

**PEMBUATAN DAN KARAKTERISASI LAPISAN
 $Ba_{0.5}Sr_{0.5}TiO_3$ (BST) YANG DIDOPING DENGAN MAGNESIUM
DENGAN METODE *CHEMICAL SOLUTION DEPOSITION*
(CSD)**

Tesis ini diajukan sebagai salah satu syarat memperoleh gelar Magister
dalam bidang Ilmu Material

**NYOMAN SUETA
6305002109**



**PROGRAM STUDI ILMU MATERIAL
PROGRAM PASCASARJANA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
UNIVERSITAS INDONESIA
2008**

ABSTRAK

Dalam penelitian ini telah dilakukan pembuatan material ferroelektrik $Ba_{0.5}Sr_{0.5}TiO_3$ yang didoping dengan Mg asetat (BSMT) dengan metode *Chemical Solution Deposition* (CSD) dengan teknik *spin coating* pada kecepatan putar 3000 rpm selama 30 detik. Proses annealing dilakukan pada temperatur $800^{\circ}C$ selama 3 jam. Variabel penelitian adalah persentase doping (0%, 1%, 2% dan 4% berat) dan jenis substrat (Si dan Pt).

Material lapisan tipis BSMT yang terdeposisi pada substrat Si dan Pt diuji komposisinya dengan XRF dan sistem kristalnya dengan XRD. Data XRF membuktikan bahwa material BSMT yang dibuat terdiri atas komponen Ba, Sr Ti dan Mg. Hasil penghalusan data dengan GSAS menunjukkan adanya kesesuaian dengan $Ba_{0.5}Sr_{0.5}TiO_3$ dari ICDD dengan sistem kristal kubik. Hasil SEM menunjukkan adanya *crack* pada permukaan yang terjadi pada saat annealing akibat adanya perbedaan *thermal expansion coefficient* antara BST/BSMT dan substrat. Plot hasil pengukuran polarisasi BST dan BMST membentuk kurva histeresis yang berarti bahwa material tersebut mempunyai sifat ferroelektrik. Doping Mg mengakibatkan adanya kenaikan nilai medan koersif (E_c) pada lapisan dengan substrat Pt, sedangkan pada lapisan dengan substrat Si terjadi sebaliknya.

Kata kunci : BSMT, *Chemical Solution Deposition*, ferroelektrik

ABSTRACT

In this research, ferroelectric material $Ba_{0.5}Sr_{0.5}TiO_3$ doped Mg have been manufactured by Chemical Solution Deposition (CSD) method with spin coating technique on 3000 rpm for 30 seconds. The process of annealing was done by temperature $800^{\circ}C$ for 3 hours. The variation of doping are 0%, 1%, 2% and 4% weight of Mg and substrate types are Si and Pt.

Composition of thin film material BSMT deposited on Si and Pt substrate were determined by XRF and crystal system are determined by XRD. XRF data indicates that the film are composed by Ba, Sr, Ti and Mg element. Result of refining XRD data by GSAS correspond to material $Ba_{0.5}Sr_{0.5}TiO_3$ from ICDD with cubic crystal system. SEM photograph indicate that there are crack on surface of film that happend during annealing because of differential of thermal expansion coefficient between BST/BSMT dan substrate. Plot of result of polarisation measurement draw hysteresis. It is mean that the material has ferroelectric characterization. Doping Mg effects Coersief Field (E_c) increase for substrat Pt, but decrease for substrat Si..

Key word : BSMT, Chemical Solution Deposition, ferroelektric

KATA PENGANTAR

Puji syukur saya panjatkan kepada Ida Sang Hyang Widi Wasa karena atas karunia-NYA, saya dapat menyelesaikan penelitian dan penulisan tesis yang berjudul “Pembuatan dan Karakterisasi Lapisan $Ba_{0.5}Sr_{0.5}TiO_3$ yang didoping dengan Mg dengan Metode CSD”. Tesis ini disusun untuk memenuhi salah satu persyaratan dalam memperoleh gelar Magister dalam bidang Ilmu Material pada Program Pascasarjana, Program Studi Ilmu Material, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Indonesia.

Pada kesempatan ini, saya mengucapkan terima kasih kepada:

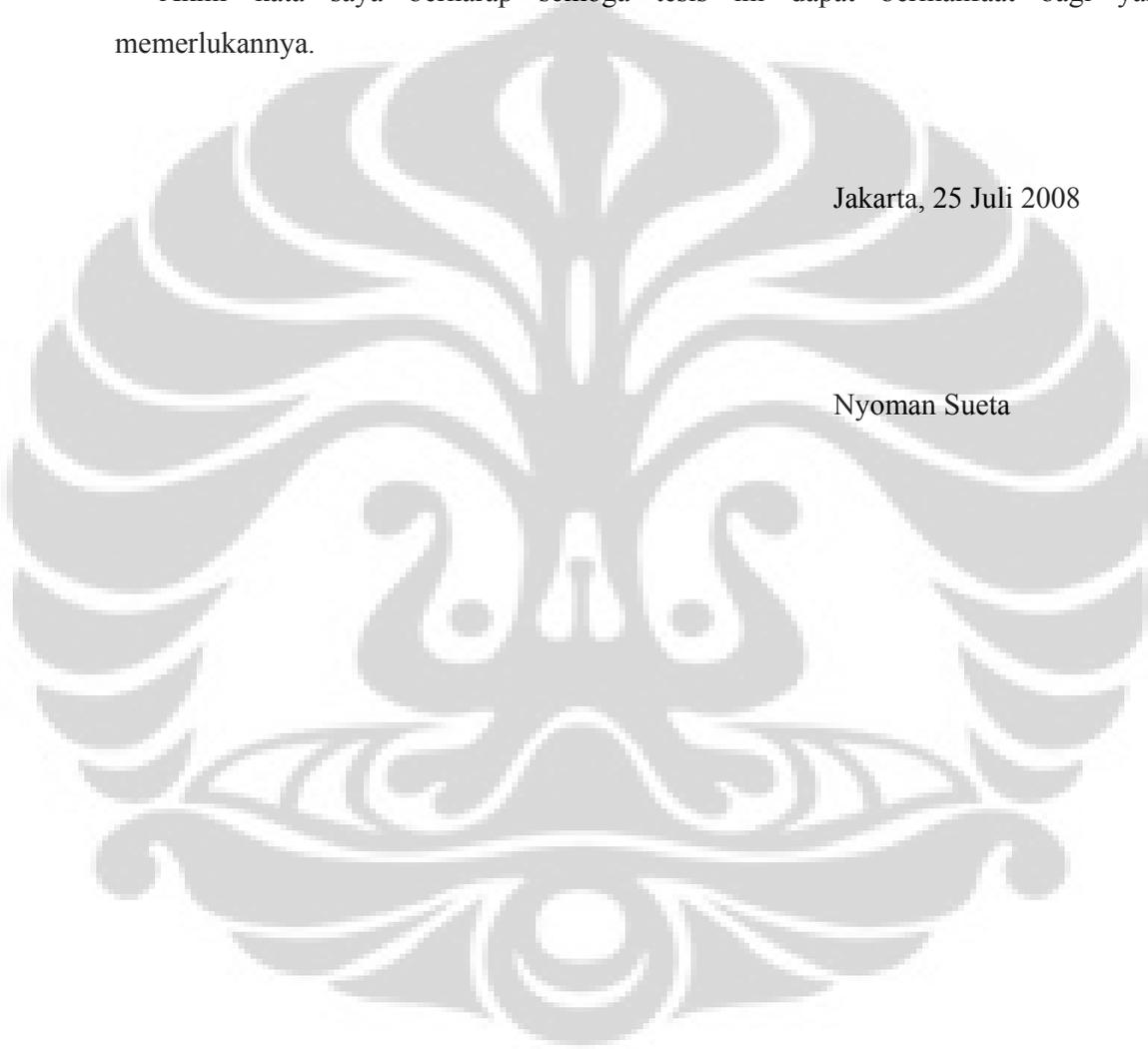
1. Departemen Pendidikan Nasional, sebagian dana riset ini berasal dari Proyek Hibah PascaSarjana Dikti Dinas, No. Kontrak: 029/SP2H/PP/DP2M/III/2007
2. DR. Bambang Soegijono, selaku Ketua Program Pascasarjana Program Studi Ilmu Material FMIPA Universitas Indonesia.
3. DR. Muhammad Hikam, selaku dosen pembimbing yang telah banyak meluangkan waktunya dalam membimbing penulis menyelesaikan tesis ini.
4. Yofentina Iriani, M.Si, Anif Jamaluddin, Teguh Yogaraksa, dan rekan-rekan satu kelompok dalam penelitian ini yang telah memberikan masukan berupa diskusi dan kerjasamanya dalam pembuatan dan pengujian sample.
5. Erfan, MSi, yang memberikan masukan dalam penggunaan alat SEM.
6. Ishom Muzakir, S.Si, yang memodifikasi peralatan untuk mengukur polarisasi dan pembuatan kurva histeresis.
7. Staf Laboratorium Fisika FMIPA, UNS, Solo, yang melaksanakan uji XRD.
8. Seluruh dosen pengajar, staf dan karyawan di Sekretariat Program Pascasarjana Ilmu Material FMIPA Universitas Indonesia.
9. Istri dan anak tercinta, atas semua dukungan moril, material dan pengertiannya.
10. Ibu, Ayah, Mertua dan saudara-saudara kandung atas semua dukungan moril dan doa yang tulus.
11. Serta kepada pihak yang tidak disebutkan namanya diatas, terima kasih atas dukungannya, semoga Allah SWT membalas segala kebaikannya, Amin.

Saya sangat menyadari bahwa tesis ini masih jauh dari sempurna, oleh sebab itu didalam kesempatan ini saya mengharapkan koreksi dan masukan dari para pembaca untuk kesempurnaan dari tesis ini.

Akhir kata saya berharap semoga tesis ini dapat bermanfaat bagi yang memerlukannya.

Jakarta, 25 Juli 2008

Nyoman Sueta



DAFTAR ISI

Abstrak.....	i
Kata Pengantar.....	iii
Daftar Isi.....	v
BAB I PENDAHULUAN.....	1
1.1. Latar Belakang.....	1
1.2. Tujuan Penelitian.....	2
1.3. Pembatasan Masalah.....	2
BAB II TINJAUAN PUSTAKA.....	4
2.1. Sifat Ferroelektrik.....	4
2.2. Material Ferroelektrik.....	5
2.3. BST dan Aplikasi.....	6
2.4. Pendahuluan.....	10
2.5. Penumbuhan Lapisan Tipis.....	11
2.6. Karakterisasi BMST.....	15
2.6.1. Karakterisasi Struktur Kristal dengan XRD.....	15
2.6.2. Karakterisasi unsur-unsur Pembentuk material dengan XRF.....	16
2.6.3. Karakterisasi Morfologi dengan SEM.....	16
2.6.4. Karakterisasi Sifat Ferroelektrik.....	18
BAB III METODOLOGI PENELITIAN.....	20
3.1. Tempat dan Waktu Penelitian.....	20
3.2. Alat dan Bahan Penelitian.....	20
3.3. Langkah-langkah Penelitian.....	21
3.3.1. Penumbuhan Lapisan Tipis dengan <i>Spin Coating</i>	23

3.3.2. Karakterisasi.....	23
3.3.2.1. Karakterisasi Material dengan XRF, XRD dan SEM.....	23
3.3.2.2. Karakterisasi Sifat Ferroelektrik.....	23
3.3.2.3. Pengolahan Data.....	24
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN.....	25
4.1. Hasil XRF.....	25
4.2. Hasil XRD.....	26
4.3. Hasil SEM.....	30
4.4. Hasil Uji Sifat Ferroelektrik.....	32
BAB V KESIMPULAN DAN SARAN.....	36
5.1. Kesimpulan.....	36
5.2. Saran.....	36
DAFTAR PUSTAKA.....	37
Lampiran-1. Data Hasil XRF	
Lampiran-2. Data Hasil XRD	
Lampiran-3. Perhitungan Pembuatan Larutan BST	

BAB I

PENDAHULUAN

1.1. Latar Belakang

Salah satu jenis material yang sangat penting peranannya dalam sistem komputer adalah material ferroelektrik. Dalam hal ini aplikasinya adalah sebagai penyimpan memori (*non-volatile memory*) terkait dengan tingginya nilai konstanta dielektrik yang dipunyainya. Jika konstanta dielektrik tinggi maka kapasitor dapat menyimpan muatan yang besar.

