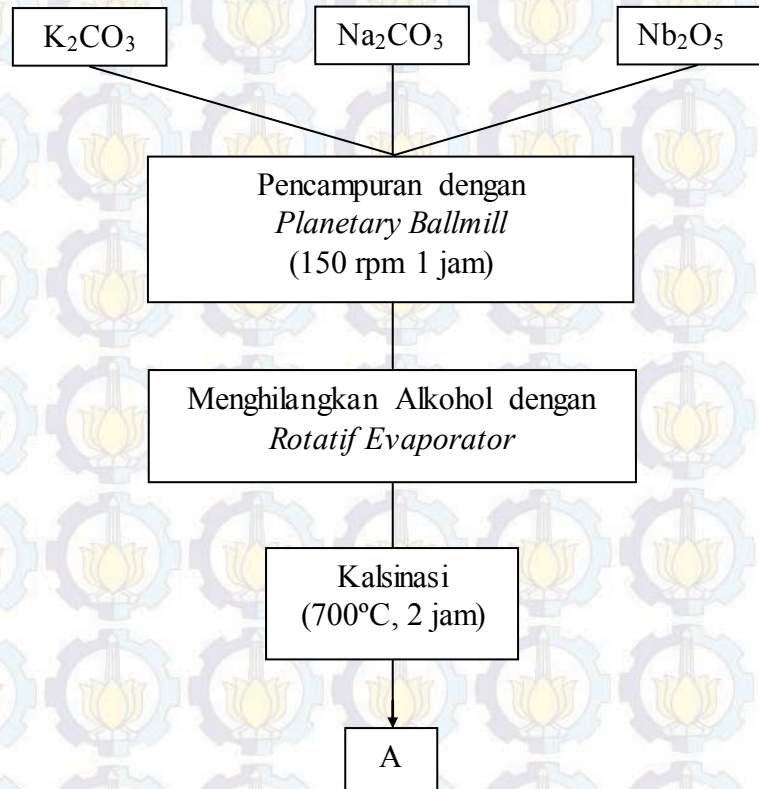
Sedangkan untuk karakterisasi digunakan:

1. *Thermal Gravimetry Analysis* dan *Differential Scanning Calorimetry* (TGA/DSC)
2. *X-Ray Diffractometer* (XRD)
3. Dilatometer
4. *Impedance Analyzer* Solartron

3.3. Metode Sintesis

3.3.1. Sintesis KNN

Metode yang digunakan untuk menyintesis $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ adalah metode reaksi padat. Secara lebih rinci dapat dilihat pada diagram alir pada gambar berikut:



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

3.3.2. Sintesis BST

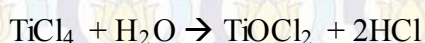
Material $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ disintesis dengan metode kopresipitasi oksalat. Pada proses sintesis $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ dengan metode ini, dilakukan penyiapan beberapa larutan. Langkah-langkah sintesis $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ adalah:

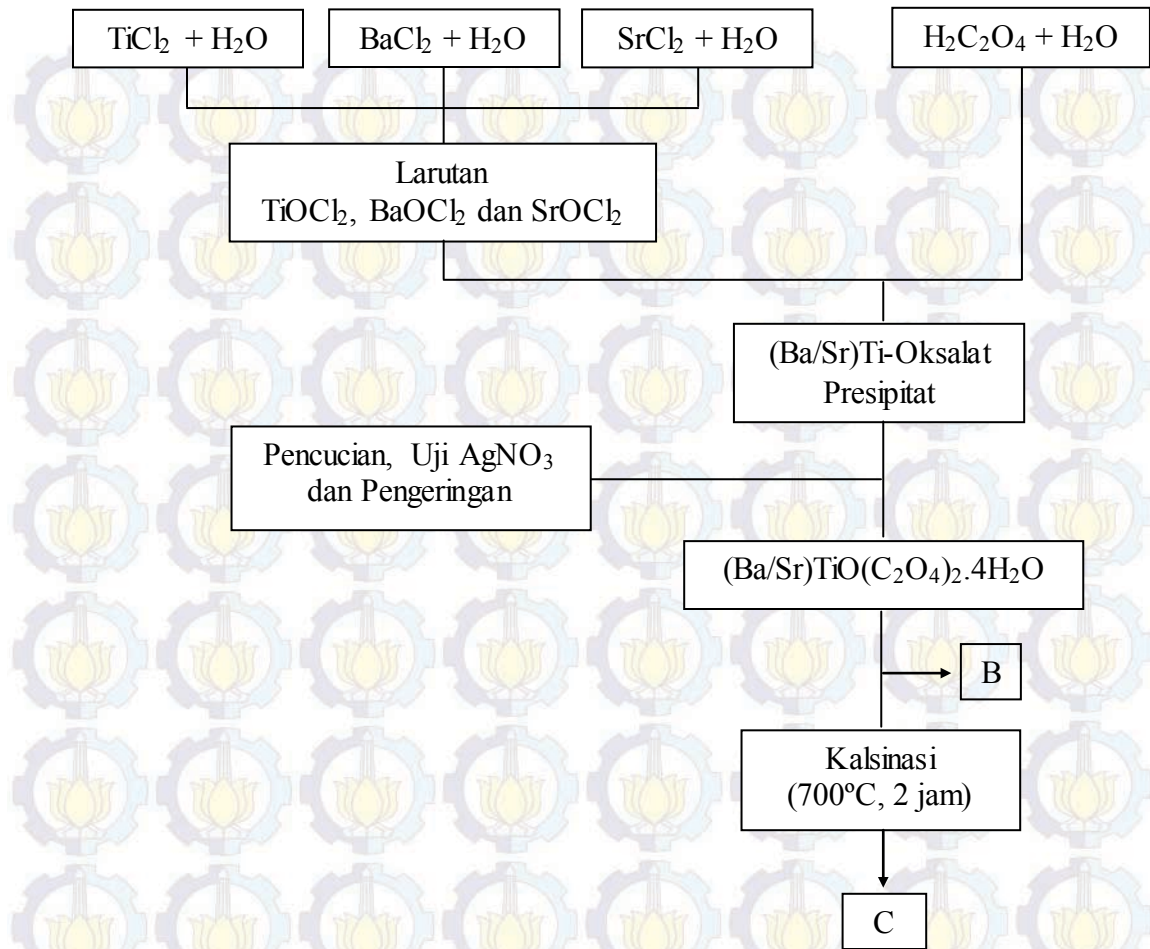
1. Penyiapan larutan A: larutan asam oksalat

Asam oksalat dilarutkan di dalam akuades pada suhu 40°C dengan bantuan magnetik *stirrer*. Perbandingan: 170 ml akuades untuk setiap 50,5 gr asam oksalat.

2. Penyiapan larutan B: larutan $TiOCl_2$

Cairan $TiCl_4$ dicampur ke dalam akuades dengan perbandingan 2 mol $TiCl_4$ untuk setiap liter akuades.



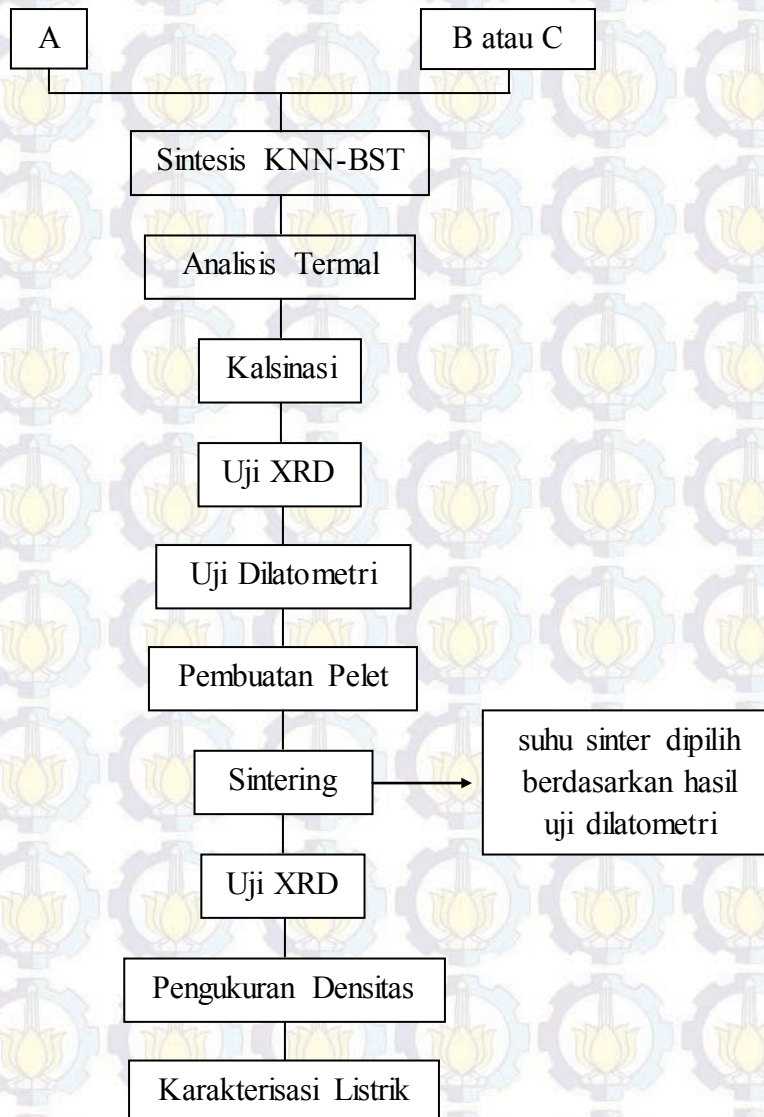


Gambar 3.2. Diagram alir sintesis BST (Suasmoro, 2012)

3. Larutan C: prekursor $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$
 Penambahan serbuk $BaCl_2 \cdot 2H_2O$ dan serbuk $SrCl_2 \cdot 2H_2O$ ke dalam larutan B dengan perbandingan 1 mol untuk setiap 0,5 liter larutan B. Kemudian encerkan dengan penambahan akuades sebanyak 1600 ml untuk setiap mol penambahan $BaCl_2 \cdot 2H_2O$ maupun $SrCl_2 \cdot 2H_2O$. Lakukan pelarutan dengan menjaga suhu antara $40^\circ C - 45^\circ C$ hingga bening.
4. Bila telah bening, tambahkan larutan A ke dalam larutan C. Biarkan dalam keadaan tetap diaduk dan tetap dipanaskan hingga terbentuk penggumpalan berwarna putih yang telah jenuh.
5. Saring dan cuci berkali-kali untuk menghilangkan ion Cl. Lakukan uji $AgNO_3$ untuk melihat apakah masih terdapat ion Cl pada endapan atau tidak.

3.3.3. Sintesis $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$

Bubuk KNN dan BST yang telah dikalsinasi ditimbang sesuai perbandingan stoikiometri, lalu dicampur menggunakan *planetary milling* dengan medium alkohol selama 2 jam dengan kecepatan putar 150 rpm untuk memperoleh campuran 0,8KNN-0,2BST. Medium *milling* alkohol diuapkan dengan bantuan rotatif evaporator dan dikeringkan di dalam oven. Hasil sintesis yang diharapkan adalah bahan keramik larutan padat $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$.



Gambar 3.3. Diagram alir penelitian,

A-B untuk variasi 1 dan A-C untuk variasi 2

3.4. Metode Karakterisasi

Bahan yang telah disintesis akan dikarakterisasi dengan beberapa metode yaitu:

1. Analisis termal melalui uji TGA-DTA. Hal ini dilakukan untuk memperoleh informasi mengenai perubahan massa yang terjadi pada rentang temperatur tertentu (analisis TGA) serta fenomena endotermik atau eksotermik (analisis DTA) yang menyertai perubahan massa tersebut. Selanjutnya hasil analisis termal TGA-DTA menjadi landasan untuk menentukan temperatur kalsinasi suatu bahan.
2. Difraksi sinar-X dilakukan untuk memperoleh pola XRD yang selanjutnya dianalisis untuk mengetahui fasa yang terkandung dalam suatu bahan. Pengujian difraksi sinar-X menggunakan difraktometer tipe *Philips X'Pert MPD (Multi Purpose Diffractometer)* di Laboratorium Difraksi Sinar-X RC (*Research Center*) LPPM ITS Surabaya atau di Laboratorium Teknik Material ITS. Pengukuran dilakukan pada tegangan 40 kV dan arus 30 mA dengan logam target Cu ($\lambda=1,54056 \text{ \AA}$). Analisis fasa dari pola XRD dilakukan dengan menggunakan program *Match!*. Dari data XRD juga dapat diperoleh parameter kisi bahan yang dilakukan melalui penghalusan pola terhitung dan terukur menggunakan program *Rietica* yang berbasis metode pencocokan Rietveld.
3. Kajian dilatometri dilakukan untuk mengetahui karakteristik penyusutan (*shrinkage*) suatu bahan dalam bentuk *green compact* pada rentang temperatur tertentu. Hasil analisis dilatometri dapat dijadikan pertimbangan dalam tahap densifikasi bahan.
4. Pengukuran densitas dilakukan dengan menggunakan metode Archimedes yaitu dengan mengukur massa kering, massa basah dan massa di dalam air dari pelet sampel. Nilai densitas sampel ρ 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.
5. Karakterisasi listrik dilakukan dengan menggunakan alat *Impedance Analyzer* Solartron. Penyiapan sampel sebelum karakterisasi listrik adalah pelapisan sampel pelet dengan pasta perak sebagai elektroda. Pemanasan dilakukan untuk menguapkan koloid toluena yang digunakan sebagai pengencer pasta perak. Pelet yang telah dilapisi elektroda dikarakterisasi sifat listriknya dengan *impedance analyzer* Solartron dengan data keluaran berupa:

- a. Impedansi real (Z)
- b. Impedansi kompleks (Z^*)
- a. Konstanta dielektrik (k)
- b. Faktor disipasi ($\tan \delta$)

sebagai fungsi suhu dan frekuensi tegangan AC. Variasi suhu dilakukan dari suhu ruang $\sim 27^\circ\text{C}$ hingga $\sim 850^\circ\text{C}$ dengan rentang pengukuran 50°C pada suhu $< 200^\circ\text{C}$ dan 10°C pada suhu $> 200^\circ\text{C}$. Variasi frekuensi tegangan AC dilakukan dari 0,1 Hz hingga $3,2 \times 10^7$ Hz. Dari pengolahan data keluaran selanjutnya akan diperoleh:

