



MILIK PERPUSTAKAAN
FMIPA - UI

UNIVERSITAS INDONESIA

**PENUMBUHAN LAPISAN TIPIS
BARIUM STRONTIUM TITANAT ($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$)
DENGAN BERBAGAI DOPING UNTUK APLIKASI MEMORI**

DISERTASI

Diajukan sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar Doktor

**Yofentina Iriani
0606028003**

PERPUSTAKAAN
FAKULTAS MIPA-UI
TIDAK DIPINJAMKAN
HANYA BACA DITENPA

**FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
PROGRAM STUDI ILMU MATERIAL
Jakarta
Desember 2009**

HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS

MILIK PERPUSTAKAAN

Disertasi ini adalah hasil karya saya sendiri,
dan semua sumber baik yang dikutip maupun dirujuk
telah saya nyatakan dengan benar.

Nama : Yofentina Iriani

NPM : 0606028003

Tanda Tangan : 

Tanggal : Desember 2009

HALAMAN PENGESAHAN

Disertasi ini diajukan oleh :

Nama : Yofentina Iriani
NPM : 0606028003
Program Studi : Ilmu Material
Judul Disertasi : Penumbuhan Lapisan Tipis Barium Strontium Titanat
($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$) dengan Berbagai Doping untuk Aplikasi Memori

Telah berhasil dipertahankan di hadapan Dewan Penguji dan diterima sebagai bagian persyaratan yang diperlukan untuk memperoleh gelar Doktor pada Program Studi Ilmu Material, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Indonesia.

DEWAN PENGUJI

Promotor : Dr. Muhammad Hikam (.....)

Kopromotor : Dr. Bambang Soegijono (.....)

Ketua Sidang : Dr. Adi Basukriadi, M.Sc (.....)

Tim Penguji : Dr. Suhardjo Poertadji (Anggota) (.....)

: Dr. Muhammad Aziz Majidi (Anggota) (.....)

: Dr. Donanta Dhaneswara (Anggota) (.....)

: Dr. Irzaman (Anggota) (.....)

Ditetapkan di : Jakarta

Tanggal : Desember 2009

UCAPAN TERIMA KASIH

Puji syukur penulis panjatkan pada Tuhan atas bimbingan, berkah, rahmat, dan penyertaan-Nya sehingga penulis dapat menyelesaikan penelitian dan penulisan disertasi dengan judul **“Penumbuhan Lapisan Tipis Barium Strontium Titanat ($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$) dengan Berbagai Doping untuk Aplikasi Memori”**.

Dengan kerendahan hati penulis mengucapkan terima kasih kepada Dr. Muhammad Hikam dan Dr. Bambang Soegijono selaku Promotor dan Ko-Promotor yang telah banyak meluangkan waktu untuk memberikan banyak ilmu, bimbingan, saran, ide-ide serta dukungan moril hingga selesainya program Doktor ini serta terwujudnya tulisan disertasi ini.

Pada kesempatan ini penulis mengucapkan terima kasih yang tidak terhingga kepada ibunda Maria E. Liekani dan kakak-kakakku yang selalu medoakan penulis; serta RD. FX. Endra Wijayanta yang selalu mendoakan, memberikan dorongan moril dan spiritual serta motivasi kepada penulis.

Pada kesempatan ini penulis juga menyampaikan ucapan terima kasih secara khusus kepada:

1. Dirjen Dikti yang telah memberikan Beasiswa Program Pasca Sarjana (BPPS) dan dana penelitian melalui DP2M dalam kegiatan Hibah Penelitian Pascasarjana 2005-2008, serta Kementerian Negara Riset dan Teknologi dalam kegiatan Nusantara Program Indonesia – Prancis 2009 (International Joint Research Program).
2. Dr. Irzaman, sebagai anggota penguji dan telah banyak memberikan motivasi, saran, masukan dan banyak waktu untuk berdiskusi yang sangat berharga untuk menyelesaikan program Doktor ini.
3. Dr. Suhardjo Poertadji, sebagai anggota penguji dan telah banyak memberikan dorongan dan masukan yang sangat berharga untuk menyelesaikan program Doktor ini.
4. Dr. Muhammad Aziz Majidi, sebagai anggota penguji dan telah banyak memberikan masukan dan waktu untuk berdiskusi yang sangat berharga untuk menyelesaikan program Doktor ini.

5. Dr. Donanta Dhaneswara, sebagai anggota penguji dan telah banyak memberikan motivasi dan masukan yang sangat berharga untuk menyelesaikan program Doktor ini.
6. Pimpinan Universitas Sebelas Maret Surakarta (UNS), Pimpinan Fakultas MIPA, dan Dr. Harjana selaku Ketua Jurusan Fisika FMIPA, yang telah memberi izin untuk mengikuti studi di Program Doktor Ilmu Material PPs FMIPA UI.
7. Prof. Didier Fasquelle yang telah memberikan banyak masukan dan dorongan untuk menyelesaikan tulisan disertasi ini, serta memberikan kesempatan pada penulis untuk melakukan penelitian di LEMCEL (Laboratoire d'Etudes des Materiaux et Composants pour l'Electronique) Universite du Littoral Cote d'Opale Calais, France.
8. Dr. Azwar Manaf, staf dosen Material science yang telah memberikan masukan dan dorongan kepada penulis untuk menyelesaikan program Doktor ini.
9. Viska Inda Variani, Fira Toana, Yulistiati, Maria Wijaya, Yanetri Asi yang selalu memotivasi dan memberikan dorongan kepada penulis untuk menyelesaikan program Doktor ini.
10. Teman-teman sekerja di Jurusan Fisika FMIPA UNS, khususnya Agus Supriyanto, Fahu Nurosyid, Budi Purnama dll, atas bantuan dan diskusi serta dorongan kepada penulis untuk menyelesaikan program Doktor ini.
11. Teman-teman seperjuangan di Material Science: Yani, Vera Tety, Musni, Yusmaniar, Tika, Elda, Dini, Bapak dan Ibu Joenadi Sholeh, Erfan, Priyono, Aritonang, Supiyanto, Zulkarnaen, Basso dll, atas diskusi dan kerjasamanya selama penelitian.
12. BST/PZT group: Anief, P'Isom, P'Nyo, Andrie, Teguh, Teddy, Titis, Heri, Aziz, Irwanto, Gema, Bambang; atas kerjasamanya dan telah banyak membantu penulis dalam menyelesaikan penelitian program Doktor ini.
13. Ibu Siti, ibu Lilik, m'Eko, P'Suroto, P'Samidi, m'Parman yang telah memberikan bantuan di laboratorium dan sekretariat Program Studi Ilmu Material FMIPA UI.

Akhir kata, penulis berharap semoga Tuhan berkenan membalas segala kebaikan semua pihak yang telah membantu. Semoga tulisan ini dapat bermanfaat bagi kemajuan ilmu pengetahuan khususnya dibidang Ilmu Material.

Depok, Desember 2009

Penulis



HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI TUGAS AKHIR UNTUK KEPENTINGAN AKADEMIS

Sebagai sivitas akademik Universitas Indonesia, saya yang bertanda tangan di bawah ini:

Nama : Yofentina Iriani
NPM : 0606028003
Program Studi : Ilmu Material
Departemen : Fisika
Fakultas : Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Jenis karya : Disertasi

demi pengembangan ilmu pengetahuan, menyetujui untuk memberikan kepada Universitas Indonesia Hak Bebas Royalti Noneksklusif (*Non-exclusive Royalty-Free Right*) atas karya ilmiah saya yang berjudul :

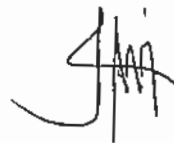
Penumbuhan Lapisan Tipis Barium Strontium Titanat ($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$) dengan Berbagai Doping untuk Aplikasi Memori

beserta perangkat yang ada (jika diperlukan). Dengan Hak Bebas Royalti Noneksklusif ini Universitas Indonesia berhak menyimpan, mengalihmedia/formatkan, mengelola dalam bentuk pangkalan data (*database*), merawat, dan memublikasikan tugas akhir saya selama tetap mencantumkan nama saya sebagai penulis/pencipta dan sebagai pemilik Hak Cipta.

Demikian pernyataan ini saya buat dengan sebenarnya.

Dibuat di : Jakarta
Pada tanggal : Desember 2009

Yang menyatakan



(Yofentina Iriani)

ABSTRAK

MILIK PERPUSTAKAAN
FMIPA - UI

Nama : Yofentina Iriani
Program Studi : Ilmu Material
Judul : Penumbuhan Lapisan Tipis Barium Strontium Titanat
($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$) dengan Berbagai Doping untuk Aplikasi
Memori

Penumbuhan lapisan tipis Barium Strontium Titanat ($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$) dengan berbagai doping telah berhasil dilakukan di atas substrat Pt/Si menggunakan metode *Chemical Solution Deposition* yang disiapkan dengan *spin coating*. Ada tiga tahap penting dalam pembuatan lapisan tipis dengan metode ini yaitu pembuatan larutan, proses *spin coating*, dan proses *annealing*. Optimalisasi parameter-parameter yang terkait dengan proses pembuatan lapisan tipis telah dilakukan yang meliputi jenis substrat, jumlah lapisan, kecepatan dan waktu putar pada proses *spin coating*, suhu dan waktu *annealing*, *heating rate*.

Optimalisasi parameter penumbuhan lapisan tipis $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ di atas substrat yang disiapkan dengan *spin coater* adalah kecepatan putar saat proses *spin coating*, 3000 rpm selama 30 detik dengan suhu *annealing* $800^{\circ}C$ selama 3 jam dengan *heating rate* $2^{\circ}C/menit$. Pada variasi berbagai ion dopan yang diberikan pada BST didapatkan lanthanum merupakan ion dopan yang sangat baik untuk meningkatkan sifat ferroelektrik untuk aplikasi memori karena dengan pemberian 1% mol dopan lanthanum bisa menaikkan polarisasi remanen sekitar 37% dan menurunkan medan koersif sekitar 0,8%.

Kata Kunci:

BST, ion dopan, *spin coating*, polarisasi dan medan koersif

ABSTRACT

MILIK PERPUSTAKAAN
FMIPA - UI

Name : Yofentina Iriani
Study Program : Ilmu Material
Title : Deposition of Barium Strontium Titanate ($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$)
Thin Films with Variation Doping for Memory Application

Barium Strontium Titanate thin films ($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$) with variation ion dopant have been developed on Pt/Si substrates by using Chemical Solution Deposition method followed by spin coating. There are three steps for deposition of thin films: solvent preparation, spin coating process, and annealing process. Optimisation of the parameters related to the deposition of thin films process have been done by varying the substrates, quantity of layers, angular velocity and time of spin coating process, temperature and time of annealing, and the heating rate.

The optimum parameters of $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ thin film deposition on substrate Pt/Si was found at 3000 rpm angular velocity of spin coating process for 30 second at annealing temperature $800^{\circ}C$ for 3 hours with heating rate $2^{\circ}C$ /menit. On varying the ion dopant given on BST, lanthanum was found to be the best ion dopant to increase ferroelectric properties for memory application, here 1% mol dopant lanthanum can increase remanen polarization approximately 37% and reduce coersif field approximately 0,8%.

Key words:

BST, ion dopant, *spin coating*, polarization, and coersif field

DAFTAR ISI

MILIK PERPUSTAKAAN
FMIPA - UI

HALAMAN JUDUL	i
HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS	ii
LEMBAR PENGESAHAN	iii
UCAPAN TERIMA KASIH	iv
LEMBAR PERSETUJUAN PUBLIKASI KARYA ILMIAH	vii
ABSTRAK	viii
DAFTAR ISI	x
DAFTAR GAMBAR	xii
DAFTAR TABEL	xv
DAFTAR LAMPIRAN	xvii
1. PENDAHULUAN	1
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Tujuan Penelitian	4
1.3 Perumusan Masalah	4
1.4 Hipotesa	5
2. TINJAUAN PUSTAKA	6
2.1 Polarisasi dan Dielektrik	6
2.2 Fenomena Ferroelektrik	9
2.3 Barium Strontium Titanat	14
2.4 Cacat Kristal	17
2.4.1 Cacat stoikiometri	19
2.4.1.1 Cacat Schottky (<i>Schottky defect</i>)	19
2.4.1.2 Cacat Frankel (<i>Frankel defect</i>)	20
2.4.2 Cacat non stoikiometri	21
2.4.2.1 Cacat pusat F atau cacat warna	22
2.4.2.2 Cacat akibat adanya pengotor	23
2.5 Pendopongan Bahan Ferroelektrik	23
2.6 Metode Penumbuhan Lapisan Tipis BST	27
2.7 Metode <i>Chemical Solution Deposition</i>	28
2.7.1 Proses kimia	29
2.7.2 <i>Spin coating</i>	29
3. METODE PENELITIAN	32
3.1 Alat dan Bahan Penelitian	32
3.2 Langkah-Langkah Penelitian	33
3.2.1 Pembuatan larutan	36
3.2.2 Pembuatan lapisan tipis dengan metode <i>spin coating</i>	36
3.3 Karakterisasi	36
3.3.1 <i>X-Ray Fluoresence (XRF)</i>	36
3.3.2 Difraksi Sinar-X (<i>XRD</i>)	37
3.3.3 <i>Scanning Electron Microscopy (SEM)</i>	39
3.3.4 FTIR (<i>Fourier Transform Infra Red</i>)	39
3.3.5 AFM (<i>Atomic Force Microscope</i>)	40

3.3.6 Uji Kelistrikan	41
4. PEMBAHASAN	42
4.1 Variasi Pelarut	42
4.2 Variasi Substrat	43
4.3 Variasi Jumlah Lapisan	45
4.3.1 Analisa komposisi	45
4.3.2 Analisa struktur kristal	47
4.4 Variasi Kecepatan Putar	50
4.5 Variasi Perlakuan <i>Annealing</i>	52
4.5.1 Variasi suhu <i>annealing</i>	52
4.5.2 Variasi waktu tahan	53
4.5.3 Variasi step penahanan	54
4.5.4 Variasi <i>Heating Rate</i>	55
4.6 Variasi Ion Dopan	62
4.6.1 Ion <i>hard</i> dopan	63
4.6.1.1 BST didoping magnesium ($Ba_xSr_{1-x}Mg_yTi_{1-y}O_3$)	63
4.6.1.2 BST didoping aluminium ($Ba_xSr_{1-x}Al_yTi_{1-y}O_3$)	70
4.6.1.3 BST didoping tembaga ($Ba_{x-y/2}Cu_ySr_{1-x-y/2}TiO_3$)	76
4.6.1.4 BST didoping natrium ($Ba_{x-y/2}Na_ySr_{1-x-y/2}TiO_3$)	82
4.6.2 Ion <i>soft</i> dopan	87
4.6.2.1 BST didoping Indium ($Ba_{x-y/2}In_ySr_{1-x-y/2}TiO_3$)	87
4.6.2.2 BST didoping Lantanum ($Ba_{x-y/2}La_ySr_{1-x-y/2}TiO_3$)	93
5. KESIMPULAN DAN SARAN	101
5.1 Kesimpulan	101
5.2 Saran	102
DAFTAR REFERENSI	
LAMPIRAN	

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1	Kapasitor plat sejajar	6
Gambar 2.2	Klasifikasi kristal ferroelektrik	9
Gambar 2.3	Ilustrasi fenomena polarisasi dalam material	10
Gambar 2.4	Kurva histerisis	11
Gambar 2.5	Pengaruh suhu terhadap sifat ferroelektrik	13
Gambar 2.6	Struktur BaTiO ₃	14
Gambar 2.7	Unit sel tipe perovskite kubik ABO ₃ dari Ba _x Sr _{1-x} TiO ₃	15
Gambar 2.8	Perubahan parameter kisi dan daerah fase ferroelektrik dan paraelektrik dari BST	16
Gambar 2.9	Perubahan energi bebas akibat cacat kristal	18
Gambar 2.10	Cacat Schottky pada kristal CaCl	20
Gambar 2.11	Cacat Frankel pada kristal AgCl	21
Gambar 2.12	Cacat pusat F pada kristal NaCl	22
Gambar 2.13	Kristal AgCl dengan pengotor CdCl ₂	23
Gambar 2.14	Mekanisme “kerusakan” kristal sistem kristal BST	25
Gambar 2.15	Prinsip <i>spin coating</i>	30
Gambar 3.1	Bagan penelitian secara umum	33
Gambar 3.2	Bagan optimalisasi penumbuhan BST dengan metode <i>spin coating</i>	34
Gambar 3.3	Diagram alir penumbuhan BST dengan metode <i>spin Coating</i>	35
Gambar 3.4	Bagan XRF (X-ray fluorescence)	37
Gambar 3.5	Hasil interaksi berkas elektron dengan materi	39
Gambar 3.6	Blok Diagram prinsip kerja AFM	40
Gambar 3.7	Blok diagram pengukuran kurva histerisis	41
Gambar 3.8	Struktur uji ferrolektrik pada substrat	41
Gambar 4.1	Foto SEM lapisan BST dengan pelarut yang berbeda (a) metoksi etanol (b) asam asetat	43
Gambar 4.2	Pola difraksi variasi substrat untuk Ba _{0,5} Sr _{0,5} TiO ₃	43
Gambar 4.3	Penghalusan pola difraksi variasi substrat dengan GSAS	44
Gambar 4.4	FotonSEM untuk variasi substrat	44
Gambar 4.5	Kurva histerisis lapisan tipis BST untuk variasi substrat (a) Pt/Si (b) Si	45
Gambar 4.6	Pola difraksi lapisan BST untuk variasi jumlah lapisan	47
Gambar 4.7	Foto SEM lapisan tipis BST untuk variasi jumlah lapisan (a) 1 lapis (b) 3 lapis	48
Gambar 4.8	Foto SEM tampang lintang dari lapisan tipis BST di atas substrat Pt/Si	48
Gambar 4.9	Kurva histerisis lapisan tipis BST untuk variasi jumlah lapisan (a) 1 lapis (b) 3 lapis	49
Gambar 4.10	Foto SEM lapisan tipis BST untuk variasi kecepatan putar (a) 3000 rpm (b) 4000 rpm	51

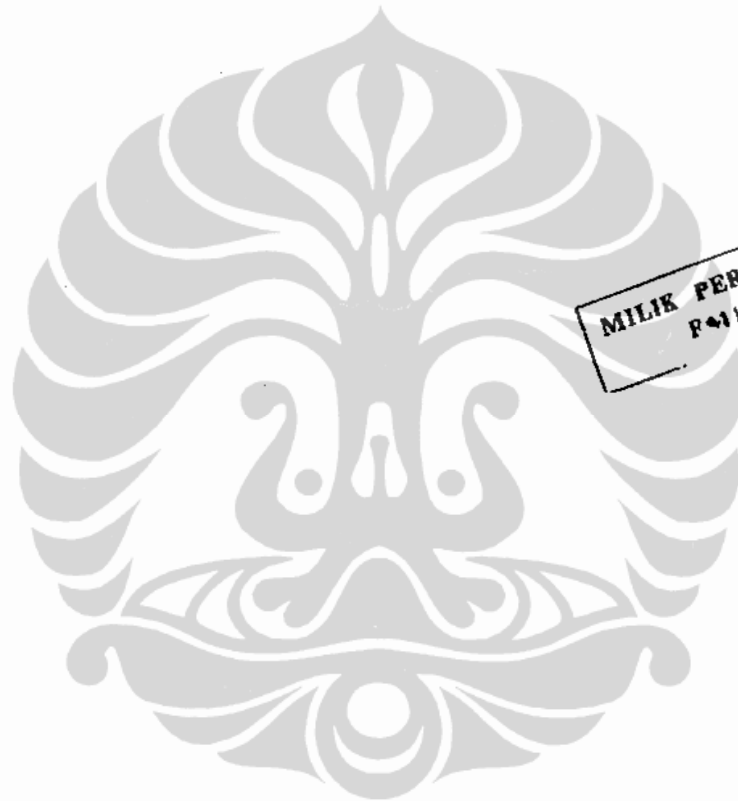
Gambar 4.11	Pola difraksi lapisan tipis BST untuk variasi kecepatan putar	51
Gambar 4.12	Pola difraksi variasi kecepatan putar pada lapisan tipis BST untuk bidang (110)	52
Gambar 4.13	Pola difraksi lapisan tipis BST untuk variasi suhu annealing	53
Gambar 4.14	Pola difraksi lapisan BST untuk variasi waktu tahan	54
Gambar 4.15	Pola difraksi variasi lapisan tipis BST untuk step penahanan proses <i>annealing</i>	55
Gambar 4.16	Pola difraksi lapisan BST untuk variasi <i>heating rate</i>	56
Gambar 4.17	Foto SEM lapisan tipis BST untuk variasi <i>heating rate</i> (a) 1 ^o C/menit (b) 2 ^o C/menit (c) 4 ^o C/menit (d) 5 ^o C/menit	56
Gambar 4.18	Foto SEM lapisan tipis BST dengan perbesaran 35000x	57
Gambar 4.19	Pola difraksi lapisan tipis BST untuk variasi heating rate menggunakan furnace Naytech	58
Gambar 4.20	Pola difraksi untuk variasi <i>heating rate</i> pada lapisan tipis BST untuk bidang (110)	59
Gambar 4.21	Spektrum FTIR larutan BST	60
Gambar 4.22	Morfologi permukaan (50 μm x 49,4 μm) lapisan tipis BST	61
Gambar 4.23	Kurva histerisis lapisan tipis BST variasi <i>heating rate</i> (a) 1 ^o C/menit (b) 2 ^o C/menit (c) 3 ^o C/menit (d) 5 ^o C/menit	62
Gambar 4.24	Spektrum FTIR larutan BST doping 4% mol magnesium	65
Gambar 4.25	Pola difraksi lapisan tipis BST dan BSMT	66
Gambar 4.26	Pola difraksi lapisan tipis BST dan BSMT untuk bidang (110)	67
Gambar 4.27	Foto SEM untuk variasi % mol dopan Mg (a) 1% (b) 2% (c) 4%	68
Gambar 4.28	Morfologi permukaan (50 μm x 49,4 μm) lapisan tipis BST yang didoping 4% mol dopan magnesium	68
Gambar 4.29	Kurva histerisis BMST untuk variasi % mol dopan Mg (a) 1% (b) 2% (c) 4%	69
Gambar 4.30	Spektrum FTIR larutan BST doping 4% mol aluminium	71
Gambar 4.31	Pola difraksi lapisan tipis BST dan BSAT	72
Gambar 4.32	Pola difraksi lapisan tipis BST dan BSAT untuk bidang (110)	73
Gambar 4.33	Morfologi permukaan (50 μm x 49,4 μm) lapisan tipis BST yang didoping 4% mol dopan aluminium	74
Gambar 4.34	Kurva histerisis BSAT untuk variasi % mol dopan Al (a) 1% (b) 2% (c) 4%	75
Gambar 4.35	Spektrum FTIR larutan BST doping 4% mol tembaga	77
Gambar 4.36	Pola difraksi hasil XRD lapisan tipis BST dan BCST	78
Gambar 4.37	Pola difraksi lapisan tipis BST dan BCST untuk bidang (110)	79

Gambar 4.38	Kurva histerisis BCST untuk variasi % mol dopan Cu (a) 1% (b) 2% (c) 4%	81
Gambar 4.39	Spektrum FTIR larutan BST doping 4% mol natrium	83
Gambar 4.40	Pola difraksi lapisan tipis BST dan BNST	84
Gambar 4.41	Pola difraksi lapisan tipis BST dan BNST untuk bidang (110)	85
Gambar 4.42	Morfologi permukaan (50 μm x 49,4 μm) lapisan tipis BNST 4%	86
Gambar 4.43	Kurva histerisis BNST untuk variasi % mol dopan Na (a) 1% (b) 2% (c) 4%	87
Gambar 4.44	Spektrum FTIR larutan BST doping 4% mol indium	89
Gambar 4.45	Pola difraksi lapisan tipis BST dan BIST	90
Gambar 4.46	Pola difraksi lapisan tipis BST dan BIST untuk bidang (110)	91
Gambar 4.47	Foto SEM BIST untuk variasi % mol dopan In (a) 1% (b) 2% (c) 4%	92
Gambar 4.48	Kurva histerisis BIST untuk variasi % mol dopan In (a) 1% (b) 2% (c) 4%	92
Gambar 4.49	Spektrum FTIR larutan BST doping 4% mol lantanum	95
Gambar 4.50	Pola difraksi apisan tipis BST dan BLST	96
Gambar 4.51	Pola difraksi lapisan tipis BST dan BLST untuk bidang (110)	97
Gambar 4.52	Foto SEM BLST untuk variasi % mol dopan La (a) 1% (b) 2% (c) 4%	98
Gambar 4.53	Morfologi permukaan (50 μm x 49,4 μm) lapisan tipis BST yang didoping 4% dopan lanthanum	98
Gambar 4.54	Kurva histerisis BLST untuk variasi % mol dopan La (a) 1% (b) 2% (c) 4%	99

DAFTAR TABEL

Tabel 2.1	Jari-jari ion (r) pendadah (doping) yang dapat digunakan sebagai <i>soft</i> dopan	24
Tabel 2.2	Jari-jari ion (r) pendadah (doping) yang dapat digunakan sebagai <i>hard</i> dopan	24
Tabel 2.3	Pendopongan pada BST	26
Tabel 4.1	Hasil XRF (wt%) variasi jumlah lapisan BST	46
Tabel 4.2	Hasil XRF (At%) variasi jumlah lapisan BST	46
Tabel 4.3	Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif lapisan tipis BST untuk variasi jumlah lapisan	49
Tabel 4.4	Vibrasi molekuler yang terjadi pada larutan BST	60
Tabel 4.5	Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif lapisan tipis BST untuk variasi <i>heating rate</i>	61
Tabel 4.6	Hasil XRF (wt%) BSMT variasi % mol dopan Mg	63
Tabel 4.7	Hasil XRF (at%) BSMT variasi % mol dopan Mg	64
Tabel 4.8	Vibrasi molekuler yang terjadi pada larutan BST yang didoping Mg	65
Tabel 4.9	FWHM dan ukuran butir lapisan tipis BST dan BSMT	67
Tabel 4.10	Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif lapisan tipis BSMT untuk variasi % mol dopan Mg	69
Tabel 4.11	Hasil XRF (wt%) BSAT variasi % mol dopan Al	70
Tabel 4.12	Hasil XRF (at%) BSAT variasi % mol dopan Al	70
Tabel 4.13	Vibrasi molekuler yang terjadi pada larutan BST yang didoping Al	71
Tabel 4.14	FWHM dan ukuran butir lapisan tipis BST dan BSAT	73
Tabel 4.15	Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif lapisan tipis BSAT untuk variasi % mol dopan Al	76
Tabel 4.16	Hasil XRF (wt%) BCST variasi % mol dopan Cu	76
Tabel 4.17	Hasil XRF (at%) BCST variasi % mol dopan Cu	76
Tabel 4.18	Vibrasi molekuler yang terjadi pada larutan BST yang didoping tembaga	77
Tabel 4.19	FWHM dan ukuran butir lapisan tipis BST dan BCST	80
Tabel 4.20	Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif lapisan tipis BCST untuk variasi % mol dopan cuprum	81
Tabel 4.21	Hasil XRF (wt%) BNST variasi % mol dopan Na	82
Tabel 4.22	Hasil XRF (at%) BNST variasi % mol dopan Na	82
Tabel 4.23	Vibrasi molekuler yang terjadi pada larutan BST yang didoping natrium	83
Tabel 4.24	FWHM dan ukuran butir lapisan tipis BST dan BNST	85
Tabel 4.25	Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif lapisan tipis BNST untuk variasi % mol dopan natrium	87
Tabel 4.26	Hasil XRF (wt%) BIST variasi % mol dopan In	88
Tabel 4.27	Hasil XRF (at%) BIST variasi % mol dopan In	88
Tabel 4.28	Vibrasi molekuler yang terjadi pada larutan BST yang didoping indium	89

Tabel 4.29	FWHM dan ukuran butir lapisan tipis BST dan BIST	90
Tabel 4.30	Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif lapisan tipis BIST untuk variasi % mol dopan In	93
Tabel 4.31	Hasil XRF (wt%) BLST variasi % mol dopan La	94
Tabel 4.32	Hasil XRF (at%) BLST untuk variasi % mol dopan La	94
Tabel 4.33	Vibrasi molekul yang terjadi pada larutan BST yang didoping lantanum	95
Tabel 4.34	FWHM dan ukuran butir lapisan tipis BST dan BLST	97
Tabel 4.35	Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif lapisan tipis BLST untuk variasi % mol dopan La	100



DAFTAR LAMPIRAN

- Lampiran A Makalah yang Telah Dipublikasikan
Lampiran B Data Pendukung dari LEMCEL
Lampiran C Data ICDD
Lampiran D Hasil Penghalusan GSAS variasi jumlah lapisan



BAB 1 PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Awal ditemukannya gejala pyroelektrik pada garam Rochelle pada tahun 1820, dan gejala ferroelektrik pada tahun 1918 makin banyak para peneliti memburu sifat yang menarik dari material ferroelektrik. Banyak institusi melakukan penelitian yang intensif untuk menemukan sifat yang menarik dari material ini, ditambah lagi pada tahun 1941 dengan ditemukannya konstanta dielektrik yang tinggi dari barium titanat (Yokovlev, 2004). Gejala ferroelektrik ini tidak hanya ditemukan pada material anorganik melainkan juga material organik. Awalnya penelitian berkisar pada *bulk* material yang meliputi *single* kristal dan keramik. Belakangan ini penelitian terhadap material ferroelektrik banyak menarik perhatian karena material ini sangat menjanjikan terhadap perkembangan divais generasi baru sehubungan dengan sifat-sifat unik yang dimilikinya.

Sejak tahun 1989 lapisan tipis ferroelektrik telah digunakan untuk aplikasi elektronik. Awal ketertarikannya digunakan untuk ferroelektrik *non-volatile memory* yaitu *ferroelectric random access memory* (FRAM) dan juga diikuti oleh pengembangan lapisan tipis ferroelektrik dalam fase paraelektrik yang digunakan sebagai *high permittivity dielectric* untuk DRAM (*dynamic random access memory*). Penyimpan memori lama (*non-volatile memory*) merupakan bagian terpenting dari semua sistem komputer. *Non-volatile memory* adalah jenis memori yang memerlukan material ferroelektrik sebagai material dielektrik kapasitornya. Jika konstanta dielektrik tinggi maka kapasitor dapat menyimpan muatan yang besar (Xu, 1991). Lapisan tipis ferroelektrik yang tersusun perovskite banyak mendapat perhatian karena memiliki kemungkinan untuk menggantikan memori CMOS yang sekarang digunakan sebagai FRAM. Penggunaan film tipis ferroelektrik sebagai memori lebih baik dibandingkan dengan sistem magnetik. Sistem magnetik hanya mampu menyimpan 10^5 bit/cm², sedangkan memori yang terbuat dari ferroelektrik mampu menyimpan hingga 10^8 bit/cm² (Jona dan Shirane, 1993).

Barium Strontium Titanat ($Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ atau BST), plumbum zirconium titanat ($PbZr_xTi_{1-x}O_3$ atau PZT), dan strontium titanat ($SrTiO_3$ atau STO) adalah material ferroelektrik perovskite yang paling populer dan mempunyai konstanta dielektrik yang tinggi. Dari ketiga material tersebut yang paling menarik untuk aplikasi memori adalah BST. Lapisan tipis BST telah diteliti sejak tahun 1990-an. Saat itu orang sangat tertarik untuk meneliti BST karena BST mempunyai konstanta dielektrik yang tinggi, *loss* dielektrik rendah, densitas kebocoran arus rendah, dan stabilitas termal yang baik. Hal ini membuat BST pada saat itu menjadi material yang diunggulkan untuk menggantikan SiO_2 sebagai dielektrik penyimpan muatan untuk *dynamic random access memory* atau DRAM (Adem, 2003; Kingon et al, 2000; Kotecki, et al, 1999; Dietz, et al, 1997, dan Tahan et al, 1996). Saat ini riset lapisan tipis BST juga terkonsentrasi untuk aplikasi *tunable phase shifter* (Ustinov et al, 2007; Zhong et al, 2007; Fu et al, 2006; Lookman et al, 2004), *microwave tunable device* (Cho et al, 2006; Noren, 2004; Yan et al, 2004; Fu Xinghua et al, 2004; Hong-Wen, 2002).

Salah satu sifat yang menarik dari BST adalah konstanta dielektrik yang tinggi, sehingga material ini digunakan untuk dielektrik kapasitor yang nantinya digunakan sebagai memori. Data yang besar tersimpan pada memori ferroelektrik ini karena kapasitor dapat menyimpan muatan besar akibat nilai konstanta dielektrik yang besar. 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.

Sifat-sifat BST yang menarik itu menjadikannya untuk aplikasi memori. Beberapa peneliti mengemukakan bahwa sifat-sifat itu dapat diwujudkan dengan melakukan pendopingan pada BST (Cole et al, 2008; Sirikulrata, 2008; Zhu et al,

2006; Tae et al, 2006; Wang et al, 2005; Chong et al, 2004; Jain et al, 2003; Hong-Wen, 2002, Jeon et al, 2001).

Pendopongan pada material ferroelektrik dapat meningkatkan sifat listrik maupun mekaniknya. Prinsip pendopongan adalah jari-jari ion dopan lebih kecil atau sama dengan jari-jari ion yang didoping. Ada dua jenis ion dopan yaitu *soft* dopan dan *hard* dopan. Jika muatan ion dopan lebih besar dari muatan ion yang didoping disebut ion *soft dopan*. Sedangkan jika muatan ion dopan lebih kecil dari ion yang didoping disebut ion *hard dopan*.

Selain itu besarnya sifat listrik dan konstanta dielektrik dipengaruhi oleh komposisi dari elemen-elemen pembentuknya, stoikiometri, tingkat kekristalan (distribusi ukuran butir), ukuran butir, ketebalan. Semuanya ini dipengaruhi oleh metode penumbuhannya.

Akhir tahun 1980, metode konvensional untuk menghasilkan material elektrokeramik, seperti pengepresan powder yang kemudian diikuti dengan proses sintering, bertambah banyak setelah munculnya metode deposisi lapisan tipis seperti *sputtering*, *pulsed laser deposition* (PLD), *chemical solution deposition* (CSD) dan *chemical vapour deposition* (CVD). Metode *chemical solution deposition* (Hu-Yong et al, 2002; Lu et al, 2006; Tae et al, 2006; Kim et al, 2006; Halder et al, 2005), *metal organic chemical vapor deposition* (Cole et al, 2008; Sigman et al, 2007; Kotekcki et al, 1999; Dietz et al, 1997), *pulsed laser deposition* (Sirikulrata, 2008; Zhu et al, 2006; Wang et al, 2005; Jain et al, 2003, Jeon et al, 2001), *sputtering* (Podpirka et al, 2008; Baniecki et al, 2005; Fan et al, 2003; Boum et al, 2002) adalah metode-metode yang digunakan untuk penumbuhan lapisan tipis BST.