Material lapisan tipis yang populer digunakan sebagai *non-volatile memory* antara lain Barium Strontium Titanat ($\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$ atau BST), Plumbum Zirconium Titanat ($\text{PbZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ atau PZT), dan Strontium Titanat (SrTiO_3 atau STO). Material-material ini mempunyai konstanta dielektrik yang tinggi.

Dari ketiga material tersebut, BST mempunyai perpaduan sifat yang paling menarik untuk aplikasi memori karena mempunyai konstanta dielektrik yang tinggi ($\epsilon = 300$) dan *loss* dielektrik rendah. Konstanta dielektrik yang tinggi meningkatkan kemampuan penyimpanan muatan yang tinggi sehingga dapat menyimpan data yang lebih banyak. Prinsip dasar pembacaan atau penulisan aplikasi memori didasarkan pada sifat histerisis material ferroelektrik

Selain itu BST yang merupakan material ferroelektrik digunakan untuk FRAM (*Ferroelectric Random Access Memory*). FRAM adalah piranti memori yang menggabungkan lapisan ferroelektrik dengan kapasitor untuk penyimpan data. FRAM menggunakan lapisan ferroelektrik untuk sel memori, yang menggunakan sifat polarisasi spontan. FRAM mempunyai keunggulan jika dibandingkan dengan RAM (*Random Access Memory*) dan ROM (*Read Only Memory*), karena proses penulisan yang cepat. FRAM cocok digunakan untuk peralatan portable yang memerlukan daya rendah [1].

Agar dapat menumbuhkan lapisan tipis BST yang mempunyai konstanta dielektrik yang tinggi, maka ada beberapa kondisi yang menentukan, antara lain : komposisi dari elemen-elemen pembentuknya, stoikiometri, tingkat kekristalan (distribusi ukuran butir), ukuran butir, ketebalan. Kondisi-kondisi tersebut di atas sangat

dipengaruhi oleh metode penumbuhannya. Ada berbagai macam metode penumbuhannya seperti *chemical solution deposition* (CSD), *metal organic chemical vapor deposition* (MOCVD), *RF sputtering* dan *pulsed laser ablation* (PLAD).

Pada penelitian ini lapisan tipis BST disiapkan dengan metode *chemical solution deposition* (CSD). Kemudian, diproses lebih lanjut menggunakan *spin coating* dengan memvariasi kecepatan putar dari *spin coating*. Kelebihan metode CSD adalah stokiometrinya terkontrol, homogen dan temperatur sintering relatif rendah [2].

Pada penelitian ini juga akan dilakukan pendadahan (doping) dengan unsur Mg dalam bentuk Mg-asetat dengan metode CSD dan dilakukan variasi persentase doping serta jenis substrat. Sedangkan parameter yang tidak dilakukan perubahan antara lain :

- waktu proses *spin coating*,
- kecepatan putar (rpm) *spin coating*,
- suhu *annealing*,
- waktu *annealing*

Selanjutnya lapisan tipis yang terbentuk dilakukan :

- karakterisasi struktur kristal,
- ketebalan,
- morfologi,
- komposisi,
- dan sifat listrik (kurva histeresis)

1.2. Tujuan Penelitian

Tujuan penelitian ini adalah :

- Mendapatkan lapisan tipis $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ yang didoping dengan Magnesium (Mg) dengan metode CSD.
- Mendapatkan perbandingan sifat ferroelektrik dan morfologi antara lapisan BST yang didoping Mg dengan dengan variasi jumlah doping (0%, 1%, 2%, 4%) dan jenis substrat (Si, Pt).

1.3. Pembatasan Masalah

Pada penelitian ini dilakukan pembuatan lapisan $Ba_{0.5}Sr_{0.5}TiO_3$ (BST) dan BST doping Mg asetat (BMST) dengan metode *Chemical Solution Deposition* (CSD). Kemudian sampel diuji struktur kristal menggunakan alat XRD dan XRF, morfologi dengan menggunakan alat SEM serta uji sifat ferroelektrik (polarisasi) dengan menggunakan alat type Keithley Model 6517A.

Penelitian ini dibatasi pada skala laboratorium dengan metode CSD dengan teknik spin coating. Subtrat yang digunakan adalah Si dan Pt, sedangkan variasi doping Mg adalah 0%, 1%, 2% dan 4%.



BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

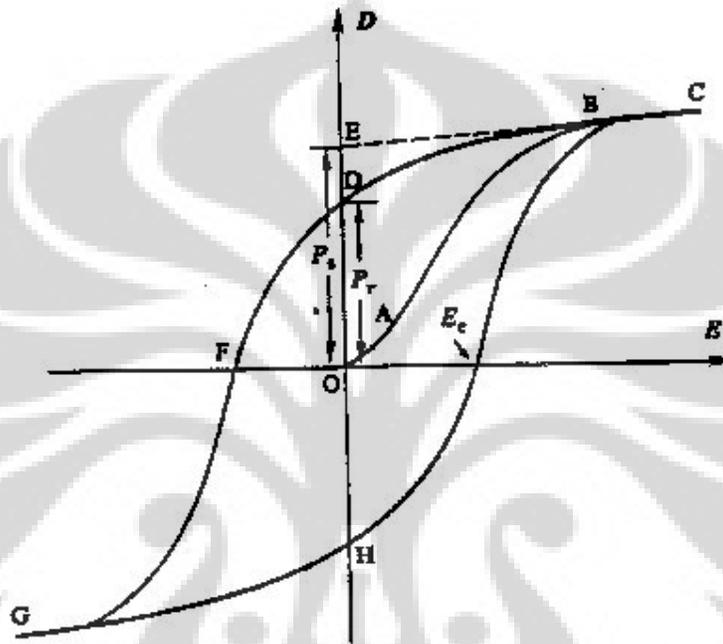
2.1. Sifat Ferroelektrik

Ferroelektrik didefinisikan sebagai gejala polarisasi yang tetap terjadi pada material meskipun medan listrik dari luar ditiadakan. Polarisasi yang terjadi merupakan hasil dari penerapan medan yang mengakibatkan adanya ketidak simetrian struktur kristal pada suatu material ferroelektik. Gejala ferroelektrik ditemukan pertama kali oleh Valasek pada tahun 1921 dengan garam Rochelle ($\text{KNaC}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$). Sedangkan keramik ferroelektrik pertama kali ditemukan pada tahun 1940, yaitu dengan ditemukannya konstanta dielektrik tinggi pada keramik kapasitor barium titanat. Sejak saat itu keramik ferroelektrik menjadi bahan yang sangat diperlukan oleh sejumlah industri. Komposisi pembuatan material ferroelektrik ada dua yaitu barium titanat dan zirconat titanat. Kini perkembangan keramik ferroelektrik menjadi pesat, tidak hanya terdiri dari dua komposisi terdahulu melainkan lebih dari itu.

Bila medan listrik diberikan pada material ferroelektrik, akan terjadi polarisasi yang membentuk kurva histerisis yang menghubungkan besaran polarisasi yang terjadi dan medan listrik yang diberikan seperti ditampilkan pada Gambar 2.1.

Pada kristal ferroelektrik terdapat domain yaitu daerah yang mempunyai polarisasi listrik yang sama. Jika domain-domain negatif (arahnya berlawanan dengan domain positif) diberikan medan listrik, yang mengakibatkan sejumlah domain negatif berubah arah yang berakibat polarisasi bertambah. Hal ini seperti diperlihatkan garis AB pada Gambar 2. Makin besar medan listrik makin besar polarisasi sehingga pada akhirnya domain-domain negatif tadi semuanya berubah arahnya. Akibatnya kristal menjadi berdomain tunggal yaitu positif. Meskipun medan diberikan terus polarisasi tidak berubah, inilah yang disebut polarisasi saturasi (P_s). Saat medan dikurangi polarisasi listrik kristal tersebut tidak akan kembali ke posisi semula tetapi mengikuti garis CD. Saat medan listrik nol masih terdapat polarisasi yang disebut polarisasi remanen (P_r). Untuk menghilangkan polarisasi pada kristal dilakukan dengan memberikan medan listrik yang arahnya berkebalikan (DF), pada titik F polarisasi akan nol. Medan yang digunakan untuk mengenolkan polarisasi disebut medan koersif (E_c).

Jika medan listrik yang arahnya berkebalikan kita berikan terus maka semua domain akhirnya terarah negatif (FG). Untuk melengkapi loop tersebut dapat dilakukan dengan membalikkan arah medan listrik sekali lagi ke arah positif (GHO).



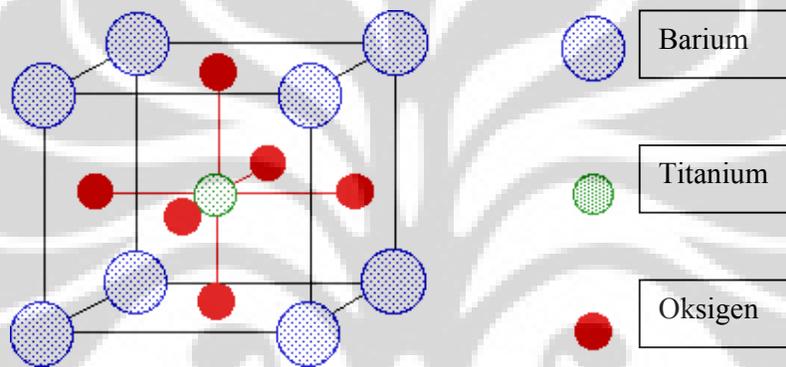
Gambar 2. 1. Kurva Histerisis

2.2. Material Ferroelektrik

Material ferroelektrik adalah suatu material yang memiliki sifat ferroelektrik, yaitu tetap terpolarisasi tanpa medan listrik dari luar. Umumnya material ferroelektrik memiliki struktur perovskite yang formula dasarnya adalah ABO_3 .

BST merupakan material ferroelektrik berstruktur perovskite. Struktur perovskite ideal berbentuk kubus sederhana, contohnya $BaTiO_3$. Kation Ba mewakili ion $2+$ mengambil posisi di pojok, sedangkan kation Ti mewakili ion $4+$ berada di diagonal ruang dan atom-atom oksigen dengan ion $2-$ berada di diagonal bidang. Pada fase ferroelektrik, struktur perovskite sering diasumsikan sebagai tetragonal, ortorombik atau rhombohedral. Pada simetri tetragonal, suatu sel kubik merenggang sepanjang satu sisi dan menyusut sepanjang dua sisi yang lain membentuk suatu prisma empat persegi

panjang. Faktor penting yang menentukan material ferroelektrik memiliki struktur perovskite atau bukan adalah kisinya dapat dinyatakan sebagai suatu rangkaian oksigen oktahedral secara kontinu dengan atom-atom menempati ruang antara. Ciri khas perovskite ini menunjukkan sifat-sifat ferroelektrik, pyroelektrik, dan piezoelektrik pada suhu kamar.



Gambar 2.2. Struktur Kristal Perovskite Material Ferroelektrik

2.3. BST dan Aplikasi BST

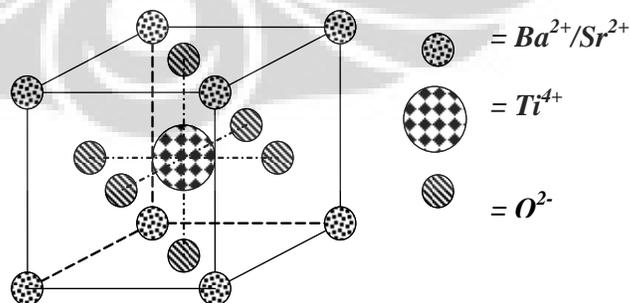
Barium Titanat adalah material ferroelektrik perovskite yang sangat sering diteliti dalam bentuk bulk keramiknya. Dari sudut pandang peneliti zat padat struktur bulk BaTiO_3 sangat sederhana daripada material ferroelektrik lainnya, sedangkan dari sudut pandang aplikasi penggunaannya kelebihan BaTiO_3 adalah:

1. Sangat stabil (sifat kimia dan sifat mekanik)
2. Memiliki sifat-sifat ferroelektrik pada suhu kamar dan diatas suhu kamar.
3. Sangat mudah pembuatannya, dalam bentuk bulk keramik.