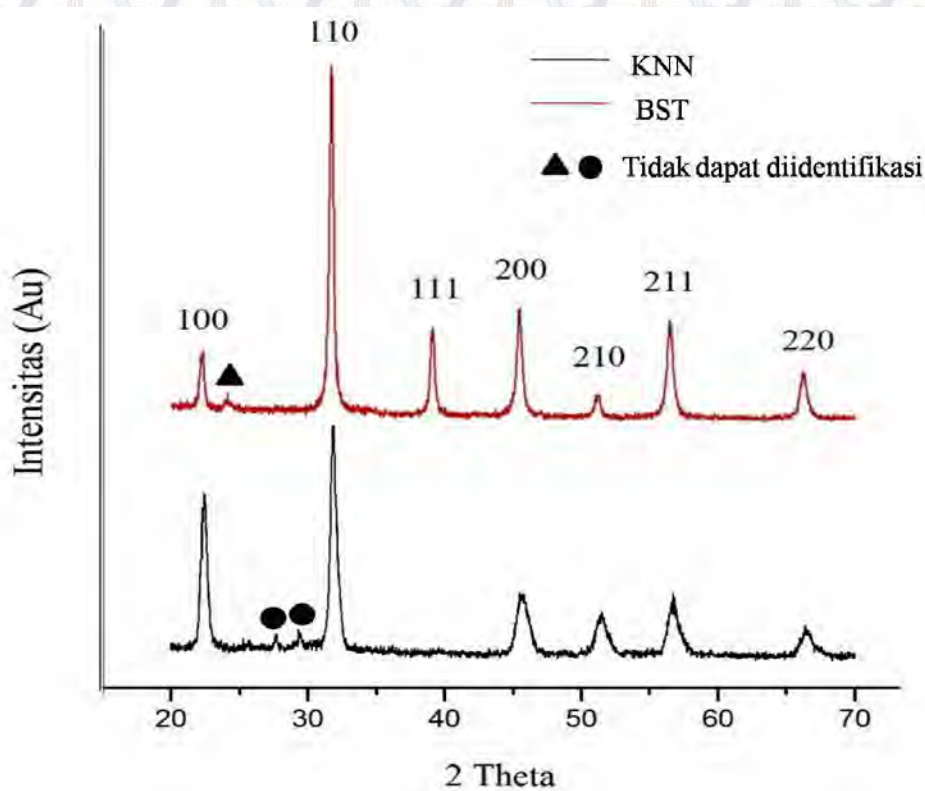
- a. Suhu Curie (dari plot k dan T)
- b. Konduktivitas listrik σ (dari pengukuran diameter *semicircle* $Z' - Z''$)
- c. Energi aktivasi (dari plot $\log \sigma$ terhadap $1/T$) sesuai persamaan 2.9

BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1. Sintesis KNN-BST

Penelitian ini dimulai dengan menguji ulang informasi bahwa fasa tunggal kristal $\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3$ yang disintesis dengan metode reaksi padat dan fasa tunggal kristal $\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3$ yang disintesis dengan metode kopresipitasi oksalat terbentuk dengan kalsinasi pada suhu 700°C selama 2 jam (Suasmoro, 2012 dan Rohmah, N.A., 2014).

Analisis kualitatif dilakukan terhadap pola difraksi kedua sampel menggunakan software Match! dan diketahui bahwa telah terbentuk kristal $\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3$ dan $\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3$ dengan struktur perovskite (KNN: 00-077-0037 dan BST: 00-044-0093). Namun, pada kedua sampel masih terdapat sejumlah kecil fasa yang tidak teridentifikasi yaitu pada ($2\theta = 27,6^\circ$ dan $29,3^\circ$ untuk KNN dan $2\theta = 24,1^\circ$ untuk BST). Dengan metode Rietveld *refinement* diketahui bahwa kristal $\text{K}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{NbO}_3$ memiliki struktur kristal perovskite orthorombik dan kristal $\text{Ba}_{0,8}\text{Sr}_{0,2}\text{TiO}_3$ memiliki struktur kristal perovskite tetragonal dengan parameter kisi pada Tabel 1.

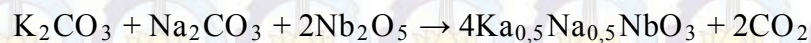


Gambar 4.1. Pola XRD KNN dan BST setelah kalsinasi 700°C selama 2 jam

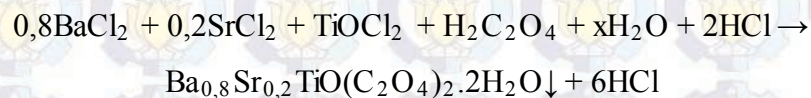
Tabel 1. Struktur Kristal dan Parameter Kisi KNN dan BST Hasil Analisis Struktur Menggunakan Software Rietica dengan Metode Rietveld *Refinement*

No	Material	Parameter Kisi (Å)			Struktur Kristal
		A	B	C	
1	KNN	3,572027	3,570513	3,565755	perovskite orthorombik
2	BST	3,983412	3,983412	3,995775	perovskite tetragonal

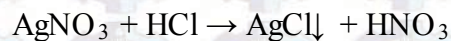
Kristal $Ka_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ yang disintesis dengan reaksi padat berhasil terbentuk dengan pemberian panas yang mengakibatkan penguapan gas CO_2 dengan reaksi pembentukan (Rohmah, N.A., 2014):



Metode kopresipitasi oksalat digunakan pada penyiapan prekursor $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$. Reaksi kimia yang menyertai proses kopresipitasi oksalat adalah (Suasmoro, 2012):



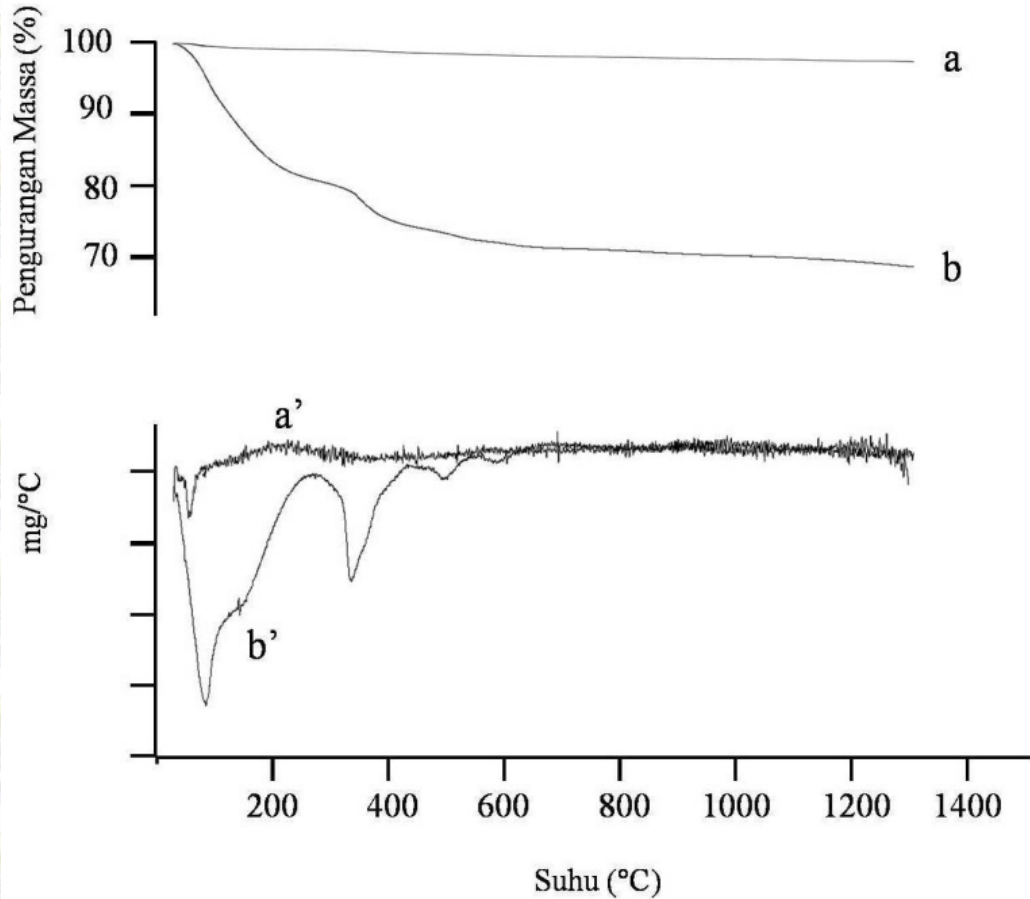
$AgNO_3$ ditambahkan pada air sisa pencucian untuk melihat apakah masih terdapat ion Cl^- pada sampel. Reaksi kimia yang terjadi pada pengujian $AgNO_3$ adalah:



Pada saat kalsinasi di suhu $700^\circ C$ selama 2 jam, terjadi penguapan hidrat, oksigen dan gas CO_2 dari prekursor oksalat sehingga membentuk kristal $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ dengan reaksi dekomposisi (Suasmoro, 2012):

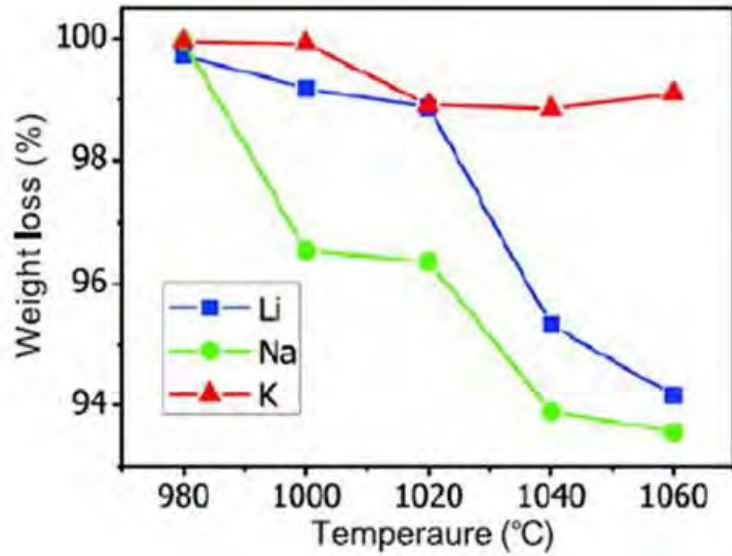


Analisis termal TGA-DTA dilakukan untuk mengetahui terjadinya reaksi yang diindikasikan oleh adanya pengurangan massa dan fenomena baik endotermik maupun eksotermik yang menyertainya pada rentang suhu tertentu. Gambar 4.2 menampilkan hasil analisis termal DTA-TGA 0,8KNN-0,2BST dari kedua rute.

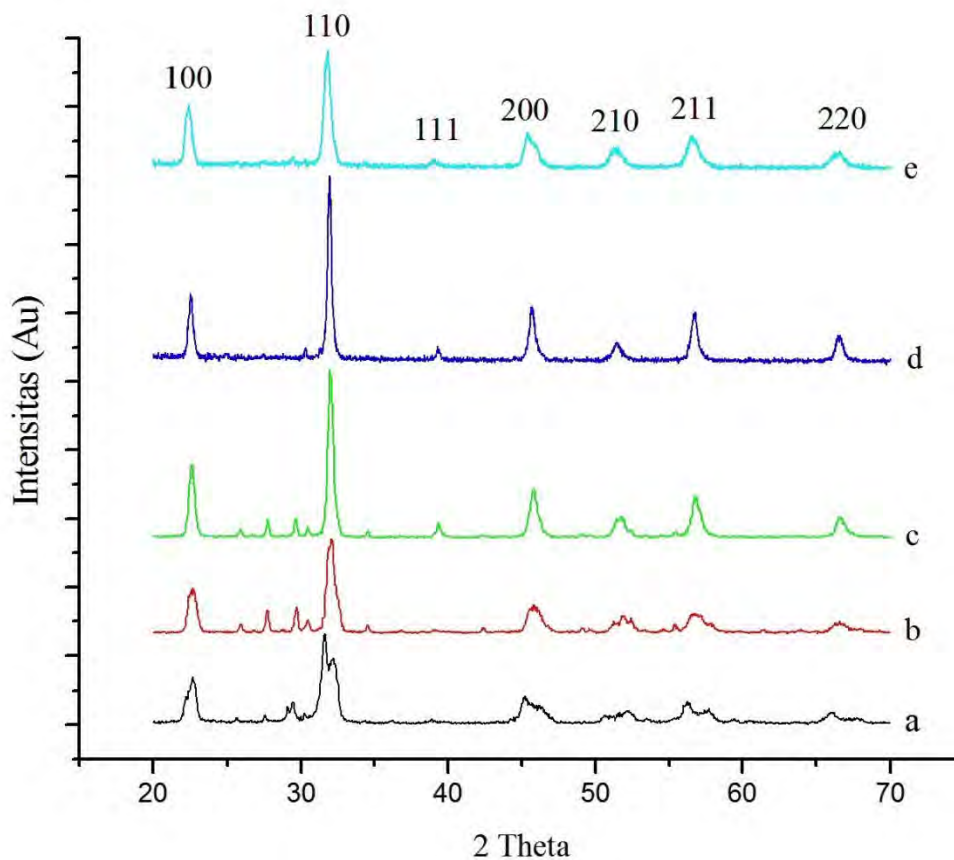


Gambar 4.2. Kurva TGA-DTA dari 0,8KNN(K)-0,2BST(K) (aa') dan 0,8KNN(K)-0,2BST(NK) (bb')

Fenomena termal tidak terdeteksi pada sampel dengan bahan dasar KNN (kalsinasi) - BST (kalsinasi). Oleh karena itu, sampel dikalsinasi selama 2 jam pada beberapa suhu yang berbeda yaitu: 700°C, 900°C dan 1100°C. Suhu optimal untuk pembentukan $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ adalah 1100°C. Namun, terdapat fase sekunder yang diduga terbentuk akibat volatilitas dari unsur alkali seperti pada gambar 4.3 sebagaimana yang dilaporkan oleh Wang, Y.L., et al, 2012. Oleh karena itu dilakukan penambahan unsur K^+ dan Na^+ pada saat sintesis KNN. Gambar 4.4d menunjukkan bahwa fasa tunggal s erbuk $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ terbentuk dengan jumlah excess 2% molar K and 8% molar Na.