Pada penelitian ini lapisan tipis BST disiapkan dengan metode *chemical solution deposition* (CSD). Kemudian, diproses lebih lanjut menggunakan *spin coating*. Metode CSD merupakan metode yang cukup baik karena kontrol yang baik pada stoikiometri, mudah dibuat, dan murah. Selain itu kelebihan dari metode CSD dan material BST dapat ditumbuhkan pada suhu ruang.

Dari hal-hal di atas yang melatar belakangi penelitian ini, maka pada studi doktoral ini akan diteliti atau dikaji lapisan tipis BST yang mempunyai kualitas unggul yang nantinya dapat digunakan untuk *non-volatile memory*. Hal ini

dipengaruhi oleh komposisi pembentuk BST dan parameter-parameter pada metode penumbuhannya serta jenis doping yang digunakan. Oleh karena itu, akan diteliti pembuatan lapisan tipis BST dan BST yang didoping magnesium (Mg), aluminium (Al), tembaga (Cu), natrium (Na), indium (In), dan lantanum (La) dengan metode CSD yang disiapkan dengan metode *spin coating*.

Langkah-langkah yang akan dilakukan adalah optimasi parameter-parameter yang mempengaruhi penumbuhan lapisan tipis BST yang meliputi variasi: jenis pelarut, jenis substrat, molaritas larutan, jumlah lapisan, kecepatan putar *spin coating*, *annealing* yang meliputi suhu, waktu tahan, step penahanan dan laju pemanasan (*heating rate*). Kemudian barium strontium titanat didoping dengan Mg, Al, Cu, Na, In, dan La dengan variasi % molar tertentu. Selanjutnya lapisan tipis dikarakterisasi komposisi, struktur kristal, ketebalan, morfologi, dan sifat listrik.

1.2 Tujuan Penelitian

Tujuan penelitian ini adalah mendapatkan optimalisasi parameter penumbuhan lapisan tipis $B_{1-x}Sr_xTiO_3$ dan mendapatkan kandidat memori ferroelektrik yang terbaik dengan menumbuhkan lapisan tipis BST dan BST yang didoping dengan magnesium (Mg), aluminium (Al), tembaga (Cu), natrium (Na), indium (In), dan lantanum (La) di atas substrat Si dan Pt/Si. Kajian untuk mencapai tujuan ini ditinjau dari komposisi, karakteristik kristalografi, morfologi lapisan tipis BST yang terdeposit di atas substrat serta sifat listrik material tersebut yang dalam hal ini adalah pembentukan kurva histerisis.

1.3 Perumusan Masalah

Permasalahan yang akan dipelajari dalam penelitian ini mencakup:

1. Optimasi parameter-parameter yang mempengaruhi penumbuhan lapisan tipis BST dengan metode CSD yang meliputi, jenis pelarut, jenis substrat, molaritas larutan, jumlah lapisan, kecepatan putar *spin coating*, *annealing* yang meliputi suhu, waktu tahan, step penahanan dan laju pemanasan (*heating rate*). Lapisan

tipis BST kemudian dikarakterisasi komposisi, struktur kristal, ketebalan, morfologi, dan sifat listrik yang dalam hal ini pembentukan kurva histerisis.

2. Mempelajari dan mengkaji penambahan dopan magnesium (Mg), aluminium (Al), tembaga (Cu), natrium (Na), indium (In), dan lantanum (La) pada BST yang kemudian dikarakterisasi komposisi, struktur kristal, morfologi lapisan tipis yang terbentuk serta sifat listrik material tersebut yang dalam hal ini pembentukan kurva histerisis.

1.4 Hipotesa

Penambahan ion *hard* dopan dan *soft* dopan yaitu ion dopan magnesium (Mg), aluminium (Al), tembaga (Cu), natrium (Na), indium (In), dan lantanum (La) pada BST yang ditumbuhkan menggunakan metode *chemical solution deposition* disiapkan dengan *spin coating* akan meningkatkan sifat listrik dalam hal ini polarisasi remanen dan medan koersif yang merupakan parameter penting untuk aplikasi memori.

BAB 2 TINJAUAN PUSTAKA

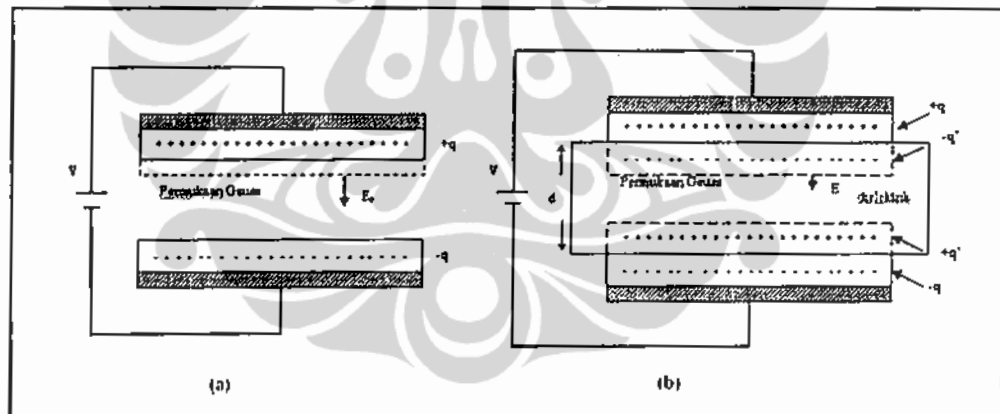
2.1 Polarisasi dan Dielektrik

Sebuah dipol didefinisikan sebagai pasangan muatan $+q$ dan $-q$ yang dipisahkan oleh jarak kecil d dari satu muatan terhadap yang lainnya. Momen dipole p didefinisikan sebagai perkalian muatan dengan jarak yang memisahkannya, hal ini secara matematis seperti dituliskan pada Persamaan 2.1.

$$p = q d \quad (2.1)$$

Jumlah total momen dipol dalam material persatuan volume disebut sebagai intensitas polarisasi atau juga disebut polarisasi (P), seperti dituliskan pada Persamaan 2.2.

$$P = \lim_{\Delta v \rightarrow 0} \frac{1}{\Delta v} \sum_{i=1}^{n\Delta v} p_i \quad (2.2)$$



Gambar 2.1
Kapasitor plat sejajar
(a) tanpa dielektrik (b) dengan dielektrik

Bahan dielektrik adalah sebuah isolator dimana isolator ini tidak mempunyai muatan bebas jika diberikan medan listrik. Sifat yang dimiliki bahan dielektrik adalah kemampuan menyimpan energi dalam bentuk medan listrik. Penyimpanan ini terjadi karena adanya pergeseran relatif kedudukan muatan

positif internal dan muatan negatif internal terhadap gaya atomik dan molekular yang normal.

Kapasitansi didefinisikan sebagai jumlah muatan yang disimpan dalam suatu material per satuan tegangan, yang secara matematis dituliskan seperti pada Persamaan 2.3.

$$C = \frac{Q}{V} \quad (2.3)$$

Kapasitansi dapat dihitung dengan melibatkan hukum Gauss. Garis yang terputus-putus menggambarkan permukaan Gauss. Persamaan Gauss secara matematis dituliskan seperti pada Persamaan 2.4.

$$\epsilon_0 \oint \vec{E} \cdot d\vec{S} = Q \quad (2.4)$$

Jika di antara plat kapasitor tidak ada bahan dielektrik, maka hukum Gauss dapat dituliskan secara matematis seperti Persamaan 2.5 dan 2.6.

$$\epsilon_0 \oint \vec{E} \cdot d\vec{S} = \epsilon_0 E_0 A = q \quad (2.5)$$

$$\text{Atau } E_0 = \frac{q}{\epsilon_0 A} \quad (2.6)$$

Hubungan antara medan listrik dan tegangan dapat dituliskan secara matematis seperti Persamaan 2.7.

$$E = V/d \quad (2.7)$$

Dengan V adalah beda tegangan.

Dengan mensubstitusikan Persamaan 2.3 dan 2.7 ke dalam Persamaan 2.6 maka kapasitansi tanpa bahan dielektrik dapat dituliskan seperti Persamaan 2.8.

$$C = \frac{\epsilon_0 A}{d} \quad (2.8)$$

Dengan ϵ_0 adalah permitivitas ruang hampa, A adalah luas masing-masing plat, dan d adalah jarak antara kedua plat.

Jika di antara dua plat sejajar (kapasitor) disisipi bahan dielektrik (Gambar 2.1 b), maka hukum Gauss dapat dituliskan seperti Persamaan 2.9 atau 2.10.

$$\epsilon_0 \oint \vec{E} \cdot d\vec{S} = \epsilon_0 EA = q - q' \quad (2.9)$$

$$\text{Atau } E = \frac{q}{\epsilon_0 A} - \frac{q'}{\epsilon_0 A} \quad (2.10)$$

$-q'$ adalah muatan permukaan imbas, sedangkan q adalah muatan bebas pada plat-plat tersebut. Kedua muatan ini terletak di dalam permukaan Gauss. $q - q'$ adalah muatan total *netto* di dalam permukaan Gauss tersebut.

Dari Persamaan 2.7, hubungan antara E dan V adalah linier (sebanding), maka dapat dituliskan seperti pada Persamaan 2.11.

$$\frac{E_0}{E} = \frac{V_0}{V_d} = \kappa \quad (2.11)$$

Dengan κ adalah konstanta dielektrik. Sehingga dapat dituliskan kembali seperti pada Persamaan 2.12.

$$E = \frac{E_0}{\kappa} \quad (2.12)$$

Dengan mensubstitusi Persamaan 2.6 ke dalam Persamaan 2.12, maka dapat dituliskan seperti pada Persamaan 2.13.

$$E = \frac{q}{\epsilon_0 A \kappa} \quad (2.13)$$

Persamaan 2.13 disubstitusi ke Persamaan 2.10 menjadi seperti pada Persamaan 2.16.

$$\frac{q}{\epsilon_0 A \kappa} = \frac{q}{\epsilon_0 A} - \frac{q'}{\epsilon_0 A} \quad (2.14)$$

$$\frac{q}{\epsilon_0 A} = \frac{q}{\epsilon_0 A \kappa} + \frac{q'}{\epsilon_0 A} \quad (2.15)$$

$$\frac{q}{A} = \epsilon_0 \left(\frac{q}{\epsilon_0 A \kappa} \right) + \frac{q'}{A} \quad (2.16)$$

Dengan mengingat Persamaan 2.2 dan 2.13 maka Persamaan 2.16 bisa dituliskan dalam bentuk Persamaan 2.17 atau 2.18.

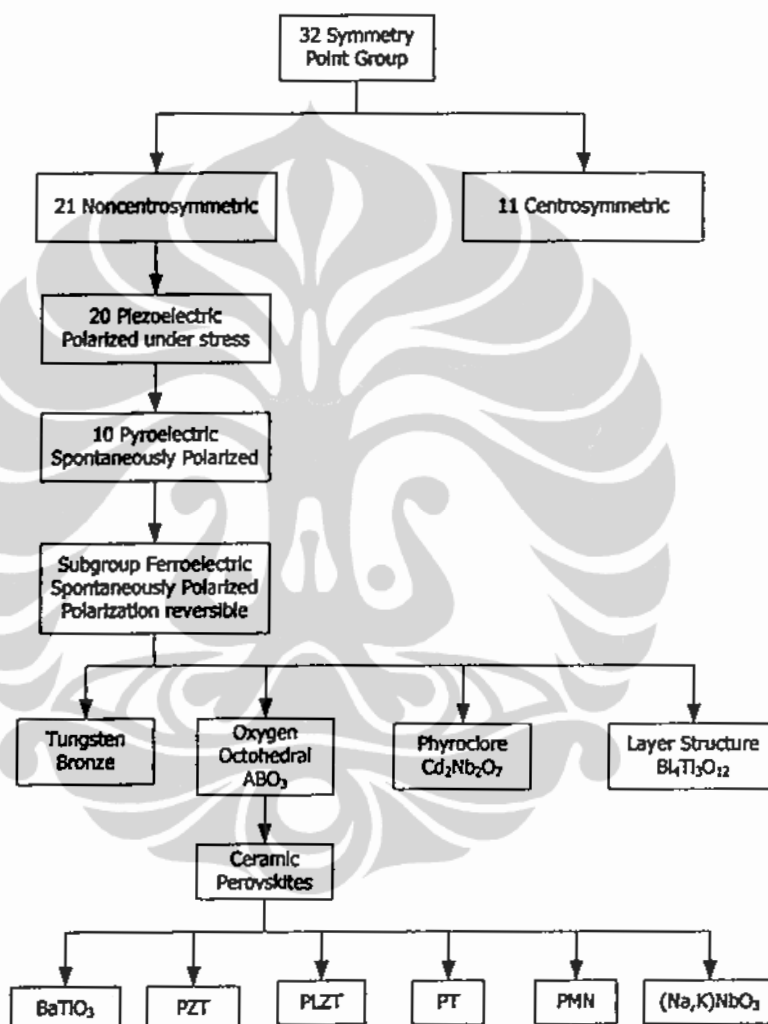
$$\frac{q}{A} = \epsilon_0 E + P \quad (2.17)$$

$$\text{Atau } D = \epsilon_0 E + P \quad (2.18)$$

Dengan D adalah *displacement* atau muatan persatuan luas.

2.2 Fenomena Ferroelektrik

Struktur simetri kristal memberikan efek geometri pada sifat struktur dan fisik kristal, seperti dielektrik, ferroelektrik, piezoelektrik. Kristal dibagi menjadi 32 grup titik (*point group*) sesuai dengan simetri yang dimiliki, dari 32 grup titik tersebut, terdiri dari 21 *non-centrosymmetric* dan 11 *centrosymmetric* (Xu, 2001).

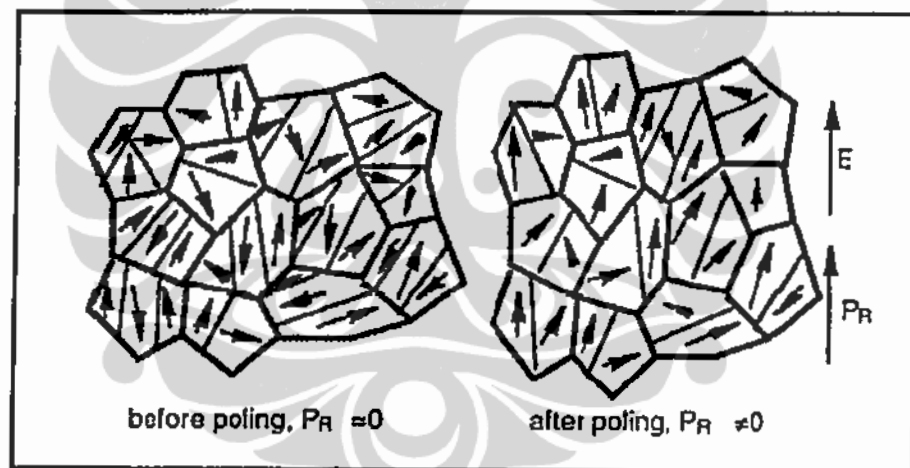


Gambar 2.2 Klasifikasi kristal ferroelektrik (Xu, 2001)

Centrosymmetric crystal tidak memiliki banyak sifat polar, sebagai contoh jika kita memberikan tekanan yang merata (*uniform stress*) pada kristal *centrosymmetric*, menyebabkan terjadinya sedikit pergeseran muatan pada kisi

kristal, tetapi pusat simetri akan mengimbangi dengan membuat pergeseran relatif secara proposional. Jika medan listrik diberikan akan menyebabkan perubahan muatan, namun strain tidak akan berubah jika diberikan medan listrik dari arah yang berlawanan (Jona and Shirane, 1993).

Kristal *non-centrosymmetric* memiliki satu atau lebih sumbu polar dan merupakan vektor dan tensor pada kristal. Kristal *non-centrosymmetric* dibagi menjadi 20 material piezoelektrik, yaitu material yang menunjukkan gejala polarisasi listrik ketika diberikan suatu tekanan. Efek ini terjadi secara linier (Lines and Glass, 1977). Dari 20 kristal piezoelektrik *non-centrosymmetric*, terdapat 10 yang memiliki sifat polarisasi spontan yang dipengaruhi oleh suhu (Adem, 2000). 10 group ini dinamakan pyroelektrik. Ferroelektrik adalah bagian dari pyroelektrik yang memiliki polarisasi spontan dan polarisasi ini dapat dihilangkan jika diberikan medan listrik dari luar (Jona and Shirane, 1993).

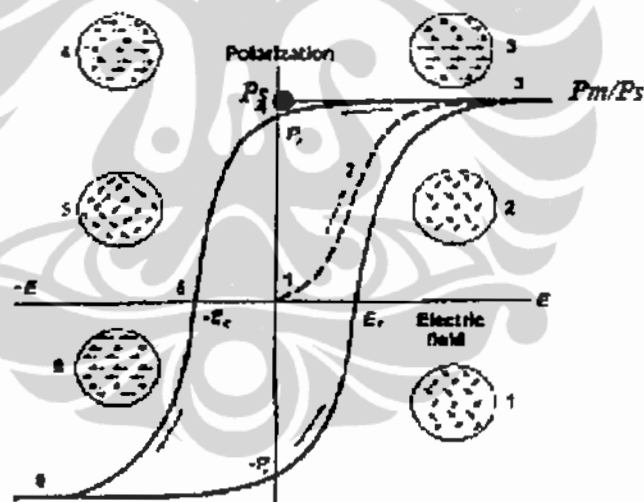


Gambar 2.3
Ilustrasi fenomena polarisasi dalam material (Adem, 2003)

Kristal ferroelektrik banyak yang menunjukkan polarisasi spontan dalam suatu target temperatur tertentu. Kristal yang demikian disebut kristal ferroelektrik. Gejala ferroelektrik ditemukan pertama kali oleh Valasek pada tahun 1912 dengan garam Rochelle. Ferroelektrik didefinisikan sebagai gejala terjadinya perubahan polarisasi secara spontan pada material tanpa gangguan listrik dari luar (Lines and Glass, 1977). 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. Kini perkembangan keramik ferroelektrik menjadi pesat, tidak hanya terdiri dari dua komposisi terdahulu (barium titanat dan zirkonat titanat) melainkan lebih dari itu (Heartling, 1999).

Gambar 2.3 adalah gambaran polarisasi dalam material ferroelektrik. Material ferroelektrik pada kondisi normal (tanpa medan listrik luar), besarnya polarisasi spontan sama dengan nol karena dipole-dipole dalam suatu domain (daerah yang mempunyai polarisasi sama atau homogen) orientasinya random. Tetapi ketika diberikan medan listrik dalam material ini maka dipole-dipolanya akan terpolarisasi, akibatnya domain terorientasi dengan arah yang sama oleh perpindahan *domain wall* dan material akan mempunyai polarisasi spontan.



Gambar 2.4 Kurva histerisis
(Hyuk Koh, 2002)

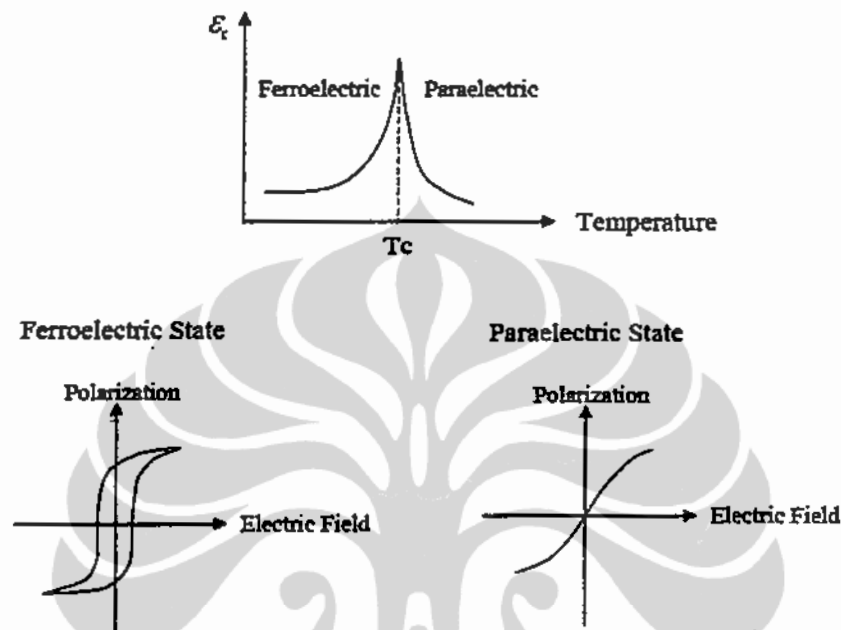
Material ferroelektrik ditandai dengan adanya polarisasi spontan tanpa adanya medan listrik dan juga kemampuan untuk membentuk kurva histerisis. Ketika medan listrik diberikan pada material ferroelektrik, polarisasi akan

menunjukkan sifat histerisis dengan medan listrik yang diberikan. Hubungan antara polarisasi dan medan listrik seperti ditampilkan pada Gambar 2.4.

Pada kristal ferroelektrik terdapat domain yaitu daerah yang mempunyai polarisasi listrik yang sama. Sebelum material ferroelektrik dipole-dipole pada domain arahnya acak. Saat diberikan medan listrik dipole-dipole dalam domain negatif (arahnya berlawanan dengan domain positif) berubah arah akibatnya sejumlah domain negatif berubah arah sehingga polarisasi bertambah. Hal ini seperti diperlihatkan nomor 2 (garis no 2) pada Gambar 2.4. Makin besar medan listrik yang diberikan makin besar polarisasi sehingga pada akhirnya domain-domain negatif yang berarti pula dipole-dipole negatif semuanya berubah arah. Akibatnya kristal menjadi berdomain tunggal yaitu positif. Meskipun medan diberikan terus polarisasi tidak berubah, inilah yang disebut polarisasi saturasi (P_s), yang ditunjukkan seperti nomor 3. Saat medan dikurangi polarisasi listrik tidak akan kembali ke posisi semula, hingga saat medan listrik nol masih terdapat sisa polarisasi yang disebut polarisasi remanen (P_r). Pada gambar seperti diperlihatkan nomor 4. Tangensial atau gradien yang ditarik dari polarisasi saturasi disebut polarisasi spontan (P_s). Untuk menghilangkan polarisasi pada kristal dilakukan dengan memberikan medan listrik yang arahnya berkebalikan (seperti nomor 5) hingga polarisasi akan bernilai nol. Medan yang digunakan untuk mengembalikan polarisasi bernilai nol disebut medan koersif (E_c). Jika medan listrik yang arahnya berkebalikan diberikan terus maka material akan kembali mengalami saturasi, hanya saja bernilai negatif (seperti nomor 6). Putaran kurva akan lengkap jika medan listrik dinaikkan lagi dan pada akhirnya didapatkan kurva hubungan polarisasi (P) dengan medan koersif (E_c) yang disebut kurva histerisis.

Polarisasi spontan material ferroelektrik mengalami perubahan yang sangat tajam di dekat suhu transisi (T_c) atau disebut juga temperatur Curie. Pada temperatur Curie ini, material paraelektrik berubah fase non-polar (polarisasi spontan = 0) menjadi fase polar ferroelektrik (polarisasi spontan \neq 0). Sehingga yang bersifat ferroelektrik kondisinya dipengaruhi oleh suhu Curie. Jika di bawah suhu Curie material berada pada fase polar (ferroelektrik) dan jika di atas suhu Curie berada pada fase non polar (paraelektrik). Perubahan ini merupakan pangkal

terjadinya polarisasi spontan. Hal ini seperti terlihat pada Gambar 2.5. Suhu Curie (T_c) penting untuk menentukan stabilitas dari kapasitor dan daya disipasi dalam divais yang terbuat dari material ferroelektrik dan pyroelektrik (Uchino, 2000).



Gambar 2.5
Pengaruh suhu terhadap sifat ferroelektrik (Tao Hu, 2004)

Konstanta dielektrik tidak hanya sebagai fungsi dari medan listrik tetapi juga sebagai fungsi dari suhu. Pada fasa ferroelektrik jika suhu ditingkatkan maka konstanta dielektrik juga meningkat. Dari hubungan Curie-Weiss, konstanta dielektrik berbanding terbalik dengan suhu transisi, hubungan ini seperti pada Persamaan 2.19 (Jona and Shirane, 1993).

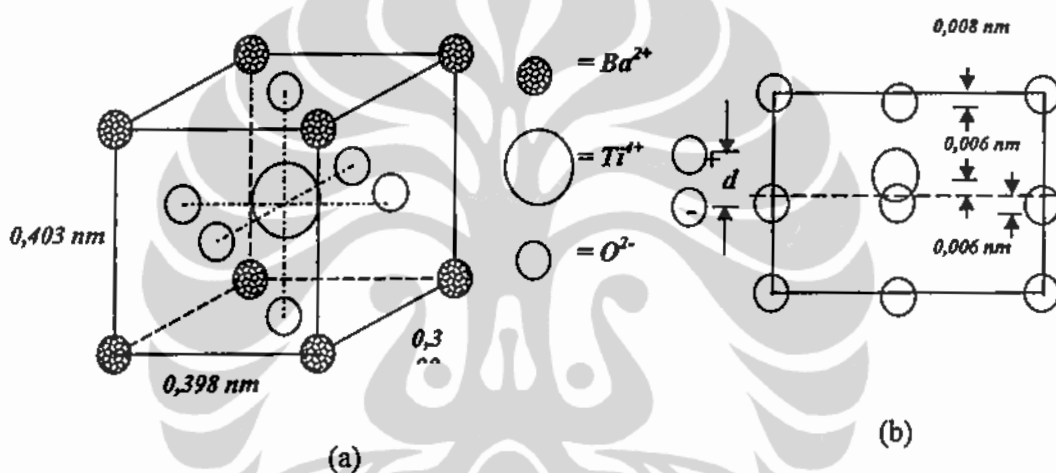
$$\kappa = \frac{C}{T - T_0} \quad (2.19)$$

Dengan:

C : konstanta Curie

T_0 : suhu Curie Weiss

Suatu kristal dikatakan terpolarisasi jika memiliki dipole listrik yang permanen karena pusat muatan-positif dan muatan-negatifnya bukan di pusat sel-satuan. Seperti diperlihatkan oleh struktur kristal BaTiO_3 . Kondisi pada saat di atas suhu 120°C struktur kristal BaTiO_3 berbentuk kubus, di bawah suhu itu 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. Hal seperti diperlihatkan pada Gambar 2.6. Pusat muatan positif dan pusat muatan negatif dipisahkan sejauh panjang dipole, d (van Vlack, 2001).



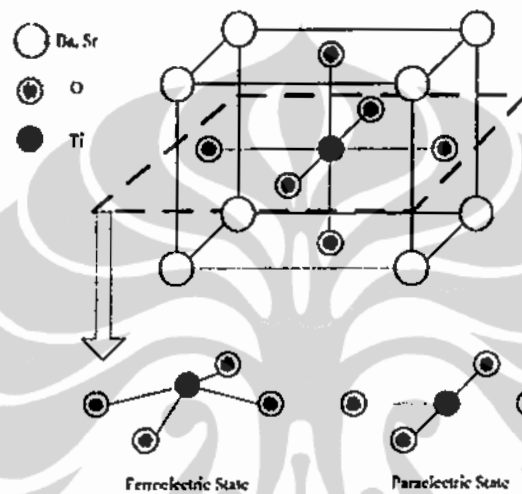
Gambar 2.6 Struktur BaTiO_3
 (a) BaTiO_3 pada suhu kamar (b) Pergeseran Ti^{4+} dan O^{2-}
 (van Vlack, 2001)

2.3 Barium Stronsium Titanat ($\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$)

Material (keramik) ferroelektrik seperti BaTiO_3 , PbTiO_3 , $\text{PbZr}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$ umumnya memiliki struktur perovskite, termasuk didalamnya Barium Strontium Titanat ($\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$ atau BST). Struktur perovskite ideal berbentuk kisi kubus sederhana. yang formula kimia umumnya adalah ABO_3 , dimana O adalah oksigen, A menggambarkan kation dengan jari-jari ion besar dan B adalah kation dengan jari-jari ion kecil.

Pada fase ferroelektrik, struktur perovskite sering diasumsikan sebagai tetragonal, ortorombik atau rhombohedral. Pada simetri tetragonal, suatu sel kubik

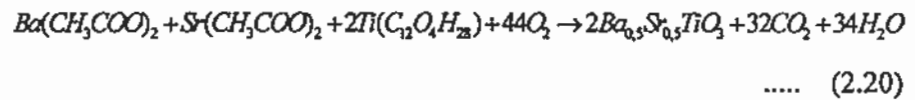
merenggang sepanjang satu sisi dan menyusut sepanjang dua sisi yang lain membentuk suatu prisma empat persegi panjang. Faktor penting yang menentukan material ferroelektrik memiliki struktur perovskite atau bukan adalah kisinya dapat dinyatakan sebagai suatu rangkaian oksigen oktahedral secara kontinu dengan atom-atom menempati ruang antara. Ciri khas perovskite ini menunjukkan sifat-sifat ferroelektrik, pyroelektrik, dan piezoelektrik pada suhu kamar (Jona and Shirane, 1993).



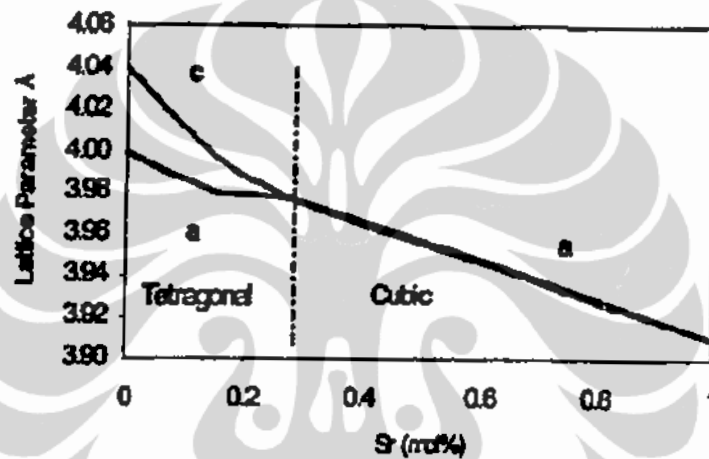
Gambar 2.7
Unit sel tipe perovskite kubik ABO_3 dari $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$
(Dongsu Kim, 2004)

Lapisan tipis BST yang merupakan material ferroelektrik perovskite dan telah sekitar 15 tahun dari tahun 1990-an menjadi salah satu material yang banyak diteliti. Hal ini disebabkan karena lapisan tipis BST mempunyai beberapa keunggulan yaitu konstanta dielektrik yang tinggi, *dielectric loss* (pengurangan dielektrik) rendah, konstanta dielektrik tinggi dan komposisinya tergantung suhu Curie yang mengakibatkan BST bersifat ferroelektrik atau paraelektrik. Semua itu menjadikan lapisan tipis BST menjadi kandidat menggantikan SiO_2 sebagai dielektrik penyimpan muatan (kapasitor) dan untuk *dynamic random access memory* atau DRAM (Kington et al, 2000; Kotecki, et al, 1999).

Barium Stronsium Titanat, $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ merupakan paduan dari material $Ba(CH_3COO)_2$, $Sr(CH_3COO)_2$, dan $Ti(C_{12}O_4H_{28})$ sesuai Persamaan 2.20.



Lapisan tipis BST berbentuk polikristal, yang sifatnya dipengaruhi oleh komposisi antara Ba dan Sr, stoikiometri, struktur mikro (ukuran butir dan distribusi butir), ketebalan lapisan, karakteristik material elektroda, dan homogenitas lapisan. Metode penumbuhan lapisan tipis BST mempengaruhi komposisi, stoikiometri, kristalinitas, dan ukuran butir yang berpengaruh terhadap sifat listrik.



Gambar 2.8 Perubahan parameter kisi dan daerah fase ferroelektrik dan paraelektrik dari BST (Adem, 2003)

Gambar 2.8 menunjukkan perubahan parameter kisi akibat pengaruh komposisi strontium didalam struktur BST yang pada akhirnya mempengaruhi fase dari BST, fase ferroelektrik atau paraelektrik. Komposisi barium yang berlebih di dalam BST menjadikan BST berada pada fase ferroelektrik, semenjak BST berada di bawah temperatur Curie. Untuk persen mol $\text{Sr} \leq 0,25$, struktur BST adalah perovskite tetragonal yang bersifat ferroelektrik. Sedangkan untuk $\text{Sr} \geq 0,25$, struktur BST berubah menjadi kubik yang bersifat paraelektrik.

Menurut ICDD (*International Centre for Diffraction Data*), BST memiliki sistem kristal kubik dengan parameter kisi $a = 3,947 \text{ \AA}$ untuk konsentrasi stronsium 50% dan $a = 3,965$. Parameter kisi lapisan tipis BST 0,5M dengan konsentrasi stronsium 50% yang ditumbuhkan pada substrat Si, diperoleh oleh

Giridharan dkk sebesar $a = 3,955 \text{ \AA}$. Seung et al, mendapatkan parameter kisi yang sama dengan data ICDD untuk konsentrasi strontium 40%. Sedangkan Podpirka et al, yang menumbuhkan $\text{Ba}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{TiO}_3$ di atas substrat Pt dengan metode *sputtering* mendapatkan parameter kisi sebesar $4,01 \text{ \AA}$. Giridharan et al, mendapatkan BST dengan parameter kisi $a = 3,97 \text{ \AA}$, Koutsaroff et al, mendapatkan $3,96 \text{ \AA}$, dan Wang et al, mendapatkan parameter kisi $3,999 \text{ \AA}$ untuk konsentrasi stronsium 30 %.

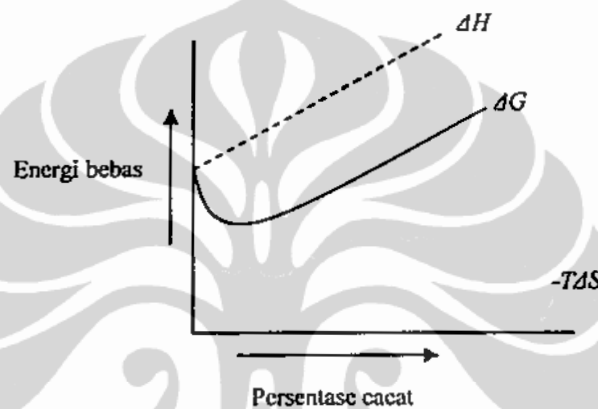
Suhu Currie dari barium titanat murni adalah 120°C , dengan penambahan stronsium sehingga menjadi barium strontium titanat (BST), akan menurunkan suhu Currie menjadi suhu kamar yang akan sangat berguna untuk spesifikasi alat tertentu. Beberapa penelitian tentang suhu transisi atau suhu Curie dari BST dari keadaan ferroelektrik menjadi paraelektrik, merupakan fungsi dari perbandingan Ba/Sr (Syamaprasad et al, 1988). Sistem keramik BST memiliki transisi fase dari struktur kubik ke tetragonal. Temperatur Curie bergantung pada rasio Ba/Sr, untuk konsentrasi stronsium 40%, temperatur Curie sekitar 10°C (Seung et al, 2003).