Pada fasa non polar struktur simetri BaTiO_3 kubus dengan point group $m\bar{3}m$, sedangkan pada fasa polar dibawah suhu 120°C adalah tetragonal dengan point group $4mm$.

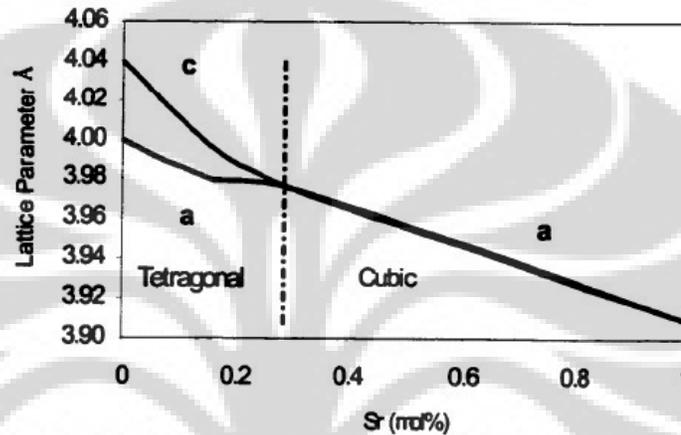
BaTiO₃ banyak digunakan sebagai multilayer kapasitor, karena konstanta dielektriknya tinggi. Penggunaan larutan padat BaTiO₃ – SrTiO₃ menjadikan temperatur Curie BaTiO₃ berubah dari 120°C menjadi sekitar temperatur kamar untuk film Ba_xSr_{1-x}TiO₃. Untuk penambahan Sr pada BaTiO₃, penurunan linear dari T_c adalah 3,4°C per mol% . Barium titanat memiliki densitas 6,020 g/cm³ dan titik leleh 1650°C [3], sedangkan stronsium titanat memiliki densitas 5,122 g/cm³ dan titik leleh 2080°C [4].

Sistem keramik BST memiliki transisi fasa dari struktur kubik ke tetragonal. Temperatur Curie bergantung pada rasio Ba/Sr, untuk konsentrasi Stronsium 40%, temperatur Curie sekitar 10°C dan konstanta kisi a = 3,965 Å [2]. BST memiliki sistem kristal kubik dengan konstanta kisi a = 3,947 Å untuk konsentrasi stronsium 50 % dan a = 3,965 Å untuk konsentrasi stronsium 40% (ICDD). BST dengan konstanta kisi a = 3,970 Å untuk konsentrasi stronsium 30%. Temperatur Curie dari Barium Titanat murni adalah 130°C, dengan penambahan stronsium akan menurunkan temperatur curie menjadi temperatur kamar yang akan sangat berguna untuk spesifikasi alat tertentu. Selain itu, BST juga memiliki konstanta dielektrik yang tinggi ($\epsilon_r \gg \epsilon_{SiO_2}$) sehingga dapat diaplikasikan sebagai kapasitor. Beberapa peneliti juga berpendapat bahwa BST memiliki potensi untuk menggantikan lapisan tipis SiO₂ pada sirkuit MOS pada masa depan. BST juga berpotensi untuk diaplikasikan sebagai DRAM (dynamic random access memories) dan NVRAM (non-volatile random access memories) karena tingkat kebocoran arus rendah (low leakage current) dan ketahanan yang kuat [5].



Gambar 2.3. Struktur kristal Ba_xSr_{1-x}TiO₃

Komposisi Ba yang berlebih pada BST secara teori adalah ferroelektrik, selama BST berada di bawah temperatur Curie pada temperatur kamar. Untuk %mol Sr ≤ 0.25 , struktur adalah ferroelektrik tetragonal perovskite, dan untuk %mol Sr ≥ 0.25 , strukturnya berubah menjadi paraelektrik kubik perovskite. Gambar 2.4. menunjukkan perubahan pada parameter kisi terhadap komposisi dari $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ [2].



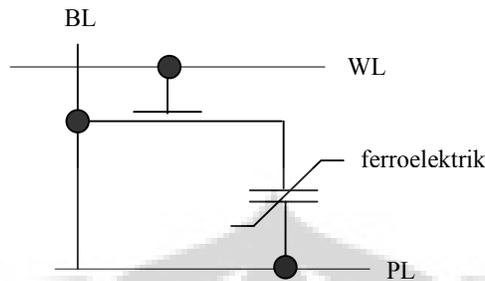
Gambar 2.4.
Perubahan parameter kisi terhadap komposisi $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ [2]

Sebagai material yang mempunyai sifat ferroelektrik, BST dalam bentuk lapisan digunakan dalam pembuatan memori untuk komputer, yaitu FRAM (*Ferroelectric Random Access Memory*).

FRAM adalah piranti memori dengan lapisan ferroelektrik yang menggunakan fenomena polarisasi lapisan tersebut. Prinsip pembacaan atau penulisan pada sel memori ferroelektrik didasarkan pada sifat histerisis material ferroelektrik. Struktur sel memori *nonvolatile* terdiri dari satu (dua) kapasitor (1T/1C) untuk menyimpan data dan satu (dua) transistor untuk mengakses data.

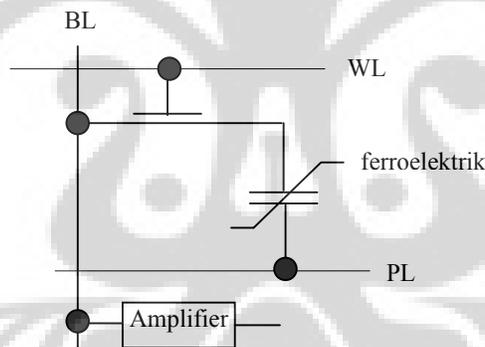
Operasi penulisan pada sel memori adalah sebagai berikut:

Penulisan 0 saat terjadi polarisasi ke atas ($+P_r$) dan 1 saat terjadi polarisasi ke bawah ($-P_r$). Saat tegangan V_{cc} diberikan PL (PL: $0V \rightarrow V_{cc} \rightarrow 0V$) pada rangkaian 1T/1C dan BL = 0 (BL: $0V \rightarrow 0V \rightarrow 0V$) maka akan terjadi polarisasi spontan. Saat tegangan 0 (transistor off) maka masih terdapat sisa polarisasi sebesar $+P_r$. Inilah yang akan ditulis dalam sel memori, yaitu 0.



Gambar 2.5. Prinsip operasi penulisan (1T/1C)

Saat tegangan V_{cc} diberikan BL (BL: $0V \rightarrow V_{cc} \rightarrow 0V$) pada rangkaian 1T/1C dan PL = 0 maka akan terjadi polarisasi spontan. Saat tegangan 0 (transistor off) maka masih terdapat sisa polarisasi sebesar $-P_r$. Inilah yang akan ditulis dalam sel memori, yaitu 1. Operasi pembacaan dari sel adalah sebagai berikut:



Gambar 2.6. Prinsip operasi pembacaan (1T/1C)

Saat BL = 0 dan PL = V_{cc} , maka tegangan dikapasitor akan meningkat sehingga data dalam sel dapat terbaca. Ketika sel berisi 0 terdapat transfer muatan dalam jumlah kecil yang tidak menimbulkan polarisasi balik sehingga tegangan BL menjadi V_L . Di sisi lain sel berisi 1 terdapat transfer muatan dalam jumlah besar yang menyebabkan polarisasi balik sehingga tegangan BL menjadi V_H . Adanya amplifier berhubungan dengan BL dan tegangan referensi (V_{ref}) diantara V_H dan V_L . Amplifier ini mengurangi tegangan V_L yang lebih rendah dari V_{ref} dan menambah tegangan V_H yang lebih tinggi dari V_{ref} , yaitu V_{cc} . Keadaan kapasitor ferroelektrik sesudah penguatan adalah $V_f = +V_{cc}$, 0 dibaca saat BL = 0 dan PL = V_{cc} , dan 1 dibaca saat BL = V_{cc} dan PL = V_{cc} .

2.4. Pendadahan

Pendadahan atau pendopongan dapat menyebabkan perubahan: parameter kisi, konstanta dielektrik, sifat elektromekanik, sifat elektrooptik, sifat ferroelektrik, dan sifat pyroelektrik dari setiap keramik dan lapisan tipis. Pendopongan atau pendadahan pada material ferroelektrik dibedakan menjadi dua, yaitu soft doping dan hard doping [6].

Tabel 2.1.
Jari-jari ion pendoping yang dapat digunakan sebagai soft doping [6]

Ion kecil	r (Å)	Ion besar	r (Å)
Ti ⁴⁺	0,68	Pb ²⁺	1,32
Zr ⁴⁺	0,79	La ³⁺	1,22
Nb ⁵⁺	0,69	Nd ³⁺	1,15
Ta ⁵⁺	0,68	Sb ³⁺	0,90
Sb ⁵⁺	0,63	Bi ³⁺	1,14
W ⁶⁺	0,65	Th ⁴⁺	1,10

Ion *soft* doping dapat menghasilkan sifat material ferroelektrik menjadi lebih *soften*, seperti: koefisien elastisitas lebih tinggi, sifat medan koersif lebih rendah, faktor kualitas mekanik lebih rendah, dan faktor kualitas listrik lebih rendah. Ion-ion yang dapat dipakai *soft* dopan adalah: La³⁺, Nd³⁺, dan ion-ion tanah jarang seperti: Sb³⁺, Bi³⁺, Th⁴⁺, Nb⁵⁺, Ta⁵⁺, dan W⁶⁺. Pada BST, *soft* doping menyebabkan tidak efektifnya pembangkitan momen dipol, karena ion Ba tidak dapat mudah melompat dari posisi A ke ruang kosong posisi A, akibat terhalang secara ikatan ionik oleh oksigen pada gugus oktohedran.

Ion *hard* doping dapat menghasilkan sifat material ferroelektrik menjadi lebih *hardness*, seperti: loss dielektrik yang rendah, bulk resistivitas lebih rendah, sifat medan listrik koersif lebih tinggi, faktor kualitas mekanik lebih tinggi, dan faktor kualitas listrik lebih tinggi. Ion-ion yang dapat dipakai sebagai *hard* dopan: K⁺, Na⁺, Fe²⁺, Fe³⁺, Co²⁺, Co³⁺, Mn³⁺, Ni²⁺, Mg²⁺, Al³⁺, Ga³⁺, In³⁺, Cr³⁺, Sc³⁺. Pada BST ion hard doping menyebabkan sangat efektifnya pembangkitan momen dipol karena ion O dapat mudah

melompat dari posisi O ke ruang kosong posisi O yang jaraknya sangat berdekatan (2,8 Å) dan loncatan ion dapat dengan mudah terjadi [1].

Tabel 2.2.

Jari-jari ion pendoping yang dapat digunakan sebagai hard doping [6]

Ion kecil	r (Å)	Ion besar	r (Å)
Ti ⁴⁺	0,68	Pb ²⁺	1,32
Zr ⁴⁺	0,79	K ⁺	1,33
Fe ³⁺	0,67	Na ⁺	0,94
Al ³⁺	0,57		
Sc ³⁺	0,83		
In ³⁺	0,85		
Cr ³⁺	0,64		
Mg²⁺	0,78		

2.5. Penumbuhan Lapisan Tipis

Penumbuhan lapisan tipis dapat dilakukan dengan berbagai cara. Yang dapat dilihat pada table 2.3. [8]. Setiap metode mempunyai ciri khas yang mempengaruhi komposisi, stoikiometri, kekristalan dan ukuran butir (*grain size*).