Gambar 4.3. Volatilitas Unsur Alkali (Wang, Y.L., et al, 2012)



Gambar 4.4. Pola XRD dari serbuk $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ setelah dikalsinasi dari kedua rute sintesis: a. K-K pada 700°C; b. K-K pada 900°C; c. K-K pada 1100°C; d. K-K pada 1100°C dengan persentase excess 2 mol % K dan 8 mol % Na; e. K-NK pada 700°C

Gambar 4.2.bb' menunjukkan bahwa pada sampel KNN-BST rute sintesis kedua terdapat tiga fenomena termal. Fenomena termal yang pertama, yaitu di bawah suhu 250°C berhubungan dengan penguapan air yang terperangkap di rongga dan proses dehidrasi untuk membentuk $Ba/SrTi(C_2O_4)_2$. Fenomena termal kedua berhubungan dengan pemutusan ikatan oksalat dan pelepasan gas CO_2 . Fenomena termal yang terakhir terkait dengan dekarbonasi (Suasmoro, 2012). Fenomena termal berakhir pada suhu sekitar 700°C. Gambar 4.4e menunjukkan terbentuknya fasa tunggal $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dengan kalsinasi pada suhu 700°C selama 2 jam.

Membandingkan kedua rute sintesis ini, diketahui bahwa material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ lebih sulit terbentuk dengan rute sintesis pertama (KNN kalsinasi-BST kalsinasi). Hal ini diduga akibat kedua material awal $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ dan $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ telah berada di keadaan stabil dengan struktur perovskite. Sehingga ketika ingin dibentuk larutan padat $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$, dibutuhkan energi lebih agar atom Ba dan Sr dapat terlepas dari struktur perovskite $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ dan menggantikan posisi atom K dan atom Na di situs A. Begitu pula saat atom Ti harus menggantikan posisi atom Nb di situs B. Dalam hal ini pemberian energi dalam bentuk panas tersebut digunakan untuk melepaskan ikatan kimia atom-atom di kristal perovskite agar saling mensubstitusi membentuk larutan padat $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$. Hal ini dapat dilihat pada pola XRD Gambar 4.4a dengan suhu kalsinasi 700°C terlihat bahwa material $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ dan $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ masih berdiri sendiri-sendiri, artinya energi panas yang diberikan belum cukup untuk pelepasan atom dan pergerakannya sehingga belum bisa terjadi peristiwa substitusi.

Dengan rute sintesis kedua (KNN kalsinasi-BST non kalsinasi), larutan padat $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dapat lebih mudah terbentuk. Hal ini diduga akibat prekursor oksalat $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ yang masih berada dalam keadaan amorf masih lebih mudah untuk bergerak menyusun diri. Dengan keadaan $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ yang telah berada dalam kondisi kristalin berstruktur perovskite, dimana atom K dan Na adalah atom alkali yang bersifat *volatile* atau relatif tidak stabil sehingga lebih mudah tergantikan oleh atom Ba dan Sr.

Gambar 4.4b dan 4.4c memperlihatkan kemunculan fasa sekunder akibat volatilitas unsur alkali di atas suhu 900°C. Karena penguapan unsur K dan Na pada struktur kristal perovskite mengganggu keseimbangan muatan dan gaya yang awalnya telah terbentuk. Hal ini memaksa atom-atom kembali menyusun diri membentuk struktur kristal baru.

Pada kristal perovskite ABO_3 ($K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$, ion Ba^{2+} , Sr^{2+} , K^+ dan Na^+ berada di situs A sedangkan ion Ti^{4+} dan Nb^{5+} berada di situs B. Setelah analisis Rietveld *refinement*, diketahui bahwa serbuk ($K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dari kedua rute memiliki struktur tetragonal perovskite dengan parameter kisi dapat dilihat di Tabel 2. Memperhatikan hasil analisis Rietveld *refinement*, teramati bahwa terjadi pergeseran parameter kisi menjadi lebih besar bila dibandingkan dengan $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$. Hal ini berkaitan dengan jari-jari ion Ba^{2+} , Sr^{2+} yang lebih besar daripada jari-jari ion K^+ , Na^+ dan jari-jari ion Ti^{4+} yang juga lebih besar daripada jari-jari ion Nb^{5+} . Penambahan BST ke dalam KNN juga menurunkan tingkat asimetri struktur kristal. Hal serupa juga ditemukan oleh Cho, C.W., et al (2012).

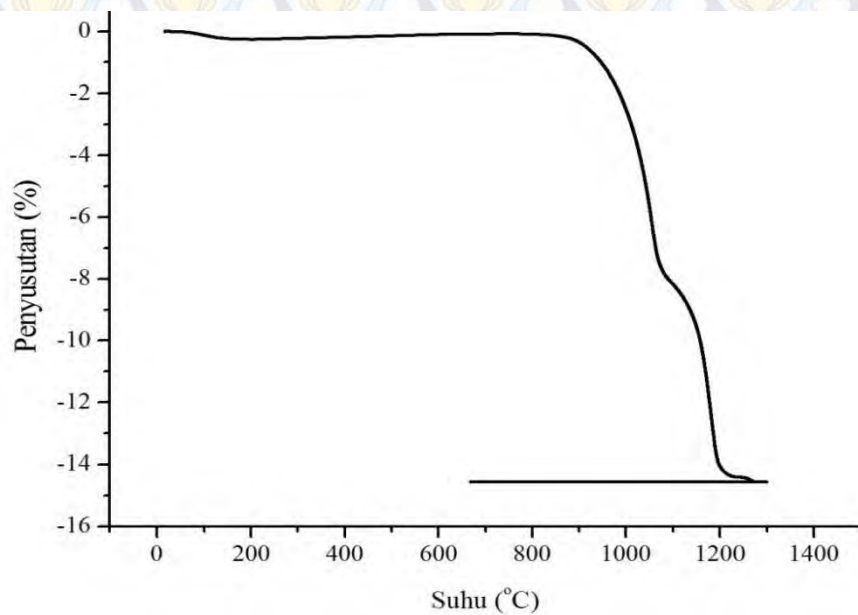
Tabel 2. Parameter kisi dari serbuk ($K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$

No	Rute Sintesis	Parameter Kisi (Å)			Sistem Kristal
		a=b	c	c/a	
1	KNN (kalsinasi)- BST (kalsinasi)	3,983805	3,999475	1,0039	perovskite tetragonal
2	KNN (kalsinasi)- BST (non kalsinasi)	3,984844	4,022710	1,0095	perovskite tetragonal

Tabel 3. Data Jari-Jari Ion (Å)

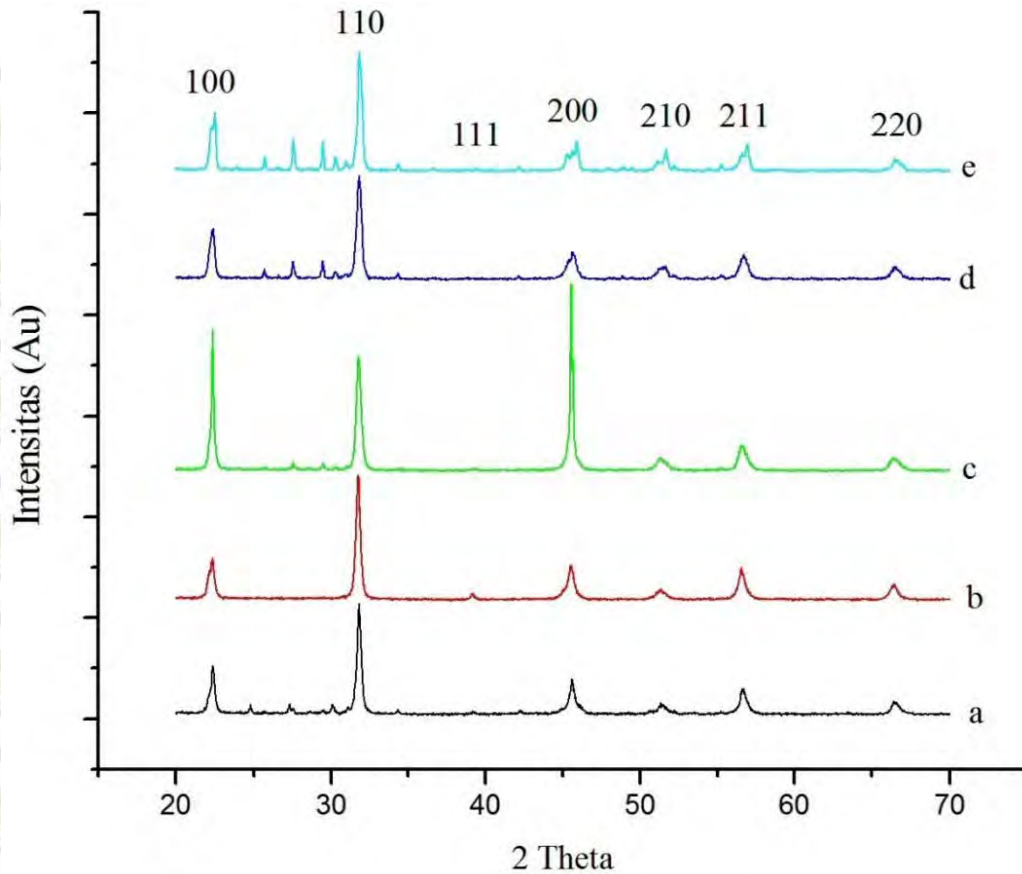
Ion	Jari-Jari Ion (Å)
K^+	0,138
Na^+	0,102
Ba^{2+}	0,135
Sr^{2+}	0,118
Ti^{4+}	0,086
Nb^{5+}	0,064

Serbuk yang telah dikalsinasi dan berhasil membentuk fasa tunggal dikompaksi dengan tekanan 350 N/cm^2 selama 10 detik lalu dilanjutkan dengan 650 N/cm^2 selama 2 detik. Untuk mendapatkan sampel pelet dengan densitas yang baik, perlakuan sintering harus diberikan kepada sampel. Pengujian dilatometri dilakukan untuk mengetahui perilaku penyusutan bahan. Gambar 4.5 merupakan kurva dilatometri yang menunjukkan terjadinya perlambatan penyusutan bahan pada suhu $1050^\circ\text{C} - 1150^\circ\text{C}$. Hal ini diduga sebagai akibat dari penguapan unsur alkali. Dari hasil uji ini juga diketahui bahwa penyusutan sampel telah optimal pada suhu 1200°C . Oleh karena itu pelet $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ disinter pada suhu 1200°C selama 2 jam.



Gambar 4.5. Hasil uji dilatometri dari $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ Rute ke 1 dengan excess 2% K dan 8% Na

Sehubungan dengan volatilitas dari unsur alkali (Wang, Y.L., et al. 2012), dilakukan penambahan fraksi mol K dan Na agar dapat menggantikan sebagian kecil unsur alkali yang menguap. Dengan persentase excess 2 % mol Na dan 8 % mol K, masih terdapat fase sekunder, maka persentase excess digandakan menjadi 4 % mol Na dan 16 % mol K pada sampel rute pertama. Gambar 4.6b memperlihatkan bahwa dengan peningkatan persentase excess unsur alkali, fasa tunggal kristal perovskite $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$ dari rute pertama berhasil terbentuk. Gambar 4.6c memperlihatkan bahwa persentase excess yang terbaik untuk sampel rute kedua adalah 2 % mol Na dan 8 % mol K.

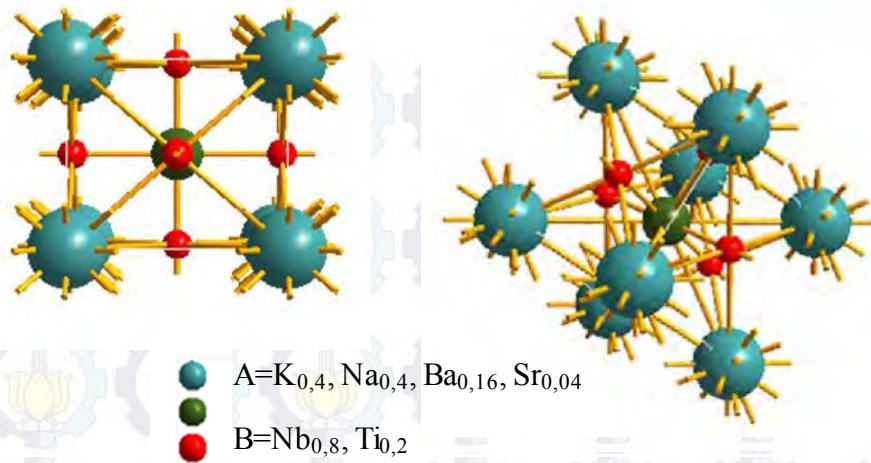


Gambar 4.6. Pola XRD Pelet: a. K-K exc 2%K-8%Na; b. K-K exc 4%K-16%Na; c. K-NK exc 2%K-8%Na; d. K-NK exc 3%K-12%Na; e. K-NK exc 1%K-4%Na

Analisis struktur kristal dilakukan dengan metode Rietveld *refinement* dengan hasil ditampilkan pada Tabel 4. Gambar 4.7 memperlihatkan sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ memiliki struktur perovskite tetragonal. Dalam hal ini dapat dikonfirmasi bahwa atom Ba dan Sr telah berhasil mensubstitusi atom K dan Na dan atom Ti telah berhasil mensubstitusi atom Nb. Sehingga material ferroelektrik bebas timbal KNN-BST yang disintesis telah mencapai fasa tunggal perovskite tetragonal.

Tabel 4. Parameter Kisi dari $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ setelah disinter

No	Rute Sintesis	Parameter Kisi (Å)			Sistem Kristal
		a=b	c	c/a	
1	K-K	3,956166	3,981212	1,0063	perovskite tetragonal
2	K-NK	3,949728	3,965926	1,0041	perovskite tetragonal



Gambar 4.7. Struktur Perovskite $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$

Pengukuran densitas dilakukan dengan metode Archimedes. Hasil pengukuran densitas ditampilkan pada Tabel 5. Hasil pengukuran densitas dibandingkan dengan densitas teoritis. Pengaruh densitas bahan $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ terhadap karakterisasi listrik dibahas pada sub bab 4.2.