Beberapa penelitian juga berpendapat bahwa BST memiliki potensi untuk menggantikan lapisan tipis SiO_2 pada sirkuit MOS (*Metal Oxide Semiconductor*) dimasa depan. Dari penelitian yang telah dilakukan sampai saat ini, lapisan tipis BST biasanya memiliki konstanta dielektrik yang jauh lebih rendah dibandingkan dengan bentuk *bulk*-nya. Struktur mikro butir yang baik, tingkat tekanan yang tinggi, kekosongan oksigen, formasi lapisan *interfacial*, dan oksidasi pada *bottom electrode* atau Si dipercaya menjadi faktor yang menyebabkan penurunan sifat listrik ini.

2.4 Cacat Kristal

Pada umumnya, pembahasan mengenai kristal ionik dilakukan dengan asumsi bahwa kristal ionik merupakan kristal sempurna atau tidak memiliki cacat tertentu. Adanya suatu cacat kristal pada tingkat tertentu, menyebabkan suatu senyawa memiliki energi bebas yang lebih rendah dibandingkan energi bebas senyawa tersebut tanpa adanya cacat kristal (Rosyidah, 2007)

Pada saat kristal sempurna mengalami suatu cacat, misalnya ada kation dan anion yang hilang dari kisi kristal, maka diperlukan sejumlah energi untuk menghasilkan cacat ini sehingga terjadi kenaikan entalpi kristal ($\Delta H > 0$). Apabila jumlah kation dan anion yang hilang dari kisi kristal bertambah, maka akan terjadi kenaikan entalpi kristal. Bertambahnya jumlah kation dan anion yang meninggalkan kisi kristal menunjukkan semakin besarnya persentase cacat yang terjadi pada suatu kristal. Hubungan antara perubahan entalpi dengan persentase cacat pada kristal ditunjukkan pada Gambar 2.9.



Gambar 2.9
Perubahan energi bebas akibat cacat kristal

Adanya cacat pada kristal sempurna mengakibatkan terjadinya entropi kristal ($\Delta S > 0$) secara cepat sampai pada persentase cacat tertentu. Pada saat terjadi kenaikan persentase cacat berikutnya, kenaikan entropi kristal relatif kecil. Ini menyebabkan harga $-T\Delta S$ kristal turun secara cepat pada perubahan kristal sempurna menjadi kristal dengan persentase cacat tertentu, kemudian diikuti dengan penurunan harga $-T\Delta S$ secara lambat dengan naiknya persentase cacat pada kristal. Hubungan antara perubahan entalpi, entropi dan energi bebas kristal dinyatakan dengan persamaan:

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (2.21)$$

Perubahan harga ΔH dan $-T\Delta S$ dengan pola tersebut menyebabkan terjadinya penurunan energi bebas kristal ($\Delta G < 0$) sehingga kristal mempunyai cacat dengan persentase tertentu. Kemudian diikuti dengan kenaikan energi bebas

kristal ($\Delta G < 0$) dengan bertambahnya persentase cacat selanjutnya seperti dinyatakan dalam Gambar 2.9. Adanya perubahan energi bebas kristal akibat perubahan persentase cacat pada kristal ditunjukkan pada Gambar 2.9 dan adanya kecenderungan semua sistem kimia untuk berada pada tingkat energi bebas yang minimal mengakibatkan semua kristal di alam selalu dalam keadaan cacat dengan persentase tertentu, sehingga energi bebasnya berada pada tingkat minimal.

Cacat dalam kristal dibagi menjadi dua kelompok besar, yaitu cacat stoikiometri dan cacat non stoikiometri. Adanya cacat stoikiometri tidak mengubah rumus kimia senyawa, sedangkan adanya cacat non stoikiometri dapat mengubah rumus kimia senyawa.

2.4.1 Cacat Stoikiometri

Senyawa stoikiometri adalah senyawa dengan perbandingan atom atau ion-ion dalam rumus kimianya merupakan bilangan bulat dan sederhana, seperti MgCl_2 dan CaSO_4 . Apabila perbandingan tersebut bukan merupakan bilangan bulat sederhana, maka diperoleh senyawa non-stoikiometri, seperti $\text{Fe}_{0,94}\text{O}$ dan $\text{Fe}_{0,9}\text{S}$. Kenetralan muatan senyawa non-stoikiometri diperoleh dengan adanya ion-ion logam dengan tingkat oksidasi atau muatan yang berbeda atau karena adanya kelebihan elektron didalamnya. Pada $\text{Fe}_{0,94}\text{O}$ dan $\text{Fe}_{0,9}\text{S}$ kenetralan muatan karena kation yang ada dalam senyawa campuran dari Fe^{2+} dan Fe^{3+} .

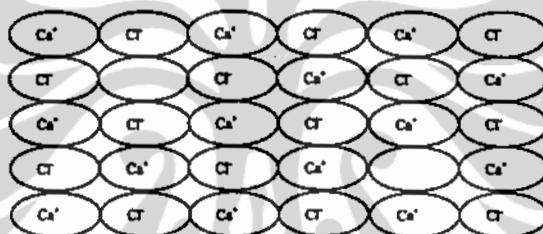
Cacat stoikiometri dapat terjadi karena pengaruh temperatur. Pada suhu 0K atom-atom atau ion-ion yang terdapat dalam kisi kristal dapat dianggap memiliki keteraturan susunan atom yang sempurna. Kenaikan temperatur akan meningkatkan vibrasi atom-atom atau ion-ion yang ada. Apabila vibrasi ion-ion cukup besar, maka ion-ion tersebut memiliki energi yang cukup besar untuk meninggalkan posisi normalnya (titik kisinya), pindah ke posisi yang lain sehingga kristal menjadi cacat. Cacat seperti ini disebut dengan cacat titik (*point defect*) yang dapat berupa cacat Schottky dan cacat Frenkel.

2.4.1.1 Cacat Schottky (Schottky defect)

Cacat Schottky disebut juga cacat Schottky-Wagner. Cacat ini dapat terjadi pada kristal senyawa ionik maupun kristal non-ionik. Pada kristal senyawa ionik,

cacat ini ditandai dengan hilangnya kation dan anion dari kisi kristalnya seperti disajikan pada Gambar 2.10. Pada kristal senyawa murni, hilangnya kation dan anion dari tempat-tempat normalnya ini akan menghasilkan tempat-tempat kosong intrinsik.

Pada kristal senyawa ionik yang mengalami cacat Schottky adanya sejumlah kation yang hilang dari kisi kristalnya diimbangi dengan hilangnya sejumlah anion dari kisi kristalnya dengan muatan yang seimbang, sehingga kristal yang ada tetap netral dan rumus kimianya tidak berubah. Pada temperatur ruang dalam 1 mgr kristal NaCl terdapat sekitar 10^4 cacat Schottky. Cacat Schottky cenderung terjadi apabila kation dan anion yang terdapat dalam kristal ukurannya relatif sama. Bertambahnya perbedaan ukuran kation dan anion menyebabkan berkurangnya kemungkinan terjadinya cacat Schottky.



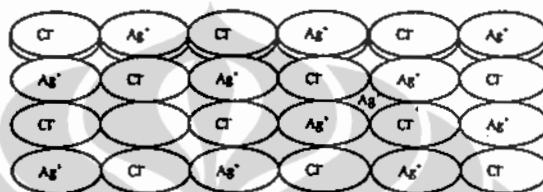
Gambar 2.10
Cacat Schottky pada kristal CaCl

Pada proses pengkristalan, penurunan temperatur yang dilakukan dengan cepat cenderung meningkatkan terjadinya cacat Schottky. Kemungkinan terjadinya cacat Schottky dapat diperkecil apabila pada proses pengkristalan penurunan temperatur dilakukan secara perlahan. Pengkristalan yang demikian juga dapat meningkatkan ukuran kualitas kristal yang terbentuk.

2.4.1.2 Cacat Frankel (*Frankel defect*)

Cacat Frankel cenderung terjadi apabila perbedaan ukuran kation dan anion besar. Pada kristal senyawa ionik sederhana dengan ukuran anion lebih besar daripada ukuran kation, anion-anion dapat membentuk susunan rapat heksagonal (*hexagonal closed packed - hcp*) atau susunan rapat kubus (*cubic closed packed = ccp*). Akan tetapi anion-anion yang ada tidak saling

bersinggungan untuk mengurangi tolakan, sedangkan kation menempati posisi sisipan tetrahedral atau oktahedral yang terbentuk di antara anion-anion. Tempat sisipan tersebut dibagi dalam dua macam, yaitu tempat sisipan normal dan tempat sisipan tidak normal. Pada kristal ionik tanpa cacat Frankel kation-kation menempati posisi sisipan normal, sedangkan pada kristal ionik dengan cacat Frankel ada sebagian kation yang pindah dari tempat sisipan normal ke tempat sisipan yang tidak normal. Hal ini seperti disajikan pada Gambar 2.11.



Gambar 2.11
Cacat Frankel pada kristal AgCl

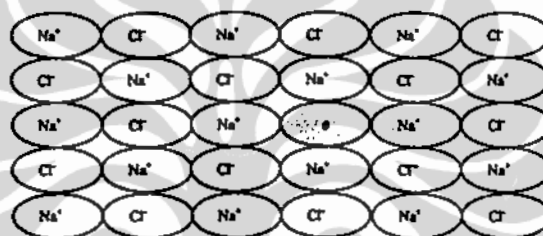
Pada Gambar 2.11 tersebut ion-ion yang seharusnya tidak bersinggungan digambarkan saling bersinggungan. Adanya perpindahan kation dari tempat sisipan normal ke tempat sisipan tidak normal, mengakibatkan kation tersebut berada pada posisi dengan tingkat energi yang lebih tinggi daripada tingkat energi pada posisi normal. Hal ini akibat bertambah kuatnya gaya tolak dengan kation-kation sejenis di sekitarnya. Cacat Frankel semakin mudah terjadi apabila perbedaan ukuran kation dan anion semakin besar. Terjadinya cacat Frankel juga semakin bertambah dengan naiknya temperatur. Kenaikan temperatur akan menaikkan mobilitas ion yang ukurannya lebih kecil sehingga ion tersebut semakin mudah pindah dari tempat sisipan normal ke tempat sisipan tidak normal. Timbulnya cacat Frankel dalam kristal ionik tidak mengubah rumus kimia maupun massa jenis.

2.4.2 Cacat Non-stoikiometri

Cacat non-stoikiometri pada kristal ionik dapat berupa cacat pusat F (warna) dan cacat akibat adanya pengotor (*impurities*).

2.4.2.1 Cacat pusat F atau cacat warna

Cacat pusat F terjadi karena adanya elektron yang terjebak di suatu tempat yang seharusnya terisi oleh anion. Elektron tersebut berasal dari oksidasi atom-atom logam yang ditambahkan pada kristal senyawa ionik. Kristal NaCl dengan cacat jenis ini dapat dibuat dengan memanaskan kristal NaCl dengan akan mengalami ionisasi : $\text{Na} \rightarrow \text{Na}^+ + e$. Ion Na^+ yang terbentuk akan menempati tempat normal dari ion tersebut pada permukaan kristal NaCl. Sedangkan elektron yang ada masuk ke dalam kristal dan menempati ruang kosong, akibat cacat Schottky, yang seharusnya ditempati ion Cl^- . Hal ini seperti disajikan pada Gambar 2.12.

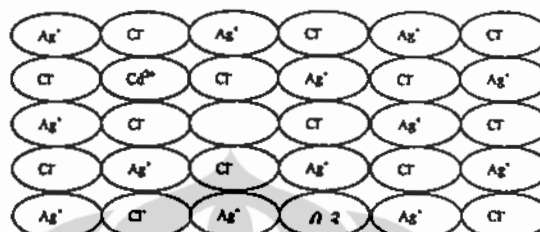


Gambar 2.12
Cacat pusat F pada kristal NaCl

Akibat adanya cacat pusat F pada kristal NaCl, maka jumlah ion Na^+ menjadi lebih banyak daripada jumlah ion Cl^- . Rumus senyawa menjadi $\text{Na}_{1+\delta}\text{Cl}$ atau $\text{Na}_{1-\delta}$ dengan harga $\delta \ll 1$. $\text{Na}_{1-\delta}$ merupakan senyawa non-stoikiometri. Elektron yang menempati tempat anion berlaku sebagai partikel dalam kotak 3-dimensi dan memiliki berbagai tingkat energi. Adanya transisi elektron dari tingkat energi keadaan dasar ke tingkat energi yang lebih tinggi dengan menyerap spektrum cahaya tampak menyebabkan kristal NaCl yang semula tidak berwarna menjadi berwarna setelah padanya terjadi cacat pusat F. Timbulnya warna ini menyebabkan cacat pusat F disebut juga dengan cacat pusat warna. Adanya cacat pusat F menyebabkan timbulnya warna kuning pada kristal $\text{NaCl}_{1-\delta}$. Timbulnya cacat pusat warna akan memperkecil massa jenis suatu kristal.

2.4.2.2 Cacat akibat adanya pengotor

Cacat akibat adanya pengotor ditandai dengan adanya sejumlah kecil ion-ion yang menempati posisi ion-ion dari kristal senyawa murni. Misalnya, adanya pengotor CdCl_2 pada kristal AgCl seperti pada Gambar 2.13.



Gambar 2.13.
Kristal AgCl dengan pengotor CdCl_2

Pada cacat ini dua ion Ag^+ yang hilang dari posisi normalnya dalam kristal digantikan oleh sebuah ion Cd^{2+} . Ion Cd^{2+} dapat menempati posisi Ag^+ karena ukuran ion Cd^{2+} (109 pm) sedikit lebih kecil daripada ion Ag^+ (129 pm). Rumus senyawa yang diperoleh adalah $\text{Ag}_{(1-2x)}\text{Cd}_x\text{Cl}$ yang merupakan senyawa non-stoikiometri dan massa jenisnya lebih rendah daripada massa kristal AgCl murni. Tempat-tempat kosong dalam kristal tidak murni yang timbul akibat adanya pengotor disebut tempat-tempat eksentrik.

2.5 Pendopongan Bahan Ferroelektrik

Penambahan sedikit jumlah dopan (bahan *pendoping*) dapat menyebabkan perubahan konstanta kisi, tetapan dielektrik, sifat ferroelektrik, sifat pyroelektrik, sifat elektromekanik dan sifat elektrooptik dari setiap keramik dan film tipis. Pendopongan pada material ferroelektrik dapat dibedakan menjadi dua jenis, yaitu *soft* dopan dan *hard* dopan.

Ion *soft* dopan 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. Barium mempunyai jari-jari sebesar 1,135 Å, dan strontium mempunyai jari-jari sebesar 1,13 Å. Ion-ion yang dapat dipakai *soft* dopan adalah: La^{3+} , Nd^{3+} ,

dan ion-ion tanah jarang seperti: Sb^{3+} , Bi^{3+} , Th^{4+} , Nb^{5+} , Ta^{5+} , dan W^{6+} . Pada BST, *soft* dopan menyebabkan tidak efektifnya pembangkitan momen dipol, karena ion Ba tidak dapat dengan mudah melompat dari posisi A ke ruang kosong posisi A, akibat terhalang secara ikatan ionik oleh oksigen pada gugus oktohedran (Xu, 1991).

Tabel 2.1
Jari-jari ion (r) dopan yang dapat digunakan sebagai soft dopan
(Xu, 1991)

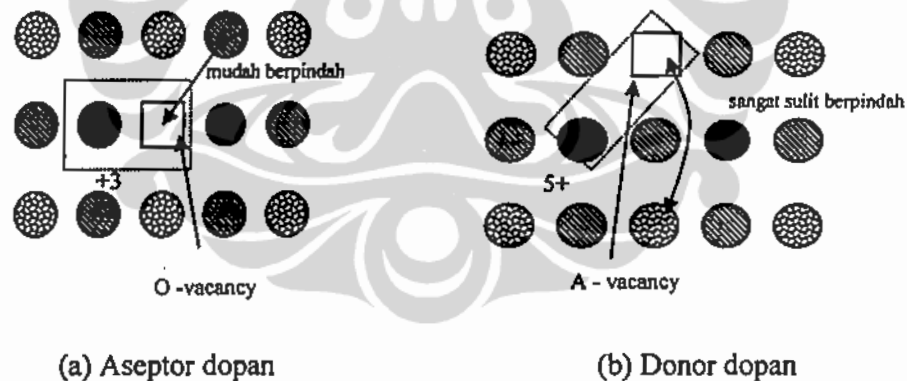
Ion Kecil	r (Å)	Ion Besar	r (Å)
Ti^{4+}	0,68	Pb^{2+}	1,32
Zr^{4+}	0,79	La^{3+}	1,22
Nb^{5+}	0,69	Nd^{3+}	1,15
Ta^{5+}	0,68	Sb^{3+}	0,90
Sb^{5+}	0,63	Th^{4+}	1,10
W^{6+}	0,65	Bi^{3+}	1,14
		In^{3+}	0,92

Ion *hard* dopan dapat menghasilkan material ferroelektrik menjadi lebih *hardness*, seperti *loss dielectric* yang rendah, *bulk* resistivitas lebih rendah, sifat medan koersif lebih tinggi, faktor kualitas mekanik lebih tinggi dan faktor kualitas listrik lebih tinggi.

Tabel 2.2
Jari-jari ion (r) dopan yang dapat digunakan sebagai hard dopan
(Xu, 1991)

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	Ga^{2+}	1,41
Sc^{3+}	0,83	Cu^+	1,35
Cr^{3+}	0,64		
Mg^{2+}	0,65		

Mekanisme *soft* dopan yang menyebabkan cacat pada sistem kristalografi BST dapat dijelaskan sebagai berikut. Ion Ba^{2+}/Sr^{2+} menempati posisi A pada struktur kristal perovskite ($A^{2+}B^{4+}O_3^{2-}$), sedangkan ion Ti^{4+} menempati posisi B, maka ion *soft* dopan berperan penting dalam pembentukan ruang kosong di posisi A (*A vacancy*). Ion dengan jari-jari besar (sebanding dengan jari-jari ion Ba^{2+}/Sr^{2+}) menempati posisi A untuk menggantikan ion Ba^{2+}/Sr^{2+} . Sedangkan ion dengan jari-jari kecil (sebanding dengan jari-jari ion Ti^{4+}) menempati posisi B untuk menggantikan ion Ti^{4+} . Ion *soft* dopan seperti Nb^{5+} , Ta^{5+} , Sb^{5+} , W^{6+} mempunyai valensi lebih dari 4+, maka kelebihan muatan positif terjadi di dalam struktur perovskite dan terbentuk ruang kosong di posisi B sebagai kompensasi untuk menjaga kenetralan muatan (*electroneutrality balance*). *Donor* dopan ke dalam senyawa BST menyebabkan tidak efektifnya pembangkitan momen dipol, karena ion Ba/Sr yang jari-jari ionnya lebih besar tidak dapat mudah melompat dari posisi A ke ruang kosong posisi A (*A vacancy*), akibat terhalang secara ionik oleh oksigen pada gugus oktahedron yang jaraknya sangat berdekatan (Uchino, 2000).



Gambar 2.14
Mekanisme “kerusakan” kristal sistem kristal BST (Uchino, 2000)

Pada kasus aseptor ion dopan, ion *hard* dopan berperan penting dalam pembentukan ruang kosong di posisi ion oksigen (*O vacancy* di diagonal bidang struktur perovskite BST). Pada *hard* dopan ini, ion dengan jari-jari besar (sebanding dengan jari-jari ion Ba^{2+}/Sr^{2+}) menempati posisi A untuk

menggantikan ion Ba^{2+}/Sr^{2+} . Sedangkan ion dengan jari-jari kecil (sebanding dengan jari-jari ion Ti^{4+}) menempati posisi B untuk menggantikan ion Ti^{4+} . Ion dopan Fe^{2+} , Fe^{3+} , Co^{2+} , Co^{3+} , Mn^{2+} , Mn^{3+} , Ni^{2+} , Mg^{2+} , Al^{3+} , Ga^{3+} , In^{3+} , Cr^{3+} , Sc^{3+} mempunyai valensi kurang dari 4+, maka kekurangan muatan positif terjadi di dalam struktur perovskite dan terbentuk ruang kosong di posisi ion oksigen sebagai kompensasi untuk menjaga kenetralan muatan (*electroneutrality balance*). Aseptor dopan ke dalam senyawa BST menyebabkan sangat efektifnya pembangkitan dipole-dipole ion yang mengalami kekurangan tersebut. Dipole-dipole tersebut dibangkitkan oleh adanya ion *hard* dopan seperti Mg^{2+} (akan menarik muatan negatif) dan ruang kosong (*vacancy*) oksigen (akan menarik muatan positif). Kekurangan dan dapat dinamakan dengan istilah “kerusakan” sistem kristal ini dihasilkan pada temperatur tinggi selama proses *annealing* dan *sintering*. Ion oksigen masih terus bergerak walaupun dibawah temperatur Curie (misalnya pada temperatur kamar) karena ion oksigen dapat mudah melompat dari posisi O ke ruang kosong posisi O (O *vacancy*) yang jaraknya sangat berdekatan (Uchino, 2000). Mekanisme kedua dopan tersebut dapat dilihat pada Gambar 2.14.

Tabel 2.3.
Pendopongan pada BST

Jenis Dopan	BST	Metode deposisi	Referensi
Mn	$Ba_{0,6}Sr_{0,4}TiO_3$	PLD	Zhu et al, 2006
Nd	$Ba_{0,7}Sr_{0,3}TiO_3$	PLD	Hong-Wen, 2002
Ce	$Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$	PLD	Wang et al, 2005
Cu	$Ba_{0,7}Sr_{0,3}TiO_3$	Sol gel (CSD)	Tae Gon Ha, et al, 2006
Al	$Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$	PLD	Chong et al, 2004
Mg	$Ba_{0,3}Sr_{0,7}TiO_3$	<i>Sputtering</i>	Wang et al, 2005
	$Ba_{0,6}Sr_{0,4}TiO_3$	CSD	Cole et al, 2008
Ni	$Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$	PLD	Jeon et al, 2001
Cr	$Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$	Sol gel (CSD)	Kim et al, 2006
Nb	$Ba_{0,7}Sr_{0,3}TiO_3$	Bulk material	Garcia et al, 2001

Penambahan pendadah ion lantanum (La^{3+}) akan menggantikan posisi dari ion Ba^{2+} atau Sr^{2+} secara acak. Karena muatan La^{3+} lebih besar daripada Ba^{2+} atau Sr^{2+} sebesar satu muatan positif dan terjadi fenomena elektrostatis antara La^{3+} dengan Ti^{4+} , maka mengakibatkan terlepasnya ion barium atau strontium. Semakin banyak dopan yang diberikan maka akan semakin banyak ion barium atau strontium yang terlepas. Pemberian dopan ion donor La^{3+} ke dalam BST berfungsi untuk membuat cacat kristal dalam ion Ti^{4+} .

Beberapa penelitian dengan berbagai metode deposisi lapisan tipis telah melakukan pendopingan terhadap BST, baik dengan menggunakan *soft* dopan maupun *hard* dopan. Hal ini seperti tertera pada Tabel 2.3.

2.6 Metode Penumbuhan Lapisan Tipis BST

Ada berbagai metode penumbuhan lapisan tipis BST diantaranya metode *chemical solution deposition* (Hu-Yong et al, 2002; Lu et al, 2006; Tae et al, 2006; Kim et al, 2006; Halder et al, 2005), *metal organic chemical vapor deposition* (Cole et al, 2008; Sigman et al, 2007; Kotekcki et al, 1999; Dietz et al, 1997), *pulsed laser deposition* (Sirikulrata, 2008; Zhu et al, 2006; Lu et al, 2006; Wang et al, 2005; Jain et al, 2003; Jeon et al, 2001), *sputtering* (Podpirka et al, 2008; Baniecki et al, 2005; Fan et al, 2003; Boum et al, 2002).

Metode CSD atau bisa juga disebut metode sol gel adalah suatu metode pendeposisian lapisan yang menggunakan larutan untuk diteteskan di atas substrat. *Spin coater* adalah alat yang digunakan untuk menipiskan larutan ini di atas substrat dengan perputaran tertentu. Metode ini membutuhkan biaya murah karena dilakukan pada suhu kamar, sangat baik mengontrol komposisi dan homogenitasnya tinggi. Akan tetapi metode ini kurang baik dalam mengontrol ketebalan dan stoikiometri. Metode ini juga sangat baik untuk penelitian dan pengembangan untuk skala laboratorium.

MOCVD atau *metal organic chemical vapor deposition* adalah proses penumbuhan lapisan dalam ruang vakum dimana target berasal dari reaksi kimia pembentuk lapisan yang berada dalam suatu reaktor pada suasana plasma. Metode ini dapat mengontrol stoikiometri dengan baik, akan tetapi membutuhkan biaya yang mahal karena deposisi dilakukan dalam ruang vakum.

PLD atau *pulsed laser deposition* adalah metode deposisi lapisan tipis dalam ruang vakum yang tinggi. Dalam metode ini terjadi interaksi antara target dan laser. Laju penumbuhan lapisan mudah dikontrol sehingga stoikiometrinya mudah dikontrol. Akan tetapi metode ini membutuhkan biaya yang mahal karena dilakukan dalam ruang vakum.

Metode *sputtering* adalah memerlukan ruang vakum karena penumbuhan lapisan tipis dilakukan pada suatu reaktor dalam suasana plasma. Target akan dibombardir dengan ion-ion argon sebagai gas pembentuk plasma, dan atom-atom target akan terpercik (*ter-sputter*) dan dengan suatu beda tegangan tertentu akan menuju dan menempel di atas substrat. Metode ini dapat mengontrol stoikiometri dengan mudah akan tetapi laju penumbuhannya sangat rendah dan membutuhkan biaya mahal karena dilakukan pada ruang vakum.

2.7 Metode *Chemical Solution Deposition*(CSD)

Metode *chemical solution deposition* atau CSD adalah metode penumbuhan lapisan tipis yang dilakukan pada suhu kamar, sehingga metode ini lebih ekonomis karena tidak perlu ruang vakum. Akan tetapi metode ini sudah diakui dikalangan peneliti dan industri untuk skala laboratorium (*research and development*). Keuntungan CSD yang sangat penting adalah elemen yang dapat dibuat, dihasilkan komposisi campuran akhir pada level mekul, yang berarti waktu difusi pada film inorganik setelah *pyrolysis* untuk mencapai kondisi termodinamika, fase stabil cukup singkat, yang pada akhirnya dapat menghasilkan campuran yang homogen dan film yang tebal (Adem, 2000).

Metode ini terdiri dari tiga bagian besar, yaitu pembuatan larutan (*sol gel*) atau proses kimia dan pembuatan sampel yang disiapkan dengan metode *spin coating* (proses *metalorganik deposition*). Metode CSD sering disebut juga metode *sol gel*.

2.7.1 Proses kimia

Pembuatan larutan dilakukan dengan melihat jenis *precursor* dan pelarutnya. Antara bahan terlarut dan pelarut hendaklah sepolar agar bisa larut secara sempurna. Pada penelitian ini pembentukan larutan dari bahan-bahan

alkoxide Ba, Sr dan Ti sebagai *precursor* -nya. Secara umum hal yang penting untuk tipe *precursor* komposisi umumnya adalah $M(O-R)_n$, dimana R adalah alkali radikal (CH_3 , C_2H_5). Idialnya *precursor* yang digunakan memiliki beberapa kriteria (Halder, 2006):

- Memiliki kandungan metal yang tinggi untuk meminimalkan volume muatan selama perubahan dari larutan metalorganik menjadi lapisan anorganik.
- Memiliki daya larut yang tinggi dengan pelarut dalam proses awal pelarutan.
- Mudah untuk direaksikan secara kimia dengan senyawa yang lainnya dalam pembuatan formula.
- Mudan dan murah untuk diproduksi (tidak diperlukan system vakum yang tinggi dll).

Sedangkan kriteria untuk pelarut adalah :

- Pelarut harus memiliki laju penguapan yang tinggi, sehingga memungkinkan terjadinya penguapan yang cepat.
- Harus berhati-hati dalam pemilihan pelarut untuk menghasilkan larutan dengan konsentrasi yang tinggi, kekentalan dan tegangan permukaan.

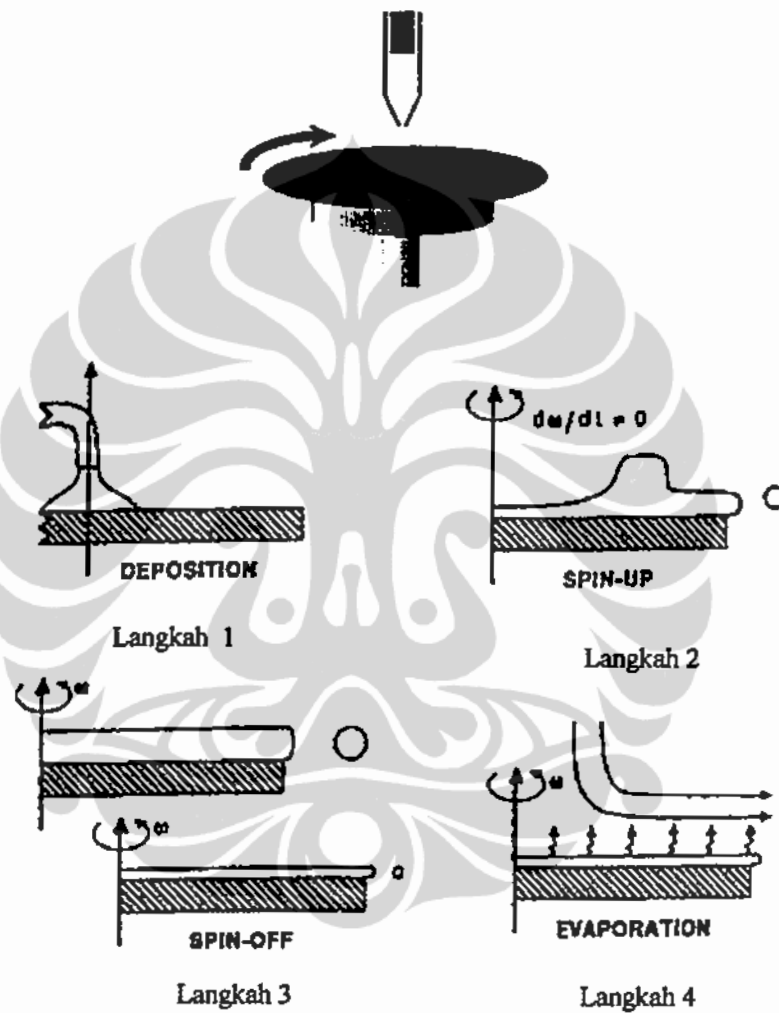
2.7.2 *Spin coating*

Pendeposisian lapisan tipis dengan metode *spin coating* telah digunakan dalam beberapa dekade. Ada empat langkah pada proses *spin coating*. Langkah ketiga dan keempat adalah langkah yang berpengaruh pada ketebalan lapisan.

Langkah pertama adalah deposisi larutan pelapis di atas permukaan substrat. Hal ini dapat dikerjakan menggunakan pipet dengan meneteskan larutan pelapis di atas substrat. Langkah kedua adalah substrat dipercepat dengan kecepatan putar tinggi (biasanya sekitar 3000 rpm) yang merupakan langkah penipisan cairan pelapis. Pada langkah ini biasanya cairan pelapis ada yang ke luar dari permukaan substrat karena adanya gerak rotasi yang menyebabkan inersia dari lapisan larutan bagian atas tidak bisa dipertahankan saat substrat berputar lebih cepat. Gambar 2.15 merupakan prinsip kerja *spin coating*.

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.



Gambar 2.15
Prinsip *spin coating* (Dongsu Kim, 2004)

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.

Setelah proses *spin coating* larutan pada substrat, terjadi proses perubahan larutan menjadi padatan melalui proses hidrolisis dan kondensasi, yang reaksinya adalah sebagai berikut:



R adalah alkali radikal (CH_3 , C_2H_5). *Organometallics* dan pelarut bereaksi membentuk M-O-M (Metal-Oxide-Metal) menjadi larutan gel. Sehingga parameter untuk kontrol larutan menjadi gel (derajat *gelation*) adalah: pelarut, suhu, dan pH. Pada proses pelapisan, homogenitas gel sangat penting. Salah satu hal yang menunjukkan bahwa salah satu keuntungan preparasi material keramik menggunakan metode *sol-gel* adalah homogenitas gel. Sedangkan untuk menghasilkan susunan atom pada fase kristal perlu dilakukan kontrol pada proses *sintering* (Adem, 2003).

BAB 3 METODE PENELITIAN

Penelitian ini dimulai sejak Oktober 2007. Deposisi lapisan barium strontium titanat (BST) dan karakterisasi dilakukan di Laboratorium Departemen Fisika FMIPA kampus UI Depok, Laboratorium Pusat MIPA Universitas Sebelas Maret Surakarta, Laboratorium Material Science kampus UI Salemba, Laboratorium Pusat MIPA UNS, Laboratorium Fismatel ITB, dan Laboratorium Fisika IPB.

3.1 Alat dan Bahan Penelitian

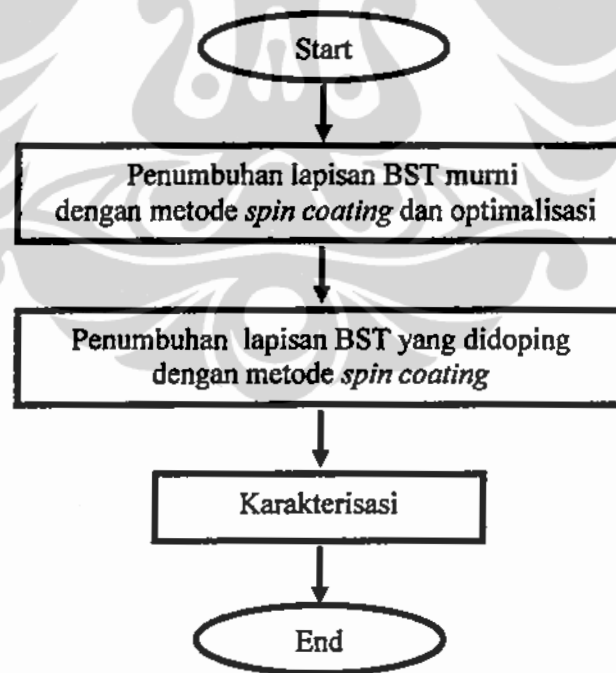
Lapisan tipis barium strontium titanat (BST) dibuat dengan metode *Chemical Solution Deposition* (CSD). Barium asetat [$\text{Ba}(\text{CH}_3\text{COOH})_2$], strontium asetat [$\text{Sr}(\text{CH}_3\text{COOH})_2$], titanium isopropksid [$\text{Ti}(\text{C}_{12}\text{O}_4\text{H}_{28})$] adalah bahan (*precursor*) yang digunakan untuk pembuatan BST. Magnesium asetat [$\text{Mg}(\text{CH}_3\text{COOH})_2$], aluminium asetat [$(\text{CH}_3\text{CO}_2)\text{AlOH}$], cupri asetat ($\text{C}_4\text{H}_8\text{O}_4\text{Cu}$), natrium asetat [CH_3COONa], indium asetat [$\text{In}(\text{C}_2\text{H}_3\text{O}_2)_3$], dan lantanum asetat [$(\text{CH}_3\text{COO})_3\text{La}\cdot x\text{H}_2\text{O}$] sebagai bahan dopan. Timbangan Sartorius digunakan untuk menimbang bahan-bahan tersebut dan pelarutnya, yaitu asam asetat (CH_3COOH) dan ethylene glycol ($\text{H}_3\text{COCH}_2\text{CH}_2\text{OH}$) yang besarnya sesuai dengan molaritas yang diinginkan. Spatula digunakan untuk mengambil bahan-bahan tersebut dan sampel. Sedangkan gelas elenmyer 25ml digunakan sebagai wadah untuk mencampur bahan-bahan tersebut di atas *hotplate magnetic stirrer* merek Barnstead Thermolyne (CIMAREC) SP131320-33Q. Kertas saring digunakan untuk menyaring larutan dan dituangkan pada tabung reaksi menggunakan corong.