Chemical Solution Deposition (CSD)

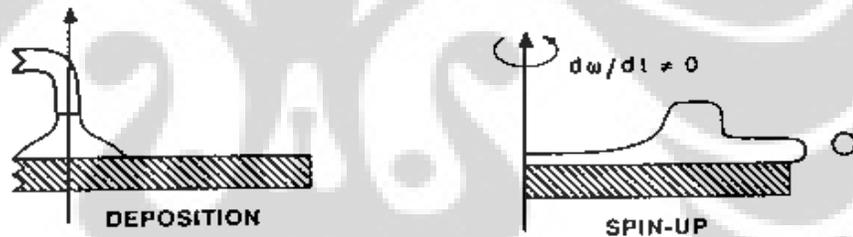
Metode *Chemical Solution Deposition (CSD)* atau disebut juga *spin coating* dalam pembentukan lapisan tipis telah digunakan dalam beberapa dekade. Ada empat langkah pada proses ini.

Langkah pertama adalah meneteskan permukaan substrat dengan larutan pelapis dengan menggunakan pipet. Langkah kedua adalah memutar substrat dengan kecepatan putar tinggi (3000 rpm) yang merupakan langkah penipisan cairan pelapis. Putaran pada substrat akan menghasilkan gaya setrifugal yang akan membuat larutan bergerak keluar sehingga larutan yang menempel pada substrat membentuk lapisan tipis.

Tabel 2.3. Perbedaan metode deposisi lapisan tipis [2]

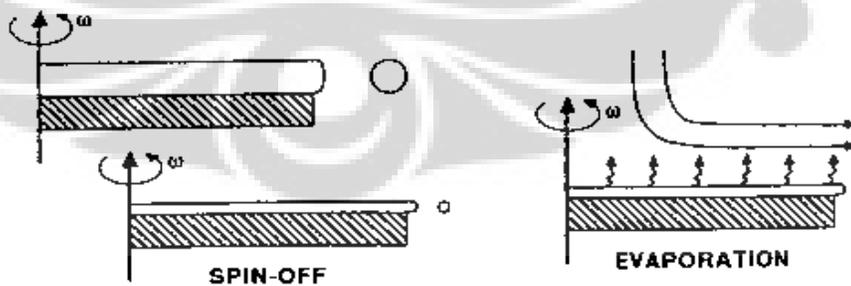
Metode	Pengertian	Kelebihan	Kekurangan
<i>Chemical Solution Deposition (CSD)</i>	Penumbuhan film dalam suhu kamar dimana target berupa larutan yang diteteskan pada substrat	<ul style="list-style-type: none"> - Murah - Homogen - Temperatur processing rendah - Kontrol stoikiometri 	<ul style="list-style-type: none"> - Morfologi - Kontrol fasa
<i>Pulsed Laser Deposition (PLD)</i>	Penumbuhan film dalam ruang vakum dimana target dikikis oleh berkas laser pada suasana plasma	<ul style="list-style-type: none"> - Dapat mengontrol stoikiometri film dengan kualitas yang baik - Cepat dalam memproduksi material baru 	<ul style="list-style-type: none"> - Morfologi - Konsentrasi pada area tertentu - Scalability (hanya area kecil) - Tidak <i>uniform</i> - Tegangan sisa (<i>residual stress</i>) tinggi - Mahal
<i>Sputtering</i>	Penumbuhan film dalam ruang vakum dimana target dikikis oleh ion oksigen pada suasana plasma	<ul style="list-style-type: none"> - Uniform - Sebagai standar IC processing - Temperatur penumbuhan rendah - Dapat mengontrol stoikiometri film dengan 	<ul style="list-style-type: none"> - Konsentrasi pada area tertentu - <i>Residual stress</i> tinggi - Kontrol stoikiometri - Laju deposisi lambat untuk oksida - Mahal

		kualitas yang baik	
<i>CVD</i>	Penumbuhan film dalam ruang vakum dimana target berasal dari reaksi kimia pembentuk film yang berada dalam bubbler pada suasana plasma	<ul style="list-style-type: none"> - Uniform - Morfologi - Kecil - Dapat mengontrol stoikiometri film dgn kualitas yang baik 	<ul style="list-style-type: none"> - Stabilitas larutan precursor - Mahal



Langkah 1

Langkah 2



Langkah 3

Langkah 4

Gambar 2.7. Langkah-langkah *spin coating* [2]

Langkah ketiga adalah ketika substrat pada kecepatan konstan (sesuai yang diinginkan), yang dicirikan dengan penipisan larutan pelapis secara perlahan-lahan, sehingga didapatkan ketebalan larutan pelapis yang homogen. Kadang-kadang juga terlihat di bagian tepi pada bagian substrat yang ditetesi larutan pelapis lebih tebal. Langkah keempat adalah ketika substrat diputar pada kecepatan konstan dan terjadi penguapan pelarut.

Ketebalan lapisan dan sifat lainnya tergantung pada jenis cairan (viskositas, kecepatan pengeringan dan molaritas) serta parameter-parameter yang dipilih saat proses *spin coating* meliputi kecepatan putar, percepatan, dan kevakuman. Umumnya kecepatan putar yang tinggi dan lama waktu putarnya menghasilkan lapisan yang lebih tipis.

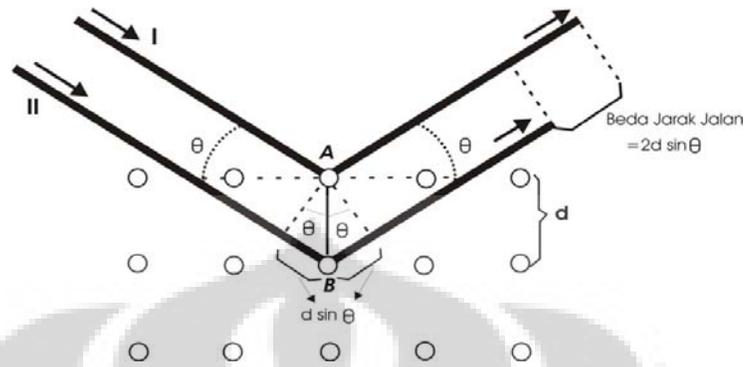
2.6. Karakterisasi Lapisan BSMT

Karakterisasi yang dilakukan terhadap lapisan BSMT mencakup penentuan struktur kristal menggunakan XRD, identifikasi kandungan unsur yang terdapat pada film menggunakan teknik XRF, morfologi permukaan dengan SEM dan sifat ferroelektrik lapisan dengan pengukuran polarisasi (kurva histeresis).

2.6.1. Karakterisasi Struktur Kristal dengan XRD

Tujuan dari karakterisasi XRD adalah untuk menentukan sistem kristal material (kubus, tetragonal, ortorombik, rombohedral, heksagonal, monoklin, triklin), menentukan kualitas kristal (*single crystal, polycrystal, amorphous*), menentukan simetri kristal, menentukan cacat kristal (*twinning, dislokasi*), mencari parameter kristal (parameter kisi, jarak antar atom, jumlah atom per unit sel), identifikasi campuran (misal pada *alloy*) dan analisis kimia.

Suatu kristal dapat didifraksikan dengan sinar-X karena orde panjang gelombang sinar-X hampir sama dengan jarak antar atom pada kristal. Hubungan antara sudut difraksi dan konstanta kisi bergantung dengan sistem kristal.



Gambar 2.8. Difraksi Bragg [7]

Terbentuknya suatu pola difraksi konstruktif hanya bisa terjadi apabila dua gelombang atau lebih mempunyai hubungan fasa tertentu. Jadi difraksi sinar-X berasal dari susunan atom-atom yang tersusun teratur secara priodik sesuai posisi-posisi tertentu di dalam kristal. Sehingga atom-atom di dalam kristal dapat dipandang berada pada bidang-bidang yang sejajar satu sama lain yang dipisahkan oleh jarak d , seperti ditunjukkan oleh Gambar 2.8 [7].

Dari Gambar 2.8, diasumsikan bahwa berkas sinar-X yang datang pada bahan sejajar satu-sama lain, mempunyai hanya satu panjang gelombang (λ) dan dengan sudut datang dinyatakan dengan θ terhadap bidang difraksi (sudut Bragg). Besar sudut Bragg ini tentunya akan mempunyai harga berbeda untuk tiap-tiap bidang. Besaran-besaran tersebut terhubung dalam suatu persamaan yang dikenal sebagai Hukum Bragg, yaitu :

$$n\lambda = 2d' \sin \theta \quad (2.1)$$

XRD bekerja dengan asas hukum Bragg. Sampel yang akan dianalisis disinari oleh sinar-X dan terjadi difraksi. Intensitas difraksi ditangkap oleh suatu sensor bergerak mengitari sampel dan diukur intensitas sinar X pada titik-titik (sudut) yang dilewati. Besaran intensitas pada sudut-sudut tertentu menunjukkan sistem kristal dari sampel.

2.6.2. Karakterisasi Unsur-unsur Penyusun Material dengan X-Ray Flourescence (XRF)

Bilamana suatu material ditempatkan dalam berkas sinar-X, maka energi sinar-X tersebut akan diserap oleh atom-atom unsur penyusun material tersebut. Atom-atom ini akan mengalami eksitasi dan kemudian memancarkan sinar-X karakteristik dengan berbagai panjang gelombang tertentu sesuai dengan unsur yang bersangkutan. Proses pemancaran sinar-X tersebut dikenal dengan fluoresensi sinar-X. Hal inilah yang menjadi dasar dari alat *X-ray fluorescence* (XRF) [8].

XRF dapat digunakan baik untuk analisa kualitatif maupun kuantitatif. Untuk analisa kualitatif didasarkan atas panjang gelombang sinar-X yang dipancarkan pada saat peristiwa fluoresensi.

Analisa kuantitatif, intensitas fluoresensi sinar-X yang dipancarkan suatu unsur yang ditempatkan dalam berkas sinar-X bergantung pada banyaknya unsur tersebut. Dengan mengukur intensitas fluoresensi sinar-X suatu unsur, dapat dilakukan penetapan kuantitatif unsur tersebut.

2.6.3. Karakterisasi Morfologi Permukaan Dengan Scanning Electron Microscopy (SEM)

Teknik Scanning Electron Microscopy pada hakekatnya merupakan pemeriksaan dan analisis permukaan. Data atau tampilan yang diperoleh adalah data dari permukaan atau dari lapisan yang tebalnya sekitar 20 μm dari permukaan. Gambar permukaan yang diperoleh merupakan gambar topografi dengan segala tonjolan dan lekukan permukaan. Gambar topografi diperoleh dari penangkapan pengolahan elektron sekunder yang dipancarkan oleh specimen [9].

Korelasi antara tegangan dan panjang gelombang serta resolusi (daya pisah) dan panjang gelombang merupakan prinsip dasar dalam mengoperasikan Scanning Mikroskop Elektron (SEM) . Berdasarkan hasil pengamatan Thomson (1897) dan hipotesa L. de Broglie (1924), berkas elektron dapat dibelokkan dan difokuskan oleh medan magnet dengan panjang gelombang elektron (λ) dibuat sangat pendek sesuai dengan persamaan :

$$\lambda = h / m v \text{ (}\text{\AA}\text{)} \quad (2.2)$$

di mana λ = panjang gelombang
 h = konstanta Planck
 m = massa elektron
 v = kecepatan elektron

Berdasarkan hubungan antara voltase dan panjang gelombang, yakni :

$$V \sim 1/\lambda \quad (2.3)$$

Diketahui bahwa makin tinggi voltase maka makin pendek panjang gelombang. Sedangkan hubungan antara daya pisah (resolution) dengan panjang gelombang dinyatakan dalam rumus Reyleigh :

$$R = 0.61 \lambda / \alpha \quad (2.4)$$

Di mana R = daya pisah (resolution)
 λ = panjang gelombang
 α = Aperture efektif lensa obyektif.

Pengamatan sampel dengan mikroskop elektron membutuhkan beberapa persyaratan yang berkaitan dengan interaksi elektron dan materi agar dapat diperoleh informasi yang diinginkan. Persyaratan utama agar sampel dapat diamati adalah harus konduktif. Akan tetapi untuk sampel yang non konduktif atau konduktivitasnya rendah harus dibuat konduktif atau ditingkatkan konduktivitasnya dengan cara melapis permukaan sampel dengan logam-logam berat atau carbon.