Tabel 5. Densitas $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dengan Sintering 1200°C - 2 jam

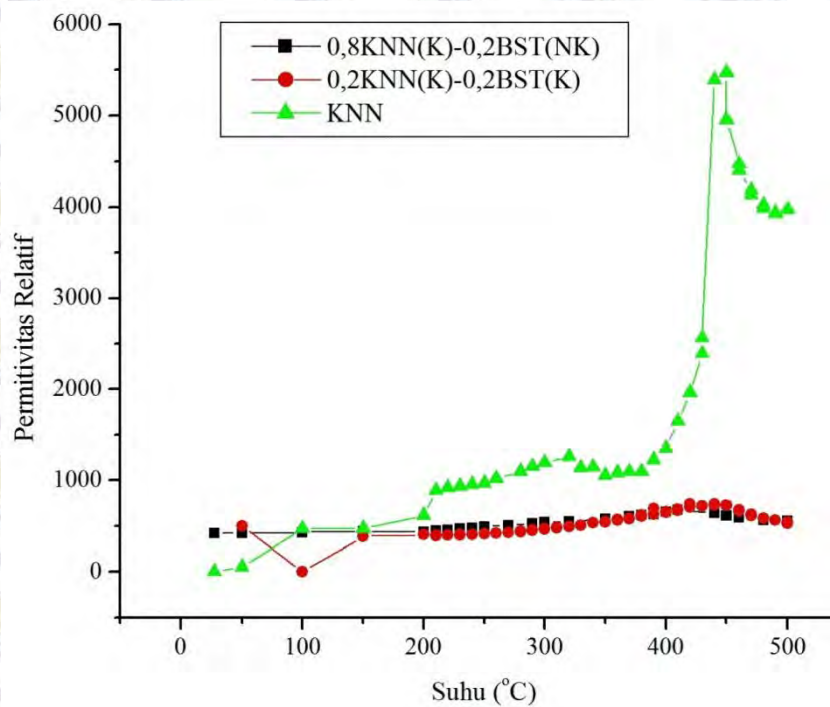
Rute Sintesis	Densitas Archimedes	Perbandingan Terhadap Densitas Teoritis
K-K	4,3369 gr/cc	89,28%
K-NK	4,1752 gr/cc	85,34%

Sampel yang akan dilanjutkan pada pengujian sifat listrik adalah sampel pelet fasa tunggal $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ yang disinter pada suhu 1200°C selama 2 jam dengan persentase excess 4 % mol Na dan 16 % mol K untuk sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ yang disintesis dengan rute pertama (Kalsinasi-Kalsinasi) dan persentase excess 2 % mol Na dan 8 % mol K untuk sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ yang disintesis dengan rute kedua (Kalsinasi-Non Kalsinasi) dengan pola XRD terlihat pada Gambar 4.6b dan 4.6c. Terdapat perbedaan pola XRD struktur perovskite 4.6c dengan pola XRD struktur perovskite pada gambar 4.6 lainnya yaitu intensitas yang lebih tinggi dari hamburan bidang kristal 100 dan 200.

Hal ini diduga akibat adanya bidang kristal 100 dan 200 yang dominan pada permukaan sampel pelet yang diuji XRD.

4.2. Karakterisasi Listrik Keramik Padat KNN-BST

Karakterisasi listrik material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ meliputi analisis dielektrik, impedansi kompleks dan konduktivitas. Gambar 4.8 menunjukkan hubungan permitivitas relatif sampel terhadap suhu.



Gambar 4.8. Hubungan Permitivitas Relatif terhadap Suhu dari sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ pada Frekuensi 12739,43 Hz

Tabel 6. Suhu Curie

Sampel	KNN	KNN(K)-BST(K)	KNN(K)-BST(NK)
Suhu Surie	310°C dan 450°C	440°C	420°C

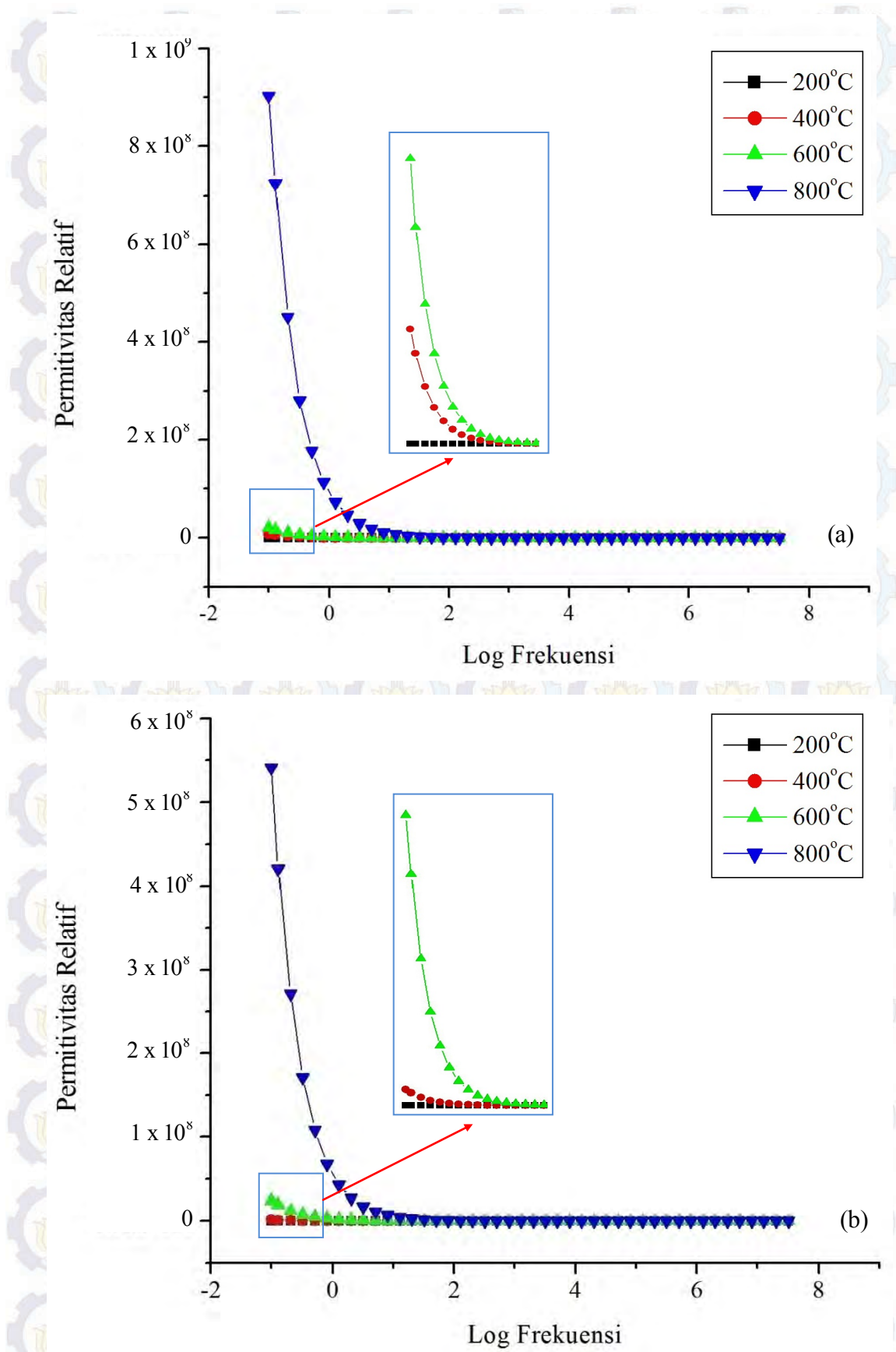
Pada temperature Curie diyakini terjadi optimasi polarisasi akibat perubahan fasa dari tetragonal (fasa ferroelektrik) ke kubik (fasa paraelektrik) yang mengakibatkan dielektrisitas material mencapai maksimum kemudian turun pada temperatur yang lebih tinggi sesuai dengan hukum Curie-Weiss (Kittel, 2005). Suhu Curie dari sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ rute kedua lebih rendah. Hal ini diprediksi berhubungan dengan nilai tetragonalitasnya yang lebih rendah bila dibandingkan dengan sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dari rute pertama.

Hal ini sesuai dengan hasil penelitian Suasmoro, et al. (2000) bahwa suhu Curie berbanding lurus dengan tetragonalitas bahan $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$.

Dielektrisitas pada bahan $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ terjadi karena terdapatnya dipol pada struktur kristal perovskite akibat pergeseran atom pada situs B yang menjadi searah saat berada dalam pengaruh medan listrik. Dari Gambar 4.8 terlihat bahwa sampel $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ memiliki permitivitas relatif yang lebih tinggi daripada sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$. Hal yang sama juga ditemukan oleh Cho, C.W., et al., (2012). Hal ini diprediksi akibat valensi kation di situs B pada bahan $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ yaitu +5 bernilai lebih besar daripada valensi kation di situs B pada bahan $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ yaitu +4 sehingga menghasilkan polarisasi total bahan yang lebih besar pada $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$.

Kajian permitivitas relatif menunjukkan material $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ (KNN) memiliki dua suhu Curie yaitu di $\sim 310^\circ C$ dan $\sim 450^\circ C$. Hasil serupa ditemukan oleh Cho, C.W., et al (2012) dan dijelaskan bahwa hal tersebut terkait dengan transisi fasa orthorombik menuju tetragonal dan transisi fasa tetragonal menuju kubik. Dengan penambahan 20% mol $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ (BST) terjadi penurunan suhu Curie pada sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ menjadi $440^\circ C$ untuk rute pertama dan $420^\circ C$ untuk rute kedua. Fenomena Curie pada $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ terkait dengan transisi fasa tetragonal menjadi kubik. Penurunan suhu Curie pada material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dapat dipahami sebagai akibat penambahan material $Ba_{0,8}Sr_{0,2}TiO_3$ yang memiliki suhu Curie yang relatif jauh lebih rendah bila dibandingkan dengan material $K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ yaitu $\sim 80^\circ C$ (Suasmoro, et al., 2000).

Hubungan permitivitas relatif dan frekuensi tegangan AC untuk kedua sampel dapat dilihat pada Gambar 4.9. Untuk kedua sampel berperilaku sama yaitu permitivitas relatif meningkat seiring dengan penurunan frekuensi tegangan AC. Permitivitas relatif sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dengan rute kalsinasi-kalsinasi lebih tinggi bila dibandingkan dengan sampel dari rute kalsinasi-non kalsinasi. Hal ini sesuai dengan hasil pengukuran densitas kedua sampel (Tabel 5). Sampel dengan densitas yang tinggi dapat menghasilkan rapat polarisasi yang lebih besar sehingga memiliki permitivitas relatif yang lebih besar pula. Sebagai perbandingan, pada frekuensi 0,1 Hz sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dari rute sintesis kalsinasi-kalsinasi memiliki permitivitas relatif maksimum $\sim 9 \times 10^8$ sedangkan sampel dari rute sintesis kalsinasi-non kalsinasi memiliki permitivitas relatif maksimum $\sim 5,5 \times 10^8$.



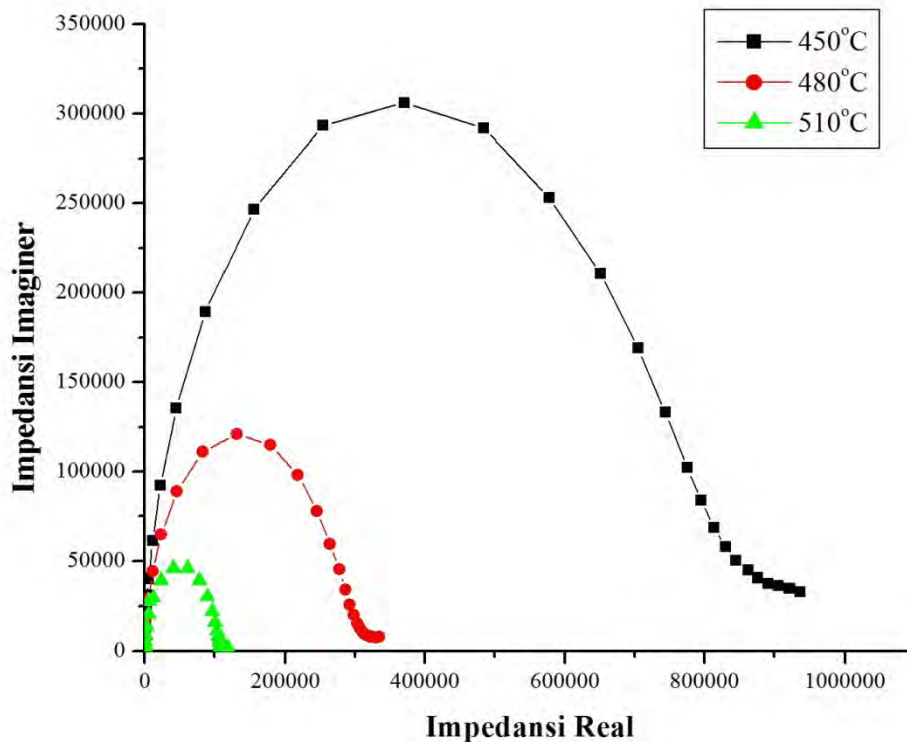
Gambar 4.9. Hubungan Permittivitas Relatif dan Frekuensi: a. Sampel Rute Pertama

(K-K) dan b. Sampel Rute Kedua (K-NK)

Gambar 4.9 memperlihatkan bahwa pada frekuensi yang tinggi (~32 MHz hingga ~10 Hz), nilai permitivitas relatif tidak banyak mengalami perubahan. Pada daerah ini tipe polarisasi yang terjadi adalah polarisasi dipol. Namun pada frekuensi yang lebih rendah yaitu dengan frekuensi $< \sim 10$ Hz terjadi peningkatan permitivitas relatif yang besar pada kedua sampel. Hal ini terjadi akibat ikut terpolarisasinya muatan-muatan ruang pada sampel dengan pemberian tegangan AC frekuensi rendah tersebut (Moulson, A.J dan Herbert, J.M., 2003).