Deposisi lapisan tipis BST dilakukan menggunakan *spin coating*. Larutan BST ditetaskan menggunakan pipet di atas substrat. Substrat yang digunakan adalah Si, Pt/Si, dan corning. Substrat diletakkan di atas holder menggunakan double tipe. Pengambilan sampel ini menggunakan pinset. Selanjutnya sampel dipanaskan di atas *hotplate* dan juga furnace jenis Neytech.

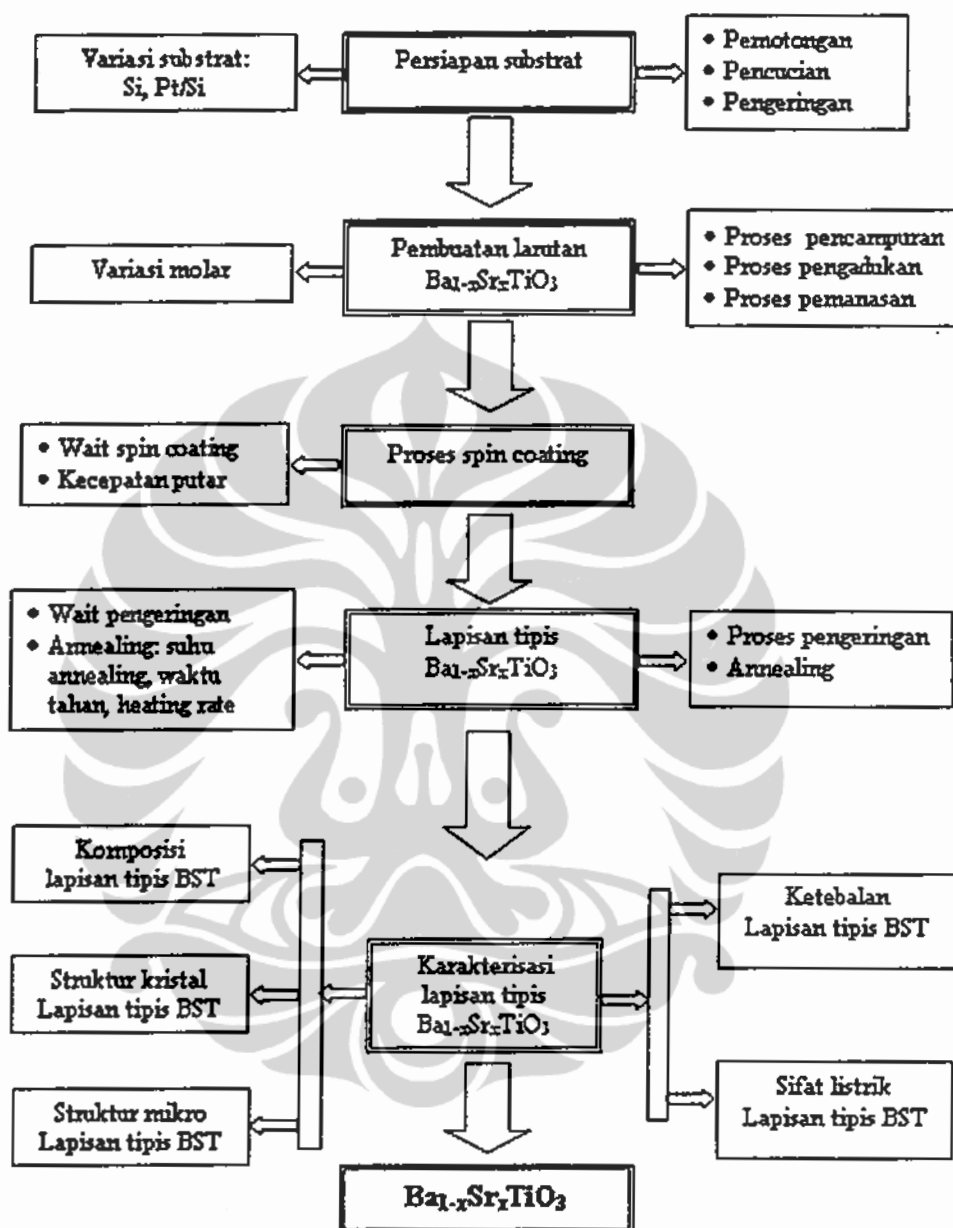
Sampel (lapisan tipis BST) dikarakterisasi unsur-unsur yang terdeposit di atas substrat dengan alat XRF merk JEOL Element Analyzer JSX-3211, struktur kristal dengan alat XRD merk Phillips Analytical PW371, morfologi dengan alat SEM merk Jeol seri JSM-5310LV, dan uji sifat listrik dengan alat Elektrometer Keithley 6517A yang telah dimodifikasi dengan program Labview.

3.2 Langkah-Langkah Penelitian

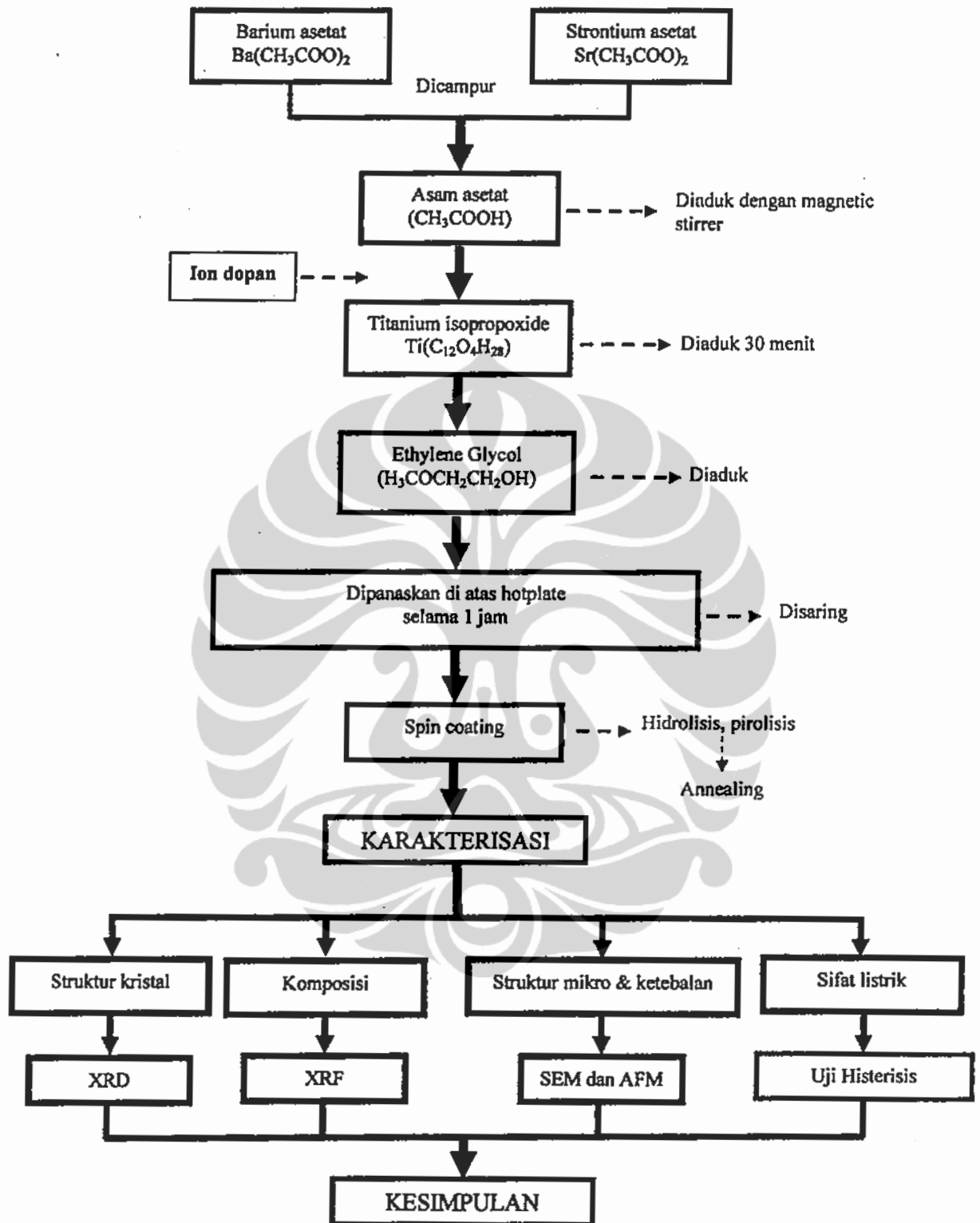
Langkah-langkah penelitian secara umum seperti pada Gambar 3.1. Langkah awal dalam penelitian ini adalah penumbuhan lapisan barium strontium titanat (BST) murni artinya tanpa penambahan doping yang menggunakan metode *spin coating*. Pada tahap ini akan dilakukan variasi-variasi beberapa parameter yang mempengaruhi hasil penumbuhan lapisan BST. Bagan penelitian parameter-parameter yang akan divariasi seperti pada Gambar 3.2. Pada akhir bagian bagan ini (Gambar 3.2) akan didapatkan optimalisasi pembuatan lapisan BST.



Gambar 3.1.
Bagan penelitian secara umum



Gambar 3.2
Bagan optimalisasi penumbuhan BST dengan metode spin coating



Gambar 3.3 Diagram alir penumbuhan BST dengan metode *spin coating*

Penumbuhan lapisan BST di atas substrat menggunakan metode *Chemical Solution Deposition* (CSD) yang disiapkan dengan *spin coating*, diawali dengan pembuatan larutan (*sol gel*) BST. Langkah-langkah penumbuhan lapisan BST secara umum seperti pada Gambar 3.3.

3.2.1 Pembuatan larutan

Barium asetat [$\text{Ba}(\text{CH}_3\text{COOH})_2$], strontium asetat [$\text{Sr}(\text{CH}_3\text{COOH})_2$], dan asam asetat (CH_3COOH) dicampur menggunakan *hotplate magnetic stirrer*. Titanium isopropksid [$\text{Ti}(\text{C}_{12}\text{O}_4\text{H}_{28})$] ditambahkan dan diaduk. Kemudian ethylene glycol ditambahkan dan diaduk hingga larutan berwarna bening.

Larutan BST dipanaskan di atas *hotplate* selama satu jam. Selanjutnya larutan didinginkan disuhu ruang kemudian disaring.

3.2.2 Pembuatan Lapisan Tipis dengan Metode *Spin Coating*

Substrat yang akan digunakan dalam penelitian ini ada dua yaitu Si dan Pt/Si. Akan tetapi seiring dengan berjalannya penelitian ini, nantinya hanya digunakan substrat Pt/Si. Sebelum dilapisi, substrat dicuci dengan metode standar.

Pada proses pelapisan, substrat ditetesi dengan larutan BST dan diproses/diputar dengan kecepatan putar tertentu selama 30 detik. Kemudian sampel dikeringkan (hidrolisis dan pirolisis) di atas *hotplate*. Pada proses *annealing*, sampel dipanasi dengan suhu *annealing* tertentu.

Setelah BST murni hasil optimalisasi didapatkan, selanjutnya dilakukan pendopingan terhadap lapisan BST. Pemberian doping dilakukan saat awal pembuatan larutan. Bahan-bahan yang akan digunakan untuk pendopingan meliputi ion *hard* dopan dan ion *soft* dopan, yaitu magnesium (Mg), aluminium (Al), tembaga (Cu), natrium (Na), indium (In), lantanum (La),

3.3 Karakterisasi

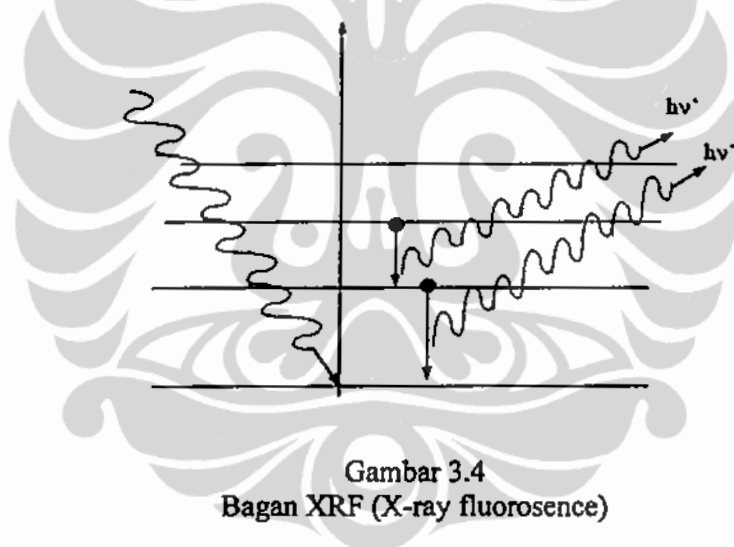
3.3.1 X-ray Fluorescence (XRF)

Prinsip dasar XRF adalah sebagai berikut: berkas sinar-X primer diarahkan mengenai sebuah sampel. Akibatnya, elektron dalam akan terpental ke luar sehingga elektron di atasnya akan turun ke bawah, proses terakhir ini akan meradiasi sinar-X.

Panjang gelombang sinar-X yang ke luar dari sampel (sinar-X sekunder, yakni fluoresensi) tergantung dari jenis sampel dan intensitasnya tergantung dari konsentrasi atom yang mengeluarkan sinar-X, sehingga teknik ini dapat digunakan untuk analisis jenis material (kualitatif) dan konsentrasi material (kuantitatif).

Intensitas fluoresensi sinar-X tergantung pada konsentrasi elemen, sehingga pengetahuan besar intensitas dapat dikaitkan untuk analisis kuantitatif. Namun hubungan antara intensitas dan konsentrasi bukan merupakan hubungan yang sederhana (bukan hubungan linier).

Radiasi fluoresensi emisi dari sampel seharusnya mempunyai intensitas setinggi-tingginya supaya pengukuran menjadi tepat pada waktu yang singkat. Intensitas yang berasal dari sampel tergantung dari panjang gelombang dan intensitas awal dari tabung sinar-X.



Gambar 3.4
Bagan XRF (X-ray fluorescence)

3.3.2 Difraksi Sinar-X (XRD)

Karakterisasi struktur kristal menggunakan difraktometer Philips PW3710 dengan target Co yang panjang gelombangnya (λ) 1,78896 Å, tegangan generator 40 kV dan arus tabung 30 mA. Sudut (2θ) dimulai 20° sampai 80° dengan *step size* $0,02^\circ$ dan *time per step* adalah 1,25 detik.

Data hasil XRD dalam bentuk data APD diolah dengan program EXPGUI-GSAS (analisis Rietveld) untuk penghalusan struktur kristal dan parameter kisi. ICDD database diperlukan untuk mencocokkan puncak-puncak

difraksi (unsur-unsur yang terdeposit pada substrat telah teridentifikasi dari data XRF). Parameter kisi dan *space group* didapatkan dari ICDD database yang diacu yang selanjutnya digunakan sebagai data masukkan untuk program GSAS. Selain itu data APD juga digunakan untuk mendapatkan data RAW menggunakan *software* Bella V2.21 serta PRM yang merupakan faktor instrumen yang digunakan dalam hal ini panjang gelombang XRD yang digunakan. Data RAW dan PRM ini juga digunakan sebagai data masukkan untuk program GSAS. Posisi atom juga diperlukan untuk data masukkan pada program ini. Posisi atom didapatkan dari *Persons Handbook* atau internet (Mincrust).

Hal yang terjadi pada karakterisasi menggunakan XRD adalah pelebaran pada puncak-puncak yang muncul. Pelebaran ini terjadi karena dipengaruhi oleh faktor fisis dan faktor instrumen. Faktor atau sifat fisis yang dimaksud adalah ukuran butir (*grain size*) dan strain mikro. Pengukuran dua parameter ini didasarkan pada hasil XRD yang didapatkan dengan menggunakan persamaan Scherrer, seperti dituliskan pada Persamaan 3.1 (Cullity, 2001).

$$B_{\text{crystal}} = \frac{K\lambda}{t \cos\theta} \tag{3.1}$$

Dimana B merupakan pelebaran kurva puncak difraksi yaitu FWHM (*Full Width Half Maximum*), t merupakan diameter rata-rata butiran, K adalah konstanta Scherrer yang nilainya berkisar 0.89 s.d 1.

Pengolahannya juga melibatkan pelebaran kurva akibat adanya strain dalam material. Pelebaran akibat strain memenuhi Persamaan 3.2.

$$B_{\text{strain}} = \eta \tan\theta \tag{3.2}$$

Dengan η merupakan parameter yang menunjukkan adanya strain.

Kedua persamaan tersebut dipadukan (diolah) menggunakan pendekatan persamaan kuadrat terkecil ($y=ax+b$), yaitu seperti pada Persamaan 3.3.

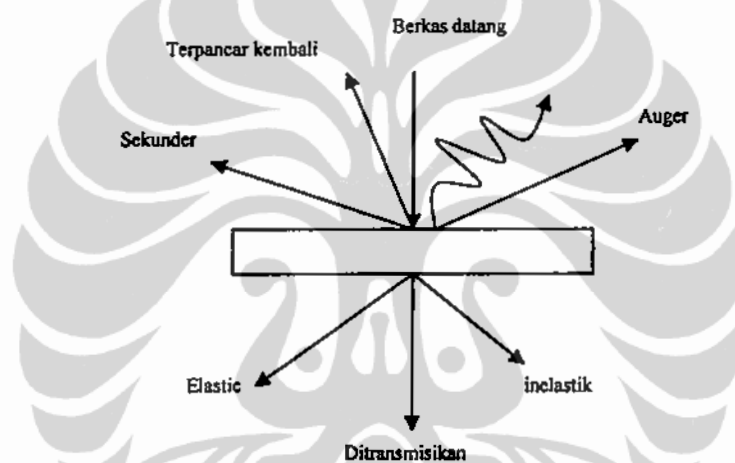
$$B, \cos\theta = \eta \sin\theta + \frac{K\lambda}{t} \tag{3.3}$$

Dengan $y = B, \cos\theta$, $a = \eta$, $x = \sin\theta$, $b = \frac{K\lambda}{t}$

3.3.3 Scanning Electron Microscopy (SEM)

Scanning Electron Microscopy (SEM) mempunyai daya resolusi yang tinggi jika dibandingkan dengan mikroskop optik. SEM menggunakan hamburan balik dan pantulan sekunder dari berkas elektron, setelah berkas elektron tersebut berinteraksi dengan materi. Hasil interaksi ditampilkan oleh gambar di bawah.

Pantulan elektron-elektron sekunder, elektron-elektron terhambur dan radiasi sinar-X karakteristik akan memberikan informasi mengenai keadaan sampel seperti bentuk permukaan (topografi) dan komposisi kimia yang dikandung sampel. Daerah sampel dengan nomor atom rata-rata tinggi akan terlihat relatif lebih terang daripada daerah dengan nomor atom rendah.



Gambar 3.5
Hasil interaksi berkas elektron dengan materi (Smallman, 1991)

Setelah radiasi sinar-X karakteristik dipancarkan oleh sampel ditangkap detektor, dapat memberikan informasi secara kualitatif dan kuantitatif Tentang komposisi kimia dari sampel pada daerah yang sangat kecil.

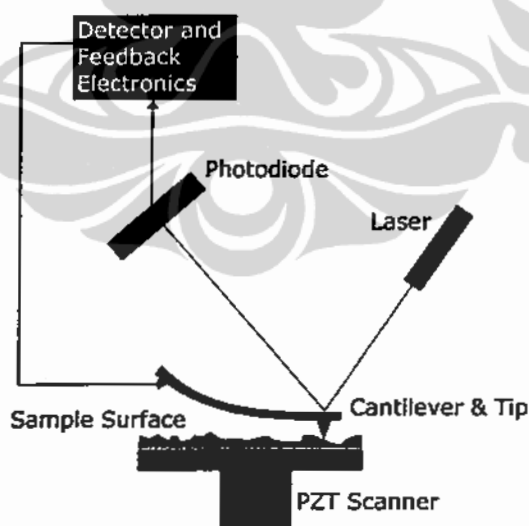
3.3.4 FTIR (*Fourier Transform Infra Red*)

Fourier Transform Infra Red (FTIR) adalah suatu alat yang dapat digunakan untuk mengetahui ikatan dalam suatu molekul yang bergetar akibat adanya frekuensi. Prinsip kerja dari alat ini seperti menggunakan prinsip

interferometer Michelson. Ada dua lensa yang digunakan dan diperlukan sumber cahaya yang koheren. Prinsip karakterisasi FTIR adalah penyerapan energi (atau frekuensi) tertentu dalam hal ini radiasi infra merah oleh molekul yang mengakibatkan vibrasi pada ikatan molekul. Spektrum yang keluar dari karakterisasi menggunakan alat ini adalah bilangan gelombang sebagai variabel bebas dan transmitansi (%) sebagai variabel tak bebasnya.

3.3.5 AFM (*Atomic Force Microscope*)

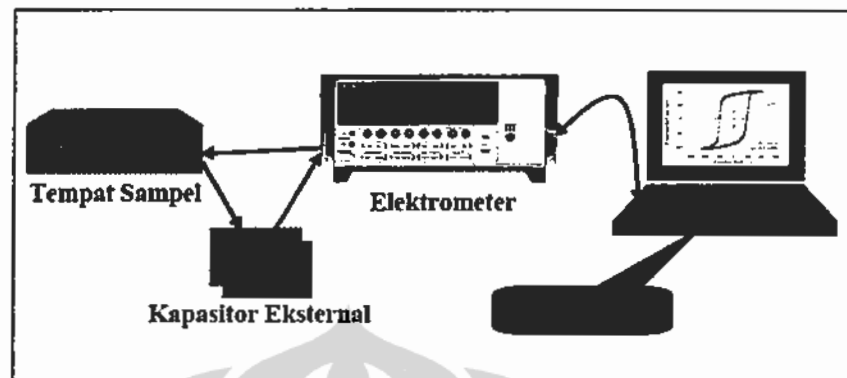
Atomic Force Microscope (AFM) adalah alat yang digunakan untuk mengukur dan membuat gambar (morfologi) dari material tertentu dengan skala nano. Alat ini terdiri dari mikro *cantilever* dengan probe (*tip*) yang tajam untuk men-*scan* permukaan dari sampel yang ukurannya nano. Prinsip kerja dari AFM seperti diilustrasikan Gambar 3.6. Sinar laser dijatuhkan di atas *cantilever*, dan *cantilever* yang sebagai probe ini akan men-*scan* kontur permukaan sampel dan akan direfleksikan ke fotodioda. Sinar ini akan tertangkap detektor dan dirubah dalam bentuk kontur (mofologi) dari sampel.



Gambar 3.6

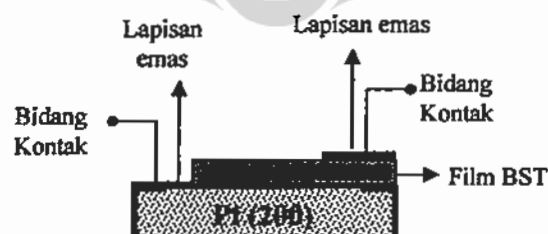
Blok diagram prinsip kerja AFM (www.wikipedia.com)

3.3.6 Uji histerisis



Gambar 3.7
Blok diagram pengukuran kurva histerisis

Karakterisasi sifat ferroelektrik film tipis BST dilakukan menggunakan alat elektrometer Keithley 6517A yang telah dimodifikasi dengan program LabVIEW dan beberapa komponen lainnya. Pengukuran ini bertujuan untuk mendapatkan nilai polarisasi spontan (P_s), polarisasi remanen (P_r), dan medan koersif (E_c) dari lapisan tipis. Sampel yang akan diuji sebelumnya dibuat elektroda (bidang kontak) aluminium dengan metode evaporasi yang dilakukan di Laboratorium Fismatel Departemen Fisika ITB. Gambar 3.7 adalah blok diagram pengukuran kurva histerisis. Sedangkan sampel di persiapkan seperti pada Gambar 3.8



Gambar 3.8
Struktur uji ferroelektrik pada substrat

BAB 4 PEMBAHASAN

Penelitian yang dilakukan meliputi optimalisasi penumbuhan lapisan tipis barium strontium titanat dengan metode *Chemical Solution Deposition* yang disiapkan *spin coating* dan pendopongan pada BST. Optimalisasi yang dilakukan meliputi:

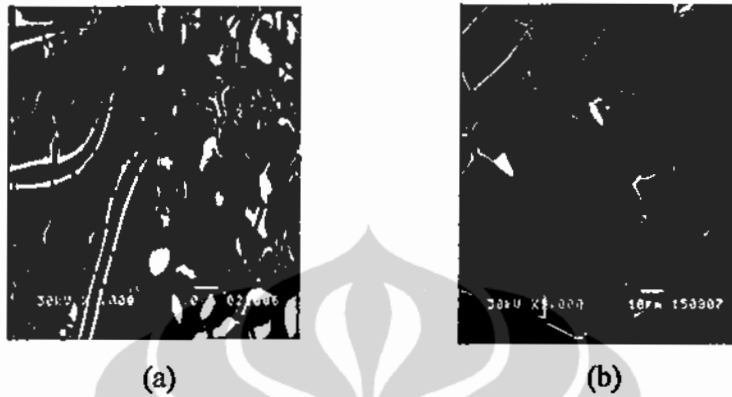
- variasi pelarut
- variasi substrat
- variasi jumlah lapisan
- variasi kecepatan putar
- variasi *annealing* yang meliputi suhu, waktu tahan, *heating rate*, step penahanan

Pendopongan yang dilakukan pada BST meliputi: ion *hard* dopan yaitu magnesium (Mg), aluminium (Al), tembaga (Cu), dan natrium (Na), serta ion *soft* dopan yaitu indium (In), lantanum (La).

4.1 Variasi Pelarut

Awal pembuatan larutan BST menggunakan pelarut 2-metoksietanol. Hal ini mengacu pada penelitian terdahulu (Hikam dkk, 2000). Akan tetapi bahan-bahan yang digunakan (*precursor*) yaitu barium asetat, strontium asetat, dan titanium isopropoksida tidak bisa larut sehingga lapisan BST yang didapatkan mudah hilang (rontok), seperti diperlihatkan pada Gambar 4.1. Hal ini disebabkan karena antara bahan pelarut dan terlarut tidak sepolar sehingga bahan terlarut tidak dapat larut sempurna melainkan emulsi. Oleh karena itu peneliti merubahnya dengan mengacu paper yang telah dilakukan oleh peneliti lain (Adem, 2003; Hu-Yong et al, 2002). Hasil yang didapatkan bahan-bahan yang digunakan untuk membuat larutan BST (*precursor*), larut secara sempurna. Hal ini berarti antara bahan terlarut dan pelarut sepolar. Ethylene glycol yang selain berfungsi sebagai pelarut juga berfungsi mencegah terjadinya *crack*.

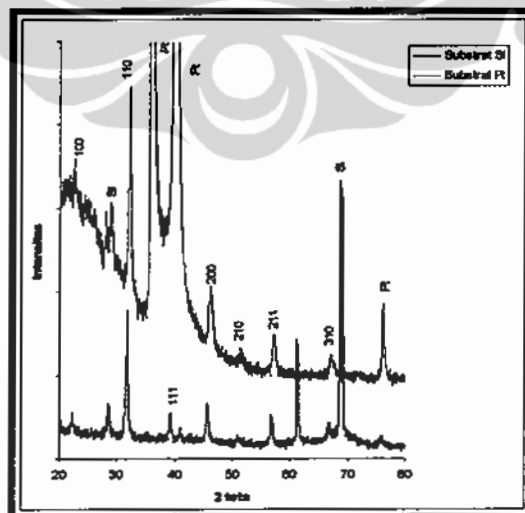
Gambar 4.1 adalah hasil foto SEM lapisan BST yang ditumbuhkan di atas substrat Pt/Si. Gambar (a) larutan yang dibuat menggunakan pelarut 2-metoksietanol dan gambar (b) menggunakan pelarut asam asetat.



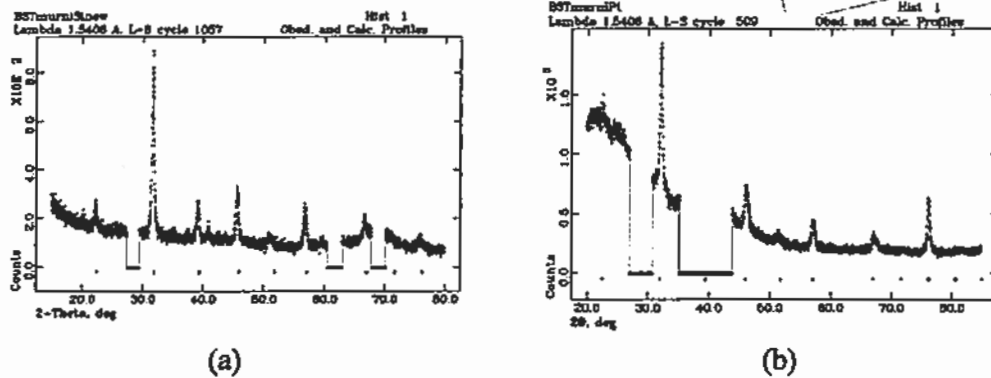
Gambar 4.1
Foto SEM lapisan BST dengan pelarut yang berbeda
(a) metoksi etanol (b) asam asetat

4.2 Variasi Substrat

Substrat yang digunakan pada penelitian ini ada dua macam yaitu, Si dan Pt. Alasan penggunaan substrat ini selain untuk melihat tingkat kekristalan BST yang terbentuk di atas substrat juga untuk mengukur sifat listrik dari lapisan tipis BST.



Gambar 4.2
Pola difraksi variasi substrat Si dan Pt/Si



Gambar 4.3 Penghalusan pola difraksi variasi substrat dengan GSAS
(a) Substrat Si (b) Substrat Pt/Si

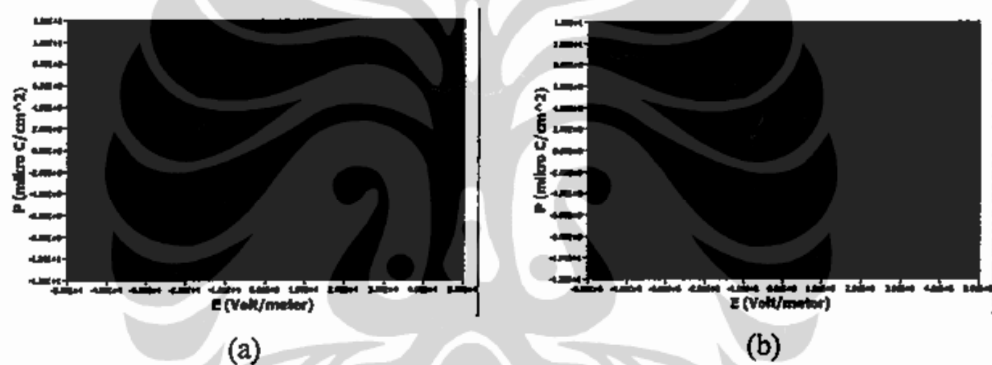
Gambar 4.2 menunjukkan pola difraksi dari karakterisasi XRD variasi kedua substrat untuk BST murni. Dari kedua substrat yang digunakan, penumbuhan kristal BST telah berhasil dilakukan. Hal ini ditandai dengan munculnya puncak-puncak yang jika dicocokkan dengan ICDD *database* adalah milik BST. Hampir semua puncak milik BST muncul baik pada substrat Si maupun Pt. Hal ini diperkuat dengan hasil penghalusan menggunakan *software* GSAS yang disajikan pada Gambar 4.3. Jika dilihat dari besarnya intensitas pada puncak-puncak milik BST, substrat Si lebih tinggi daripada substrat Pt. Pada substrat Pt, ada beberapa sudut BST yang hampir sama dengan Pt sehingga puncak BST tidak nampak karena tertumpuk. Hal ini terjadi pada sudut 39^o.



Gambar 4.4 Foto SEM untuk variasi substrat
(a) substrat Si (b) substrat Pt

Akan tetapi hasil foto SEM menunjukkan permukaan substrat masih retak baik pada substrat Si maupun Pt. Hal ini seperti terlihat pada Gambar 4.4.

Gambar 4.5 adalah kurva histerisis kedua substrat untuk parameter penumbuhan sama, yaitu suhu *annealing* 800^oC selama 3 jam dengan *heating rate* 5^oC/menit. Nampak medan koersif untuk substrat Si lebih besar jika dibandingkan dengan substrat Pt. Tegangan luar yang diberikan untuk kedua substrat ini berbeda, Pt memerlukan tegangan luar maksimal 2,5 volt sedangkan Si tegangan maksimal yang diberikan 35 volt. Hal ini disebabkan substrat Si merupakan bahan semikonduktor sedangkan substrat Pt merupakan konduktor, sehingga substrat Si memerlukan tegangan yang besar untuk menghasilkan polarisasi sedangkan untuk substrat Pt justru sebaliknya, memerlukan tegangan yang lebih rendah.



Gambar 4.5 Kurva histerisis lapisan tipis BST untuk variasi substrat
(a) Pt/Si (b) Si

4.3 Variasi Jumlah Lapisan

4.3.1 Analisa komposisi

Variasi jumlah lapisan dimaksudkan untuk mendapatkan ketebalan lapisan tipis BST yang diinginkan. Dengan perlakuan hidrolisis dan pirolisis dimaksudkan untuk menghilangkan air dan bahan organik sehingga antara lapisan satu dan lainnya menyatu. Makin banyak jumlah lapisan makin banyak pula unsur pembentuk BST (barium, strontium, dan titanium) yang terdeposit di atas substrat.