Untuk memperoleh informasi yang rinci biasanya digunakan perbesaran yang relatif tinggi. Dalam hal ini sampel harus stabil atau tahan panas terhadap terkonsentrasinya berkas elektron terutama pada saat pengamatan atau perekaman foto agar kualitas gambar yang diperoleh baik. Demikian pula dalam hal pengaturan

tegangan pemercepat - untuk mempercepat laju elektron – harus senantiasa diperhatikan terhadap daya resolusi dan kestabilan bahan sampel yang diamati. Oleh karenanya, dalam hal penggunaan mikroskop ini harus selalu mempertimbangkan karakteristik sampel yang diamati, begitu juga kapasitas mikroskop elektron yang ada, agar diperoleh hasil yang optimal.

2. 6.4. Karakterisasi Sifat Ferroelektrik (Kurva Histerisis)

Ketika suatu material dielektrikum dipengaruhi oleh medan listrik luar, maka akan terjadi pergeseran muatan di dalam dielektrikum (terpolarisasi). Akibat dari pergeseran ini akan timbul dipol-dipol listrik. Besarnya momen dipol dirumuskan sebagai berikut:

$$p = q r \quad (2.5)$$

dimana: p = momen dipol listrik (coulomb meter)
 q = muatan listrik (coulomb)
 r = jarak antar pusat muatan (meter)

Besar polarisasi listrik spontan (P_s) didefinisikan sebagai jumlah momen dipol persatuan volume (V), dan dirumuskan sebagai berikut:

$$P_s = \frac{\sum_i^N q_i r_i}{V} \quad (2.6)$$

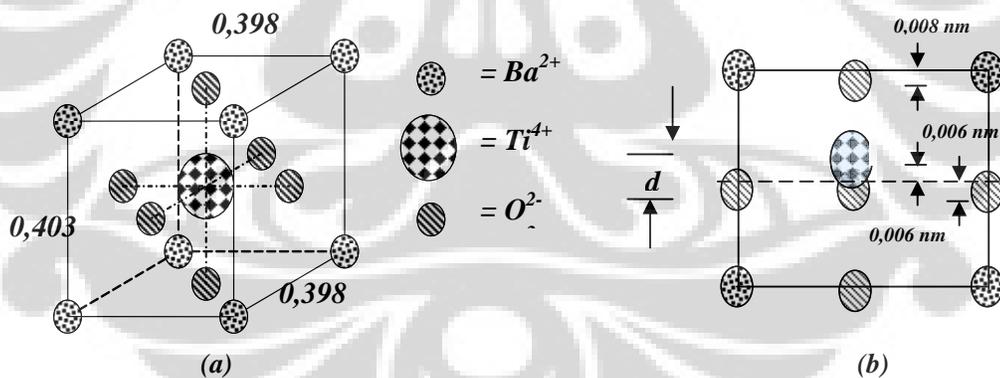
Volume satuan sel BST dengan parameter kisi kristal a, b, c dirumuskan dengan persamaan berikut:

$$V = a b c \quad (2.7)$$

Sedangkan hubungan antara polarisasi listrik (P) dengan kuat medan listrik (E) dirumuskan sebagai berikut:

$$P = (K - 1)\epsilon_o E \quad (2.8)$$

Suatu kristal dikatakan terpolarisasi jika memiliki dipol listrik yang permanen karena pusat muatan positif dan muatan negatifnya bukan di pusat sel-satuan. Seperti diperlihatkan oleh BaTiO_3 . Diatas temperatur 120°C BaTiO_3 berbentuk kubus. Selama BaTiO_3 simetrik, maka tidak ada momen dipol permanen. Dibawah temperatur 120°C dinamakan titik Curie ferroelektrik, terdapat pergeseran kecil tetapi penting pada ion-ionnya. Ion Ti^{4+} tengah bergeser kira-kira $0,006 \text{ nm}$ terhadap ion Ba^{2+} sudutnya. Ion-ion O^{2-} bergeser ke arah yang berlawanan, seperti pada Gambar 2.9. Pusat muatan positif dan pusat muatan negatif dipisahkan sejauh panjang dipol (d) [10].



Gambar 2.9 [10]

(a) BaTiO_3 pada suhu kamar

(b) Dilihat dari satu muka, dimana diperlihatkan pergeseran ion Ti^{4+} dan O^{2-} dari pusat muka searah dengan sumbu c

BAB III

METODOLOGI PENELITIAN

3.1. Tempat dan Waktu Penelitian

Penelitian dilaksanakan pada bulan Agustus 2007 sampai dengan Mei 2008 di Laboratorium Departemen Fisika, FMIPA, Universitas Indonesia, Depok, Laboratorium Program Pasca Sarjana Ilmu Material, FMIPA, Universitas Indonesia, Salemba dan Laboratorium Fisika, FMIPA, UNS, Solo. Sedangkan untuk keperluan metalisasi lapisan BST dilakukan di Laboratorium Fisika Material, Departemen Fisika, FMIPA, Institut Teknologi Bandung, Bandung.

3.2. Alat dan Bahan Penelitian

Dalam pembuatan lapisan barium strontium titanat (BST) dengan metode *Chemical Solution Deposition* (CSD) digunakan bahan-bahan, yaitu barium asetat, strontium asetat dan titanium isopropoksida. Selain itu juga digunakan pelarut asam asetat dan ethylen glycol yang berfungsi untuk mengentalkan larutan. Untuk keperluan doping Mg digunakan magnesium asetat [$\text{Mg}(\text{CH}_3\text{COOH})_2$] sebagai bahan dopan. Alat-alat yang digunakan untuk pembuatan larutan adalah timbangan Sartorius, erlenmeyer, *hotplate magnetic stirrer* merek Barnstead Thermolyne (CIMAREC) SP131320-33Q, kertas saring, tabung reaksi dan corong.

Dalam mendeposisi lapisan BST diatas substrat dengan cara *spin coating* digunakan peralatan *spin coating* dan pipet. Substrat yang digunakan adalah Si dan Pt/Si. Untuk keperluan *annealing* digunakan furnace jenis Volcan.

Sampel (lapisan tipis BST) dikarakterisasi unsur-unsur yang terdeposit di atas substrat dengan alat XRF merk JEOL Element Analyzer JSX-3211, struktur kristal dengan alat XRD merk Shimadzu 600, morfologi dengan alat SEM merk Jeol seri JSM-5310LV, dan uji sifat listrik dengan alat Keithley Model 6517A.

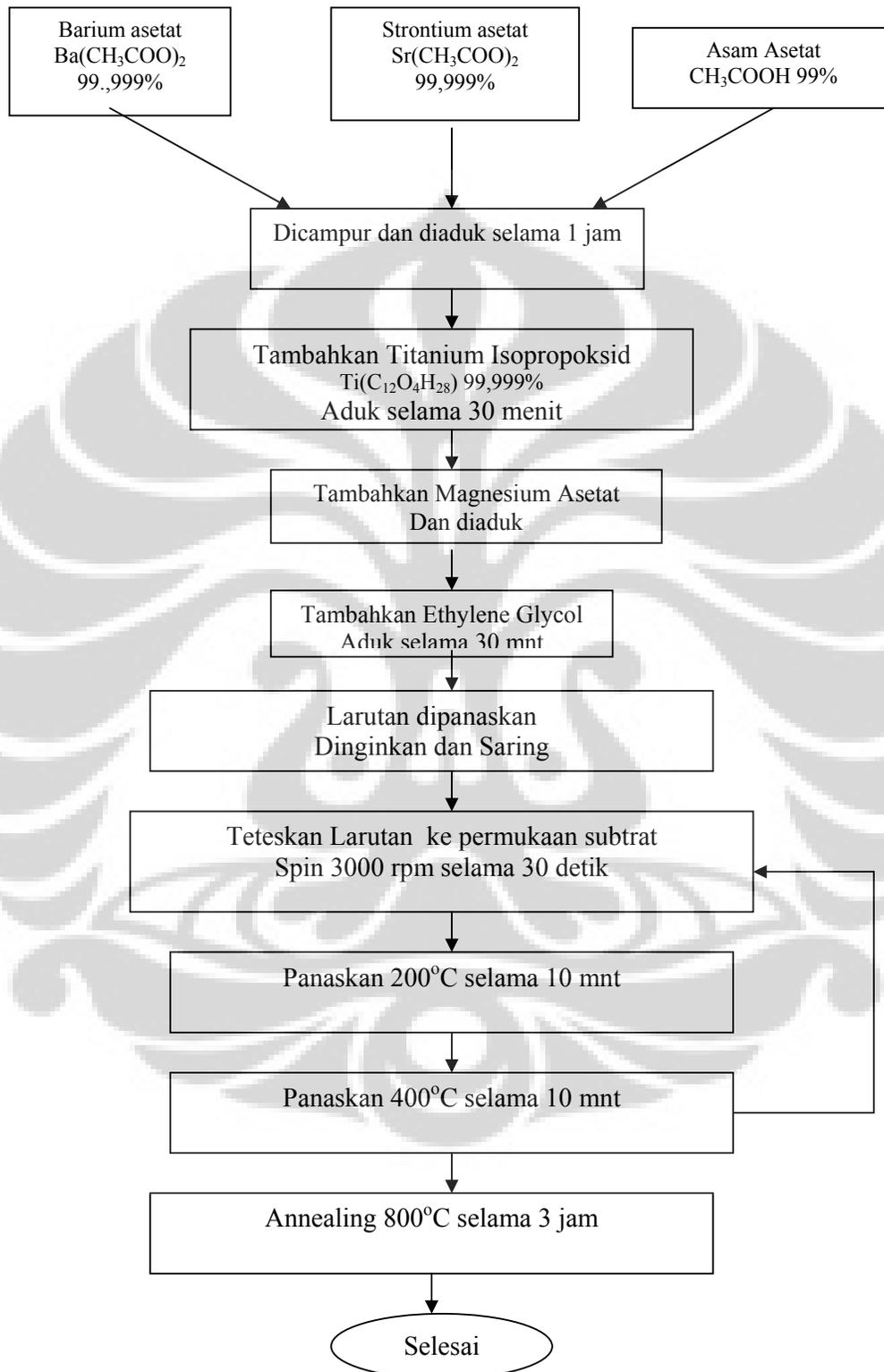
3.3. Langkah-langkah Penelitian

3.3.1. Penumbuhan lapisan tipis dengan *spin coating*

Pertama-tama dilakukan pembuatan larutan 0,5 M sebanyak 2,5 ml dengan mencampurkan bahan-bahan antara lain barium asetat sebanyak 0,01596 gr, strontium asetat sebanyak 0,1286 gr, dan asam asetat sebanyak 1,9675 gr di dalam sebuah erlenmeyer dan diaduk dengan pengaduk magnetik stirrer selama 1 jam. Kemudian ditambahkan bahan titanium isopropoksid sebanyak 0,3553 gr ke dalam campuran dan diaduk selama 30 menit. Juga ditambahkan magnesium asetat sebanyak 0,0026 gr untuk doping Mg 1%, 0,0052 gr untuk doping Mg 2% dan 0,0104 gr untuk doping Mg 4% dan diaduk. Setelah itu ditambahkan etylen glycol sebanyak 0,6938 gr dan diaduk selama 30 menit. Larutan yang telah dibuat kemudian dipanaskan diatas *hot plate*, lalu dilakukan penyaringan. Subtrat yang akan digunakan dipotong dengan ukuran ± 1 cm x 1 cm dan dicuci.

Larutan kemudian diteteskan di atas substrat sebanyak 1 (satu) tetes dan diputar di dalam peralatan *spin coating* dengan kecepatan putaran 3000 rpm selama 30 detik lalu dipanaskan pada 200°C selama 10 menit diteruskan pada 400°C selama 10 menit. Untuk 1 (satu) substrat dibuat 5 (lima) lapis dengan cara yang sama.

Pembentukan senyawa BST dilakukan dengan cara *annealing*, yaitu dengan memanaskan di dalam *furnace* pada 800°C selama 3 jam.