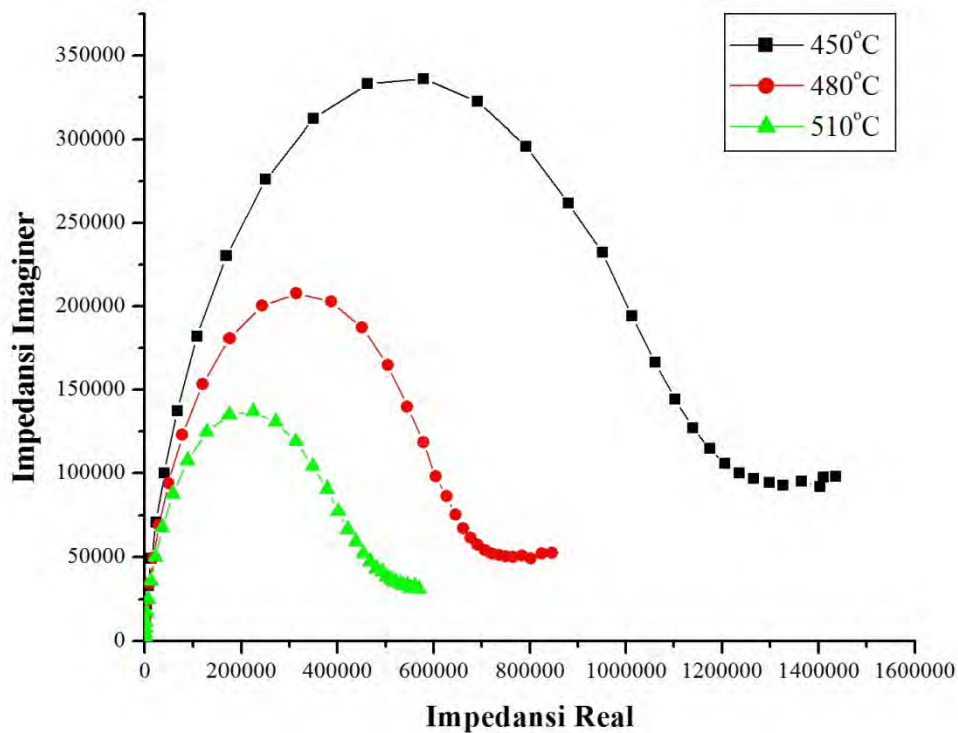
Gambar 4.9 juga memperlihatkan bahwa pada suhu tinggi muatan ruang pada sampel menjadi lebih mudah terpolarisasi. Terlihat pada suhu 800°C muatan-muatan ruang telah ikut terpolarisasi pada frekuensi < 10 Hz. Namun pada suhu 600°C dan 400°C muatan-muatan ruang hanya dapat terpolarisasi bila diberi tegangan AC berfrekuensi < 1 Hz. Bahkan pada suhu 200°C polarisasi muatan-muatan ruang baru teramati dengan pemberian tegangan AC $\sim 0,1$ Hz.

Selanjutnya dari Gambar 4.9 dapat diamati bahwa terjadi peningkatan permitivitas relatif seiring dengan peningkatan suhu. Hal ini dapat dipahami sebagai konsekuensi dari peningkatan konsentrasi defek instrinsik pada suhu yang lebih tinggi (Chiang, Y.M., 1997).



Gambar 4.10. Plot Cole-Cole Sampel $(\text{K}_{0,4}\text{Na}_{0,4}\text{Ba}_{0,16}\text{Sr}_{0,04})(\text{Nb}_{0,8}\text{Ti}_{0,2})\text{O}_3$

dari Rute Sintesis Pertama (Kalsinasi-Kalsinasi)



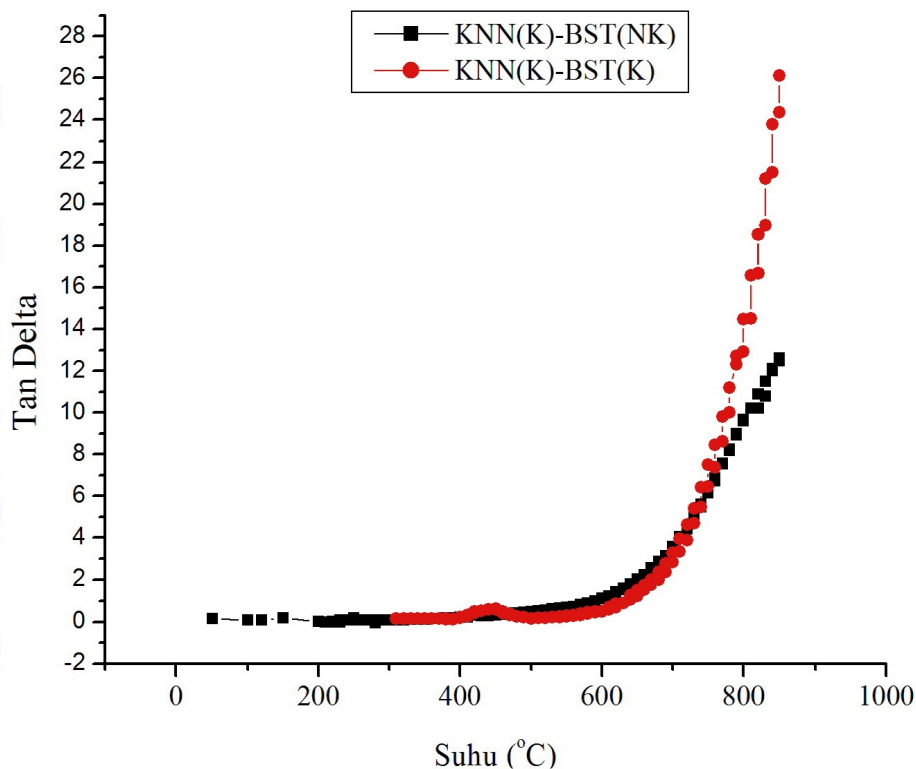
Gambar 4.11. Plot Cole-Cole Sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dari Rute Sintesis Kedua (Kalsinasi-Non Kalsinasi)

Rentang frekuensi tegangan AC yang diberikan pada pengukuran ini adalah dari 0,1 Hz hingga $3,2 \times 10^7$ Hz. Gambar 4.10 dan 4.11 memperlihatkan hanya terdapat satu semisirkel untuk kedua sampel. Hal ini menandakan pada rentang frekuensi ini hanya terjadi polarisasi pada *grain*. Sedangkan polarisasi pada *grain boundary* belum terdeteksi dimana secara teori akan terjadi pada frekuensi tegangan AC yang lebih rendah. Plot Cole-Cole sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dari rute sintesis kedua (kalsinasi-non kalsinasi) memiliki 'ekor' yang lebih panjang. Kehadiran 'ekor' pada plot Cole-Cole menunjukkan hampir terjadinya lebih dari satu tipe polarisasi bahan. Artinya, pada bahan hampir terjadi polarisasi pada *grain boundary*. Selain itu 'ekor' plot Cole-Cole juga mengindikasikan adanya *loosy factor* (Suasmoro, 2012).

Plot Cole-Cole pada Gambar 4.10 dan 4.11 menunjukkan bahwa kedua sampel menunjukkan perilaku yang sama yaitu diameter semisirkel menjadi lebih kecil pada suhu yang semakin tinggi. Hal ini menunjukkan resistivitas bahan berkurang seiring dengan meningkatnya suhu atau dengan kata lain bahan

$(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ memiliki konduktivitas yang meningkat seiring dengan meningkatnya suhu.

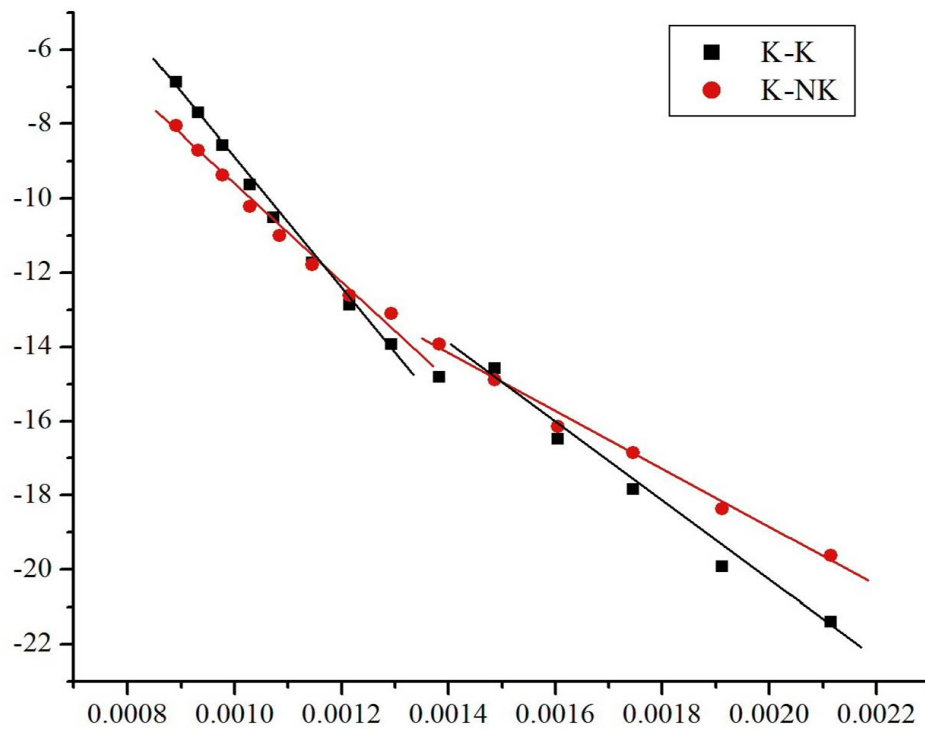
Peningkatan konduktivitas pada suhu tinggi dapat dipahami sebagai konsekuensi peningkatan konsentrasi defek intrinsik pada bahan. Konduktivitas menjadi lebih besar pada suhu tinggi sehingga terjadi peningkatan rapat arus pada bahan dan material menjadi semakin konduktif. Dalam hal ini suhu menjadi gaya penggerak tambahan selain medan listrik. Untuk aplikasi bahan ferroelektrik, dapat dipahami pula bahwa faktor disipasi akan semakin besar pada suhu tinggi akibat meningkatnya kebocoran arus pada bahan ferroelektrik (Barsoum, 2003). Hal ini dapat teramati pada Gambar 4.12 di mana faktor disipasi meningkat seiring dengan meningkatnya suhu. Pada daerah transisi struktur kristal tetragonal-kubik juga terjadi peningkatan faktor disipasi. Hal ini menunjukkan kualitas bahan $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ sebagai penyimpan muatan listrik berkurang pada suhu tinggi.



Gambar 4.12. Faktor Disipasi $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$

Analisis konduktivitas selanjutnya dilakukan untuk melengkapi analisis impedansi kompleks. Gambar 4.13 menampilkan plot hubungan konduktivitas (σ) dan

temperature ($1/T$) untuk bahan $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ pada rentang suhu $200^\circ C$ hingga $850^\circ C$.



Gambar 4.13. Kebergantungan Konduktivitas $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dan Temperature

Dari plot hubungan konduktivitas dan temperature tersebut diperoleh fenomena berbeda pada temperature di bawah dan di atas $\sim 425^\circ C$. Berdasarkan hal ini analisis konduktivitas dibagi menjadi dua rezim, rezim pertama pada rentang temperature $200^\circ C$ - $400^\circ C$ dan rezim kedua pada rentang temperature $450^\circ C$ - $850^\circ C$.

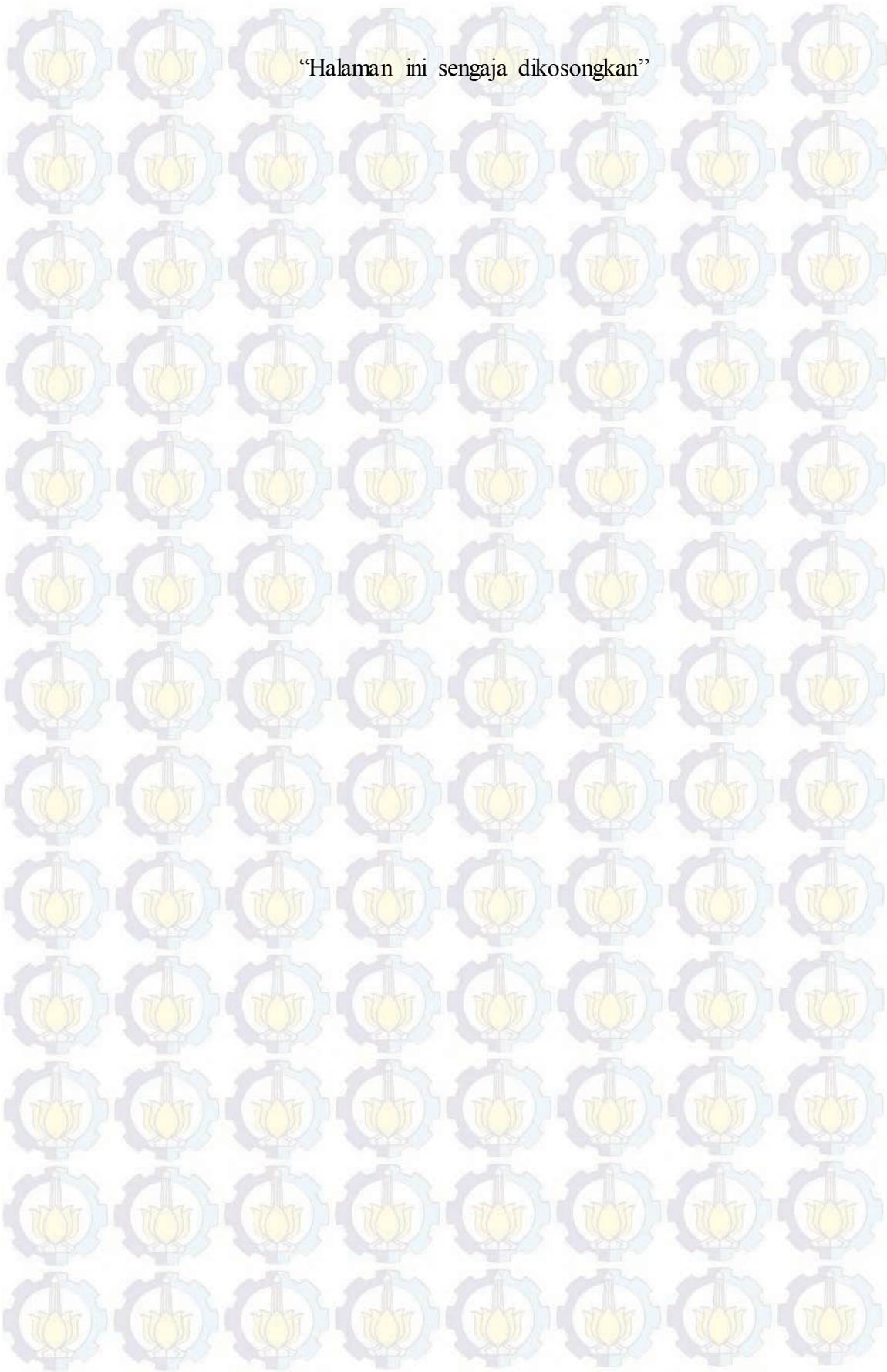
Hasil konduktivitas yang diperoleh memiliki kemiripan dengan penelitian Rohmah, N.A yang menyintesis $0,8K_{0,5}Na_{0,5}NbO_3$ - $0,2Ba_{0,5}Ca_{0,5}Zr_{0,5}Ti_{0,5}O_3$ dan dijelaskan bahwa perubahan konduktivitas terkait dengan mobilitas dan pembawa muatan dalam bahan. Energi aktivasi dihitung dari persamaan hukum aktivasi termal arhenius dengan hasil pada Tabel 7.