Jumlah lapisan yang terdepositasi pada substrat Si sangat mempengaruhi ketebalan, persen berat (wt%), dan hasil XRD. Jumlah lapisan divariasi dari 1 lapis hingga 5 lapis. Hasil XRF untuk persen berat (wt%) dan persen atom (at%)

seperti pada Tabel 4.1 dan Tabel 4.2. Dari kedua tabel tersebut nampak bahwa makin banyak lapisan makin banyak unsur-unsur pembentuk BST yang terdeposit pada substrat Si.

Tabel 4.1
Hasil XRF (wt%) variasi jumlah lapisan BST

Sampel \ Unsur	Si (Wt %)	Ba (Wt %)	Sr (Wt %)	Ti (Wt %)
1 lapis	97,0026	1,8182	0,0479	1,1313
2 lapis	92,7310	4,6769	0,1344	2,4577
3 lapis	88,6136	7,1763	0,2153	3,9947
4 lapis	82,9713	10,7568	0,4321	5,8398
5 lapis	80,4341	11,1370	0,5294	6,8995

Dari Tabel 4.1 nampak bahwa persen berat (wt%) barium (Ba) lebih besar jika dibandingkan dengan strontium (Sr) maupun titanium (Ti). Hal ini disebabkan karena barium mempunyai berat atom lebih besar jika dibandingkan dengan strontium dan titanium. Persen berat strontium lebih kecil jika dibandingkan dengan persen berat titanium, karena massa barium asetat yang diperlukan untuk membuat larutan BST lebih sedikit jika dibandingkan dengan Ti.

Tabel 4.2
Hasil XRF (At%) variasi jumlah lapisan BST

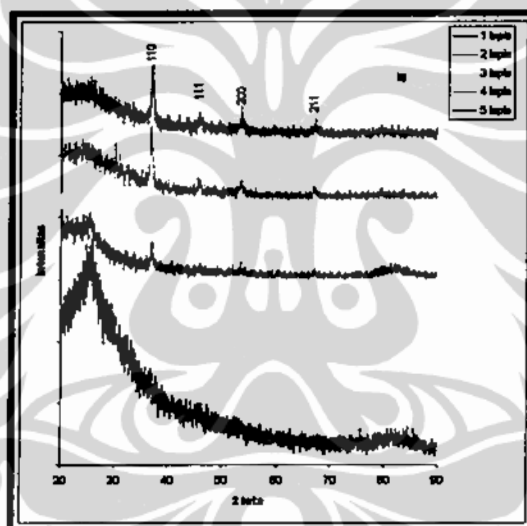
Sampel \ Unsur	Si (At %)	Ba (At %)	Sr (At %)	Ti (At %)
1 lapis	98,9286	0,3792	0,0157	0,6765
2 lapis	97,4356	1,0050	0,0453	1,5142
3 lapis	95,8063	1,5867	0,0746	2,5324
4 lapis	93,5059	2,4791	0,1561	3,8589
5 lapis	92,6158	2,5982	0,1930	4,6010

Pada Tabel 4.2, persen atom (At%) titanium lebih besar jika dibandingkan dengan kedua unsur yang lain, yaitu barium dan strontium. Hal ini disebabkan karena perbandingan atom dalam $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$, atom titanium dua kali lipat dari

atom barium dan strontium. Hal inilah yang mempengaruhi banyaknya atom titanium.

4.3.2 Analisis struktur kristal

Hasil pengujian struktur kristal dengan peralatan XRD seperti pada Gambar 4.6. Pola difraksi yang ditampilkan pada gambar tersebut menunjukkan makin banyak jumlah lapisan makin banyak puncak yang muncul dan juga makin tinggi intensitas pada orientasi bidang tertentu. Hal ini disebabkan makin banyaknya unsur-unsur pembentuk BST yang terdeposit pada substrat Si sehingga probabilitas unsur-unsur tersebut berikatan membentuk BST pada orientasi bidang-bidang tertentu makin besar.



Gambar 4.6
Pola difraksi lapisan BST untuk variasi jumlah lapisan

Hasil karakterisasi struktur kristal ini setelah dicocokkan dengan ICDD (PDF #391395), puncak-puncak yang muncul adalah milik BST. Hal ini juga diperkuat dengan hasil GSAS, seperti pada lampiran Bidang-bidang BST yang muncul adalah (100), (111), (200), (211), dan (310).

Hasil foto SEM seperti ditunjukkan pada Gambar 4.4. Meskipun bahan-bahan yang dilarutkan sudah larut secara sempurna akan tetapi permukaan lapisan tipis BST masih *crack*. Penulis menduga karena furnace yang digunakan

pendinginannya terlalu cepat, sehingga untuk *annealing* digunakan jenis furnace lain yang menekan pendinginan secara perlahan-lahan.



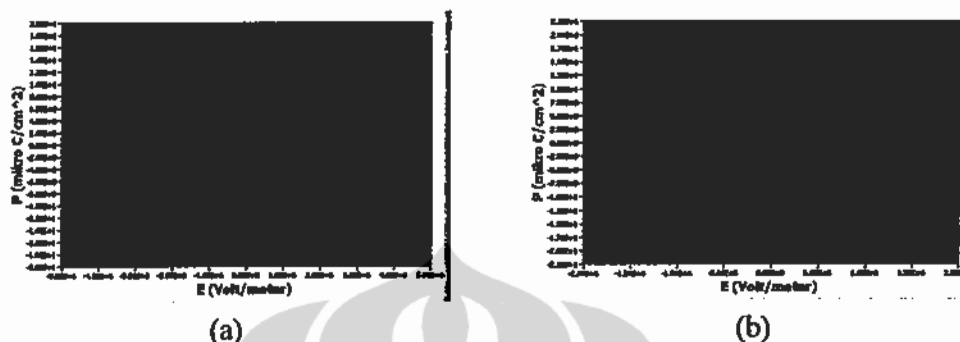
Gambar 4.7
Foto SEM lapisan tipis BST untuk variasi jumlah lapisan
(a) 1 lapis (b) 3 lapis

Variasi jumlah lapisan dilakukan lagi untuk melihat kerataan dari lapisan tipis yang terbentuk. Gambar 4.7 adalah hasil foto SEM untuk variasi jumlah lapisan pada BST yang ditumbuhkan di atas substrat Pt/Si dengan kecepatan putar 3000 rpm, suhu *annealing* 800°C selama 3 jam dan kecepatan pemanasan 2°C/menit dengan menggunakan furnace jenis Neytech. Terlihat bahwa lapisan tipis BST yang terbentuk di atas substrat Pt/Si telah rata baik yang satu lapis maupun tiga lapis, sangat berbeda sekali jika dibandingkan dengan Gambar 4.4. Hal ini diduga karena pengaruh *furnace* yang digunakan yaitu *furnace* dengan merk Neytech lebih tertutup jika dibandingkan dengan Nabertherm, sehingga saat pendinginan dalam penyesuaian dengan suhu ruang secara perlahan-lahan.



Gambar 4.8
Foto SEM tampak lintang dari lapisan tipis BST di atas substrat Pt/Si

Foto SEM tampang lintang (*cross section*) dari sampel untuk mendapatkan ketebalan lapisan seperti ditampilkan pada Gambar 4.8. Ketebalan yang diperoleh untuk tiga lapis sekitar 900 nm, sehingga untuk satu lapis sekitar 300 nm.



Gambar 4.9 Kurva histerisis lapisan tipis BST untuk variasi jumlah lapisan
(a) 1 lapis (b) 3 lapis

Hasil pengujian sifat listrik dalam hal ini terbentuknya kurva histerisis, yang menunjukkan karakter material ferroelektrik. Pada saat sampel diberikan tegangan (medan listrik dari luar) menyebabkan meningkatnya polarisasi hingga mencapai kejenuhan atau saturasi. Setelah medan listrik diiadakan, polarisasi akan menurun, akan tetapi saat medan listrik sampai nol masih ada sisa polarisasi yang disebut polarisasi remanen. Medan listrik yang dibutuhkan untuk mereduksi polarisasi ke nilai nol dinyatakan dalam medan koersif. Dari pengujian ini akan didapatkan besarnya polarisasi baik polarisasi spontan (P_s) maupun polarisasi remanen (P_r) serta medan koersif (E_c), untuk variasi *heating rate* seperti disajikan pada Gambar 4.9. Dari kedua gambar tersebut, nampak bahwa kurva histerisis telah terbentuk dengan sempurna. Hal ini juga menandakan bahwa lapisan tipis BST yang terbentuk bersifat ferroelektrik, karena adanya polarisasi spontan.

Tabel 4.3
Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif
lapisan tipis BST untuk variasi jumlah lapisan

Sampel	P_s (+) ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	P_s (-) ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	P_r (+) ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	P_r (-) ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	E_c (+) (V/m)	E_c (-) (V/m)
1 lapis	18,0263	18,1131	14,2851	14,1161	1,31185E+6	1,31559E+6
3 lapis	25,1658	24,0536	18,6864	18,2201	441525	451825

Tabel 4.3 adalah besarnya polarisasi spontan, remanen dan medan koersif hasil pembentukan kurva histerisis pada Gambar 4.9 untuk variasi jumlah lapisan. Nampak bahwa makin banyak jumlah lapisan (makin tebal lapisan tipis BST) polarisasi cenderung naik baik polarisasi spontan maupun polarisasi remanen. Ketebalan lapisan bertambah (makin banyak jumlah lapisan) mengakibatkan densitas dipole bertambah, yang mana ini akan meningkatkan densitas polarisasi. Sedangkan medan koersif makin kecil seiring bertambahnya jumlah lapisan. Hal ini disebabkan makin banyak jumlah lapisan makin berkurang anisotrop lapisan tipis tersebut yaitu makin banyak dipole-dipole dalam material tersebut memilih ke arah tertentu akibatnya medan yang dibutuhkan untuk mengembalikan polarisasi bernilai nol berkurang.

4.4 Variasi Kecepatan Putar

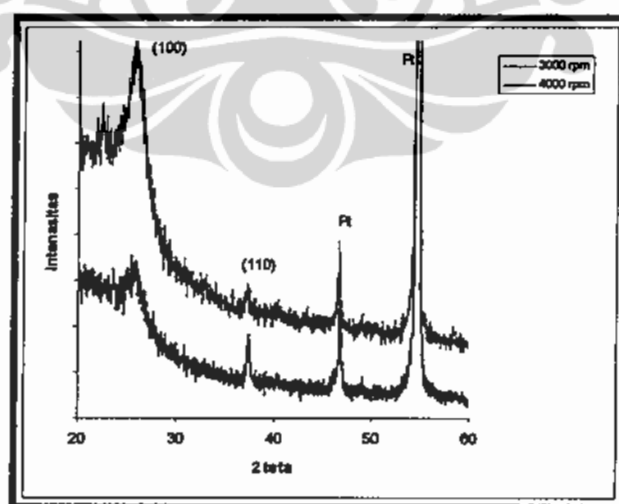
Kecepatan putar untuk masing-masing sampel atau material berbeda-beda. Hal ini juga dipengaruhi oleh kekentalan dari larutan yang dibuat dan bahan-bahan dasar (*precursor*) serta pelarutnya. Kecepatan putar divariasi 3000 rpm dan 4000 rpm. Kecepatan putar kurang dari 3000 rpm (1500 rpm dan 2000 rpm) pernah kami lakukan. Hasil yang didapatkan secara kasat mata nampak larutan susah mengering (larutan di atas substrat menjadi gel). Sampel tersebut dipanasi di atas *hotplate* susah kering. Setelah di-*annealing* menggunakan *furnace* lapisan *crack*. Kecepatan putar 3000 dan 4000 perbedaan secara kasat mata adalah pada gradasi warna kedua sampel, hal ini berhubungan dengan kerataan lapisan tipis di atas substrat.

Gambar 4.10 adalah foto SEM untuk variasi kecepatan putar 3000 rpm dan 4000 rpm pada lapisan tipis BST yang ditumbuhkan di atas substrat Pt/Si dengan suhu *annealing* 800°C selama 3 jam dengan kecepatan pemanasan 2°C/menit. Nampak bahwa pada perbesaran 5000x pada kedua sampel sudah tidak ada *crack*. Kerataan terlihat pada kedua sampel. Sampel yang kecepatan putarnya 3000 rpm (a) lebih halus jika dibandingkan dengan yang 4000 rpm (b).



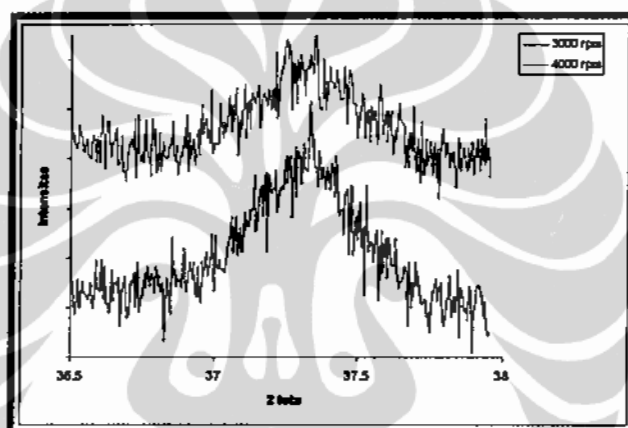
Gambar 4.10
Foto SEM lapisan tipis BST untuk variasi kecepatan putar
(a) 3000 rpm (b) 4000 rpm

Hasil karakterisasi menggunakan peralatan XRD seperti ditampilkan Gambar 4.11. Pola difraksi dari gambar tersebut menunjukkan adanya dua puncak milik BST yang muncul merupakan bidang (100) dan (110) setelah dicocokkan dengan data ICDD (PDF #391395). Hasil XRD menunjukkan untuk kecepatan putar proses *spin coating* makin besar mengakibatkan intensitas pada orientasi bidang tertentu makin berkurang. Hal ini disebabkan makin tinggi kecepatan putar makin banyak larutan yang terlempar ke luar sehingga makin sedikit larutan BST yang berada di atas substrat akibatnya berpengaruh terhadap intensitas.



Gambar 4.11
Pola difraksi lapisan tipis BST untuk variasi kecepatan putar

Ukuran butir dapat dilihat dari hasil XRD. Bidang (110), pada sudut $37,3$ diambil untuk menghitung ukuran butir. Persamaan Scherrer digunakan untuk menghitung ukuran butir dengan melibatkan faktor instrumen. Ukuran butir yang didapatkan untuk kecepatan putar 3000 rpm adalah 25 nm, sedangkan untuk kecepatan putar 4000 rpm adalah 23 nm. Hasil XRD untuk variasi kecepatan putar pada lapisan tipis BST bidang (110) seperti pada Gambar 4.12. Nampak bahwa makin tinggi kecepatan putar intensitas makin berkurang. Hal ini disebabkan karena kecepatan putar makin cepat makin tipis lapisan yang berarti jumlah atom-atom penyusun BST makin sedikit. Akibatnya probabilitas pembentukan BST berkurang yang mempengaruhi intensitas hasil XRD.



Gambar 4.12
Pola difraksi variasi kecepatan putar pada lapisan tipis BST untuk bidang (110)

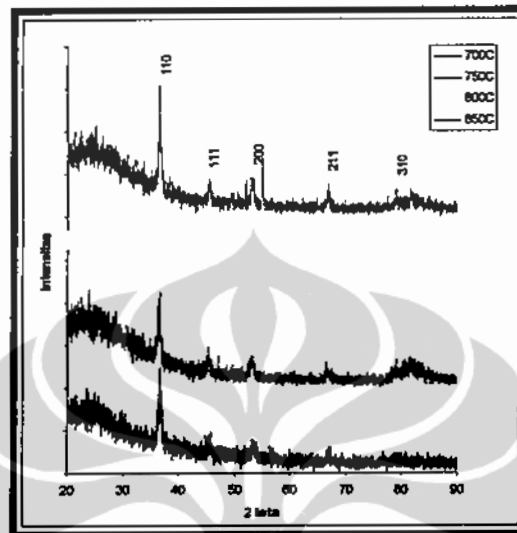
4.5 Variasi Perlakuan *Annealing*

Perlakuan panas pada material berfungsi untuk meningkatkan kekristalan. Proses perlakuan panas yang dilakukan terhadap lapisan BST adalah *annealing*. Pada proses *annealing* yang divariasi meliputi suhu, waktu tahan, *heating rate*, dan step penahanan.

4.5.1 Variasi suhu *annealing*

Masing-masing variasi proses *annealing* kemudian dikarakterisasi menggunakan seperangkat alat XRD untuk melihat struktur kristal yang terbentuk.

Puncak-puncak yang muncul pada hasil XRD teridentifikasi sebagai puncak dari BST dan ada beberapa milik substrat, setelah dicocokkan dengan data ICDD (PDF #391395).



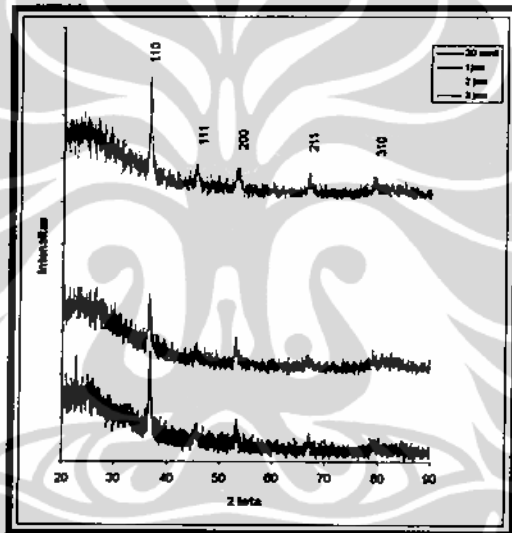
Gambar 4.13
Pola difraksi lapisan tipis BST untuk variasi suhu annealing

Suhu *annealing* divariasi dari suhu 700°C hingga 850°C dengan waktu tahan 3 jam. Hasil XRD seperti ditampilkan pada Gambar 4.13. Makin tinggi suhu makin tinggi intensitas pada semua puncak. Pada suhu 700°C nampak ada beberapa puncak BST yang tidak muncul. Pada suhu 750°C puncak-puncak BST sudah muncul semua akan tetapi dengan intensitas yang lebih kecil jika dibandingkan dengan suhu 800°C. Pada suhu 850°C puncak-puncak BST muncul dengan intensitas setinggi intensitas pada suhu 800°C, akan tetapi puncaknya tidak sesempurna seperti suhu 800°C. Bidang (110) adalah bidang dengan intensitas paling tinggi. Pada variasi suhu, terlihat bahwa suhu 800°C merupakan suhu optimal jika dibandingkan dengan suhu lainnya.

4.5.2 Variasi waktu tahan

Variasi waktu tahan dimulai dari 30 menit, 1 hingga 3 jam dengan suhu tetap yaitu 800°C. Karakterisasi menggunakan peralatan XRD untuk melihat struktur kristal dari lapisan BST yang terbentuk. Dari ICDD *database*

menunjukkan bahwa puncak-puncak yang muncul adalah milik BST. Hasil yang didapatkan, makin tinggi waktu tahan maka makin tinggi intensitas pada bidang atau sudut tertentu. Hal ini disebabkan, makin lama waktu penahanan pada suhu tertentu mengakibatkan difusi pada sampel makin lama, mengakibatkan makin besar probabilitas terbentuknya BST pada suatu bidang tertentu. Waktu tahan 3 jam adalah waktu yang paling optimal untuk mendapatkan tingkat kekristalan BST yang lebih tinggi. Gambar 4.14 menyajikan pola difraksi lapisan BST untuk variasi waktu penahanan pada suhu 800°C. Nampak pada gambar tersebut, waktu penahanan kurang dari 3 jam ada beberapa puncak yang tidak muncul dan intensitas untuk puncak-puncak yang muncul tidak terlalu tinggi.

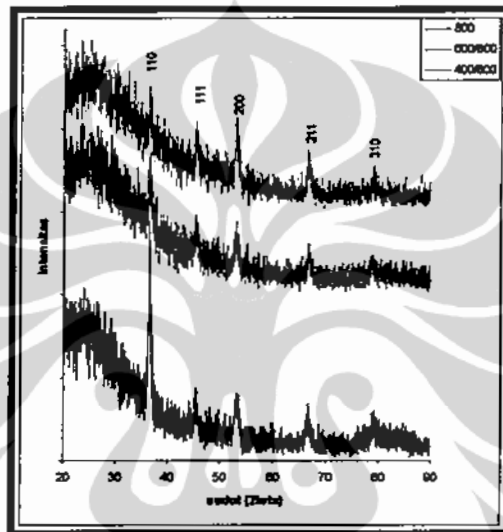


Gambar 4.14
 Pola difraksi lapisan BST untuk variasi waktu tahan

4.5.3 Variasi step penahanan

Variasi step penahanan pada proses *annealing* yang dilakukan adalah suhu dan waktu penahan saat difurnace. Gambar 4.15 adalah hasil tiga variasi step penahanan. Warna biru adalah perlakuan *annealing* dengan suhu 800°C dengan waktu tahan 3 jam dan *heating rate* 10°C. Warna merah muda adalah perlakuan *annealing* dengan suhu 600°C ditahan selama 1 jam, kemudian dinaikkan lagi hingga 800°C dengan *heating rate* 10°C. Warna hijau adalah perlakuan *annealing*

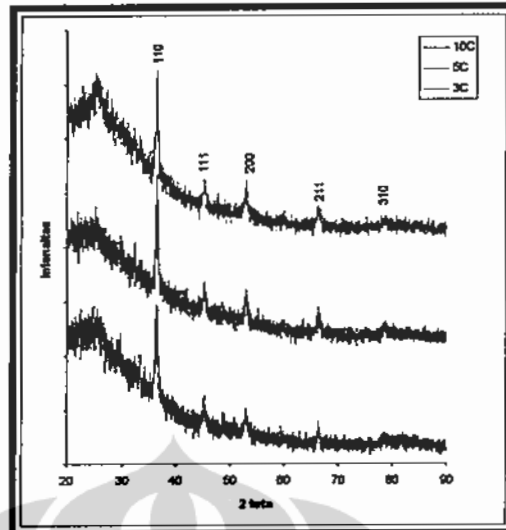
dengan suhu 400°C ditahan selama 1 jam, kemudian dinaikkan lagi hingga 800°C dengan *heating rate* 10°C . Dari ketiga variasi ini yang paling optimal adalah yang dilakukan langsung pada suhu 800°C dan ditahan selama tiga jam. Hal ini dilihat dari hasil karakterisasi menggunakan peralatan XRD. Meskipun pada perlakuan *annealing* $600^{\circ}\text{C}/800^{\circ}\text{C}$ dan $400^{\circ}\text{C}/800^{\circ}\text{C}$ muncul puncak-puncak yang teridentifikasi milik BST, akan tetapi intensitasnya tidak sebesar pada perlakuan *annealing* yang langsung dinaikkan pada suhu 800°C dan ditahan selama 3 jam.



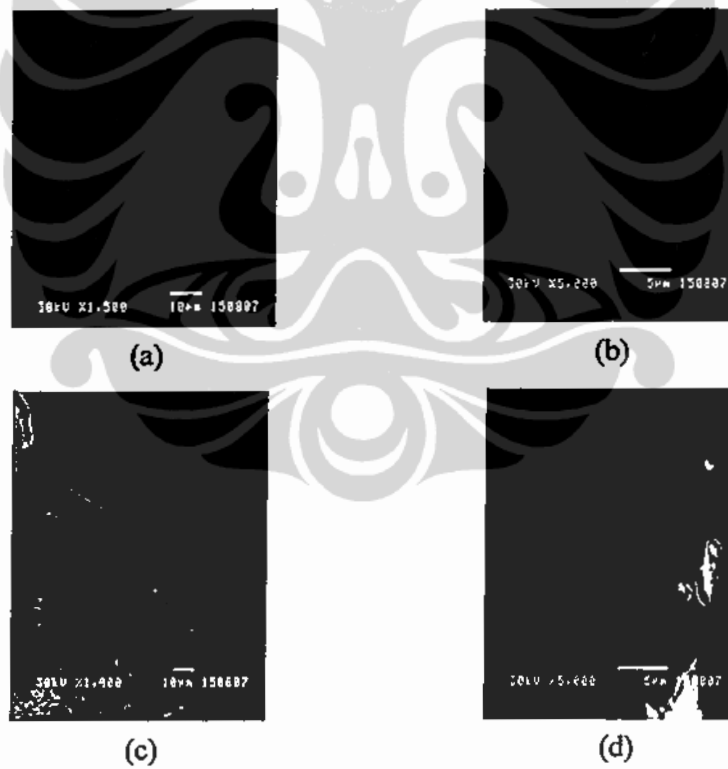
Gambar 4.15
Pola difraksi variasi lapisan tipis BST
untuk step penahanan proses *annealing*

4.5.4 Variasi *heating rate*

Heating rate sangat berpengaruh sekali pada pembentukan kristal suatu material. Ada tiga *variasi heating rate* yang dilakukan, yaitu $3^{\circ}\text{C}/\text{menit}$, $5^{\circ}\text{C}/\text{menit}$, dan $10^{\circ}\text{C}/\text{menit}$. Hasil karakterisasi struktur kristal yang menggunakan peralatan XRD untuk variasi *heating rate* yang telah dilakukan menunjukkan hasil yang hampir sama tingkat kekristalannya, baik dari segi intensitas maupun jumlah puncak yang muncul. Hal ini seperti disajikan pada Gambar 4.16.



Gambar 4.16
Pola difraksi lapisan BST untuk variasi *heating rate*



Gambar 4.17
Foto SEM lapisan tipis BST untuk variasi *heating rate*
(a) 1^oC/menit (b) 2^oC/menit (c) 4^oC/menit (d) 5^oC/menit

Foto SEM seperti yang ditunjukkan pada Gambar 4.4, nampak bahwalapisan tipis BST masih *crack*. Variasi *heating rate* dilakukan lagi menggunakan furnace Naytech yang menekan pendinginan secara perlahan-lahan. Hasil foto SEM untuk variasi *heating rate* ini seperti disajikan pada Gambar 4.17. Variasi *heating rate* yang dilakukan adalah 1°C/menit, 2°C/menit, 3°C/menit, dan 5°C/menit. Secara keseluruhan keempat variasi *heating rate* tersebut hampir tidak ada *crack*, jika ada seperti pada Gambar (c) dan (d) itu karena kesalahan dalam pengambilan sampel menggunakan spatula.

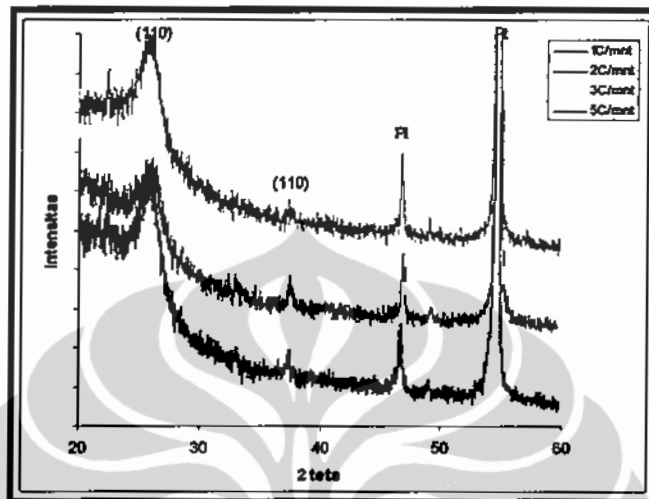
Foto SEM digunakan hanya untuk melihat morfologi permukaan lapisan tipis BST, apakah masih ada *crack* ataukah tidak. Untuk melihat ukuran butir lapisan tipis BST, SEM yang ada tidak mampu melakukannya, karena butiran berukuran nano. Akan tetapi ada satu sampel lapisan tipis BST yang di-*annealing* pada suhu 800°C selama 3 jam dengan *heating rate* 2°C/menit yang berhasil diambil dengan perbesaran 35000 x. Ukuran butir dari lapisan tipis BST ini kurang dari 100 nm. Hal ini seperti disajikan pada Gambar 4.18.



Gambar 4.18
Foto SEM lapisan tipis BST dengan perbesaran 35000x

Pola difraksi hasil karakterisasi XRD untuk mengetahui struktur kristal dari lapisan tipis BST seperti ditampilkan pada Gambar 4.19. Beberapa puncak yang teridentifikasi sebagai puncak BST setelah dicocokkan dengan data ICDD (PDF #391395), selain itu ada juga puncak yang teridentifikasi sebagai substrat Pt. Berbeda dengan pola difraksi pada Gambar 4.16, beberapa puncak milik BST banyak yang muncul. Hal ini disebabkan karena, data terdahulu lapisan yang

dibuat ada 5 lapis, sedangkan Gambar 4.19 adalah sampel lapisan BST 3 lapis. Ini mempengaruhi intensitas dari puncak yang muncul karena jumlah lapisan mempengaruhi unsur-unsur pembentuk BST yang terdeposit di atas substrat.

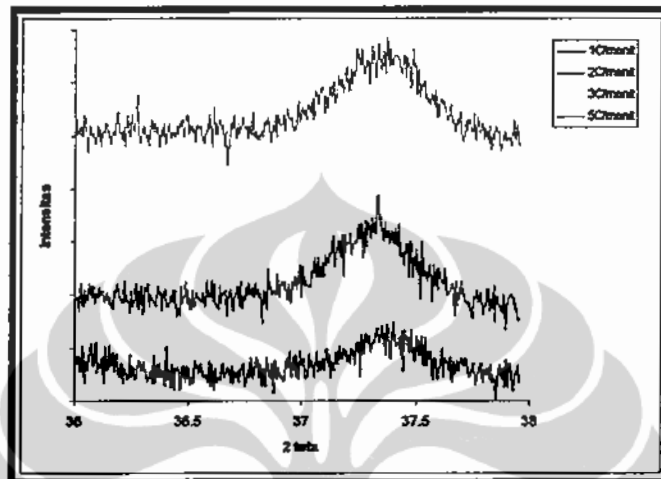


Gambar 4.19
Pola difraksi lapisan tipis BST untuk variasi *heating rate* menggunakan furnace Naytech

Pengambilan data juga hanya sampai pada sudut 40° , karena puncak-puncak BST dengan sudut lebih 40° intensitasnya lebih kecil jika dibandingkan dengan puncak pada sudut 37° untuk bidang (110). Proses *annealing* sangat berpengaruh terhadap pengkristalan pada suatu material. Intensitas pada pola difraksi menunjukkan sejumlah atom yang terdifraksi pada sudut tertentu. Intensitas makin tinggi menandakan bahwa makin banyak atom-atom yang tersusun secara teratur terdifraksi. Pola difraksi pada Gambar 4.19 untuk *heating rate* $2^\circ\text{C}/\text{menit}$ dan $3^\circ\text{C}/\text{menit}$ intensitasnya hampir sama.

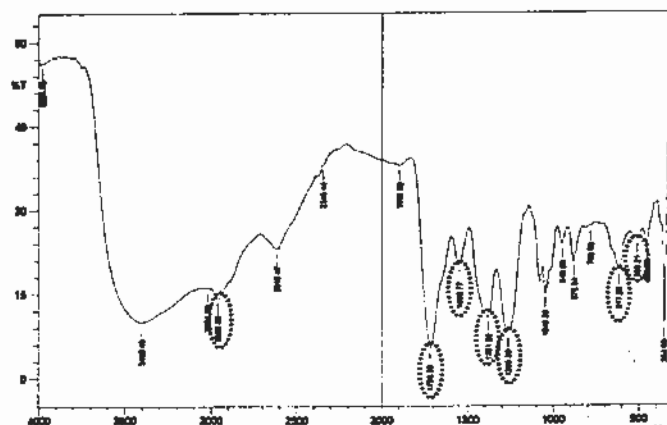
Heating rate adalah perlakuan panas pada sampel saat proses *annealing* menggunakan furnace. *Heating rate* sangat berpengaruh terhadap ukuran butir. Gambar 4.20 adalah pola difraksi lapisan tipis BST pada bidang (110) untuk variasi *heating rate*. Hasil perhitungan menggunakan persamaan Scherrer berturut-turut untuk *heating rate* $1^\circ\text{C}/\text{menit}$, $2^\circ\text{C}/\text{menit}$, $3^\circ\text{C}/\text{menit}$, dan $5^\circ\text{C}/\text{menit}$ adalah 24 nm, 25 nm, 22 nm, 21 nm. Makin kecil *heating rate* ternyata makin

besar ukuran butir. Hal ini disebabkan makin kecil ukuran butir maka makin lama waktu yang diperlukan untuk mencapai suhu yang diinginkan yaitu 800°C akibatnya akan terjadi difusi antar butiran yang akhirnya butiran tersebut menjadi butiran yang berukuran besar.



Gambar 4.20 Pola difraksi untuk variasi *heating rate* pada lapisan tipis BST untuk bidang (110)

Gambar 4.21 adalah spektrum hasil karakterisasi FTIR (*Fourier Transform Infra Red*) untuk larutan BST. Prinsip karakterisasi FTIR adalah penyerapan energi (atau frekuensi) tertentu dalam hal ini radiasi infra merah oleh molekul yang mengakibatkan vibrasi pada ikatan molekul. Beberapa puncak yang muncul akibat absorpsi infra merah dicocokkan dengan data dari Somnath et al (2004). Tabel 4.4 menunjukkan puncak absorpsi pada bilangan gelombang tertentu yang mengakibatkan vibrasi pada ikatan molekul. Dari Tabel 4.4 nampak adanya ikatan antara Ti dengan O, dan ikatan carbonat dengan ion barium dan strontium. Hal ini menandakan bahwa unsur-unsur pembentuk BST yaitu barium, strontium, dan titanium terdapat dalam larutan tersebut.

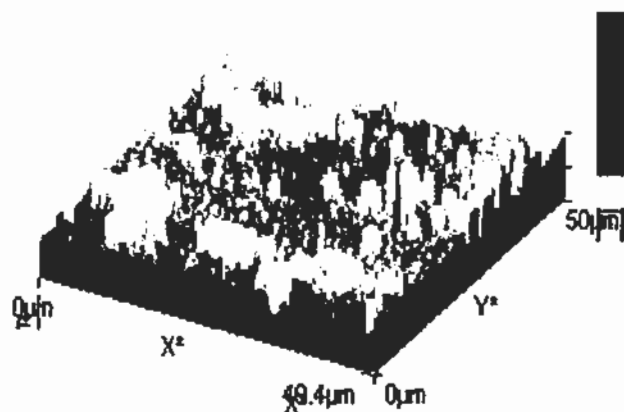


Gambar 4.21
Spektrum FTIR larutan BST

Tabel 4.4 Vibrasi molekul yang terjadi pada larutan BST

Bilangan gelombang (cm ⁻¹)	Vibrasi molekul
509,21	Ti-O
617,22	O-C-O
1265,3	(C-CH ₃)+(C=O)
1381,03	ikatan antara carbonat dengan ion barium dan strontium
1550,77	(C=C)+(C=O)
1720,5	(C=O)
2962,66	C-H

Hasil foto SEM menunjukkan tidak terjadi *crack* pada morfologi permukaan lapisan tipis BST. Karakterisasi morfologi permukaan lapisan tipis BST yang lain yaitu digunakannya AFM (*Atomic Force Microscope*) untuk mengetahui kekasaran (*roughness*) permukaan lapisan tipis. Gambar 4.22 adalah hasil karakterisasi menggunakan AFM untuk BST murni yang ditumbuhkan di atas substrat Pt/Si dengan suhu *annealing* 800⁰C selama 3 jam dengan *heating rate* 2⁰C/menit. Kekasaran rata-rata dari lapisan tipis BST murni ini sebesar 22 nm.