Gambar 3.1. Diagram alir deposisi dengan *spin coating*

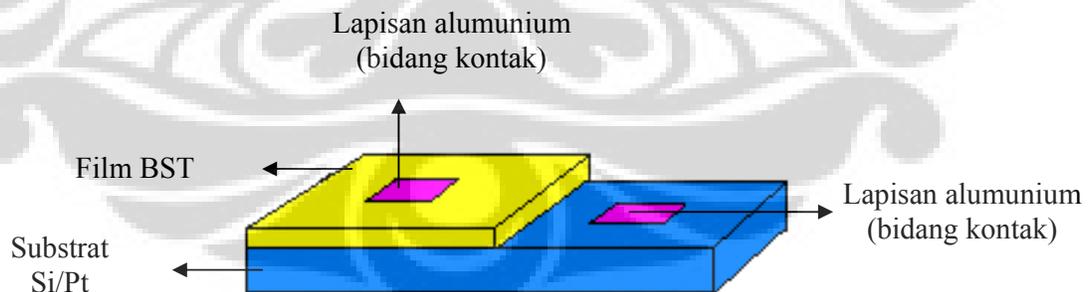
3.3.2. Karakterisasi

3.3.2.1. Karakterisasi Material dengan XRF, XRD, dan SEM

Analisis struktur kristal film BST dan BMST diamati menggunakan XRD merk Shimadzu 6000 dengan spesifikasi eksperimen sebagai berikut: target sumber sinar-X yang digunakan adalah Cu (tembaga) dengan panjang gelombang $1,54056 \text{ \AA}$, generator *voltage* 40 kVolt dan *tube current* 30 mA. Metode yang telah digunakan adalah Bragg-Brentano yang standar sudut awal 20° sampai 80° dan kenaikan setiap $0,02^\circ$ masing-masing 1,25 detik untuk setiap kenaikan sudut. Analisa untuk mengetahui unsur-unsur pada film menggunakan XRF dan analisis morfologi permukaan film menggunakan SEM.

3.3.2.2. Karakterisasi Sifat Ferroelektrik (Polarisasi)

Pengukuran sifat ferroelektrik lapisan BST doping Mg dilakukan menggunakan elektrometer Kethley Type 600 dengan tujuan untuk mendapatkan nilai polarisasi remanen (P_r) dan medan koersif (E_c). Agar bisa terhubung dengan sensor pengukuran maka pada permukaan lapisan BST/BMST dan substrat dimetalized dengan logam aluminium.



Gambar 3.2. Model Sampel Lapisan Tipis substrat .

3.3.2.3. Pengolahan Data

Tahapan pengolahan data yang dilakukan adalah pengolahan data XRD dan interpretasi data XRF dan SEM. Perangkat lunak yang digunakan adalah EXCEL untuk pengolahan data awal dan *data base* ICDD (*International Centre for Diffraction Data*) untuk komparasi hasil XRD serta program EXPGUI–GSAS (*General Structure Analysis System*). Berikut ini adalah langkah-langkah konversi data hasil pengukuran XRD sehingga dapat digunakan dalam proses *refine* pada GSAS.

Langkah awal pengolahan data hasil eksperimen XRD adalah mencari kecocokan/ kemiripan d (hkl) dari hasil eksperimen langsung XRD dengan ICDD PCPDFWIN sebagai *data base*, yaitu dengan mencocokkan 3 puncak tertinggi (3 *strongest-lines*) dari fasa-fasa yang diasumsikan terdapat dalam sampel yang diukur, juga mencari posisi atom-atom dari fasa yang diasumsikan tersebut. Dari ICDD dapat diketahui *space group* dan parameter kisi dari fasa yang diasumsikan dan dengan menambahkan posisi atom-atom dari fasa tersebut maka *refinement* dengan GSAS dapat dilakukan.

BAB IV

HASIL DAN PEMBAHASAN

Dalam bab ini akan dibahas hasil penelitian yang telah dilakukan . Pertama-tama akan dilihat komposisi kandungan lapisan tipis dengan pengolahan data XRF dan dikaji apakah pembuatan lapisan tipis BST dan BST doping Mg (BSMT) berhasil atau tidak, dengan melihat hasil pengolahan data XRD, yaitu struktur kristalnya. Kemudian akan dilihat morfologi permukaan lapisan. Selanjutnya akan dilihat sifat ferroelektriknya terutama medan koersifnya terkait dengan doping Mg.

4.1. Hasil XRF

Dengan menggunakan XRF, elemen yang terdeposit pada substrat dapat terdeteksi. Elemen-elemen tersebut antara lain Ba, Sr, Ti, dan Mg. Jumlah unsur yang terdeposit disajikan dalam persen berat (*Wt%*). Hasil XRF dapat dilihat pada Tabel 4.1 dan 4.2. Dengan demikian maka dapat dibuktikan bahwa elemen-elemen pembentuk BST dan BSMT telah terdeposit pada substrat Si maupun substrat Pt.

Tabel 4.1
Hasil XRF dan Perhitungan Stokiometri BST murni dan BST doping Mg
pada Substrat Si

Sampel		Ba (Wt%)	Sr (Wt%)	Ti (Wt%)	Mg (Wt%)
BST Murni	XRF	54,6865	6,7539	38,5596	0
	Perhitungan	43,7204	26,3029	29,9768	0
BSMT 1% massa	XRF	52,6839	6,5367	38,5078	2,2719
	Perhitungan	43,6217	26,2435	29,9091	0,2257
BSMT 2% massa	XRF	52,1979	6,2730	39,7869	1,7421
	Perhitungan	43,5234	26,1844	29,8417	0,4504
BSMT 4% massa	XRF	53,6061	6,3963	37,5441	2,4535
	Perhitungan	43,3283	26,0670	29,8417	0,8968

Tabel 4.2
 Hasil XRF dan Perhitungan Stokimetri BST murni dan BST doping Mg
 pada Substrat Pt

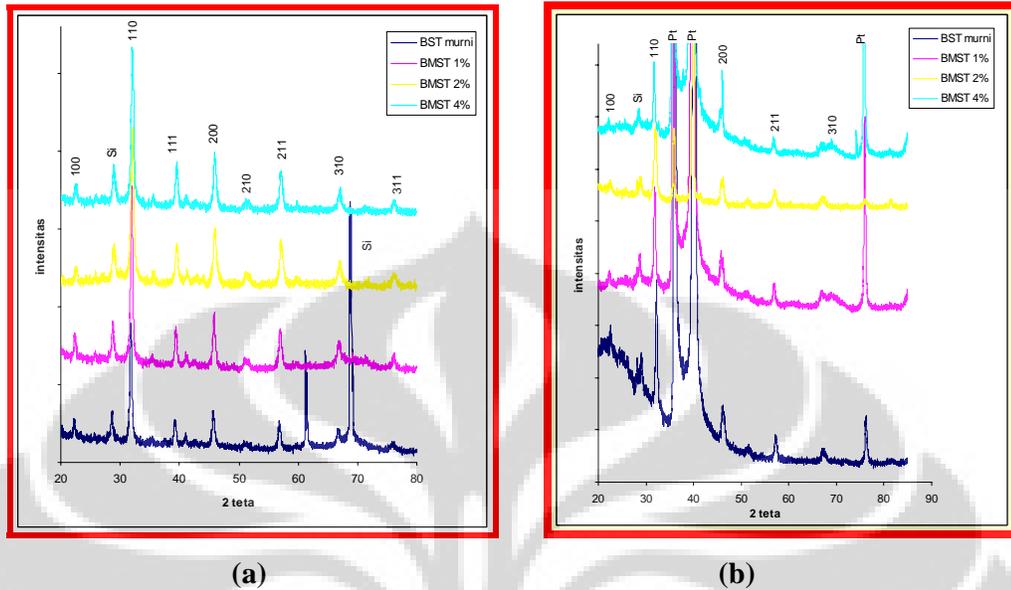
Sampel		Ba (Wt%)	Sr (Wt%)	Ti (Wt%)	Mg (Wt%)
BST Murni	XRF	53,2777	5,8939	40,8284	0
	Perhitungan	43,7204	26,3029	29,9768	0
BSMT 1% massa	XRF	50,1709	6,1811	41,8446	1,8034
	Perhitungan	43,6217	26,2435	29,9091	0,2257
BSMT 2% massa	XRF	50,1146	5,8262	43,1027	0,9565
	Perhitungan	43,5234	26,1844	29,8417	0,4504
BSMT 4% massa	XRF	51,8577	6,1831	40,1869	1,7722
	Perhitungan	43,3283	26,0670	29,8417	0,8968

Bila dibandingkan antara hasil XRF dengan hasil perhitungan stokimetri, maka ada perbedaan komposisi. Hal ini kemungkinan disebabkan keberadaan elemen penyusun substrat dalam jumlah yang dominan, adanya *impurities* serta ketidakakuratan dalam jumlah penambahan komponen pembuatan BST dan Mg asetat, mengingat jumlah larutan yang dibuat relatif sedikit (2,5 ml).

4.2. Hasil XRD

Magnesium digunakan sebagai bahan doping pada $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$. Pendopingan Mg pada BST menggantikan posisi titanium. Hal ini disebabkan jari-jari ion Mg^{2+} sebesar 0,78 Å hampir sama dengan jari-jari ion Ti^{4+} yaitu sebesar 0,68 Å. Mg merupakan *hard dopan* karena muatan Mg (+2) lebih kecil dari muatan titanium yaitu +4.

Hasil karakterisasi dengan alat XRD untuk melihat tingkat kekristalan (struktur kristal) BST dan BST yang didoping Mg pada substrat Si ditampilkan pada Gambar 4.1.a.



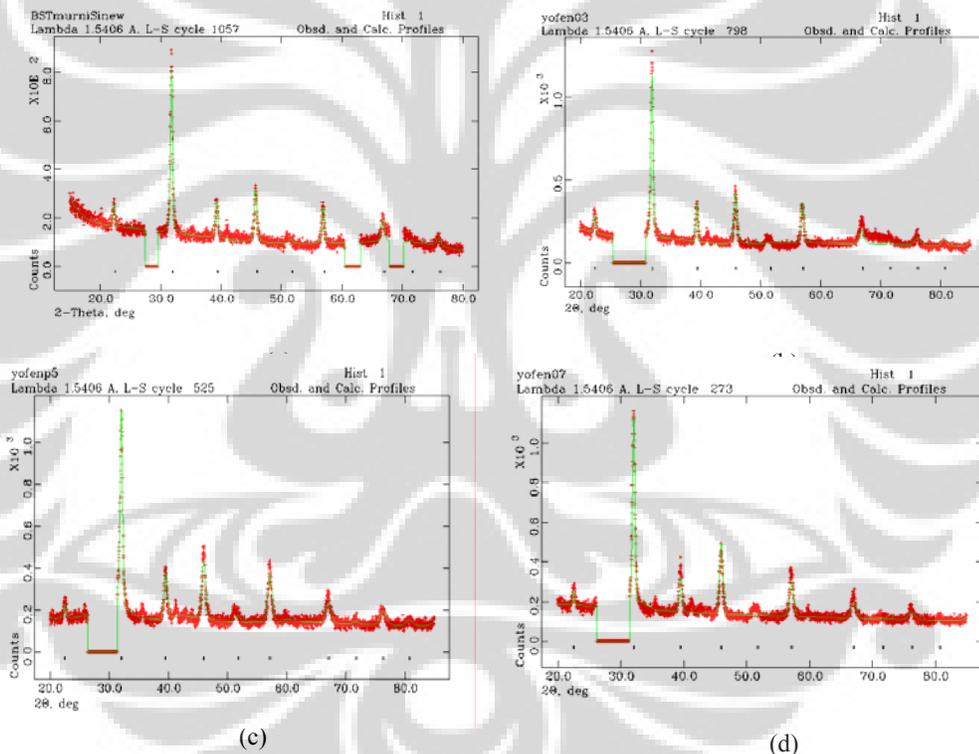
Gambar 4.1. Data Hasil XRD Lapisan BST
 (a) pada Substrat Si, (b) pada substrat Pt

Data hasil karakterisasi ini kemudian dicocokkan dengan database PDF-ICDD#391395 (PDF-ICDD, 1998). Hasil pencocokan menunjukkan bahwa puncak-puncak yang didapatkan dari XRD sesuai dengan puncak-puncak $Ba_{0.5}S_{0.5}TiO_3$ dari data ICDD yang mempunyai sistem kristal kubik dan *space group* $Pm\bar{3}m$. Hal ini menunjukkan bahwa lapisan tipis yang dianalisa merupakan material $Ba_{0.5}S_{0.5}TiO_3$. Penambahan persen massa dopan yang diberikan ternyata meningkatkan nilai intensitas di hampir semua puncak pada bidang tertentu.