Tabel 7. Energi Aktivasi Keramik $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$

Rentang Suhu	Rute 1 (Kalsinasi – Kalsinasi)	Rute 2 (Kalsinasi – Non Kalsinasi)
--------------	--------------------------------	------------------------------------

~200°C – ~400°C	0,9297 eV	0,6419 eV
~450°C – ~850°C	1,4271 eV	1,03965 eV

Energi aktivasi pada suhu rendah untuk kedua sampel relatif rendah bila dibandingkan dengan energi aktivasi pada suhu tinggi. Perubahan energi aktivasi terjadi pada suhu ~400°C - ~450°C yaitu bertepatan dengan daerah transisi fasa dari tetragonal menuju kubik. Grafik 4.13 memberikan informasi bahwa kemungkinan terdapat perbedaan pembawa muatan pada sampel untuk dua daerah suhu yang berbeda tersebut yang dalam hal ini belum dapat diketahui jenisnya.



BAB V KESIMPULAN DAN SARAN

5.1. Kesimpulan

Berdasarkan hasil analisis sintesis dan sifat listrik material bebas timbal $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ diperoleh kesimpulan sebagai berikut:

1. Material perovskite fasa tunggal ABO_3 dengan $A=K_{0,4}, Na_{0,4}, Ba_{0,16}, Sr_{0,04}$ dan $B=Nb_{0,8}, Ti_{0,2}$ telah berhasil disintesis dengan gabungan metode reaksi padat dan kopresipitasi oksalat. Hasil ini dicapai untuk komposisi dengan alkali berlebih sebesar 4% mol K dan 16% mol Na untuk rute pertama dan 2% mol K dan 8% mol Na untuk rute kedua melalui densifikasi pada suhu $1200^\circ C$ selama 2 jam.
2. Material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ yang disintesis memiliki suhu Curie $\sim 440^\circ C$ untuk sampel rute sintesis 1 dan $\sim 420^\circ C$ untuk sampel dari rute sintesis 2.
3. Pada material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ terjadi peningkatan permitivitas relatif, faktor disipasi dan konduktivitas listrik seiring dengan penambahan suhu.
4. Pada material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ terdapat dua rezim konduktivitas yang menunjukkan perbedaan tipe pembawa muatan listrik untuk masing-masing rezim.

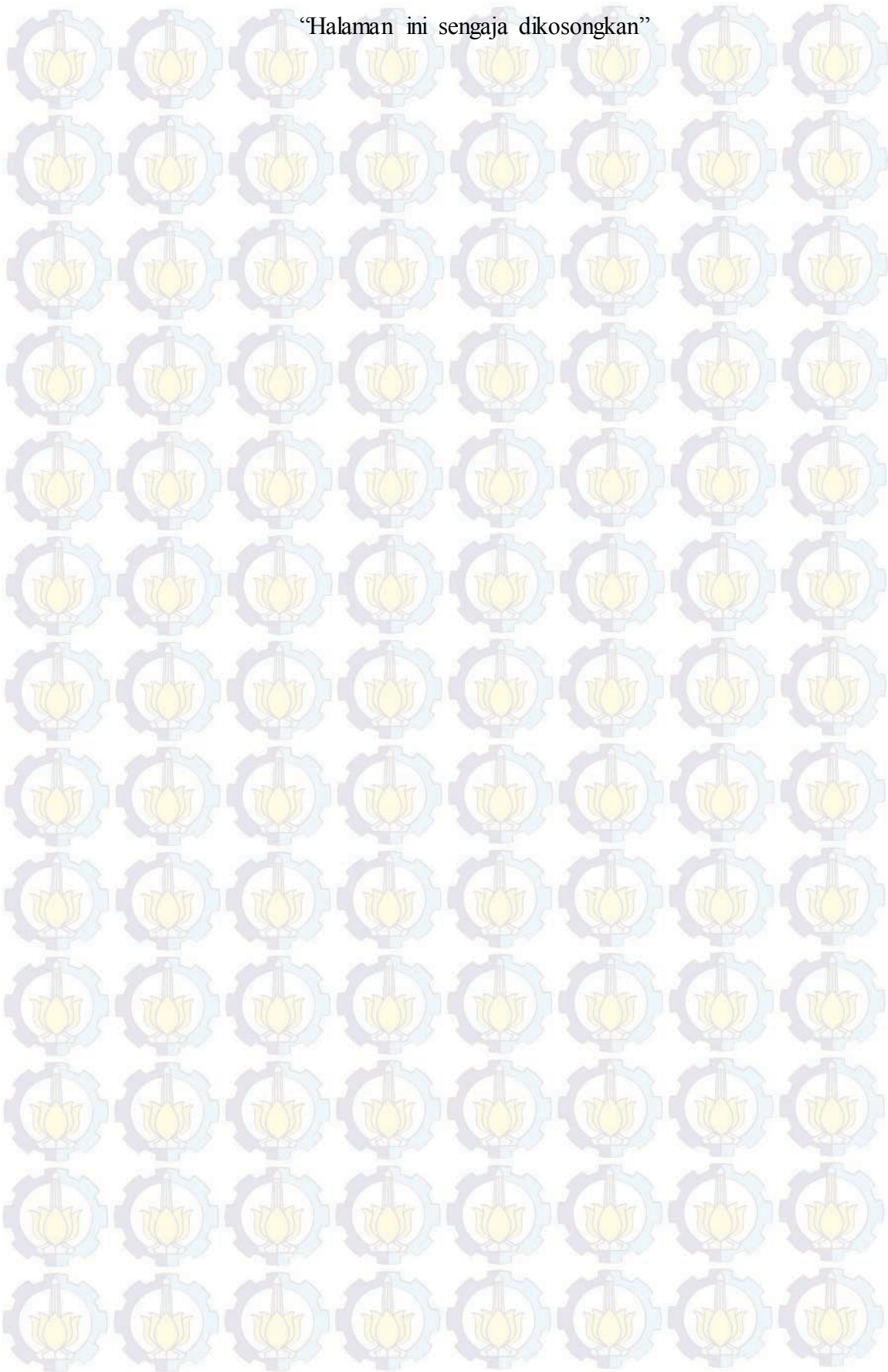
5.2. Saran

Hasil penelitian ini dapat dikembangkan lebih lanjut baik dari segi modifikasi sifat kelistrikannya dengan perubahan kombinasi material, optimalisasi sintesis material maupun pada tahap pengaplikasian material ferroelektrik bebas timbal $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ itu sendiri.

Ada beberapa bagian pada pembahasan penelitian ini yang masih berupa dugaan sementara. Dapat dilakukan kajian lebih lanjut untuk menguji kebenaran dugaan-dugaan sementara pada penelitian ini.

Karakterisasi sifat kelistrikan dari sampel $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ yang dilakukan pada penelitian ini dilakukan pada lingkungan udara bebas. Untuk mempelajari lebih lanjut tipe pembawa muatan listrik pada material $(K_{0,4}Na_{0,4}Ba_{0,16}Sr_{0,04})(Nb_{0,8}Ti_{0,2})O_3$ dapat dilakukan karakterisasi sifat listrik dengan variasi tekanan oksigen yaitu dengan pengaliran gas *inert*.

“Halaman ini sengaja dikosongkan”

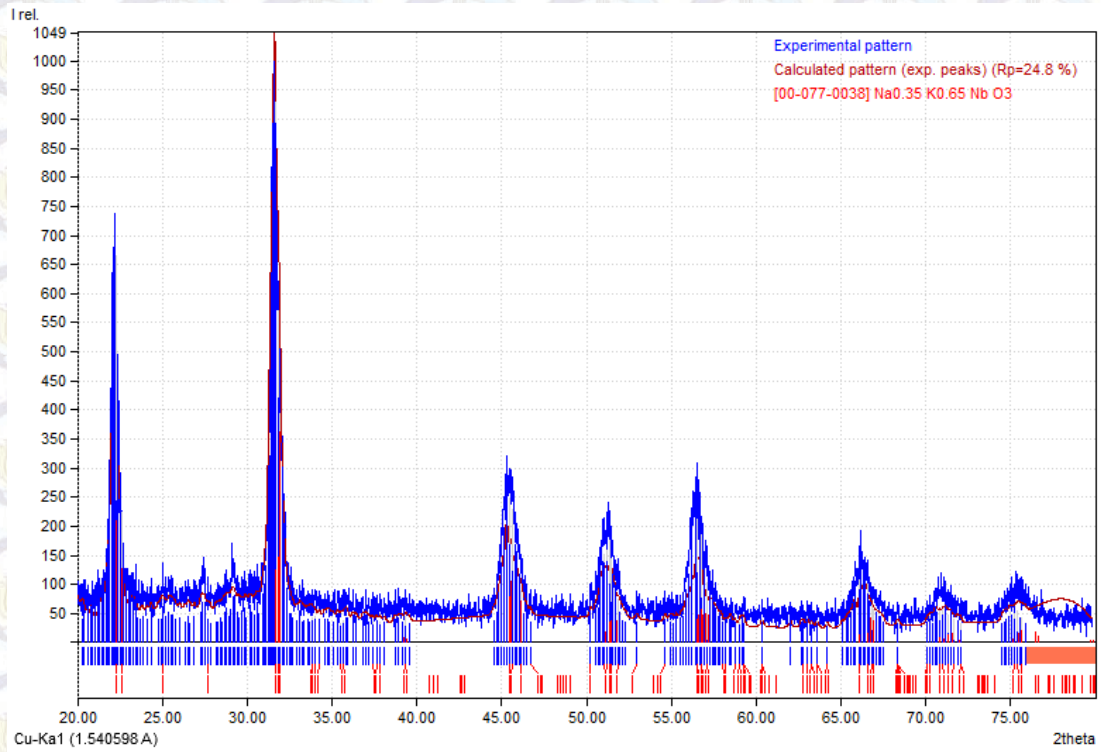


DAFTAR LAMPIRAN

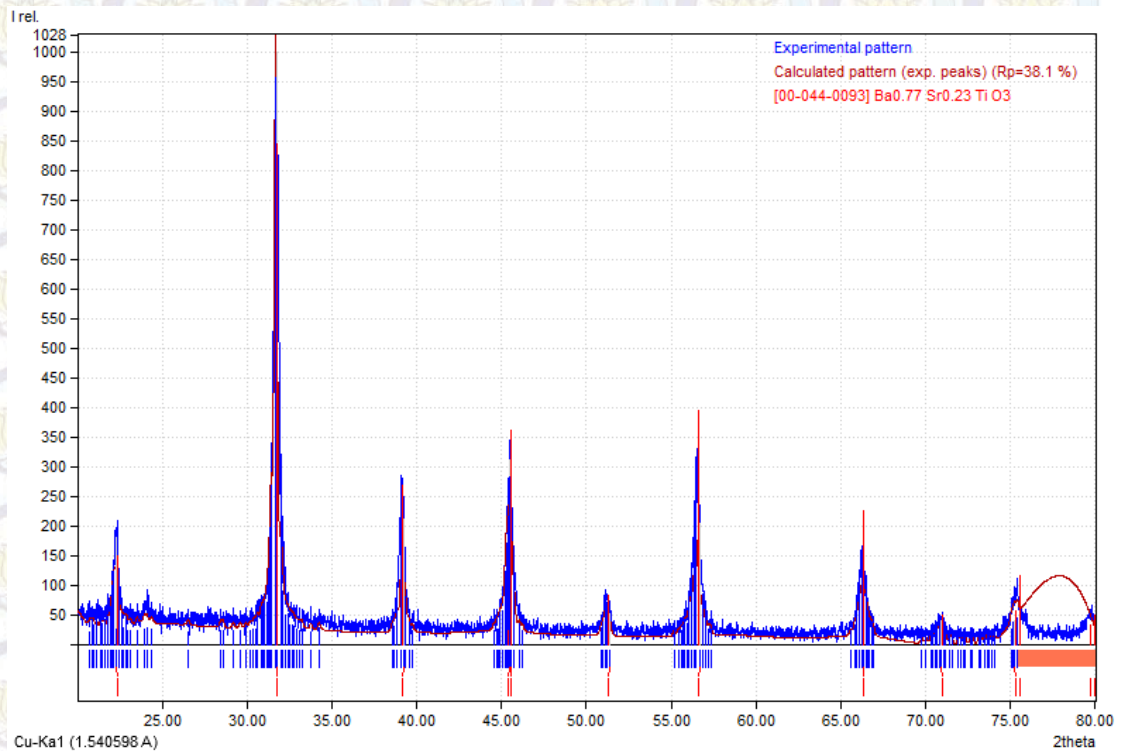
Lampiran A. Hasil Analisis Kualitatif dengan Software Match!.....	41
Lampiran B. COD	42
Lampiran C. Data Unsur-Unsur	46
Lampiran D. Rekapitulasi Parameter <i>Refinement</i>	46
Lampiran F. Pola XRD Hasil <i>Refinement</i>	47
Lampiran G. Perhitungan Energi Aktivasi.....	53

LAMPIRAN A. HASIL ANALISIS KUALITATIF DENGAN SOFTWARE MATCH!