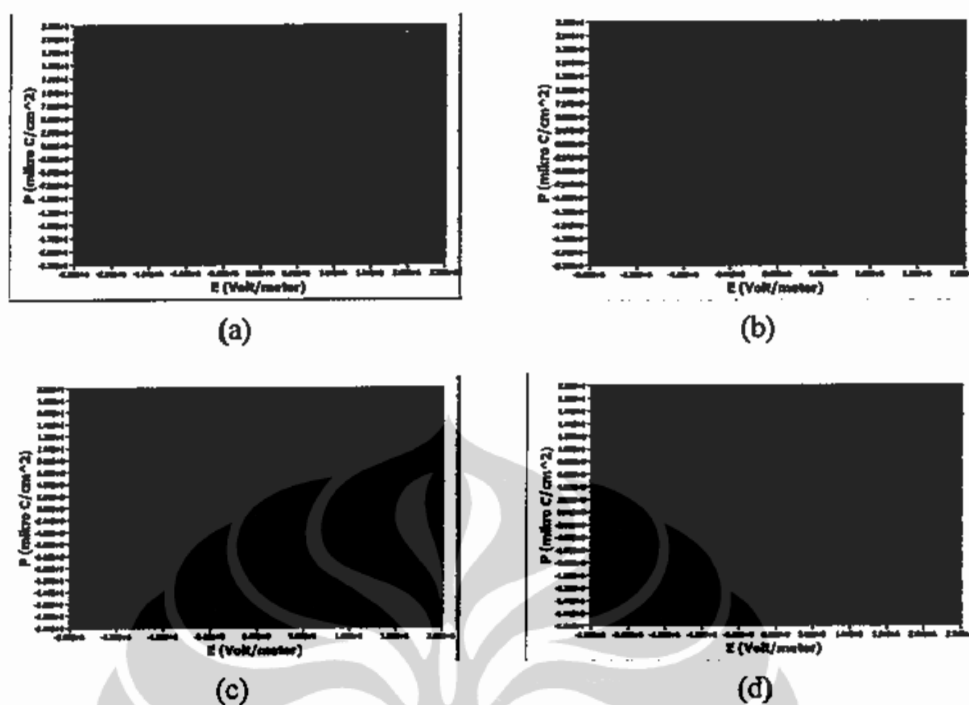


Gambar 4.22
Morfologi permukaan ($50 \mu\text{m} \times 49,4 \mu\text{m}$) lapisan tipis BST

Tabel 4.5
Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif
lapisan tipis BST untuk variasi *heating rate*

Sampel	$P_s (+)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_s (-)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_r (+)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_r (-)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$E_c (+)$ (V/m)	$E_c (-)$ (V/m)
BST 1	21,4963	20,8856	16,5051	16,0374	431924	448456
BST 2	25,1658	24,0536	18,6864	18,2201	441525	451825
BST 3	19,1697	18,7549	14,6888	14,293	432738	443152
BST 5	18,4366	17,8973	13,6526	13,2899	442550	440216

Tabel 4.5 adalah besarnya polarisasi spontan, remanen dan medan koersif hasil pembentukan kurva histerisis pada Gambar 4.23 untuk variasi *heating rate*. Nampak bahwa makin besar *heating rate* maka polarisasi cenderung berkurang baik polarisasi spontan (P_s) polarisasi remanen (P_r). Hal ini berhubungan dengan tingkat kristalinitas dan ukuran butir. Kedua parameter ini dipengaruhi oleh proses *annealing* yang dalam hal ini *heating rate*. Seperti yang telah dijelaskan di atas makin besar *heating rate* maka waktu yang diperlukan untuk mencapai suhu yang diinginkan makin lama yang berakibat makin tinggi kristalinitas dan makin besar ukuran butir. Akibat bertambahnya *heating rate*, ukuran butir berkurang yang berakibat menurunnya polarisasi.



Gambar 4.23 Kurva histerisis lapisan tipis BST variasi *heating rate* (a) 1 °C/menit (b) 2 °C/menit (c) 3 °C/menit (d) 5 °C/menit

Dari hasil karakterisasi menggunakan XRD dan hasil kurva histerisis untuk variasi *heating rate* didapatkan yang paling optimum pada 2°C/menit. Hal ini dengan melihat besarnya polarisasi remanen dan medan koersif yang merupakan parameter penting dalam material ferroelektrik untuk memori.

Dari optimalisasi yang dilakukan didapatkan beberapa parameter optimum yang akan digunakan untuk pembuatan BST yang didoping dengan berbagai ion dopan dengan metode *Chemical Solution Deposition* yang disiapkan dengan *spin coating* yaitu kecepatan putar saat proses *spin coating* adalah 3000 rpm, suhu *annealing* 800°C selama 3 jam dengan *heating rate* 2°C/menit.

4.6 Variasi Ion Dopan

Dasar dari pendopingan suatu material adalah jari-jari ion dopan lebih kecil atau lebih besar (tidak lebih 15%) dari jari-jari ion yang digantikan. Jika muatan ion dopan lebih besar daripada muatan ion yang akan digantikan, disebut ion *soft* dopan. Sedangkan jika sebaliknya, muatan ion dopan lebih kecil daripada

muatan ion yang akan digantikan, disebut ion *hard* dopan. Pada penelitian ini dilakukan pendopingan pada BST baik menggunakan ion *hard* dopan maupun ion *soft* dopan. Variasi persen massa dopan yang dilakukan adalah 1%, 2% dan 4%. Menurut Yakovlev (2004), jika persen mol dopan lebih dari 4% tidak dikatakan doping tetapi modifikasi.

4.6.1 Ion *hard* dopan

Ion *hard* dopan yang digunakan dalam penelitian ini adalah magnesium, aluminium, indium, tembaga, dan natrium. Perbedaan ion-ion *hard* dopan yang digunakan ini terletak pada perbedaan jari-jari yang menentukan ion *hard* dopan tersebut menggantikan ion Ti, Ba ataukah Sr. Dopan magnesium dan aluminium pada BST menggantikan titanium. Kedua ion dopan tersebut jari-jarinya mendekati titanium akan tetapi perbedaan ketiga ion dopan itu adalah: jari-jari ion magnesium hampir sama dengan titanium, aluminium jari-jarinya lebih kecil dari jari-jari titanium. Sehingga ketiga ion dopan ini sangat menarik untuk diteliti. Sedangkan ion dopan tembaga (Cu) dan natrium menggantikan Ba atau Sr. Jari-jari ion dopan tembaga sama dengan jari-jari barium (Ba) yaitu 1,35Å. Sedangkan jari-jari ion natrium lebih kecil dari jari-jari ion Ba atau Sr.

4.6.1.1 BST didoping magnesium ($Ba_xSr_{1-x}Mg_yTi_{1-y}O_3$)

Magnesium dengan jari-jari ion 0,65 Å menggantikan ion Ti karena jari-jari ionnya hampir sama dengan Ti yaitu 0,68 Å. Magnesium sebagai ion *hard* dopan mempunyai muatan 2+ lebih kecil jika dibandingkan dengan muatan Ti yaitu 4+.

Tabel 4.6 Hasil XRF (wt%) BSMT variasi % mol dopan Mg

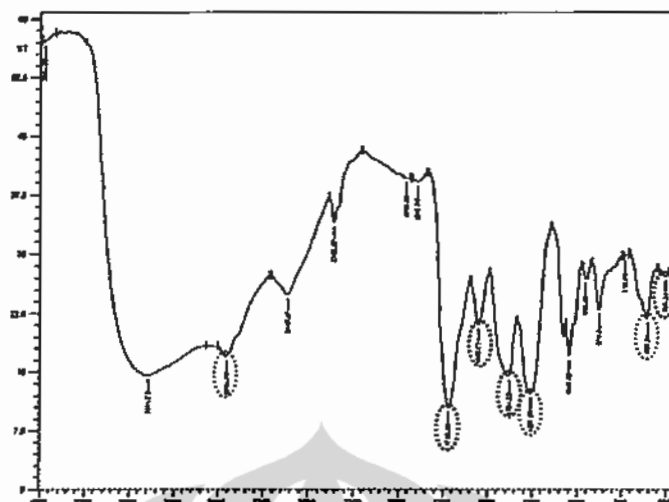
Sampel	Ba (wt%)	Sr (wt%)	Ti (wt%)	Mg (wt%)
BST	51,4713	4,2064	44,3224	-
BSMT 1%	58,1124	2,7268	35,7669	3,3939
BSMT 2%	44,0854	3,4177	49,5089	2,9881
BSMT 4%	49,8578	3,7363	39,3210	7,0849

Hasil XRF menunjukkan bahwa makin banyak persen mol dopan yang diberikan, makin banyak atom-atom dopan yang terdeposit di atas substrat. Akan tetapi hal yang demikian tidak terjadi pada persen mol dopan 2% dimana massa atom Mg yang terdeposit di atas substrat lebih kecil jika dibandingkan dengan persen mol dopan 1%. Hasil karakterisasi XRF seperti disajikan pada Tabel 4.6 dan 4.7 masing-masing untuk persen berat dan persen atom.

Tabel 4.7 Hasil XRF (at%) BSMT variasi % mol dopan Mg

Sampel	Ba (at%)	Sr (at%)	Ti (at%)	Mg (at%)
BST	27,8003	3,5611	68,6386	-
BSMT 1%	31,5639	2,3215	55,7011	10,4135
BSMT 2%	21,1669	2,5721	68,1564	8,1046
BSMT 4%	23,9150	2,8092	54,0783	19,1976

Gambar 4.24 adalah spektrum hasil karakterisasi FTIR (*Fourier Transform Infra Red*) untuk larutan BST yang didoping 4% mol magnesium. Tabel 4.8 menunjukkan puncak absorpsi pada bilangan gelombang tertentu yang mengakibatkan vibrasi pada ikatan molekul. Dari Tabel 4.8 nampak adanya ikatan antara Ti dengan O, dan ikatan carbonat dengan ion barium dan strontium. Hal ini berarti unsur-unsur pembentuk BST yaitu barium, strontium, dan titanium telah terdapat pada larutan BST. Jika dibandingkan dengan hasil FTIR untuk BST murni (Gambar 4.21) yang dijadikan standar ada perbedaan bilangan gelombang diantara keduanya yaitu pada bilangan gelombang $609,51 \text{ cm}^{-1}$, $1257,59 \text{ cm}^{-1}$ dan $2954,95 \text{ cm}^{-1}$. Hal ini kemungkinan disebabkan karena adanya vibrasi ion dopan Mg yang mempengaruhi ikatan molekul lain, sehingga terjadi pergeseran bilangan gelombang.



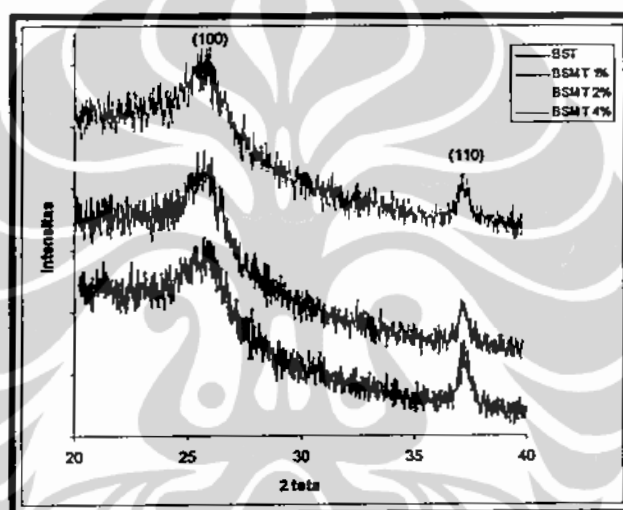
Gambar 4.24
Spektrum FTIR larutan BST doping 4% mol magnesium

Tabel 4.8
Vibrasi molekul yang terjadi pada larutan BST yang didoping Mg

Bilangan gelombang (cm ⁻¹)	Vibrasi molekul
509,21	Ti-O
609,51	O-C-O
1257,59	(C-CH ₃)+(C=O)
1381,03	ikatan antara carbonat dengan ion barium dan strontium
1550,77	(C=C)+(C=O)
1720,5	(C=O)
2954,95	C-H

Variasi persen mol dopan yang dilakukan adalah 1%, 2% dan 4%. Pola difraksi hasil karakterisasi XRD untuk variasi ketiga persen mol dopan Mg dan BST yang tanpa didoping seperti ditampilkan pada Gambar 4.25. Dari gambar tersebut nampak bahwa ada dua puncak yang muncul baik lapisan tipis BST murni maupun lapisan tipis BST yang didoping Mg dengan sudut yang hampir sama. Dua puncak yang muncul tersebut setelah dicocokkan dengan ICDD data base adalah milik BST pada bidang (100) dan (110). Perbedaan hasil karakterisasi

XRD antara lapisan tipis BST murni dan lapisan tipis BST yang didoping Mg adalah besarnya intensitas. Intensitas lapisan tipis BST yang didoping Mg baik pada bidang (100) maupun (110) cenderung menurun seiring dengan bertambahnya persen mol dopan magnesium dibandingkan dengan lapisan tipis BST yang tanpa didoping. Hal ini disebabkan masuknya ion dopan Mg yang menggantikan Ti mengakibatkan cacat pada kristal BST, akibatnya intensitas sinar-X berkurang. Hal ini seperti dilakukan oleh Ta Gon Ha dkk, yang melakukan pendopingan pada $Ba_{0,7}Sr_{0,3}TiO_3$ dengan ion Cu, intensitas semua puncak BST yang muncul mengalami penurunan.

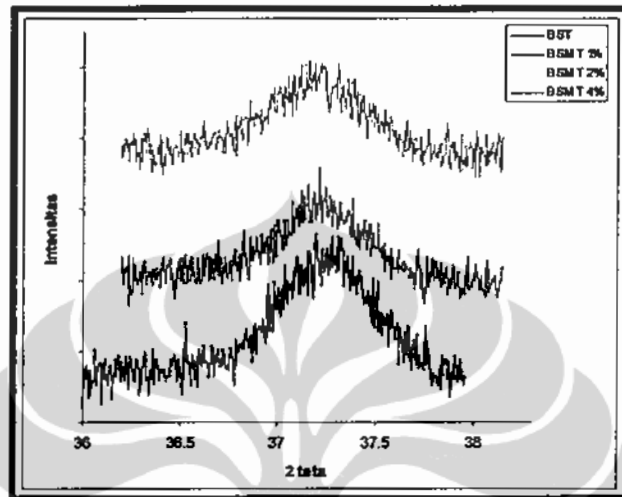


Gambar 4.25
Pola difraksi lapisan tipis BST dan BSMT

Gambar 4.26 menunjukkan pola difraksi dari hasil karakterisasi XRD yang dipotong dari sudut 36° hingga 38° . Hal ini dilakukan untuk menghitung ukuran butir dari lapisan tipis BST dan BST yang didoping dengan Mg menggunakan persamaan Schererr.

Hasil perhitungan dengan persamaan Schererr seperti pada Tabel 4.9. Dari tabel tersebut menunjukkan bahwa pemberian dopan magnesium dengan variasi persen mol dopan 1%, 2%, dan 4%, mengakibatkan ukuran butir berkurang. Hal ini disebabkan jari-jari ion Mg^{2+} lebih kecil jika dibandingkan dengan jari-jari ion Ti^{4+} . Seperti yang dilakukan oleh Tae Gon Ha et al, yang melakukan pendopingan

pada $Ba_{0,7}Sr_{0,3}TiO_3$ seiring dengan penambahan persen mol dopan BST yang didoping Cu berkurang. Demikian halnya yang dilakukan Cole et al, dengan penambahan dopan Mg pada BST.

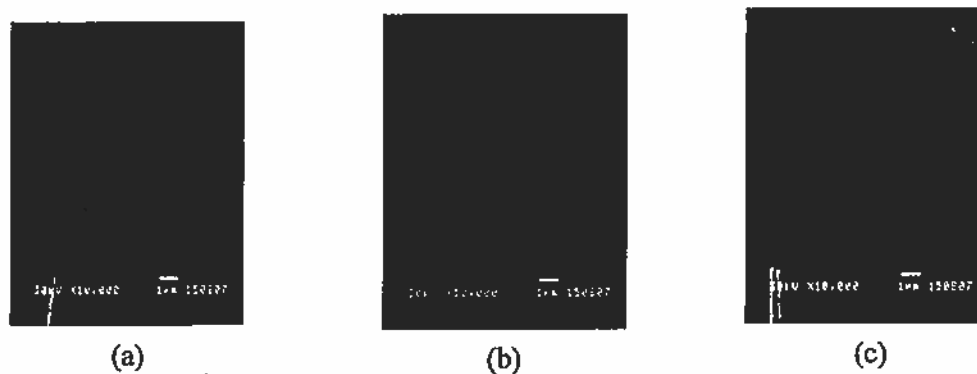


Gambar 4.26
Pola difraksi lapisan tipis BST dan BSMT untuk bidang (110)

Tabel 4.9
FWHM dan ukuran butir lapisan tipis BST dan BSMT

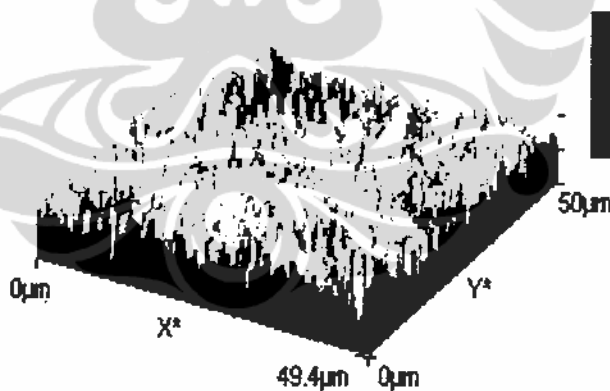
Sampel	FWHM	Ukuran butir (nm)
BST	0,4104	25
BSMT 1%	0,4412	23,1
BSMT 2%	0,4710	21,5
BSMT 4%	0,4712	21,5

Hasil foto SEM menunjukkan bahwa meski lapisan tipis BST didoping dengan Mg akan tetapi permukaan lapisan tipis BST yang didoping Mg ini tidak mengalami *crack*. Permukaan lapisan masih rata atau halus tanpa *crack*. Hasil foto SEM untuk variasi persen mol dopan Mg seperti disajikan dalam Gambar 4.27.



Gambar 4.27
Foto SEM untuk variasi % mol dopan Mg
(a) 1% (b) 2% (c) 4%.

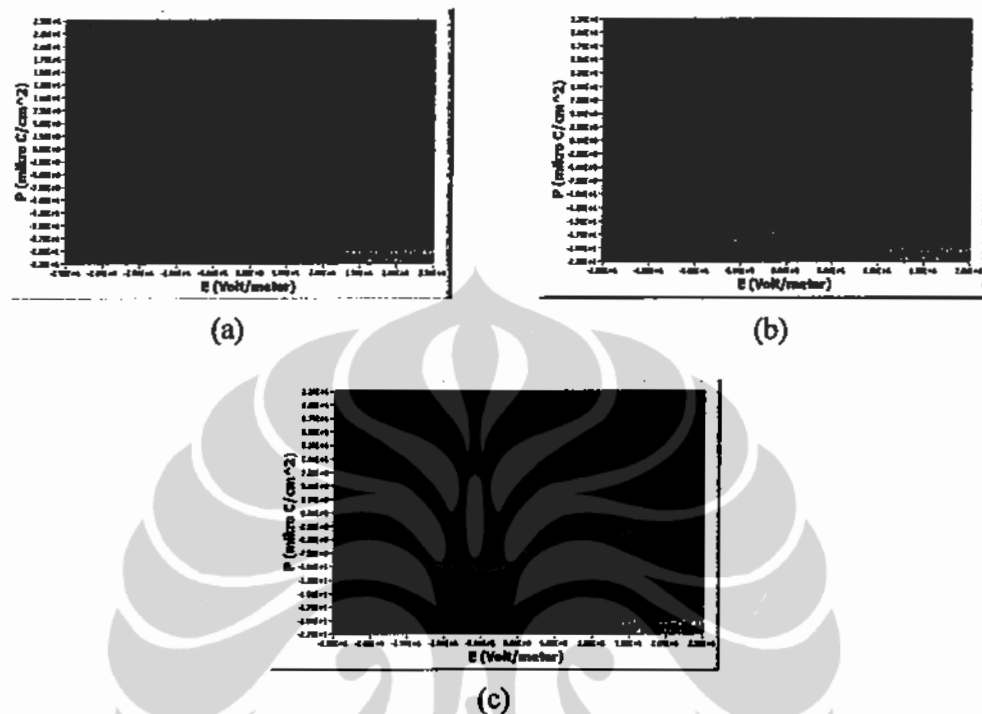
Gambar 4.28 adalah hasil AFM lapisan tipis BST yang didoping 4% mol dopan magnesium. Kekasaran rata-rata dari lapisan tipis BST yang didoping 4% mol dopan magnesium sebesar 3,8 nm yang lebih kecil nilainya dibandingkan dengan BST murni yaitu sebesar 22 nm. Hal ini disebabkan magnesium mempunyai jari-jari yang lebih kecil dari pada titanium yaitu atom yang digantikan.



Gambar 4.28
Morfologi permukaan ($50 \mu\text{m} \times 49,4 \mu\text{m}$)
lapisan tipis BST yang didoping 4% mol dopan magnesium

Kurva histerisis untuk variasi persen mol dopan Mg seperti disajikan pada Gambar 4.29. Nampak bahwa kurva histerisis telah terbentuk dengan sempurna,

yang menandakan bahwa lapisan BST yang didoping Mg (BSMT) merupakan bahan ferroelektrik.



Gambar 4.29
Kurva histerisis BSMT untuk variasi % mol dopan Mg
(a) 1% (b) 2% (c) 4%

Tabel 4.10 Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif lapisan tipis BSMT untuk variasi % mol dopan Mg

Sampel	$P_s (+)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_s (-)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_r (+)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_r (-)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$E_c (+)$ (V/m)	$E_c (-)$ (V/m)
BST	25,1658	24,0536	18,6864	18,2201	441525	451825
BSMT 1%	23,0261	22,3712	17,0374	16,6051	416484	449597
BSMT 2 %	20,8102	20,3747	16,5684	16,0862	432757	439963
BSMT 4 %	21,2183	20,6184	16,4453	16,0171	431914	441985

Tabel 4.10 menunjukkan besarnya nilai polarisasi dan medan koersif. Nampak bahwa dengan diberikannya dopan Mg mengakibatkan polarisasi baik

spontan maupun remanen berkurang. Dari perhitungan ukuran butir dengan bertambahnya persen massa dopan mengakibatkan ukuran butir berkurang. Menurut Adem (2000) dan Hongwei et al (2006), ukuran butir bertambah besar maka kualitas ferroelektrik dan konstanta dielektrik meningkat. Dengan diberikannya ion dopan Mg mengakibatkan ukuran butir berkurang sehingga polarisasi menurun. Akan tetapi hal ini tidak terjadi pada medan koersif. Medan koersif cenderung berkurang saat diberikan dopan magnesium jika dibandingkan dengan medan koersif pada sampel lapisan tipis BST murni.

4.6.1.2 BST didoping aluminium ($Ba_xSr_{1-x}Al_yTi_{1-y}O_3$)

Aluminium merupakan ion *hard* dopan. Aluminium dengan jari-jari yang lebih kecil dari magnesium (0,5 Å) mempunyai muatan +3 menggantikan titanium yang mempunyai muatan +4.

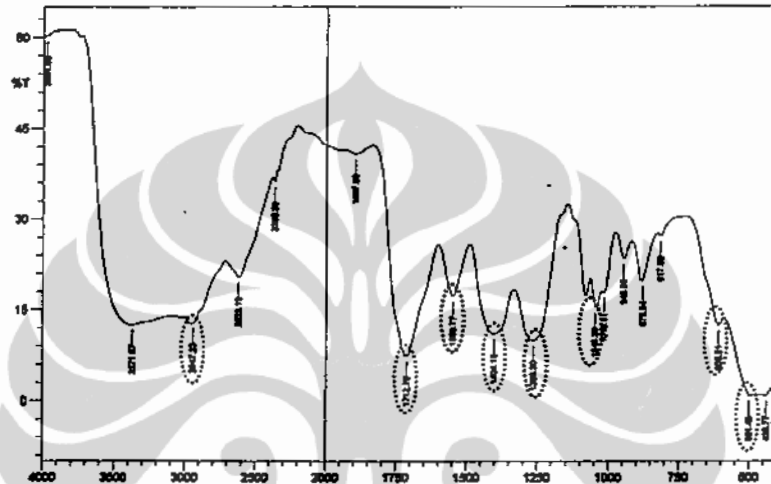
Tabel 4.11
Hasil XRF (wt%) BSAT variasi % mol dopan Al

Sampel	Ba (Wt %)	Sr (Wt %)	Ti (Wt %)	Al (Wt %)
BST	51,4713	4,2064	44,3224	-
BSAT 1 %	29,4306	1,4830	22,1064	46,9800
BSAT 2 %	34,7888	1,9798	16,2418	46,9895
BSAT 4 %	30,7019	1,3731	20,0907	47,8344

Tabel 4.12
Hasil XRF (at%) BSAT variasi % mol dopan Al

Sampel	Ba (At %)	Sr (At %)	Ti (At %)	Al (At %)
BST	27,8003	3,5611	68,6386	-
BSAT 1 %	8,8045	0,6954	18,9619	71,5382
BSAT 2 %	10,7492	0,9589	14,3891	73,9028
BSAT 4 %	9,1939	0,6445	17,2500	72,2500

Tabel 4.11 dan 4.12 menunjukkan persen berat dan persen atom BST yang didoping aluminium yang mana merupakan hasil karakterisasi menggunakan XRF. Dari tabel tersebut nampak bahwa unsur-unsur pembentuk BST yaitu barium, strontium, dan titanium serta ion pendoping aluminium telah terdeposit di atas substrat Pt/Si. Nampak bahwa makin banyak dopan yang diberikan maka persen berat dan persen atom ion dopan makin banyak.

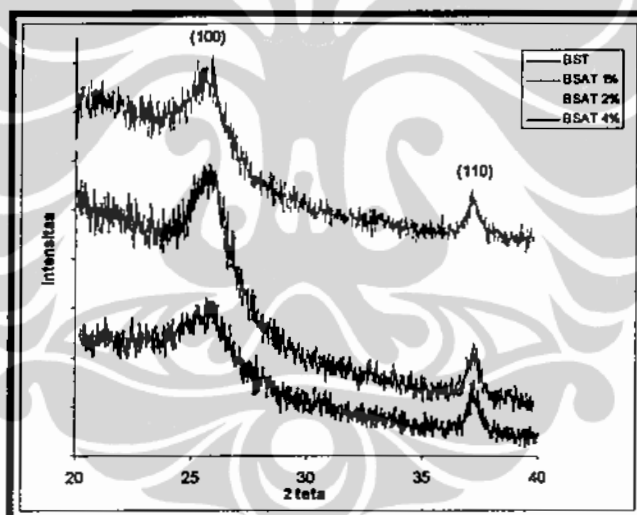


Gambar 4.30
Spektrum FTIR larutan BST doping 4% mol aluminium

Tabel 4.13
Vibrasi molekul yang terjadi pada larutan BST yang didoping Al

Bilangan gelombang (cm ⁻¹)	Vibrasi molekul
501,49	Ti-O
609,51	O-C-O
1265,3	(C-CH ₃)+(C=O)
1404,18	ikatan antara carbonat dengan ion barium dan strontium
1550,77	(C=C)+(C=O)
1712,79	(C=O)
2947,23	C-H

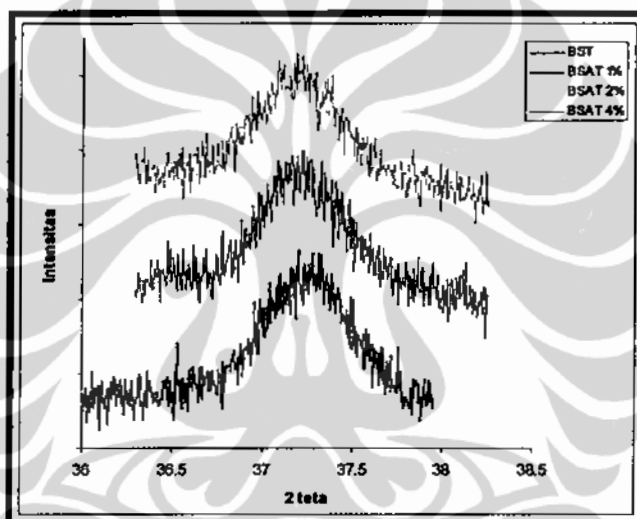
Gambar 4.30 adalah spektrum hasil karakterisasi FTIR (*Fourier Transform Infra Red*) untuk larutan BST yang didoping 4% mol aluminium. Tabel 4.13 menunjukkan puncak absorpsi pada bilangan gelombang tertentu yang mengakibatkan vibrasi pada ikatan molekul. Dari Tabel 4.13 nampak adanya ikatan antara Ti dengan O, dan ikatan carbonat dengan ion barium dan strontium. Hal ini menandakan adanya unsur-unsur pembentuk BST yaitu barium, strontium, dan titanium terdapat dalam larutan tersebut. Jika dibandingkan dengan hasil FTIR untuk BST murni (Gambar 4.21) yang dijadikan standar ada perbedaan diantara keduanya yaitu pada bilangan gelombang $501,49\text{ cm}^{-1}$, $609,51\text{ cm}^{-1}$, $1404,18\text{ cm}^{-1}$, $1712,79\text{ cm}^{-1}$, dan $2947,23\text{ cm}^{-1}$. Hal ini kemungkinan disebabkan karena adanya vibrasi ion dopan aluminium yang mempengaruhi ikatan molekul lain, sehingga terjadi pergeseran bilangan gelombang.



Gambar 4.31
Pola difraksi lapisan tipis BST dan BSAT

Hasil karakterisasi menggunakan alat XRD untuk mengetahui struktur kristal dari lapisan tipis BST dan BSAT yang terdeposit di atas substrat Pt/Si seperti disajikan pada Gambar 4.31. Dari gambar tersebut nampak bahwa ada dua puncak yang muncul baik lapisan tipis BST murni maupun lapisan tipis BST yang didoping Al dengan sudut yang hampir sama. Dua puncak yang muncul tersebut

setelah dicocokkan dengan ICDD data base adalah milik BST pada bidang (100) dan (110). Perbedaan hasil karakterisasi XRD antara lapisan tipis BST murni dan lapisan tipis BST yang didoping aluminium adalah besarnya intensitas. Intensitas lapisan tipis BST yang didoping Al baik pada bidang (100) maupun (110) cenderung menurun seiringan dengan bertambahnya persen mol dopan aluminium dibandingkan dengan lapisan tipis BST yang tanpa didoping. Hal ini disebabkan masuknya ion dopan Al yang menggantikan Ti mengakibatkan cacat pada kristal, akibatnya intensitas sinar-X berkurang. Hal ini seperti dilakukan oleh Ta Gon Ha dkk, yang melakukan pendopingan pada $Ba_{0,7}Sr_{0,3}TiO_3$ dengan ion Cu.



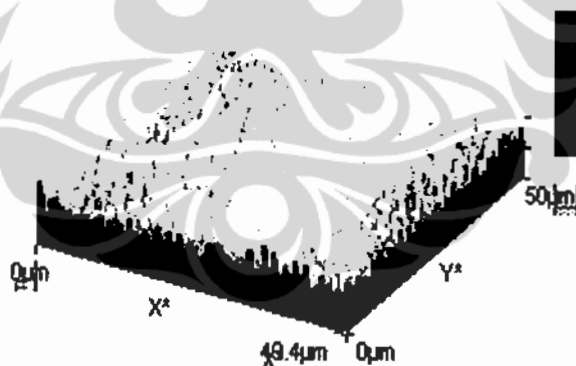
Gambar 4.32
Pola difraksi lapisan tipis BST dan BSAT untuk bidang (110)

Tabel 4.14
FWHM dan ukuran butir lapisan tipis BST dan BSAT

Sampel	FWHM	Ukuran butir (nm)
BST	0,4104	25
BSAT 1%	0,3992	25,8
BAST 2%	0,4416	23,1
BAST 4%	0,4638	21,9

Ukuran butir didapatkan dengan melakukan perhitungan menggunakan persamaan Schererr. Gambar 4.32 menunjukkan pola difraksi hasil karakterisasi XRD yang dipotong dari sudut 36° hingga 38° . Hasil perhitungan dengan persamaan Schererr seperti pada Tabel 4.14. Dari tabel tersebut menunjukkan bahwa pemberian dopan aluminium mengakibatkan ukuran butir berkurang kecuali pada 1% mol dopan aluminium, ukuran butir mengalami kenaikan sebesar 0,8 nm. Kecenderungan menurunnya ukuran butir disebabkan jari-jari ion Al^{3+} lebih kecil jika dibandingkan dengan jari-jari ion Ti^{4+} . Seperti yang dilakukan oleh Tae Gon Ha et al, yang melakukan pendopingan pada $Ba_{0,7}Sr_{0,3}TiO_3$ seiring dengan penambahan persen mol dopan ukuran butir BST yang didoping Cu berkurang. Demikian halnya yang dilakukan Cole et al, dengan penambahan dopan Mg pada BST.