Sedangkan hasil karakterisasi XRD penumbuhan BST dan BST yang didoping Mg pada substrat Pt ditampilkan pada Gambar 4.1.b. Akan tetapi tidak seperti pada substrat Si, ada beberapa puncak milik BST yang tidak muncul. Hal ini disebabkan karena intensitas Pt terdeteksi tinggi sekali dan ada sudut puncak BST yang mendekati sudut puncak Pt sehingga tidak terlihat (tertumpuk). Besarnya intensitas puncak-puncak yang muncul pada substrat Pt lebih kecil jika dibandingkan dengan substrat Si. Dari gambar tersebut nampak ada beberapa puncak yang intensitasnya berkurang karena penambahan doping dan ada puncak yang intensitasnya bertambah karena penambahan doping.

Penumbuhan BST dan BST yang didoping Mg pada kedua substrat terdapat perbedaan. Pertumbuhan kristal pada substrat Si lebih baik jika dibandingkan pada substrat Pt. Hal dilihat dari tingginya intensitas yang terjadi pada puncak-puncak yang terbentuk.

Program EXPGUI-GSAS analisa Rietveld digunakan untuk membuktikan apakah benar puncak-puncak yang muncul milik BST dan BSMT. Gambar 4.2 a,b,c dan d adalah hasil penghalusan menggunakan analisis Rietveld. Kurva yang berwarna merah adalah kurva observasi yaitu hasil dari pesawat XRD. Sedangkan kurva hijau adalah kurva kalkulasi.

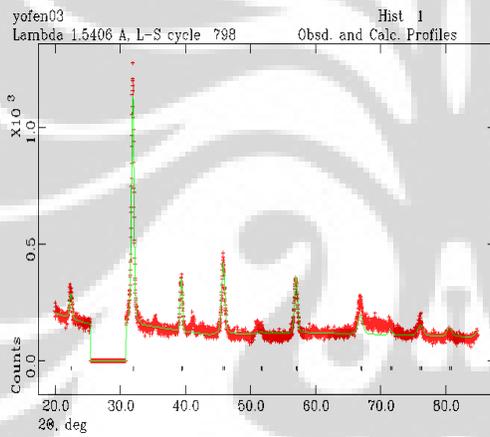


Gambar 4.2.
Hasil analisis Rietveld pada substrat Si
(a) BST (b) BSMT doping 1% (c) BSMT doping 2% (d) BSMT doping 4%

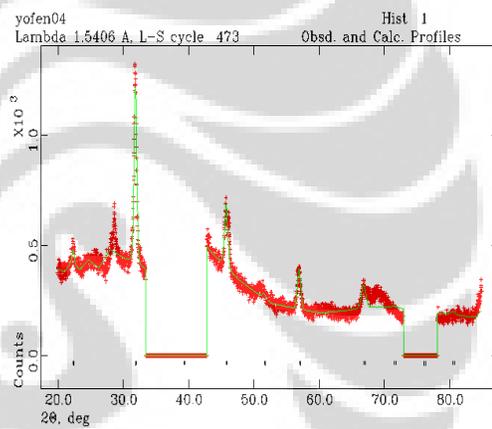
Parameter kisi hasil penghalusan GSAS untuk BST murni dan BST yang didoping Mg seperti tertera pada Tabel 2. Ada indikasi kenaikan parameter kisi akibat adanya penambahan dopan Mg pada BST namun relative kecil yaitu sekitar 0,05% sehingga dapat dikatakan tidak signifikan.

Tabel 4.3. Parameter kisi hasil peng halusan GSAS BST murni dan yang didoping Mg pada substrat Si

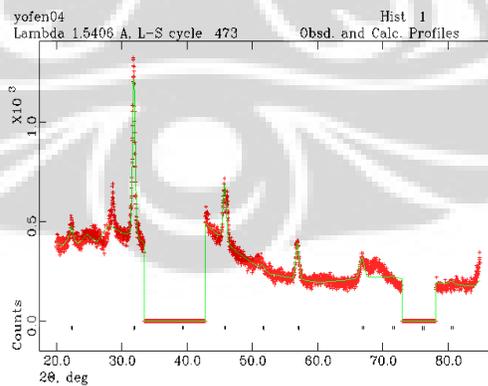
Sampel	Parameter kisi (Å)
BST Murni	3.946
BSMT 1% massa	3.946
BSMT 2% massa	3.948
BSMT 4% massa	3.948



(a)



(b)



(c)

Gambar 4.3. Hasil analisis Rietveld pada substrat Pt
(a) BST murni (b) BSMT doping 1% (c) BSMT doping 2%

Hasil penghalusan menggunakan *software* GSAS untuk lapisan pada substrat Pt seperti terlihat pada Gambar 4.3. Pada gambar tersebut terlihat ada beberapa sudut yang dipotong. Hal ini dimaksudkan untuk menampilkan puncak-puncak milik BST. Jika ini tidak dilakukan maka *refinement* menggunakan *software* GSAS tidak bisa dilakukan karena intensitas substrat Pt yang terlalu tinggi. BST yang didoping Mg 4% massa tidak bisa dilakukan.

Tabel 4.4. Parameter kisi hasil penghalusan GSAS BST murni dan yang didoping Mg pada substrat Pt

Sampel	Parameter kisi (Å)
BST Murni	3.954
BSMT 1% massa	3.946
BSMT 2% massa	3.949

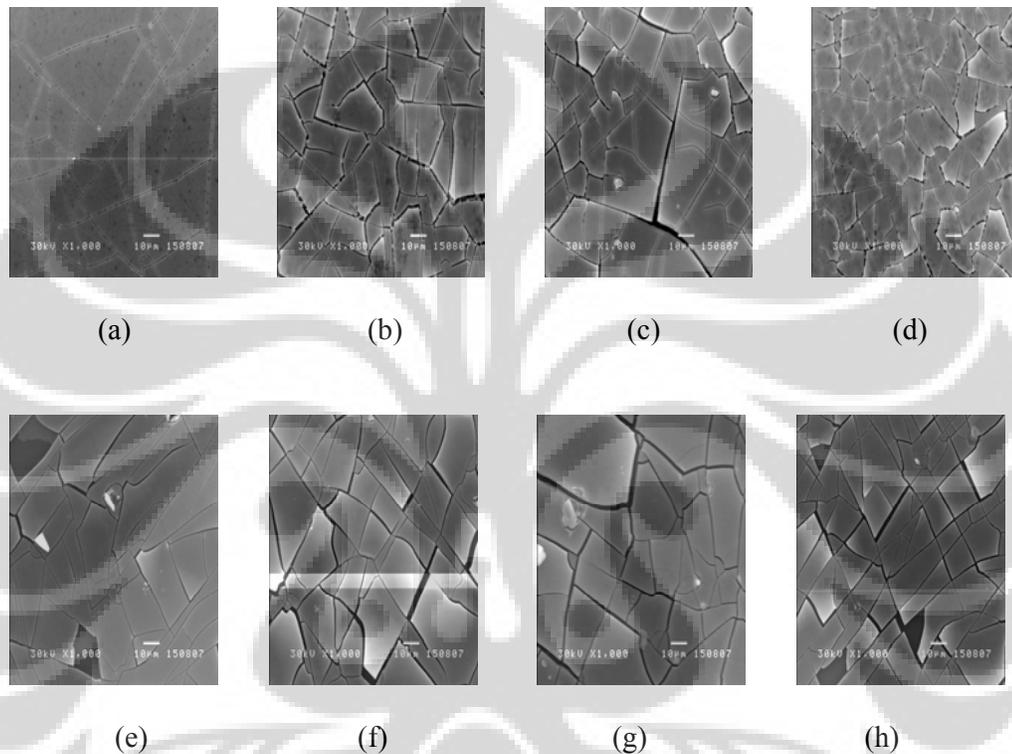
Parameter kisi hasil penghalusan GSAS untuk BST murni dan BST yang didoping Mg pada substrat Pt seperti tertera pada Tabel 4.4. Pada substrat Pt tidak terjadi konsistensi kenaikan atau penurunan parameter kisi akibat doping Mg.

4.3. Hasil SEM

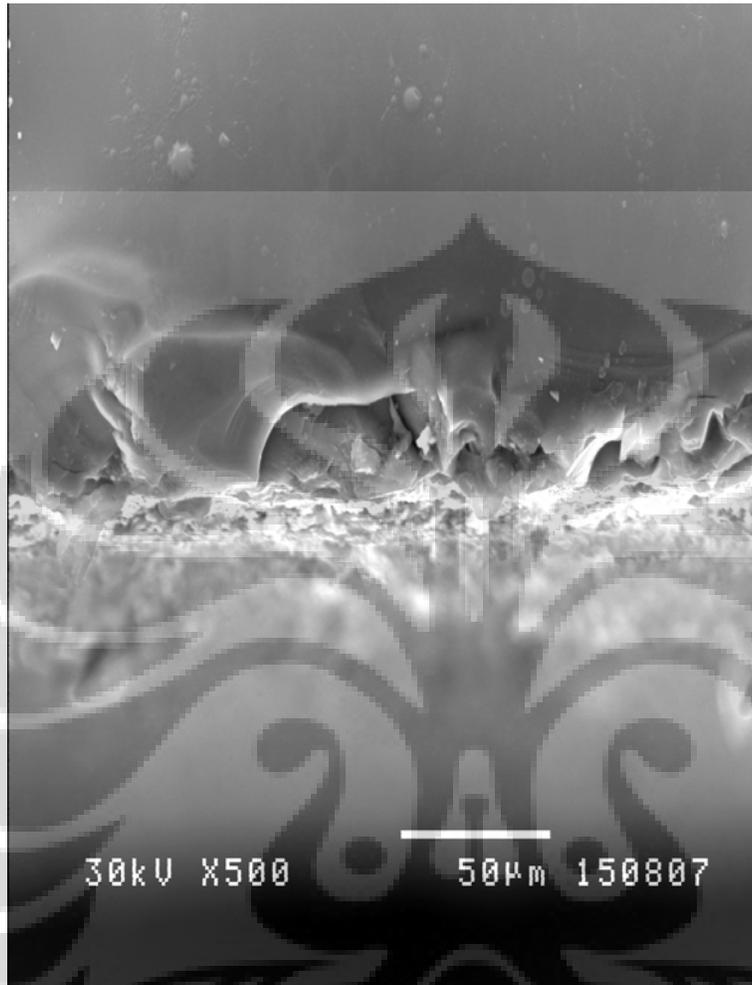
Hasil foto SEM perbesaran 1000 kali pada lapisan tipis BST pada Gambar 4.6, menunjukkan adanya *cracking*, baik pada substrat Si maupun substrat Pt. Akan tetapi hasil penumbuhan di atas substrat Pt masih lebih bagus jika dibandingkan dengan substrat Si. Pada BST murni dengan perbesaran 1000x, *crack* relative sedikit dan permukaan nampak agak rata. Akan tetapi, dengan diberikannya doping Mg mengakibatkan permukaan menjadi *cracking*. Makin banyak doping yang diberikan maka makin banyak luasan *cracking* yang sempit. Hal ini kemungkinan disebabkan karena Mg yang ditambahkan tidak semuanya masuk ke dalam struktur kristal BST menggantikan Ti sehingga lapisan tipis yang terbentuk tidak homogen. *Cracking* ini

terjadi pada saat *annealing* yang disebabkan karena perbedaan *thermal expansion coefficient* antara lapisan BST dan substrat [2].

Dari hasil scanning penampang lapisan BST pada Gambar 4.7, dapat diketahui tebal lapisan BST yang dibuat adalah 50 μm .