KNN:



BST:



LAMPIRAN B. COD

Perovskite Tetragonal:

```
#-----  
#  
#$Date: 2013-12-28 13:58:47 +0000 (Sat, 28 Dec 2013) $  
#$Revision: 91933 $  
#$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  $K_{x-1}Na_1\{x\}NbO_{3-x}$  (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_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_source         spallation
_diffrn_radiation_type           neutron
_exptl_crystal_density_diffirn   4.478
_exptl_crystal_F_000            78.4
_refine_ls_goodness_of_fit_all   0.526
_refine_ls_number_parameters     24
[[local]]_cod_data_source_file  kd5027.cif
[[local]]_cod_data_source_block  523K
[[local]]_cod_chemical_formula_sum_orig '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_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_
_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_
_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

```

```

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
_journal_paper_doi 10.1107/S0108768108037361

```

Perovskite Orthorombik:

```

#-----
#$Date: 2015-01-27 19:58:39 +0000 (Tue, 27 Jan 2015) $
#$Revision: 130149 $
#$URL: file:///home/coder/svn-repositories/cod/cif/1/00/00/1000022.cif $
#-----
#
# This file is available in the Crystallography Open Database
# (COD),
# http://www.crystallography.net/
#
# All data on this site have been placed in the public domain by
# the
# contributors.
#
##data_calcium titanate
data_1000022
loop_
  _publ_author_name
  'Beran, A'
  'Libowitzky, E'
  'Armbruster, T'
  _publ_section_title;
A single-crystal infrared spectroscopic and X-ray diffraction study
of
untwinned San Benito perovskite containing O H groups;
  _journal_codен_ASTM CAMIA6
  _journal_name_full 'Canadian Mineralogist'
  _journal_page_first 803
  _journal_page_last 809
  _journal_volume 34
  _journal_year 1996
  _chemical_compound_source;
from Benitoite Gem mine, San Benito Co., California,USA;
  _chemical_formula_structural 'Ca (Ti O3)'
  _chemical_formula_sum 'Ca O3 Ti'
  _chemical_name_mineral Perovskite
  _chemical_name_systematic 'Calcium titanate'

```

```

_space_group_IT_number          62
_symmetry_cell_setting          orthorhombic
_symmetry_Int_Tables_number     62
_symmetry_space_group_name_Hall '-P 2c 2ab'
_symmetry_space_group_name_H-M 'P b n m'
_cell_angle_alpha               90
_cell_angle_beta                90
_cell_angle_gamma               90
_cell_formula_units_Z           4
_cell_length_a                   5.380(1)
_cell_length_b                   5.440(1)
_cell_length_c                   7.639(1)
_cell_volume                     223.6
_exptl_crystal_density_meas     4.03
_refine_ls_R_factor_all         0.027
_cod_database_code              1000022
loop_
_symmetry_equiv_pos_as_xyz
x,y,z
1/2-x,1/2+y,1/2-z
-x,-y,1/2+z
1/2+x,1/2-y,-z
-x,-y,-z
1/2+x,1/2-y,1/2+z
x,y,1/2-z
1/2-x,1/2+y,z
loop_
_atom_site_aniso_label
_atom_site_aniso_U_11
_atom_site_aniso_U_12
_atom_site_aniso_U_13
_atom_site_aniso_U_22
_atom_site_aniso_U_23
_atom_site_aniso_U_33
Ti1 0.0059(2) .0000(1) .0000(1) 0.0052(2) 0.00025(9) 0.0045(2)
Ca1 0.0082(2) 0.0016(2) 0. 0.0083(2) 0. 0.0079(2)
O1 0.0082(6) 0.0002(5) 0. 0.0086(7) 0. 0.0045(5)
O2 0.0065(4) 0.0020(4) -0.0008(3) 0.0060(4) -0.0010(3) 0.0095(4)
loop_
_atom_site_label
_atom_site_type_symbol
_atom_site_symmetry_multiplicity
_atom_site_Wyckoff_symbol
_atom_site_fract_x
_atom_site_fract_y
_atom_site_fract_z
_atom_site_occupancy
_atom_site_attached_hydrogens
_atom_site_calc_flag
Ti1 Ti4+ 4 b 0. 0.5 0. 1. 0 d
Ca1 Ca2+ 4 c 0.00648(8) 0.0356(1) 0.25 1. 0 d
O1 O2- 4 c 0.5711(3) -0.0161(3) 0.25 1. 0 d
O2 O2- 8 d 0.2897(2) 0.2888(2) 0.0373(2) 1. 0 d loop_
_atom_type_symbol
_atom_type_oxidation_number
Ti4+ 4.000
Ca2+ 2.000
O2- -2.000

```

LAMPIRAN C. DATA UNSUR-UNSUR

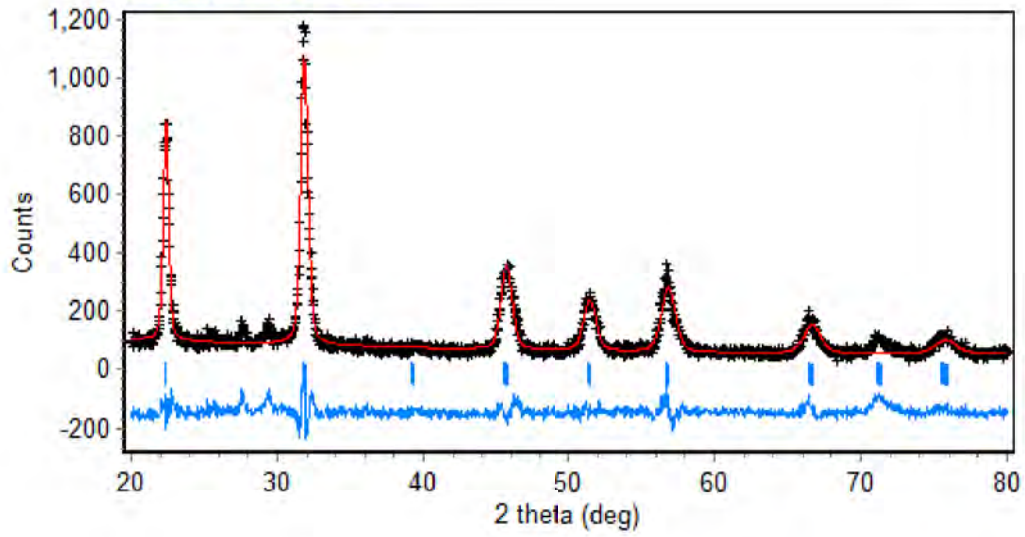
Unsur	Nomor Atom	Nomor Massa	Valensi Ion
K	19	39,102	+1
Na	11	22,9898	+1
Ba	56	137,34	+2
Sr	38	87,62	+2
Nb	41	92,906	+5
Ti	22	47,90	+5
O	8	15,9994	-2

LAMPIRAN D. REKAPITULASI PARAMETER *REFINEMENT*

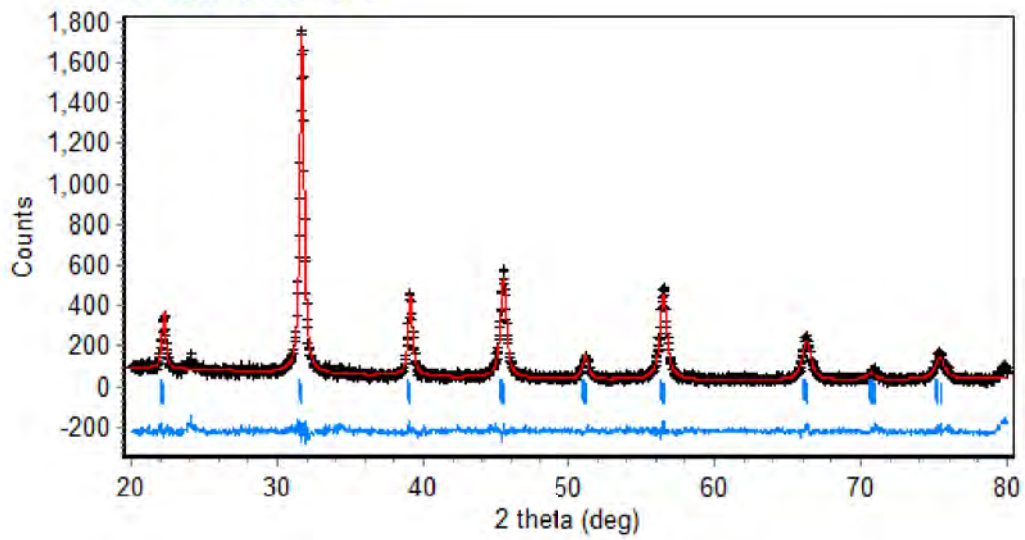
Sampel	a (Å)	b (Å)	c (Å)	R _p	R _{wp}	GoF	R-Bragg
KNN	3.572027	3.570713	3.565755	11,423	10,302	0,264	0,52
BST	3.983412	3.983412	3.995775	9,588	6,838	0,104	0,21
KNN-BST Serbuk Rute Sintesis 1	3.983805	3.983805	3.999475	9,441	9,314	0,143	0,28
KNN-BST Serbuk Rute Sintesis 2	3.984844	3.984844	4.022710	10,186	9,298	0,120	0,42
KNN-BST Pelet Rute Sintesis 1	3.956166	3.956166	3.981212	9,386	8,878	0,439	0,82
KNN-BST Pelet Rute Sintesis 2	3.949728	3.949728	3.965926	13,800	13,965	2,057	0,36

LAMPIRAN E. POLA XRD HASIL *REFINEMENT*

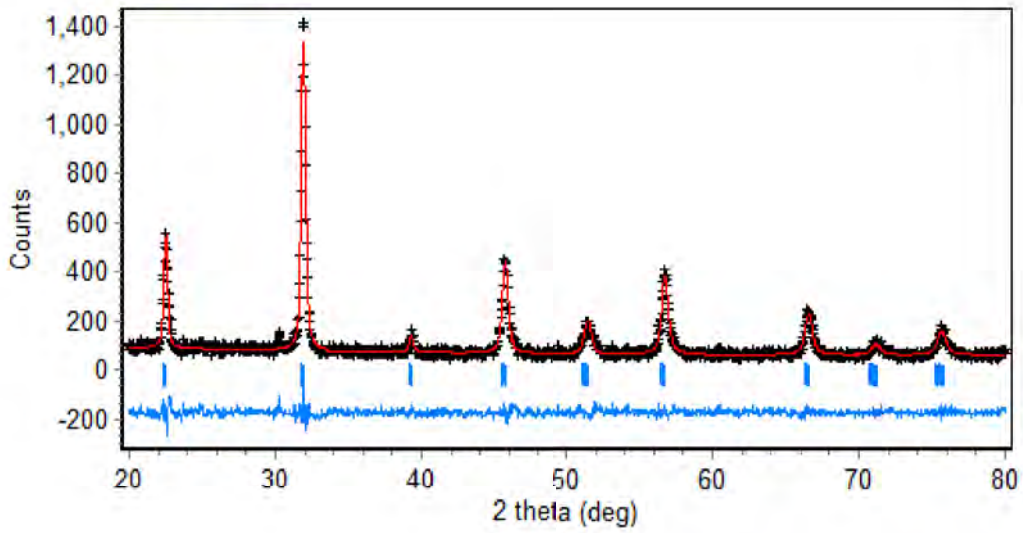
KNN:



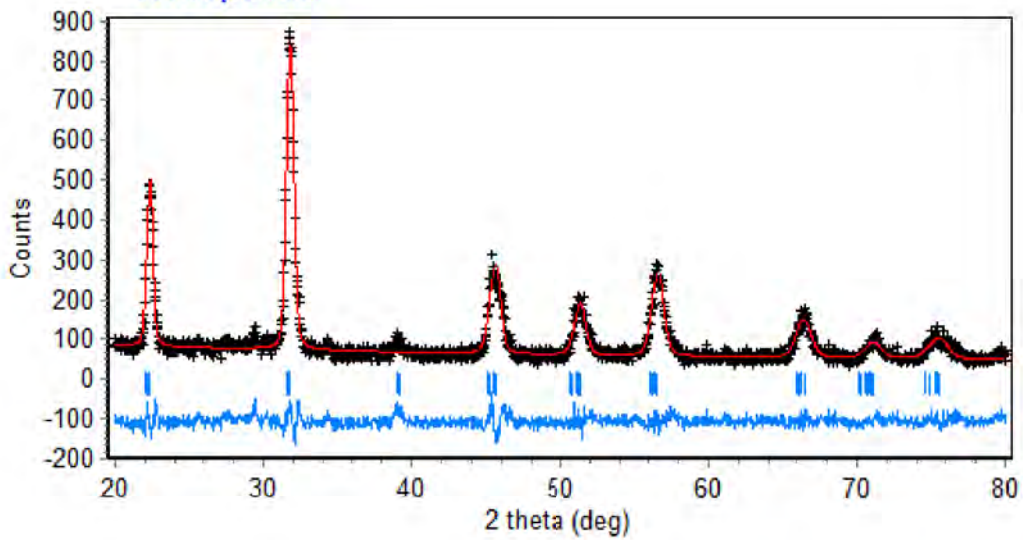
BST:



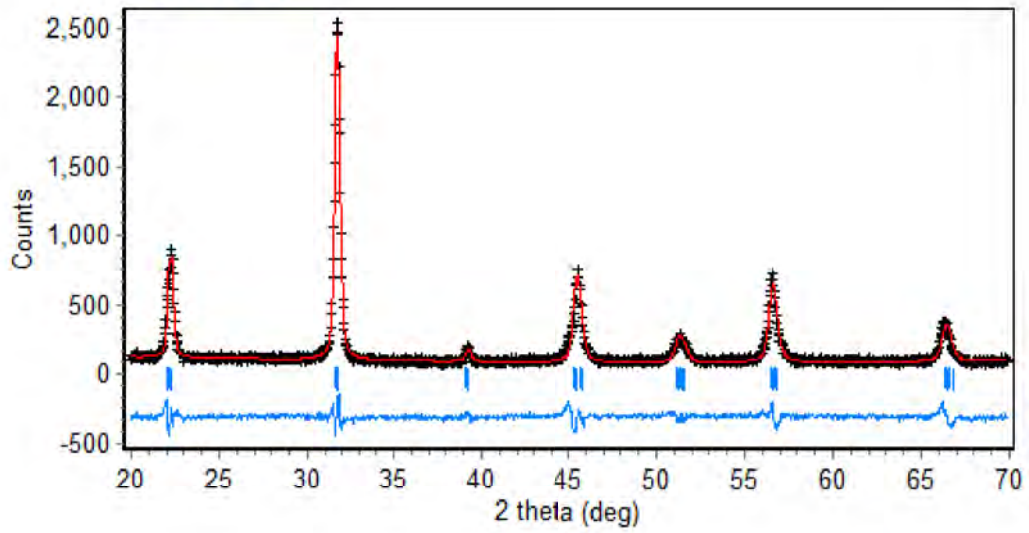
KNN-BST Powder Rute Sintesis 1:



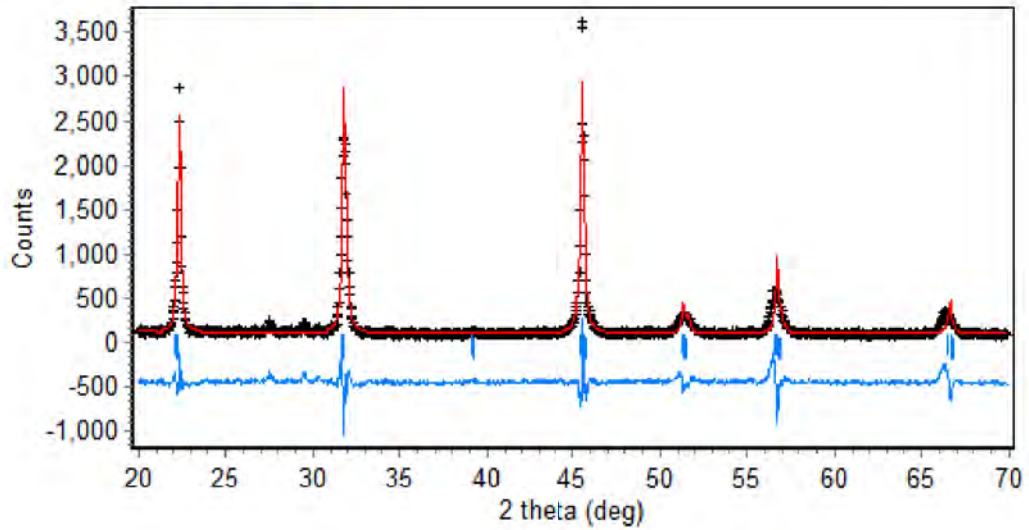
KNN-BST Powder Rute Sintesis 2:



KNN-BST Pelet Rute Sintesis 1:



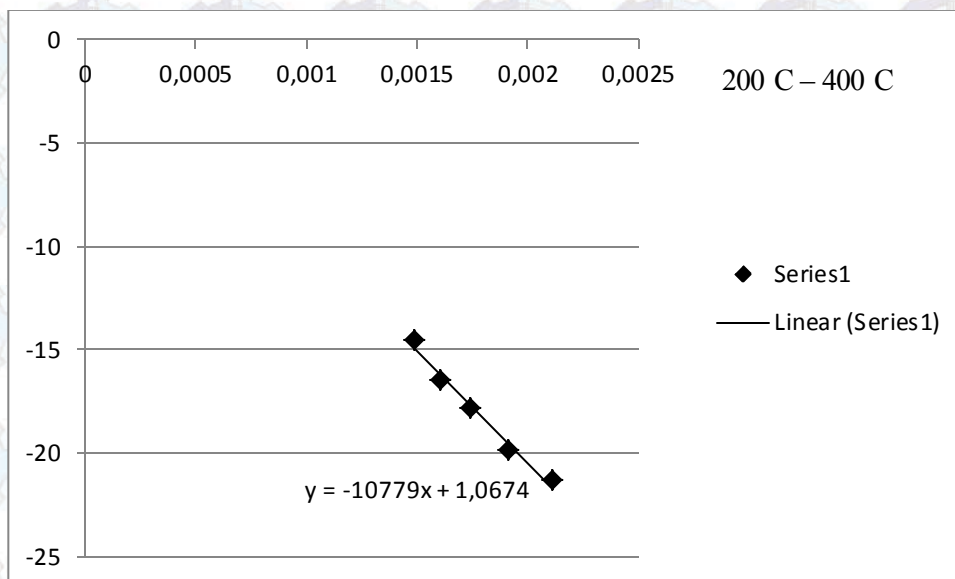
KNN-BST Pelet Rute Sintesis 2:

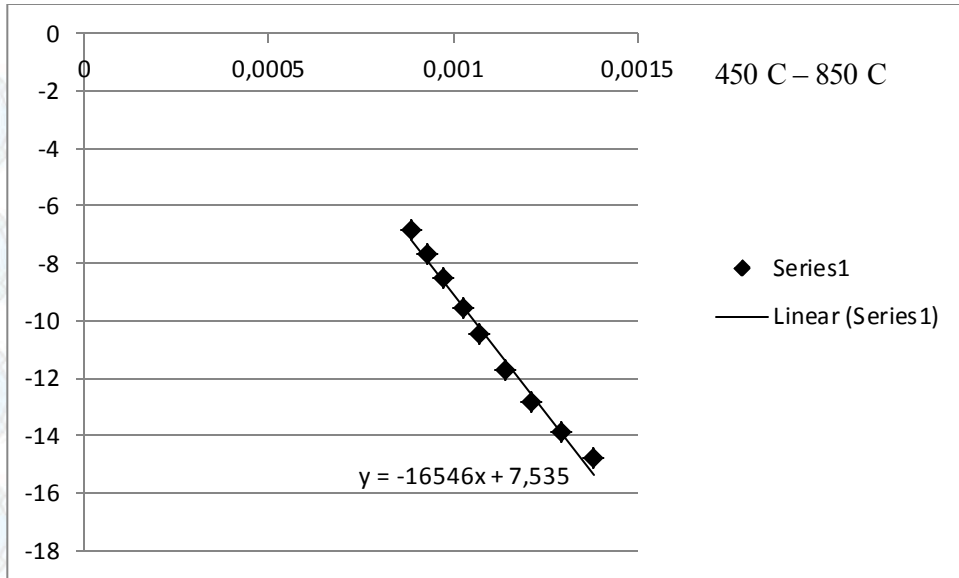


LAMPIRAN F. PERHITUNGAN ENERGI AKTIVASI

Sampel Rute 1 (Kalsinasi-Kalsinasi):

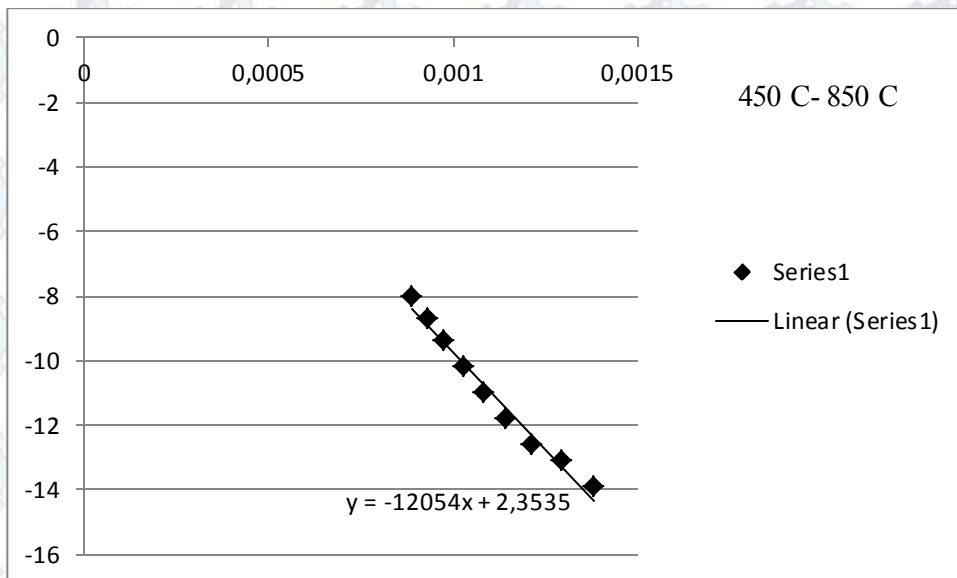
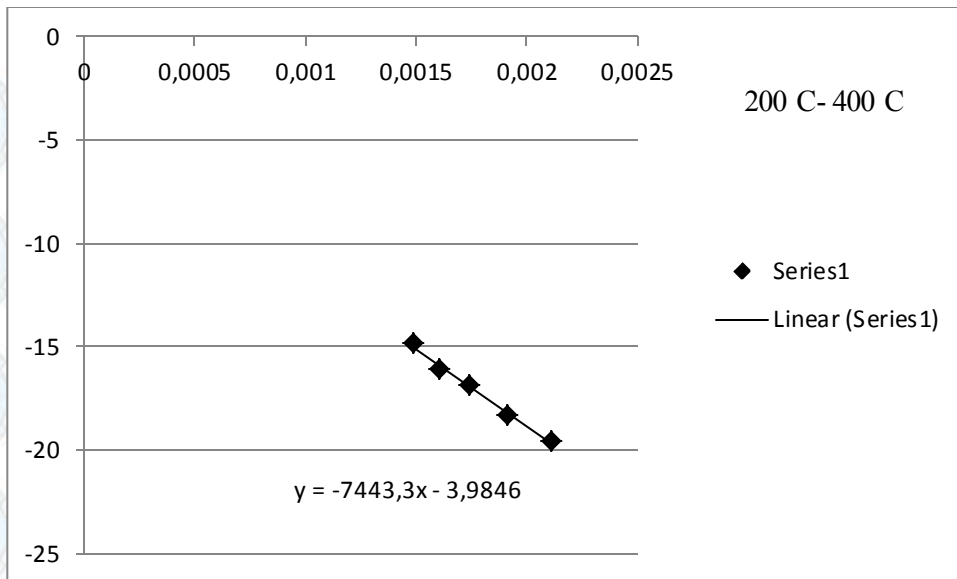
T	1/T	Ln Konduktivitas
200	0.002114165	-21.38532243
250	0.001912046	-19.91764712
300	0.001745201	-17.83221649
350	0.001605136	-16.47337897
400	0.001485884	-14.58320247
450	0.001383126	-14.81647982
500	0.001293661	-13.9262972
550	0.001215067	-12.86906545
600	0.001145475	-11.73382144
650	0.001071811	-10.50728562
700	0.001027749	-9.617802457
750	0.000977517	-8.559922699
800	0.000931966	-7.690954145
850	0.000890472	-6.873087047





Sampel Rute 2 (Kalsinasi-Non Kalsinasi):

T	1/T	Ln Konduktivitas
200	0.002114165	-19.62465355
250	0.001912046	-18.37089008
300	0.001745201	-16.85768282
350	0.001605136	-16.14341346
400	0.001485884	-14.89255867
450	0.001383126	-13.92000113
500	0.001293661	-13.09743997
550	0.001215067	-12.61461942
600	0.001145475	-11.78850452
650	0.001083424	-10.98919644
700	0.001027749	-10.20496295
750	0.000977517	-9.365633258
800	0.000931966	-8.703267099
850	0.000890472	-8.056721455



Energi aktivasi dihitung dengan persamaan:

$$\sigma = \sigma_o \exp\left(-\frac{E_a}{kT}\right)$$

$$\ln \sigma = \ln \sigma_o - \frac{E_a}{kT}$$

$$E_a = \tan \theta \times \text{konstanta Boltzman}$$

Sampel	Rentang Suhu	Tan θ	Energi Aktivasi
Rute 1 K-K	200°C – 400°C	10779	0,9297 eV
	450°C – 850°C	16546	1,4271 eV
Rute 2 K-NK	200°C – 400°C	7443	0,6419 eV
	450°C – 850°C	12054	1,03965 eV

DAFTAR PUSTAKA

- Barsoum, M.W., 2003. Fundamental of Ceramics. IOP Publishing.
- Blennow, P., Hagen, A., Hansen, K.K., Wallenberg, L.R. and Mogensen, M., 2008. Defect and Electrical Transport Properties of Nb-doped SrTiO₃. Solid State Ionics 179: 2047-2058.
- Cho, C.W., Cha, M.R., Jang, J.Y., Lee, S.H., Kim, D.J., Park, S., Bae, J.S., Bu, S.D., Lee, S. and Huh, J., 2012. Ferroelectric Relaxor Properties of (1-x)K_{0.5}Na_{0.5}NbO₃-xBa_{0.5}Ca_{0.5}TiO₃ Ceramics. Current Applied Physics 12 1266-1271.
- Chiang, Y.M., 1997. Principles for Ceramic Science and Engineering. Dunbar Birnie 3, W. David Kingery: John Willey and Son.
- Du, H., Zhou, W., Luo, F., Zhu, D., Qu, S. dan Pei, Z., 2009. Phase structure, dielectric properties, and relaxor behavior of (K_{0.5}Na_{0.5})NbO₃-(Ba_{0.5}Sr_{0.5})TiO₃ lead-free solid solution for high temperature applications. Journal of Applied Physics, 105, 124104.
- Fu, J. S., 2009. Ferroelectric materials and their applications in electronic circuits. Taiwan: National Central University Press.
- Golmohammad, M., Nemati, A. dan Sani, M.A.F., 2012. Synthesis and Dielectric Properties of Nanocrystalline BaSrTiO₃. International Journal of Modern Physics: Conference Series Vol.5-188-195.
- Kittel, C., 2005. Introduction to Solid State Physics. John Wiley and Sons.
- Li, Y., Chen, W., Zhou, J., Xu, Q., Sun, H. dan Xu, R., 2004. Dielectric and piezoelectric properties of lead-free (Na_{0.5}Bi_{0.5})TiO₃-NaNbO₃ ceramics. Material Science and Engineering B 112 (5-9)
- Moulson, A.J dan Herbert, J.M., 2003. Electroceramics: Material, Properties and Applications Second Edition. England: John Wiley and Sons.
- 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., Takatori, K., Homma, T., Nagaya, T. dan Nakamura, M., 2004. Lead-Free Piezoceramics. Nature, 432, 84–87.

- S. Suasmoro, S. Pratapa, D. Hartanto, D. Setyoko dan U.M. Dani, 2000. The characterization of mixed titanate $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ phase formation from oxalate coprecipitated precursor. *Journal of European Ceramic Society* 20 309-314.
- Suasmoro, 2012. *Feroelektrik Barium Strontium Titanat $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ Struktur, Synthesis, Karakteristik Elektrik*. Surabaya: ITS Press.
- Wang, Y. L., Lu, Y. Q., Wu, M. J., Wang, D. dan Li, Y.X., 2012. Low-temperature sintering and electrical properties of $(K,Na)NbO_3$ based lead-free ceramics with high curie temperature. *Ceramics International*, 38S S295-S299.
- Wang, K. dan Li, J.F., 2012. $(K, Na)NbO_3$ -Bades Lead-Free Piezoceramics: Phase Transition, Sintering and Property Enhancement. *Journal of Advanced Ceramics* ISSN 2226-4108.

BIODATA PENULIS



Ersa Desmelinda, lahir pada tanggal 22 Desember 1990 di Desa Pulau Jambu, Kec. Bangkinang Barat, Kampar-Riau. Anak pertama dari bapak Saleh dan ibu Eryani. Penulis menempuh pendidikan formal di TK Aisyah Kec. Tebing Tinggi, SD Muallimin Kec. Tebing Tinggi (kelas 1 – kelas 4), SDN 1 Kec. Tebing Tinggi (kelas 5 – kelas 6), SMPN 1 Kec. Tebing Tinggi, SMAN Plus Prop. Riau, S1 Pendidikan Fisika Universitas Riau dan S2 Fisika Institut Teknologi Sepuluh Nopember tahun 2013 dengan NRP 1113201002. Di jurusan Fisika ITS penulis mengambil konsentrasi di bidang fisika material. Publikasi penelitian ini pernah dilakukan di ICRIEMS 2015 di UNY Yogyakarta. Kritik dan saran dapat ditujukan ke email: e.desmelinda@yahoo.com.