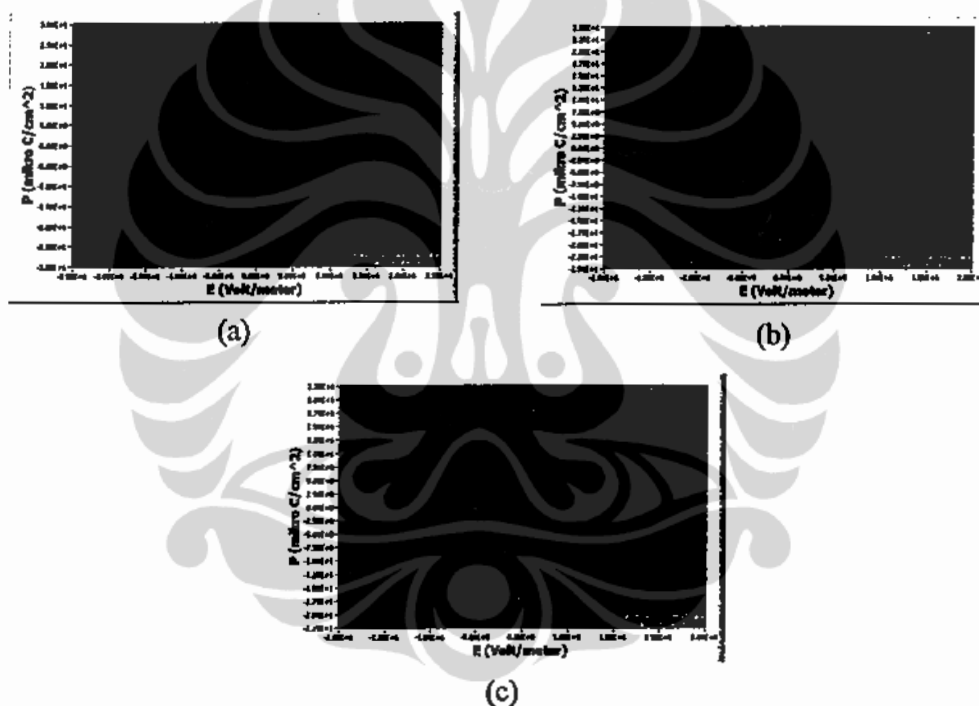
Gambar 4.33 adalah morfologi permukaan lapisan tipis BST yang didoping 4% mol dopan aluminium hasil karakterisasi menggunakan AFM. Kekasaran rata-rata dari lapisan tipis BST yang didoping 4% mol dopan magnesium sebesar $1,1 \mu m$ yang nilainya jauh lebih besar jika dibandingkan BST murni yaitu sebesar 22 nm.



Gambar 4.33
Morfologi permukaan ($50 \mu m \times 49,4 \mu m$)
lapisan tipis BST yang didoping 4% mol dopan aluminium

Menurut Adem (2003) dan Hongwei et al (2006), ukuran butir bertambah besar maka kualitas ferroelektrik dan konstanta dielektrik meningkat. Tabel 4.15 menunjukkan besarnya nilai polarisasi dan medan koersif. Nampak bahwa dengan

diberikannya dopan aluminium mengakibatkan polarisasi baik spontan maupun remanen berkurang kecuali sampel yang didoping 1% mol dopan aluminium. Hasil ini juga didukung dari ukuran butir dari lapisan. Dari perhitungan ukuran butir dengan bertambahnya persen massa dopan mengakibatkan ukuran butir berkurang kecuali yang didoping 1% mol aluminium. Pemberian persen mol dopan lebih dari satu mengakibatkan ukuran butir berkurang. Kemungkinan salah satu penyebabnya adalah karena jari-jari aluminium lebih kecil daripada ion yang digantikan yaitu titanium akibatnya unit sel akan mengecil dan berpengaruh terhadap ukuran butir.



Gambar 4.34 Kurva histerisis BSAT untuk variasi % mol dopan Al
(a) 1% (b) 2% (c) 4%

Berkebalikan dengan polarisasi, medan koersif berkurang saat diberikan dopan aluminium jika dibandingkan dengan medan koersif pada sampel lapisan tipis BST murni. Hal ini kemungkinan disebabkan dipol-dipol mudah dibalikkan sehingga hanya memerlukan medan yang kecil.

Tabel 4.15
Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif
lapisan tipis BSAT untuk variasi % mol dopan Al

Sampel	$P_s (+)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_s (-)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_r (+)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_r (-)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$E_c (+)$ (V/m)	$E_c (-)$ (V/m)
BST	25,1658	24,0536	18,6864	18,2201	441525	451825
BSAT 1%	27,4709	26,6054	20,3462	19,8644	440295	445182
BSAT 2%	24,2203	24,3913	18,549	18,2241	439467	443124
BSAT 4%	22,428	22,0586	17,0555	16,6846	422536	443574

4.6.1.3 BST didoping tembaga ($\text{Ba}_{1-y/2}\text{Cu}_y\text{Sr}_{1-x-y/2}\text{TiO}_3$)

Tembaga atau cuprum mempunyai jari-jari sama dengan Ba yaitu 1,35 Å. Akan tetapi berbeda muatannya, Cu mempunyai muatan +1 sedangkan Ba muatannya +2 sehingga Cu merupakan ion *hard* dopan.

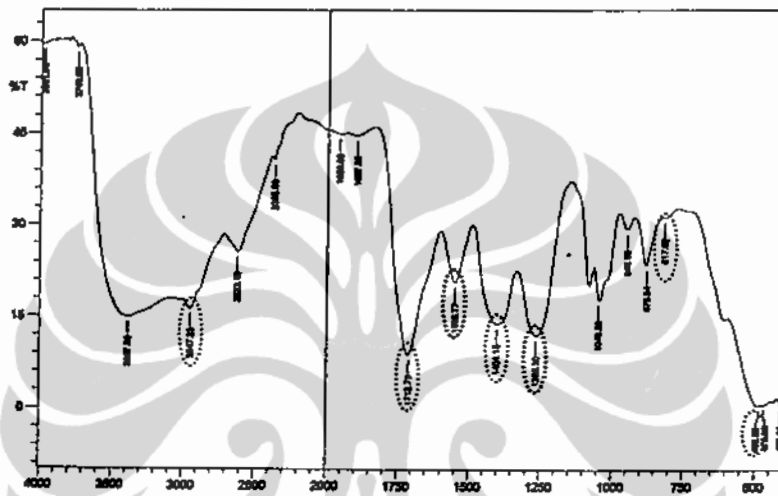
Tabel 4.16 Hasil XRF (wt%) BCST variasi % mol dopan Cu

Sampel	Ba (Wt %)	Sr (Wt %)	Ti (Wt %)	Cu (Wt %)
BST	51,4713	4,2064	44,3224	-
BCST 1%	62,4253	3,5918	33,6345	0,3484
BCST 2 %	54,2402	3,7361	40,8524	1,1713
BCST 4 %	58,9208	4,2569	35,4173	1,4068

Tabel 4.17 Hasil XRF (at%) BCST variasi % mol dopan Cu

Sampel	Ba (At %)	Sr (At %)	Ti (At %)	Cu (At %)
BST	27,8003	3,5611	68,6386	-
BCST 1%	37,7772	3,4070	58,3601	0,4557
BCST 2 %	30,1735	3,2577	65,1605	1,4083
BCST 4 %	34,3938	3,9421	60,0203	1,6438

Tabel 4.16 dan 4.17 menunjukkan persen berat dan persen atom BST yang didoping tembaga yang mana merupakan hasil karakterisasi menggunakan XRF. Dari tabel tersebut nampak bahwa unsur-unsur pembentuk BST yaitu barium, strontium, dan titanium serta ion dopan tembaga telah terdeposit di atas substrat Pt/Si. Nampak bahwa makin banyak dopan yang diberikan maka persen berat dan persen atom ion dopan makin banyak.

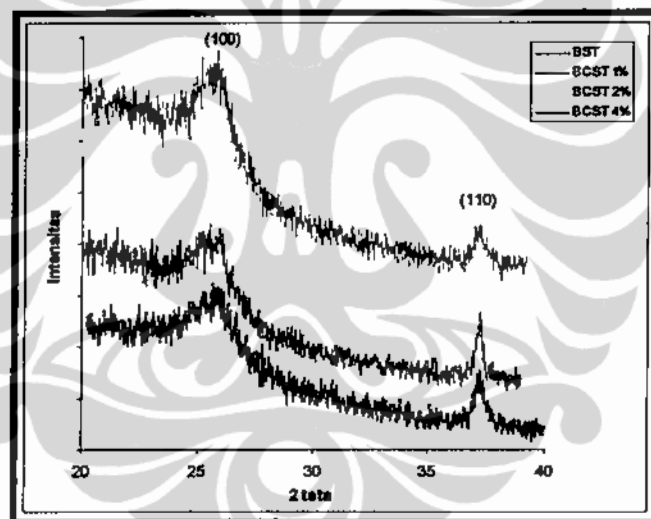


Gambar 4.35
Spektrum FTIR larutan BST doping 4% mol tembaga

Tabel 4.18
Vibrasi molekul yang terjadi pada larutan BST yang didoping tembaga

Bilangan gelombang (cm ⁻¹)	Vibrasi molekul
486,06	Ti-O
1265,3	(C-CH ₃)+(C=O)
1404,18	ikatan antara carbonat dengan ion barium dan strontium
1550,77	(C=C)+(C=O)
1712,79	(C=O)
2947,23	C-H

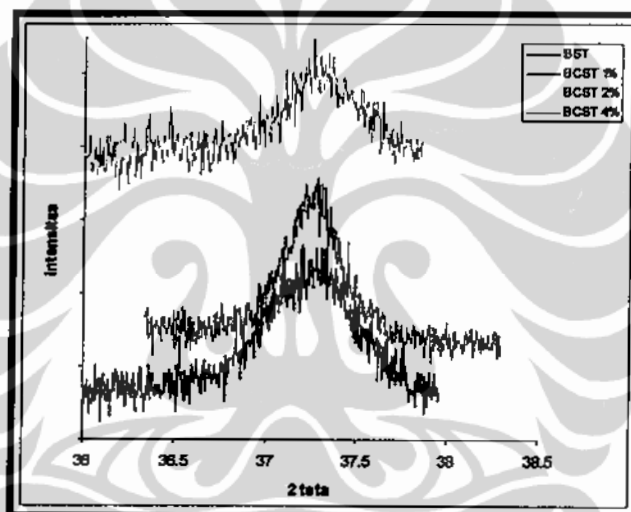
Gambar 4.35 adalah spektrum hasil karakterisasi FTIR (*Fourier Transform Infra Red*) untuk larutan BST yang didoping 4% mol tembaga (Cu). Tabel 4.18 menunjukkan puncak absorpsi pada bilangan gelombang tertentu yang mengakibatkan vibrasi pada ikatan molekul. Dari Tabel 4.18 nampak adanya ikatan antara Ti dengan O, dan ikatan carbonat dengan ion barium dan strontium. Hal ini menandakan adanya unsur-unsur pembentuk BST yaitu barium, strontium, dan titanium terdapat dalam larutan tersebut. Jika dibandingkan dengan hasil FTIR untuk BST murni (Gambar 4.21) yang dijadikan standar ada perbedaan diantara keduanya yaitu pada bilangan gelombang $486,06\text{ cm}^{-1}$, $1404,18\text{ cm}^{-1}$, $1712,79\text{ cm}^{-1}$, dan $2947,23\text{ cm}^{-1}$. Hal ini kemungkinan disebabkan karena adanya vibrasi ion dopan tembaga yang mempengaruhi ikatan molekul lain, sehingga terjadi pergeseran bilangan gelombang.



Gambar 4.36
Pola difraksi hasil XRD lapisan tipis BST dan BCST

Struktur kristal suatu material dikarakterisasi menggunakan *X ray diffraction* (XRD). Pola difraksi hasil karakterisasi XRD untuk BST yang didoping tembaga seperti disajikan pada Gambar 4.36. Ada tiga variasi persen mol dopan tembaga yang dilakukan yaitu 1%, 2% dan 4%. Dari gambar tersebut nampak bahwa ada dua puncak yang muncul baik lapisan tipis BST murni maupun lapisan tipis BST yang didoping Cu dengan sudut yang hampir sama. Dua puncak yang muncul tersebut setelah dicocokkan dengan ICDD data base

adalah milik BST pada bidang (100) dan (110). Perbedaan hasil karakterisasi XRD antara lapisan tipis BST murni dan lapisan tipis BST yang didoping Cu adalah besarnya intensitas. Intensitas lapisan tipis BST yang didoping Cu baik pada bidang (100) maupun (110) cenderung menurun seiring dengan bertambahnya persen mol dopan tembaga dibandingkan dengan lapisan tipis BST yang tanpa didoping. Hal ini disebabkan masuknya ion dopan Cu yang menggantikan Ba/Sr mengakibatkan cacat pada kristal, akibatnya intensitas sinar-X berkurang. Hal ini seperti dilakukan oleh Ta Gon Ha dkk, yang melakukan pendopingan pada $Ba_{0,7}Sr_{0,3}TiO_3$ dengan ion Cu, intensitas semua puncak BST yang muncul mengalami penurunan.



Gambar 4.37
Hasil XRD lapisan tipis BST dan BCST untuk bidang (110)

Gambar 4.37 menunjukkan pola difraksi dari hasil karakterisasi XRD yang dipotong dari sudut 36° hingga 38° . Hal ini dilakukan untuk menghitung ukuran butir dari lapisan tipis BST dan BST yang didoping dengan Cu menggunakan persamaan Schererr. Hasil perhitungan dengan persamaan Schererr seperti pada Tabel 4.19. Dari tabel tersebut menunjukkan bahwa pemberian 1% mol dopan cuprum mengakibatkan ukuran butir bertambah besar BST yang didoping Cu jika dibandingkan dengan BST murni. Akan tetapi untuk 2% dan 4% mol dopan Cu mengakibatkan ukuran butir berkurang. Hal ini diduga karena jari-

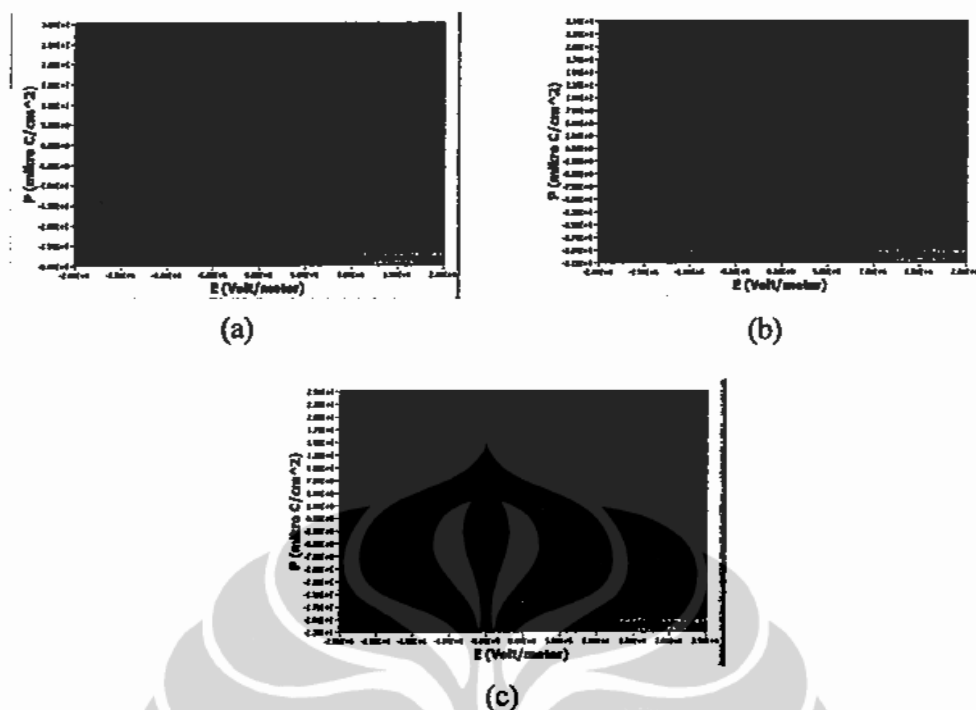
jari ion Cu sama dengan jari-jari ion Ba. Seperti yang dilakukan oleh Tae Gon Ha et al, yang melakukan pendopingan pada $Ba_{0,7}Sr_{0,3}TiO_3$ seiring dengan penambahan persen mol dopan ukuran butir BST yang didoping Cu berkurang. Demikian halnya yang dilakukan Cole et al, dengan penambahan dopan Mg pada BST.

Tabel 4.19
FWHM dan ukuran butir lapisan tipis BST dan BCST

Sampel	FWHM	Ukuran butir (nm)
BST	0,4104	25
BCST 1%	0,3764	27,5
BCST 2%	0,4240	24,1
BCST 4%	0,4412	23,1

Kurva histerisis untuk variasi persen mol dopan tembaga (Cu) seperti disajikan pada Gambar 4.38. Nampak bahwa kurva histerisis telah terbentuk dengan sempurna, yang menandakan bahwa lapisan BST yang didoping tembaga (BCST) merupakan bahan ferroelektrik.

Tabel 4.20 menunjukkan besarnya nilai polarisasi dan medan koersif. Penambahan 1% mol dopan Cu mengakibatkan polarisasi bertambah baik polarisasi spontan maupun polarisasi remanen. Akan tetapi penambahan 2% Dan 4% mol dopan Cu mengakibatkan polarisasi (spontan dan remanen) menurun. Ini sesuai dengan hasil perhitungan ukuran butir (Tabel 4.19). hal ini seperti dikemukakan oleh Adem (2003) dan Hongwei et al (2006) bahwa ukuran butir sangatlah berpengaruh terhadap sifat ferroelektrik. Penambahan 1% mol dopan Cu dapat masuk dalam struktur BST karena Cu mempunyai jari-jari yang hampir sama dengan Ba. Akan tetapi dengan penambahan 2% dan 4% mol dopan Cu mengakibatkan cacat pada struktur BST tersebut akibatnya ukuran butir berkurang sehingga mempengaruhi besar polarisasi.



Gambar 4.38 Kurva histerisis BCST untuk variasi % mol dopan Cu
(a) 1% (b) 2% (c) 4%

Penambahan persen mol dopan Cu pada BST mengakibatkan medan koersif bertambah besar. Hal ini disebabkan penambahan ion dopan Cu ke dalam struktur BST menyebabkan dipol-dipol dalam domain (ukuran butir) susah diorientasikan kembali sehingga diperlukan tegangan dalam hal ini medan yang besar.

Tabel 4.20
Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif
lapisan tipis BCST untuk variasi % mol dopan cuprum

Sampel	$P_s (+)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_s (-)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_r (+)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_r (-)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$E_c (+)$ (V/m)	$E_c (-)$ (V/m)
BST	25,1658	24,0536	18,6864	18,2201	441525	451825
BCST 1%	26,9984	26,3579	20,3442	19,9741	441928	444034
BCST 2%	23,0448	22,3404	16,9512	16,6283	442140	445501
BCST 4%	22,9118	22,3943	16,8478	16,5513	442236	451563

4.6.1.4 BST didoping natrium ($Ba_{x-y/2}Na_ySr_{1-x-y/2}TiO_3$)

Natrium yang mempunyai jari-jari ion sebesar 0,97 Å menggantikan ion Ba^{2+} atau Sr^{2+} karena jari-jari ionnya hampir sama dengan ion Ba^{2+} yaitu sebesar 1,35 Å atau ion Sr^{2+} yaitu sebesar 1,13 Å. Natrium (Na^+) yang mempunyai muatan 1+, lebih kecil jika dibandingkan muatan Ba atau Sr yaitu 2+, disebut sebagai ion *hard* dopan.

Tabel 4.21 dan 4.22 menunjukkan hasil XRF untuk persen berat dan persen atom dari lapisan tipis BST yang telah didoping natrium (Na). Dari tabel tersebut nampak bahwa natrium telah terdeposit di atas substrat Pt. Seiring dengan bertambahnya persen mol dopan natrium makin banyak juga jumlah atom dopan yang terdeposit.

Tabel 4.21 Hasil XRF (wt%) BNST variasi % mol dopan Na

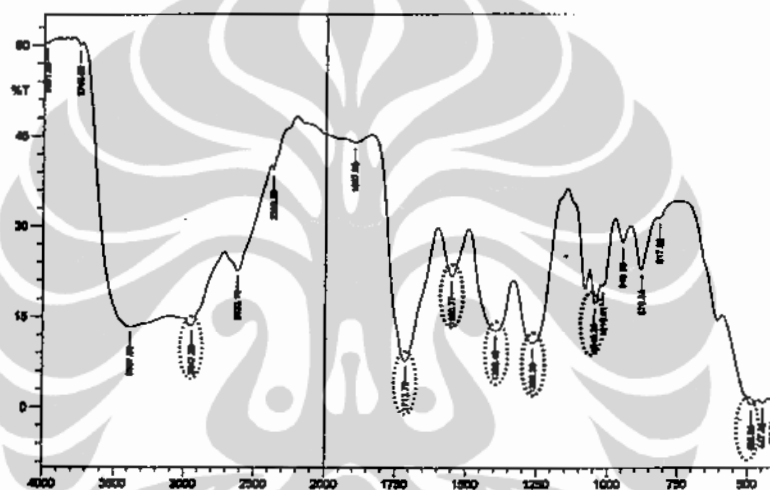
Sampel	Ba (Wt %)	Sr (Wt %)	Ti (Wt %)	Na (Wt %)
BST	51,4713	4,2064	44,3224	-
BNST 1 %	57,6190	3,6730	38,0571	0,6510
BNST 2 %	52,3784	3,9444	40,0833	3,5939
BNST 4 %	44,7245	4,7410	46,1952	4,3392

Tabel 4.22 Hasil XRF (at%) BNST variasi % mol dopan Na

Sampel	Ba (At %)	Sr (At %)	Ti (At %)	Na (At %)
BST	27,8003	3,5611	68,6386	-
BNST 1 %	32,6669	3,2641	61,8642	2,2047
BNST 2 %	26,8665	3,1713	58,9499	11,0124
BNST 4 %	21,2438	3,5298	62,9136	12,3128

Gambar 4.39 adalah spektrum hasil karakterisasi FTIR (*Fourier Transform Infra Red*) untuk larutan BST yang didoping 4% mol natrium (Na). Tabel 4.22 menunjukkan puncak absorpsi pada bilangan gelombang tertentu yang

mengakibatkan vibrasi pada ikatan molekul. Dari Tabel 4.23 nampak adanya ikatan antara Ti dengan O, dan ikatan carbonat dengan ion barium dan strontium. Hal ini menandakan adanya unsur-unsur pembentuk BST yaitu barium, strontium, dan titanium terdapat dalam larutan tersebut. Jika dibandingkan dengan hasil FTIR untuk BST murni (Gambar 4.21) yang dijadikan standar ada perbedaan diantara keduanya yaitu pada bilangan gelombang $486,06\text{ cm}^{-1}$, $1396,46\text{ cm}^{-1}$, $1712,79\text{ cm}^{-1}$, dan $2947,23\text{ cm}^{-1}$. Hal ini kemungkinan disebabkan karena adanya vibrasi ion dopan natrium yang mempengaruhi ikatan molekul lain, sehingga terjadi pergeseran bilangan gelombang.

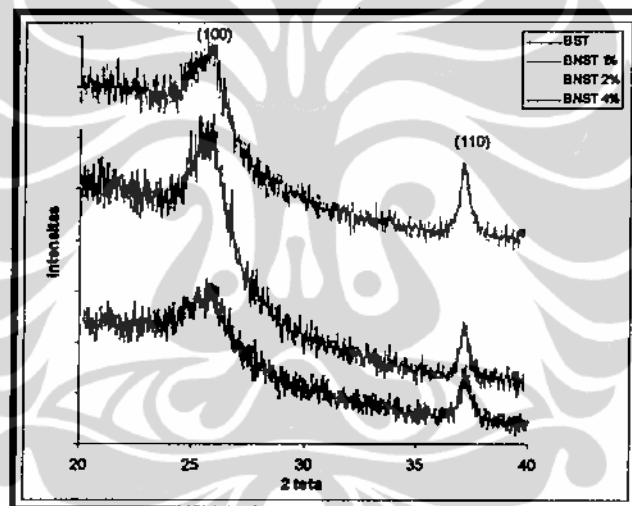


Gambar 4.39
Spektrum FTIR larutan BST doping 4% mol natrium

Tabel 4.23
Vibrasi molekul yang terjadi pada larutan BST yang didoping natrium

Bilangan gelombang (cm^{-1})	Vibrasi molekul
486,06	Ti-O
1265,3	(C-CH ₃)+(C=O)
1396,46	ikatan antara carbonat dengan ion barium dan strontium
1550,77	(C=C)+(C=O)
1712,79	(C=O)
2947,23	C-H

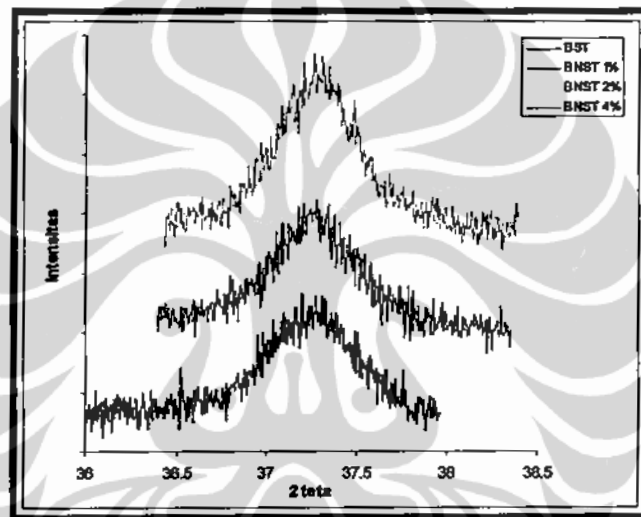
Pola difraksi hasil karakterisasi menggunakan peralatan XRD untuk melihat struktur mikro seperti diperlihatkan pada Gambar 4.40. Dua bidang yang teridentifikasi sebagai milik BST muncul yaitu (100) dan (110). Hal ini setelah dicocokkan dengan data ICDD data base. Intensitas lapisan tipis BST yang didoping natrium baik pada bidang (100) maupun (110) cenderung menurun seiring dengan bertambahnya persen mol dopan natrium dibandingkan dengan lapisan tipis BST yang tanpa didoping. Hal ini disebabkan masuknya ion dopan natrium (Na^+) yang menggantikan ion Ba^{2+} atau Sr^{2+} mengakibatkan cacat pada kristal, akibatnya intensitas sinar-X berkurang. Hal ini seperti dilakukan oleh Ta Gon Ha dkk, yang melakukan pendopingan pada $\text{Ba}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{TiO}_3$ dengan ion Cu, intensitas semua puncak BST yang muncul mengalami penurunan.



Gambar 4.40
Pola difraksi lapisan tipis BST dan BNST

Ukuran butir lapisan tipis BST yang didoping dengan natrium dihitung menggunakan persamaan Scherrer. Data input yang dibutuhkan diambil dari data XRD dengan melakukan *treatment* pemotongan sudut dari 36° sampai 38° . Bidang BST yang diambil adalah (110). Hasil perhitungan ini didapatkan untuk BNST 1%, BNST 2%, dan BNST 4% secara berturut-turut adalah 24,5 nm, 24,7 nm dan 27,1 nm. Ukuran butir dari lapisan tipis BST adalah 25 nm. Seiring dengan penambahan dopan natrium pada BST mengakibatkan ukuran butir berkurang. Bertambahnya penambahan persen mol dopan natrium mengakibatkan ukuran

butirnya berkurang. Jika tidak ada angka dibelakang koma nampak bahwa penambahan 1% dan 2% mol dopan natrium tidak mempengaruhi ukuran butir. Akan tetapi untuk penambahan 4% mol dopan Na mengakibatkan ukuran butir bertambah besar. Hal ini disebabkan jari-jari ion Na^+ lebih kecil jika dibandingkan dengan jari-jari ion Ba^{2+} atau Sr^{2+} . Seperti yang dilakukan oleh Ta Gon Ha dkk, yang melakukan pendopingan pada $\text{Ba}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{TiO}_3$ seiring dengan penambahan % mol dopan ukuran butir BST yang didoping Cu berkurang. Demikian halnya yang dilakukan Cole dkk, penambahan dopin Cu mengakibatkan penurunan ukuran butir.

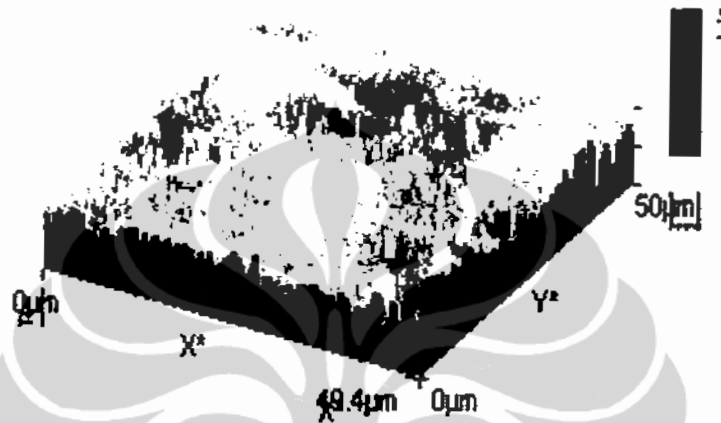


Gambar 4.41
Pola difraksi lapisan tipis BST dan BNST untuk bidang (110)

Tabel 4.24
FWHM dan ukuran butir lapisan tipis BST dan BNST

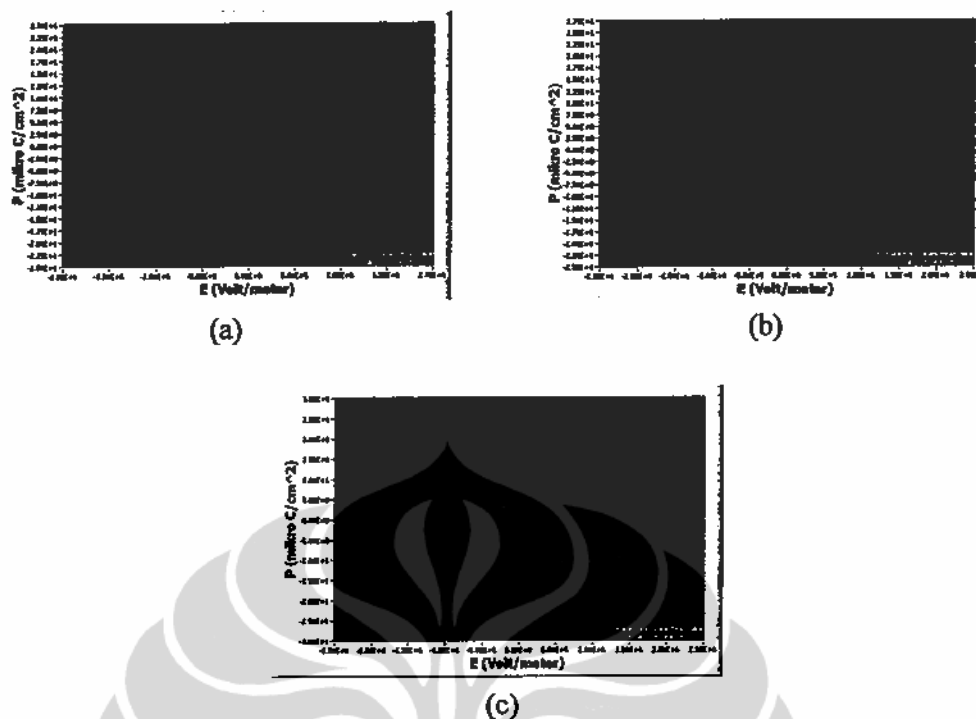
Sampel	FWHM	Ukuran butir (nm)
BST	0,4104	25
BNST 1%	0,4180	24,5
BNST 2%	0,4142	24,7
BNST 4%	0,3816	27,1

Gambar 4.51 adalah morfologi permukaan lapisan tipis BST yang didoping 4% mol dopan natrium hasil karakterisasi menggunakan AFM. Kekasaran rata-rata dari lapisan tipis BST yang didoping 4% mol dopan natrium sebesar $0,73 \mu\text{m}$ yang nilainya jauh lebih besar jika dibandingkan BST murni yaitu sebesar 22 nm.



Gambar 4.42
Morfologi permukaan ($50 \mu\text{m} \times 49,4 \mu\text{m}$) lapisan tipis BNST 4%

Menurut Adem (2003) dan Hongwei et al (2006), ukuran butir bertambah besar maka kualitas ferroelektrik dan kontanta dielektrik meningkat. Tabel 4.25 menunjukkan besarnya nilai polarisasi dan medan koersif. Nampak bahwa dengan diberikannya dopan natrium mengakibatkan polarisasi baik spontan maupun remanen berkurang kecuali sampel yang didoping 4% mol dopan natrium. Hasil ini juga didukung dari ukuran butir dari lapisan. Dari perhitungan ukuran butir dengan bertambahnya persen massa dopan mengakibatkan ukuran butir berkurang kecuali yang didoping 4% mol natrium. Berkurangnya medan koersif pada semua sampel yang didoping Na karena besarnya medan koersif yang dibutuhkan untuk membalik arah dipole dipengaruhi besarnya polarisasi. Makin besar polarisasi makin besar medan yang dibutuhkan. Akan tetapi jika dibandingkan dengan BST murni, medan koersifnya lebih besar jika dibandingkan dengan BST yang didoping 4% mol dopan Na. Hal ini karena kemungkinan pengaruh ion natrium.



Gambar 4.43 Kurva histerisis BNST untuk variasi % mol dopan Na
(a) 1% (b) 2% (c) 4%

Tabel 4.25
Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif
lapisan tipis BNST untuk variasi % mol dopan natrium

Sampel	$P_s (+)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_s (-)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_r (+)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_r (-)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$E_c (+)$ (V/m)	$E_c (-)$ (V/m)
BST	25,1658	24,0536	18,6864	18,2201	441525	451825
BNST 1%	24,8705	24,0536	18,5495	18,1655	428511	441746
BNST 2%	25,1534	24,1915	18,4641	18,1012	428228	439594
BNST 4%	27,2200	26,1315	20,3205	19,9092	437894	442070

4.6.2 Ion *soft* dopan

4.6.2.1 BST didoping Indium ($\text{Ba}_{x-y/2}\text{In}_y\text{Sr}_{1-x-y/2}\text{TiO}_3$)

Indium yang mempunyai jari-jari ion sebesar $0,92 \text{ \AA}$ menggantikan ion Ba^{2+} atau Sr^{2+} karena jari-jari ionnya mendekati jari-jari ion Ba^{2+} yaitu sebesar

1,35 Å atau ion Sr^{2+} yaitu sebesar 1,13 Å. Indium (In^{3+}) yang mempunyai muatan 3+, lebih besar jika dibandingkan dengan muatan Ba atau Sr yaitu 2+, disebut sebagai ion *soft dopan*.

Tabel 4.26 dan 4.27 menunjukkan hasil XRF untuk persen berat dan persen atom dari lapisan tipis BST yang telah didoping indium (In). Dari tabel tersebut nampak bahwa indium telah terdeposit di atas substrat Pt. Seiring dengan bertambahnya persen mol dopan indium makin banyak juga jumlah atom dopan yang terdeposit.