Gambar 4.6. Hasil SEM Perbesaran 1000 kali
a). BST murni pada substrat Pt, b). BSMT 1% pada substrat Pt, c). BSMT 2% pada substrat Pt, d). BSMT 4% pada substrat Pt, e). BST murni pada substrat Si, f). BSMT 1% pada substrat Si, g). BSMT 2% pada substrat Si, h). BSMT 4% pada substrat Si

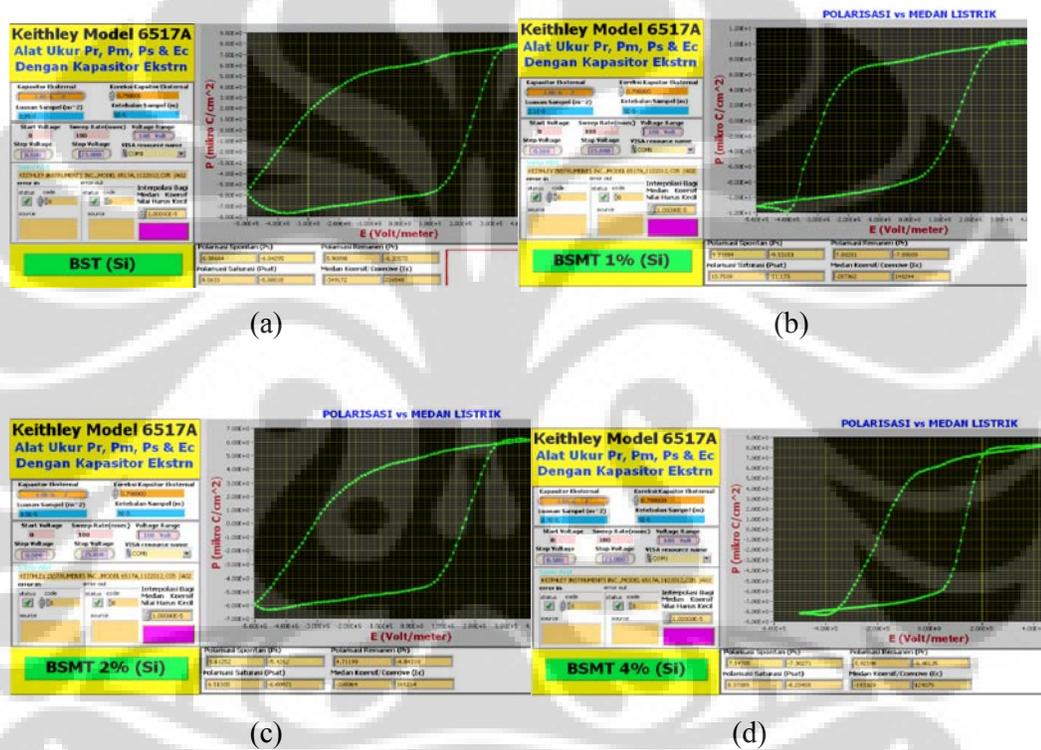


Gambar 4.7. Hasil SEM Perbesaran 1000 kali Penampang Substrat dan Lapisan BST

4.4. Hasil Uji Sifat Ferroelektrik

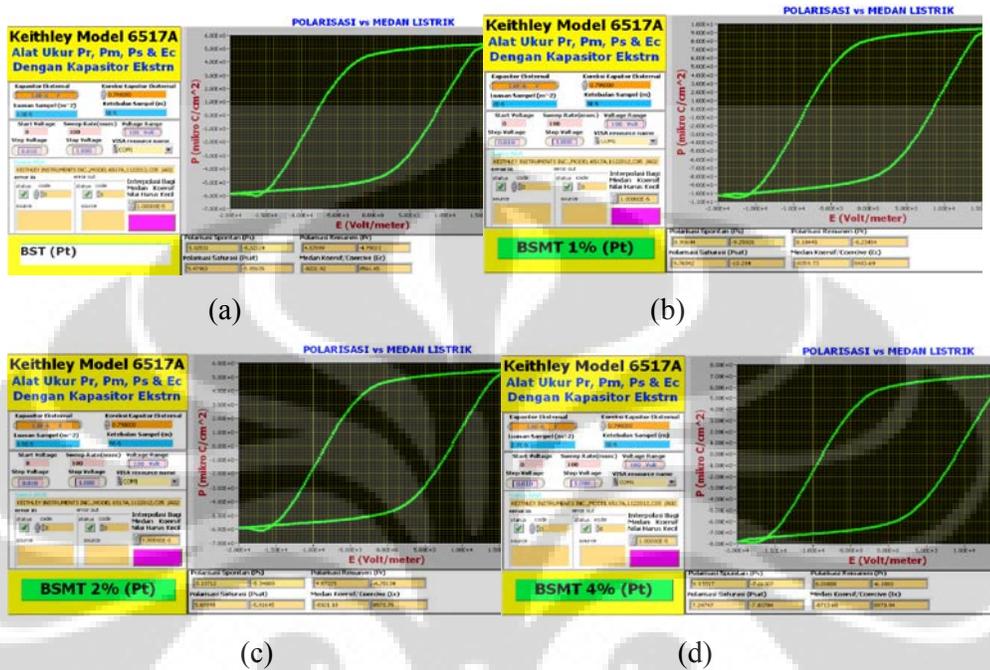
Untuk mengetahui adanya sifat ferroelektrik pada lapisan tipis BST dan BSMT yang dibuat, maka dilakukan pengukuran polarisasi dengan variabel tegangan. Alat ukur yang digunakan adalah elektrometer Keithley Model 6517 yang telah dimodifikasi sehingga dapat memberikan input dan output melalui komputer. Namun alat ini belum dikalibrasi sehingga hanya dapat digunakan untuk melihat perbandingan (*trend*) satu material dengan material yang lain serta untuk membuat kurva histeresis.

Plot data hasil pengukuran polarisasi BST dan BSMT pada substrat Si dan Pt disajikan pada Gambar 4.8 dan Gambar 4.9. Semua sampel menghasilkan kurva histerisis. Hal ini berarti bahwa semua sampel yang dibuat adalah material ferroelektrik, karena suatu material dikatakan bersifat ferroelektrik jika mampu menghasilkan kurva histerisis. Plot hasil pengukuran ini memberikan nilai polarisasi remanen (P_r) dan medan koersif (E_c).



Gambar 4.8. Kurva Histeresis (Substrat Si)

(a) BST, (b) BSMT 1%, (c) BSMT 2%, (d) BSMT 4%



Gambar 4.9. Kurva Histeresis (Substrat Pt)
 (a) BST, (b) BMST 1%, (c) BMST 2%, (d) BMST 4%

Pola atau kurva histeresis yang didapatkan dari kedua substrat berbeda. Pada substrat Pt, medan koersif (yaitu medan yang digunakan untuk mengembalikan nilai polarisasi menjadi nol) lebih kecil jika dibandingkan pada substrat Si. Demikian halnya dengan polarisasi remanen, pada substrat Pt nilainya lebih besar jika dibandingkan dengan substrat Si. Hal ini disebabkan karena Si adalah bahan semikonduktor yang mempunyai energi gap sehingga memerlukan tegangan luar yang lebih besar. Sedangkan Pt adalah metal yang merupakan konduktor (tidak mempunyai energi gap) sehingga memerlukan tegangan luar yang relatif rendah. Formasi lapisan dengan substrat Pt disebut metal-insulator-metal (MIM), sedangkan formasi lapisan dengan substrat Si disebut metal-insulator-semikonduktor (MIS).

Keberadaan Mg pada struktur kristal BST mempengaruhi nilai medan koersif. Pada substrat Pt, terjadi kenaikan medan koersif seiring dengan kenaikan doping Mg.

Hal ini sesuai dengan teori yang menyebutkan Mg sebagai ion *hard dopan* [6]. Namun pada substrat Si, terjadi sebaliknya yaitu penurunan medan koersif seiring dengan kenaikan doping Mg.

Nilai polarisasi remanen (Pr) rata-rata berkisar antara 4,5-8,5 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$. Sebagai perbandingan, dari hasil perhitungan material Barium Titanat (BaTiO_3) dengan $a = 0,398 \text{ nm}$, $c = 0,403 \text{ nm}$ dan $r = 0,006 \text{ nm}$ didapatkan $P_s = 9,023 \mu\text{C}/\text{cm}^2$. Pengaruh doping Mg terhadap polarisasi remanen (Pr), baik pada substrat Si maupun Pt, tidak konsisten.

Tabel 4.5. Hasil Pengukuran Polarisasi remanen (Pr) dan Medan Koersif (Ec)

No.	Material	Pr ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	-Pr ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	rata-rata ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	-Ec (Volt/m)	Ec (Volt/m)	rata-rata (Volt/m)
	Substrat Pt :						
1	BST murni (Pt)	4,57E+00	4,79E+00	4,68E+00	8,20E+03	8,56E+03	8,38E+03
2	BST 1% (Pt)	8,10E+00	8,23E+00	8,17E+00	8,36E+03	8,48E+03	8,42E+03
3	BST 2% (Pt)	4,67E+00	4,78E+00	4,73E+00	8,32E+03	8,57E+03	8,45E+03
4	BST 4% (Pt)	6,02E+00	6,19E+00	6,10E+00	8,71E+03	8,97E+03	8,84E+03
	Substrat Si :						
5	BST murni (Si)	5,91E+00	6,21E+00	6,06E+00	3,49E+05	2,27E+05	2,88E+05
6	BST 1% (Si)	7,88E+00	7,89E+00	7,89E+00	2,87E+05	1,48E+05	2,18E+05
7	BST 2% (Si)	4,71E+00	4,84E+00	4,78E+00	2,68E+05	1,66E+05	2,17E+05
8	BST 4% (Si)	5,92E+00	6,40E+00	6,16E+00	1,83E+05	1,29E+05	1,56E+05

BAB V

KESIMPULAN DAN SARAN

5.1. Kesimpulan

Dari hasil dan diskusi serta tujuan pada penelitian ini dapat diambil kesimpulan sebagai berikut :

1. Pada penelitian ini telah berhasil dibuat lapisan $Ba_{0.5}Sr_{0.5}TiO_3$ dan barium stronsium magnesium titanat (BSMT) dengan metode *chemical solution deposition* (CSD) yang disiapkan dengan cara *spin coating*. Hal ini dibuktikan dengan karakterisasi menggunakan alat XRF dan XRD.
2. Morfologi hasil foto SEM menunjukkan BST pada substrat Pt lebih rata (sedikit *crack*) jika dibandingkan pada substrat Si. Doping Mg pada BST dapat meningkatkan terjadinya *cracking* pada permukaan.
3. Hasil pengukuran polarisasi pada BST dan BSMT yang dibuat membentuk kurva histeresis. Hal ini menunjukkan bahwa BST dan BSMT yang dibuat mempunyai sifat ferroelektrik.
4. Doping Mg pada BST cenderung dapat meningkatkan nilai medan koersif pada substrat Pt, sedangkan pada substrat Si terjadi sebaliknya.

5.2. Saran

1. Agar komposisi komponen BST dan doping Mg lebih akurat maka jumlah larutan yang dibuat lebih banyak, yaitu minimal 25 ml.
2. Agar mendapatkan lapisan yang tidak *crack* maka perlu dilakukan variasi penambahan glycol dan kecepatan kenaikan/penurunan temperatur pada saat sintering.

DAFTAR ACUAN

1. K. Uchino, *Ferroelectric Devices*, Macel Dekker, New York, 2000.
2. U. Adem, *Preparation of $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ thin film by CSD and their electrical characterization*, The Middle East Technical University, 2003.
3. <http://www.azom.com/detail>
4. <http://www.Toplent.com/SrTiO3.html>
5. N.V. Giridharan, et. All, *Structural, Morphological and Electrical Studies on Barium Strontium Titanate Thin Films Prepared by Sol-Gel Technique*, Crystal Research Technhnology Vol 36 (1) Page 65-72, 2001.
6. Yuhuan Xu, *Ferroelectric Materials and Their Application*, University of Calofornia Los Angeles, CA, USA, 1991.
7. Cullity, *Element of X-ray Diffraction*, Third Edition, Massachusetts : Addison Wesley Publishing Company Inc.,London, Page: 385-402, 2001.
8. M. Hikam, *Analisis Kualitatif dan Kuantitatif dengan Fluoresensi Sinar-X (XRF)*, In-House Training Sucofindo, Jakarta, 1993.
9. Thornton, P.R., *Scanning Electron Microscopy*, McGraw-Hill International Book Cmpany, New York, 1967.
10. Lawrence H. Van Vlack, *Elements of Material Science and EGINEERING*, 5th edition.