Tabel 4.26 Hasil XRF (wt%) BIST variasi % mol dopan In

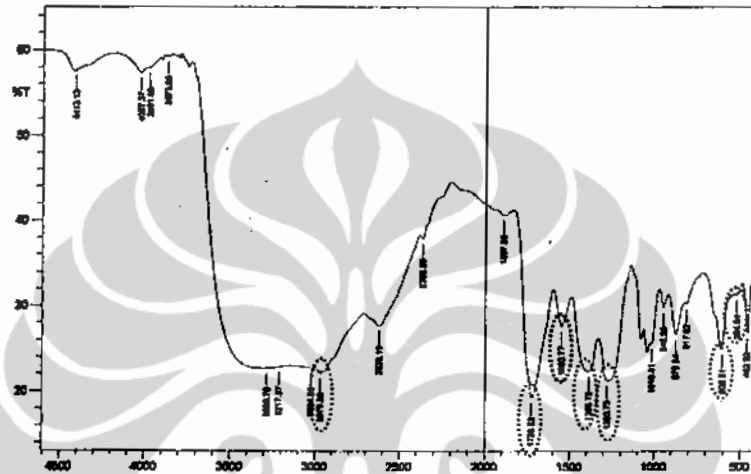
Sampel	Ba (wt%)	Sr (wt%)	Ti (wt%)	In (wt%)
BST	51,4713	4,2064	44,3224	-
BIST 1%	57,9149	2,4813	39,5702	0,0337
BIST 2%	46,0584	2,6810	50,8088	0,4518
BIST 4%	69,9870	2,9562	25,5730	1,4838

Tabel 4.27 Hasil XRF (at%) BIST variasi % mol dopan In

Sampel	Ba (at%)	Sr (at%)	Ti (at%)	In (at%)
BST	27,8003	3,5611	68,6386	-
BIST 1%	33,0374	2,2186	64,7210	0,0230
BIST 2%	23,4416	2,1388	74,1556	0,2640
BIST 4%	47,0455	2,5949	49,1741	1,1855

Gambar 4.39 adalah spektrum hasil karakterisasi FTIR (*Fourier Transform Infra Red*) untuk larutan BST yang didoping 4% mol indium (In). Tabel 4.28 menunjukkan puncak absorpsi pada bilangan gelombang tertentu yang mengakibatkan vibrasi pada ikatan molekul. Dari Tabel 4.27 nampak adanya ikatan antara Ti dengan O, dan ikatan carbonat dengan ion barium dan strontium. Hal ini menandakan adanya unsur-unsur pembentuk BST yaitu barium, strontium,

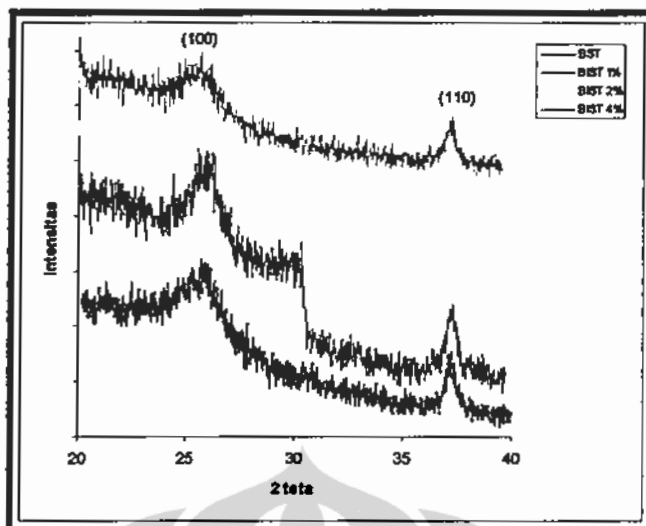
dan titanium terdapat dalam larutan tersebut. Jika dibandingkan dengan hasil FTIR untuk BST murni (Gambar 4.21) yang dijadikan standar ada perbedaan diantara keduanya yaitu pada bilangan gelombang $524,64 \text{ cm}^{-1}$, $609,51 \text{ cm}^{-1}$, $1388,75 \text{ cm}^{-1}$, $1728,22 \text{ cm}^{-1}$, dan $2970,38 \text{ cm}^{-1}$. Hal ini kemungkinan disebabkan karena adanya vibrasi ion dopan indium yang mempengaruhi ikatan molekul lain, sehingga terjadi pergeseran bilangan gelombang.



Gambar 4.44
Spektrum FTIR larutan BST doping 4% mol indium

Tabel 4.28
Vibrasi molekul yang terjadi pada larutan BST yang didoping indium

Bilangan gelombang (cm^{-1})	Vibrasi molekul
524,64	Ti-O
609,51	O-C-O
1280,73	(C-CH ₃)+(C=O)
1388,75	ikatan antara carbonat dengan ion barium dan strontium
1550,77	(C=C)+(C=O)
1728,22	(C=O)
2970,38	C-H



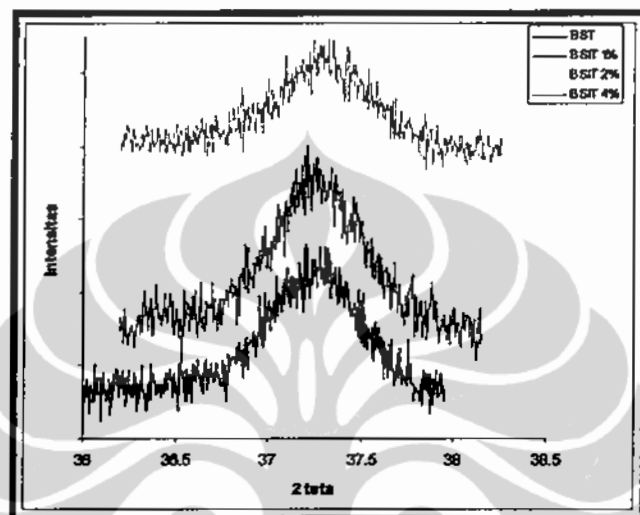
Gambar 4.45
Pola difraksi lapisan tipis BST dan BIST

Pola difraksi hasil karakterisasi menggunakan peralatan XRD untuk melihat struktur mikro seperti diperlihatkan pada Gambar 4.45. Dua bidang yang teridentifikasi sebagai milik BST muncul yaitu (100) dan (110). Hal ini setelah dicocokkan dengan data ICDD data base. Intensitas lapisan tipis BST yang didoping indium baik pada bidang (100) maupun (110) cenderung menurun seiringan dengan bertambahnya persen mol dopan indium dibandingkan dengan lapisan tipis BST yang tanpa didoping. Hal ini disebabkan masuknya ion dopan indium (In^{3+}) yang menggantikan ion Ba^{2+} atau Sr^{2+} mengakibatkan cacat pada kristal, akibatnya intensitas sinar-X berkurang. Hal ini seperti dilakukan oleh Ta Gon Ha dkk, yang melakukan pendopingan pada $\text{Ba}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{TiO}_3$ dengan ion Cu, intensitas semua puncak BST yang muncul mengalami penurunan.

Tabel 4.29
FWHM dan ukuran butir lapisan tipis BST dan BIST

Sampel	FWHM	Ukuran butir (nm)
BST	0,4104	25
BIST 1%	0,4080	25,2
BIST 2%	0,3898	26,5
BIST 4%	0,4690	21,6

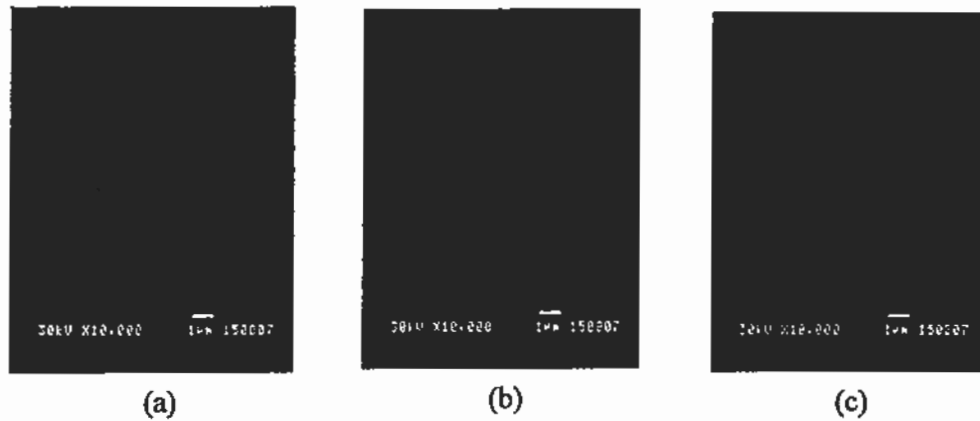
Ukuran butir lapisan tipis BST yang didoping dengan indium dihitung menggunakan persamaan Scherrer. Data input yang dibutuhkan diambil dari data XRD dengan melakukan *treatment* pemotongan sudut dari 36° sampai 38° . Bidang BST yang diambil adalah (110). Hal ini seperti disajikan pada Gambar 4.46.



Gambar 4.46
Pola difraksi lapisan tipis BST dan BIST untuk bidang (110)

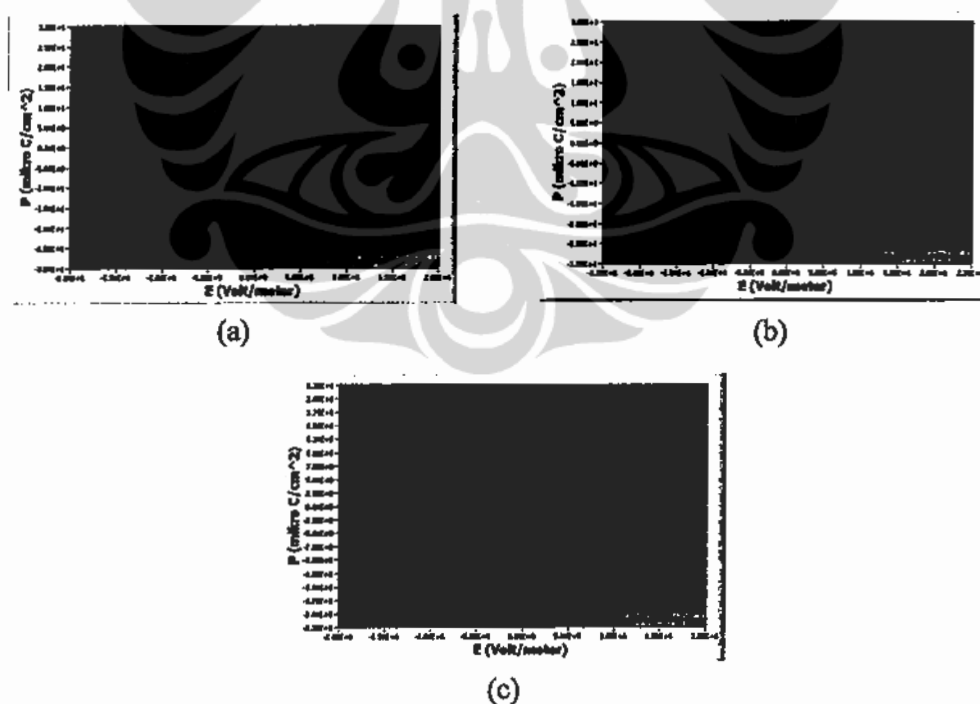
Hasil perhitungan ini didapatkan untuk BIST 1%, BIST 2%, dan BIST 4% secara berturut-turut adalah 25,2 nm, 26,5 nm dan 21,6 nm. Ukuran butir dari lapisan tipis BST adalah 25 nm. Seiring dengan bertambahnya penambahan persen mol dopan indium mengakibatkan ukuran butirnya bertambah. Akan tetapi pada penambahan 4% mol dopan indium ukuran butir berkurang. Hal ini disebabkan jari-jari ion In^{3+} lebih kecil jika dibandingkan dengan jari-jari ion Ba^{2+} atau Sr^{2+} .

Foto SEM permukaan lapisan tipis BST yang didoping indium menunjukkan bahwa dengan adanya dopan indium lapisan tipis tidak terjadi *crack*. Pada sampel 1% mol dopan indium terdapat bercak-bercak akan tetapi ini bukan *crack*. Hal ini diperkirakan pada saat pembuatan lapisan pemanasan kurang merata. Hasil foto SEM untuk variasi persen massa dopan indium disajikan pada Gambar 4.47.



Gambar 4.47
Foto SEM BIST untuk variasi % mol dopan indium
(a) 1% (b) 2% (c) 4%

Hasil uji kurva histerisis menunjukkan bahwa lapisan tipis BST yang didoping indium (BIST) merupakan material ferroelektrik. Hal ini seperti disajikan pada Gambar 4.48.



Gambar 4.48 Kurva histerisis BIST untuk variasi % mol dopan indium
(a) 1% (b) 2% (c) 4%

Tabel 4.30 menyajikan besarnya nilai polarisasi spontan, remanen, dan medan koersif untuk variasi persen massa dopan indium. Pemberian 1% mol dopan indium mengakibatkan polarisasi baik spontan maupun remanen meningkat dan medan koersif menurun jika dibandingkan dengan BST murni. Sedangkan untuk 4% massa dopan indium polarisasi menurun. Nampak bahwa dengan diberikannya dopan indium mengakibatkan berkurangnya polarisasi baik spontan maupun remanen. Dari perhitungan ukuran butir terkecuali 4% massa dopan indium, dengan bertambahnya persen massa dopan mengakibatkan ukuran butir bertambah. Menurut Adem (2003) dan Hongwei et al (2006), ukuran butir bertambah besar maka kualitas ferroelektrik dan kontanta dielektrik meningkat. Dengan diberikannya ion dopan indium mengakibatkan ukuran butir bertambah yang pada akhirnya berimbas pada kenaikan nilai polarisasi. Hal ini juga terjadi pada medan koersif, seiring dengan bertambahnya ion dopan In^{3+} medan koersif bertambah besar, akan tetapi lebih kecil dari medan koersif BST murni.

Tabel 4.30
Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif
lapisan tipis BIST untuk variasi % mol dopan indium

Sampel	$P_s (+)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_s (-)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_r (+)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_r (-)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$E_c (+)$ (V/m)	$E_c (-)$ (V/m)
BST	25,1658	24,0536	18,6864	18,2201	441525	451825
BIST 1%	25,8498	25,573	20,6316	20,1266	432095	438887
BIST 2%	26,8464	25,887	20,2116	19,9305	438881	441502
BIST 4%	21,5692	21,4604	16,8925	16,5929	439220	440059

4.6.2.2 BST didoping Lantanum ($\text{Ba}_{x-y/2}\text{La}_y\text{Sr}_{1-x-y/2}\text{TiO}_3$)

Lantanum mempunyai jari-jari 1,22 Å dan muatan +3. Pendopingan lantanum pada BST menggantikan Ba^{2+} atau Sr^{+2} karena jari-jarinya mendekati kedua atom ini. Lantanum merupakan ion *soft dopan* karena muatannya lebih besar jika dibandingkan dengan muatan Ba atau Sr yaitu +2.

Tabel 4.31 Hasil XRF (wt%) BLST variasi % mol dopan La

Sampel	Ba (wt%)	Sr (wt%)	Ti (wt%)	La (wt%)
BST	51,4713	4,2064	44,3224	-
BLST 1%	58,9587	3,6808	32,7979	4,5626
BLST 2%	56,0269	3,3398	32,7001	7,8732
BLST 4%	51,0619	3,1969	32,2591	13,4840

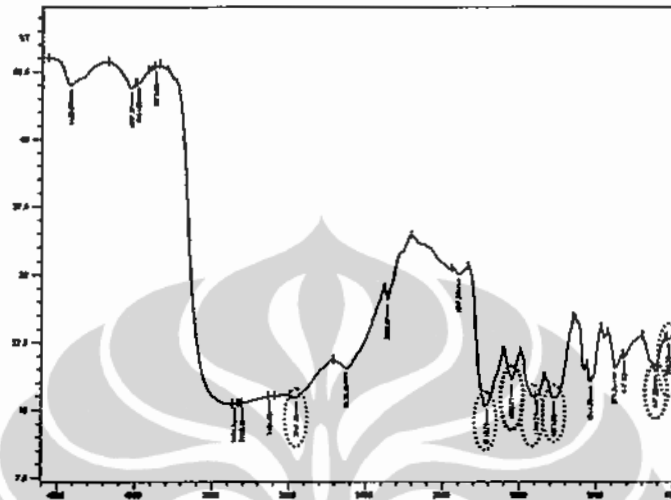
Hasil karakterisasi menggunakan peralatan XRF menunjukkan bahwa atom-atom lantanum telah terdeposit di atas substrat Pt. Makin banyak persen mol dopan lantanum yang diberikan makin banyak atom-atom lantanum yang terdeposit. Hal ini seperti terlihat pada Tabel 4.31 dan 4.32, yang masing-masing menyajikan hasil XRF persen berat dan persen atom variasi persen mol dopan La.

Tabel 4.32 Hasil XRF (at%) BLST untuk variasi % mol dopan La

Sampei	Ba (at%)	Sr (at%)	Ti (at%)	La (at%)
BST	27,8003	3,5611	68,6386	-
BLST 1%	36,1094	3,5335	57,5943	2,7628
BLST 2%	34,3772	3,2121	57,6343	4,7763
BLST 4%	31,5398	3,0952	57,1316	8,2334

Gambar 4.49 adalah hasil karakterisasi FTIR (*Fourier Transform Infra Red*) untuk larutan BST yang didoping 4% mol lantanum (La). Tabel 4.33 menunjukkan puncak absorpsi pada bilangan gelombang tertentu yang mengakibatkan vibrasi pada ikatan molekul. Dari Tabel 4.32 nampak adanya ikatan antara Ti dengan O, dan ikatan carbonat dengan ion barium dan strontium. Hal ini menandakan adanya unsur-unsur pembentuk BST yaitu barium, strontium, dan titanium terdapat dalam larutan tersebut. Jika dibandingkan dengan hasil FTIR untuk BST murni (Gambar 4.21) yang dijadikan standar ada perbedaan diantara keduanya yaitu pada bilangan gelombang $532,35 \text{ cm}^{-1}$, $1273,02 \text{ cm}^{-1}$,

1388,75 cm^{-1} , 1712,79 cm^{-1} , dan 2947,23 cm^{-1} . Hal ini kemungkinan disebabkan karena adanya vibrasi ion dopan lantanum yang mempengaruhi ikatan molekul lain, sehingga terjadi pergeseran bilangan gelombang.

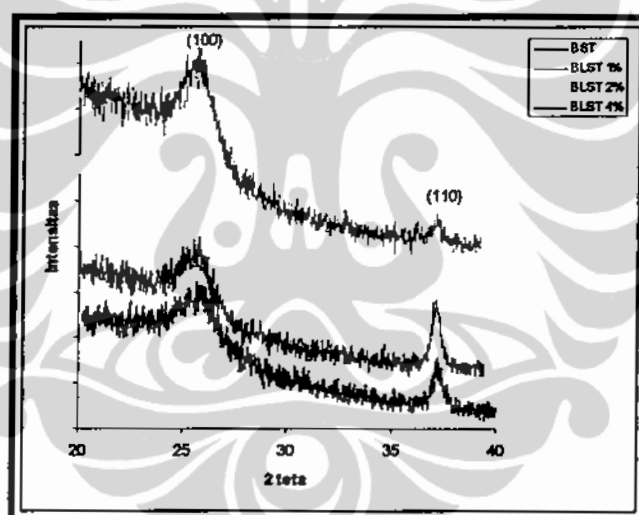


Gambar 4.49
Spektrum FTIR larutan BST doping 4% mol lantanum

Tabel 4.33
Vibrasi molekul yang terjadi pada larutan BST yang didoping lantanum

Bilangan gelombang (cm^{-1})	Vibrasi molekul
532,35	Ti-O
617,22	O-C-O
1273,02	(C-CH ₃)+(C=O)
1388,75	ikatan antara carbonat dengan ion barium dan strontium
1550,77	(C=C)+(C=O)
1712,79	(C=O)
2947,23	C-H

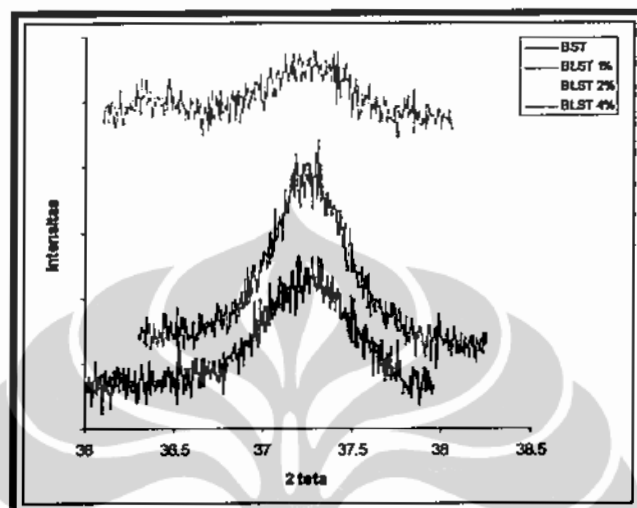
Pola difraksi hasil karakterisasi menggunakan peralatan XRD, seperti halnya dengan pendopingan dengan ion dopan yang lain, pendopingan lantanum pada BST muncul dua puncak yaitu bidang (100) dan (110). Penambahan doping lantanum pada BST mengakibatkan intensitas berkurang jika dibandingkan BST murni. Seperti halnya dengan pendopingan magnesium dan indium, intensitas lapisan tipis BST cenderung menurun dengan bertambahnya persen mol dopan lantanum dibandingkan dengan lapisan tipis BST yang tanpa didoping. Hal ini disebabkan masuknya ion dopan lantanum (La^{3+}) yang menggantikan ion Ba^{2+} atau Sr^{2+} mengakibatkan cacat pada kristal, akibatnya intensitas sinar-X berkurang. Hal ini seperti dilakukan oleh Ta Gon Ha dkk, yang melakukan pendopingan pada $\text{Ba}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{TiO}_3$ dengan ion Cu, intensitas semua puncak BST yang muncul mengalami penurunan.



Gambar 4.50
Pola difraksi apisan tipis BST dan BLST

Ukuran butir BLST setelah dihitung pada bidang (110). Persamaan Scherrer digunakan untuk mendapatkan ukuran butir yang melibatkan FWHM bidang (110). Hasil perhitungan dengan persamaan ini berturut-turut untuk BLST 1%, BLST 2% dan BLST 4% adalah 32,4 nm, 31,1 nm, dan 20,8 nm. Ukuran butir dari lapisan tipis BST adalah 25 nm. Terkecuali 4% mol dopan lantanum,

ukuran butir pada variasi persen mol dopan yang lain yaitu 1% dan 2% bertambah. Hal ini disebabkan jari-jari ion lantanum lebih kecil jika dibandingkan dengan jari-jari ion Ba^{2+} atau Sr^{2+} .

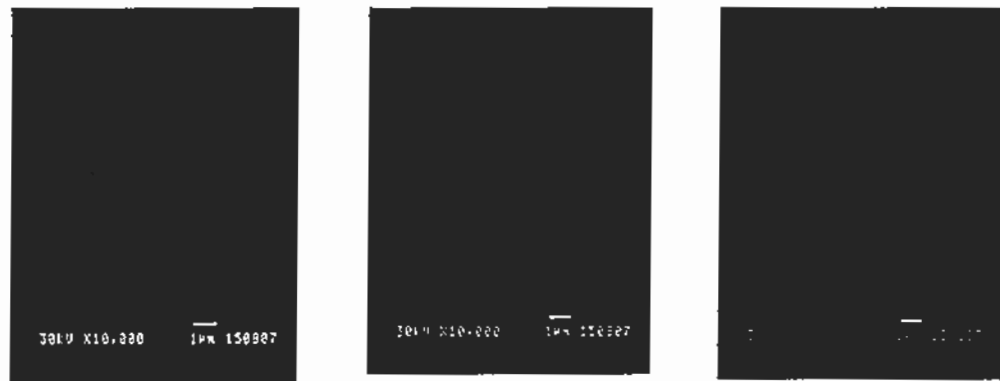


Gambar 4.51
Pola difraksi lapisan tipis BST dan BLST untuk bidang (110)

Tabel 4.34
FWHM dan ukuran butir lapisan tipis BST dan BLST

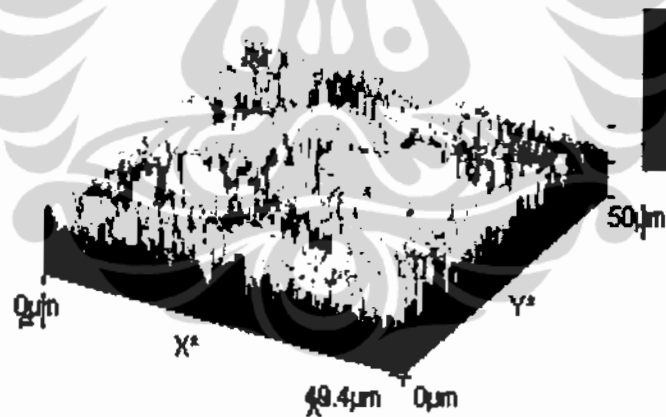
Sampel	FWHM	Ukuran butir (nm)
BST	0,4104	25
BLST 1%	0,3268	32,4
BLST 2%	0,3384	31,1
BLST 4%	0,4864	20,8

Seperti halnya pendopingan dengan ion dopan yang lain, pendopingan lantanum pada BST juga tidak menimbulkan *crack*. Hal ini seperti diperlihatkan pada Gambar 4.52, yaitu foto SEM lapisan tipis BST yang didoping lantanum untuk berbagai variasi persen mol dopan lantanum.



(a) Foto SEM BLST untuk variasi % mol dopan La (a) 1% (b) 2% (c) 4%

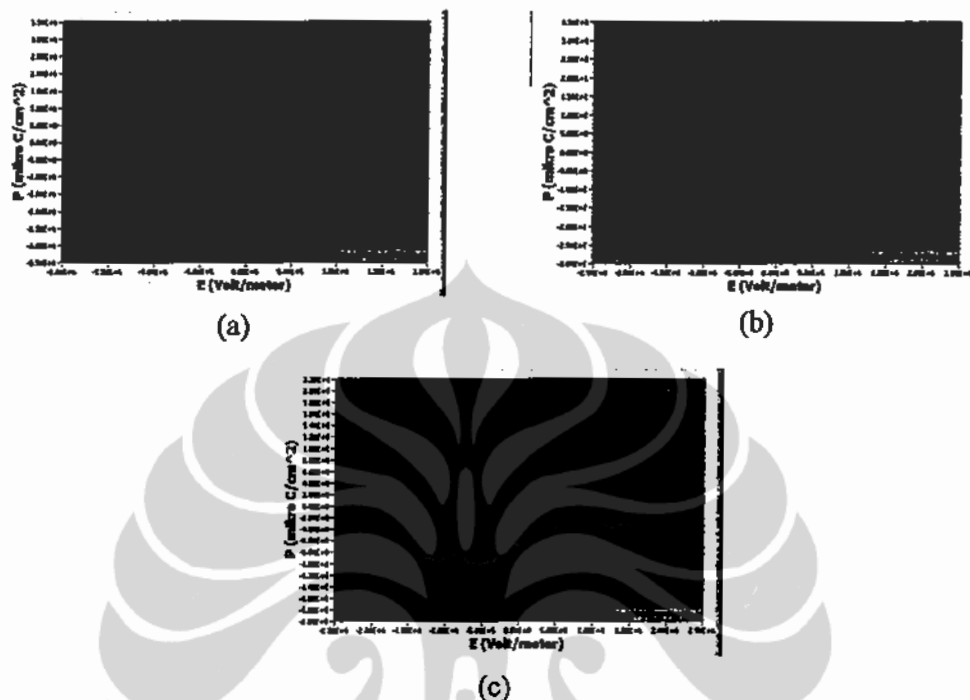
Gambar 4.53 adalah morfologi permukaan lapisan tipis BST yang didoping 4% mol dopan lantanum hasil karakterisasi menggunakan AFM. Kekasaran rata-rata dari lapisan tipis BST yang didoping 4% mol dopan lantanum sebesar 8,2 nm yang nilainya jauh lebih kecil jika dibandingkan BST murni yaitu sebesar 22 nm.



Gambar 4.53
Morfologi permukaan ($50 \mu\text{m} \times 49,4 \mu\text{m}$)
lapisan tipis BST yang didoping 4% dopan lantanum

Plot antara polarisasi yang terjadi pada lapisan tipis BLST dengan medan listrik luar menghasilkan suatu kurva histerisis yang merupakan karakter dari

material ferroelektrik. Gambar 4.54 adalah kurva histerisis untuk variasi persen massa dopan lantanum.



Gambar 4.54
Kurva histerisis BLST untuk variasi % mol dopan La
(a) 1% (b) 2% (c) 4%

Tabel 4.35 menyajikan besarnya nilai polarisasi spontan, remanen, dan medan koersif untuk variasi persen massa dopan lantanum (La^{3+}). Pemberian persen mol dopan lantanum mengakibatkan polarisasi baik spontan maupun remanen meningkat dan medan koersif menurun. Hal ini sesuai dengan perhitungan ukuran butir seperti disajikan pada Tabel 4.33, bertambahnya persen ion dopan lantanum mengakibatkan kenaikan ukuran butir. Menurut Adem (2003) dan Hongwei et al (2006), ukuran butir bertambah besar maka kualitas ferroelektrik dan konstanta dielektrik meningkat. Dengan diberikannya ion dopan lantanum, La^{3+} , mengakibatkan ukuran butir cenderung bertambah yang pada akhirnya berimbas pada kenaikan nilai polarisasi. Akan tetapi medan koersif menurun, seiring dengan bertambahnya ion dopan La^{3+} . Hal ini disebabkan

penambahan dopan lantanum yang merupakan ion *soft* dopan mengakibatkan mudahnya dipol-dipol dibalik walau nilai polarisasinya besar.

Tabel 4.35
Polarisasi spontan, remanen dan medan koersif
lapisan tipis BLST untuk variasi % mol dopan La

Sampel	$P_s (+)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_s (-)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_r (+)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$P_r (-)$ ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	$E_c (+)$ (V/m)	$E_c (-)$ (V/m)
BST	25,1658	24,0536	18,6864	18,2201	441525	451825
BLST 1%	33,7460	33,3025	25,5524	25,0444	438063	442694
BLST 2%	29,6296	29,1312	22,7214	22,1790	432601	448998
BLST 4%	20,2545	19,8204	15,2815	15,0941	437216	431976

Dari berbagai doping yang telah dilakukan baik ion *hard* dopan maupun ion *soft* dopan, ion *soft* dopan yaitu lantanum merupakan ion dopan yang baik digunakan untuk aplikasi memori. Dua parameter penting dari memori adalah polarisasi remanen dan medan koersif. Jika dibandingkan dengan ion dopan yang lain, lantanum lebih unggul karena dengan menambahkan 1% mol dopan lantanum bisa menaikkan polarisasi remanen sekitar 37% dan menurunkan medan koersif sekitar 0,8%.

BAB 5 KESIMPULAN DAN SARAN

5.1 Kesimpulan

Penumbuhan lapisan tipis Barium Strontium Titanat ($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$) dengan berbagai doping menggunakan metode *chemical solution deposition* yang disiapkan dengan *spin coating* telah berhasil dilakukan. Kesimpulan dari penelitian disertasi ini adalah:

1. Optimalisasi parameter penumbuhan lapisan tipis $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ di atas substrat adalah kecepatan putar yang digunakan saat proses *spin coating* sebesar 3000 rpm selama 30 detik dengan suhu *annealing* $800^{\circ}C$ selama 3 jam dengan *heating rate* $2^{\circ}C$ /menit.
2. Hasil karakterisasi XRF untuk lapisan tipis BST dan yang didoping dengan berbagai dopan menunjukkan semua unsur pembentuk BST yaitu barium, strontium dan titanium serta semua ion dopan telah terdeposit di atas substrat Pt/Si.
3. Hasil karakterisasi FTIR menunjukkan bahwa atom-atom pembentuk BST terdapat dalam larutan BST begitu juga BST yang didoping dengan berbagai ion dopan. Hal ini ditandai dengan adanya perbedaan bilangan gelombang yang dibandingkan dengan BST murni. Perbedaan ini disebabkan oleh vibrasi ion-ion dopan tersebut.
4. Dua puncak yang muncul teridentifikasi milik BST pada semua lapisan tipis baik BST murni maupun BST yang didoping. Pendopingan pada BST mengakibatkan penurunan intensitas pada orientasi bidang tertentu.
5. Hasil karakterisasi menggunakan elektrometer untuk melihat sifat ferroelektrik dari bahan menunjukkan bahwa sifat ferroelektrik dipengaruhi oleh ukuran butir, makin besar ukuran butir makin tinggi polarisasi baik remanen maupun spontan dan menurunnya medan koersif.

Pada BST dan yang didoping lantanum (BLST), didapatkan ukuran butir berturut-turut untuk BST, BLST 1%, BLST 2% dan BLST 4% adalah 25 nm, 32,4 nm, 31,1 nm, dan 20,8 nm. Polarisasi spontannya berturut-turut: 25,1658

$\mu\text{C}/\text{cm}^2$; 33,7460 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$; 29,6296 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$, dan 20,2545 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$. Polarisasi remanennya berturut-turut: 18,6864 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$; 25,5524 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$; 22,7214 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$; dan 15,2815 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$. Sedangkan medan koersifnya berturut-turut: 441525 V/m; 438063 V/m; 432601 V/m; dan 437216 V/m.

6. Dari berbagai variasi ion dopan, lantanum merupakan ion dopan yang sangat baik untuk meningkatkan sifat ferroelektrik untuk aplikasi memori. Pemberian 1% mol dopan lantanum dapat menaikkan polarisasi remanen sekitar 37% dan menurunkan medan koersif sekitar 0,8%.

5.2. Saran

1. Untuk mendapatkan lapisan tipis yang homogen dan rata perlu dilakukan lebih lanjut hal-hal sebagai berikut:
 - a. variasi molaritas yang lebih kecil dari 0,5 M
 - b. variasi proses *annealing* dengan memberikan gas nitrogen dan argon
 - c. perlu dipikirkan teknis penutupan permukaan yang tidak dilapisi
2. Variasi x dalam $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$ perlu dilakukan untuk melihat sifat-sifat dari lapisan tersebut untuk kemudian ditambahkan variasi dopan.
3. Karakterisasi lain dari $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$ perlu dilakukan untuk melihat aplikasi lain dari bahan ini.

DAFTAR REFERENSI

- Adem, U. (2003). *Preparation of $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ Thin Films By Chemical Solution Deposition and Their Electrical Characterization*. The Department of Metallurgical & Materials Engineering, The Middle East Technical University. Thesis.
- Atomic Force Microscope*. June 26, 2009. <http://www.wikipedia.com>
- Boum, S.K., et al. (2002). Leakage Current Properties of $(Ba,Sr)TiO_3$ Films on Doped $(Ba,Sr)RuO_3$ Electrodes. *Journal of the Korean Physical Society*, 41.
- Baniecki, J.D., et al. (2005). A study of current transport in $Ba_xSr_{1-x}Ti_{1+y}O_{3+z}$ thin-film capacitors containing a voltage-dependent interface state charge distribution. *J. Appl. Phys.*, 97.
- Cho, K.H., et al. (2006). Characteristics of $(Ba,Sr)TiO_3$ Thin Films for Microwave Tunable Device applications. *Journal of the Korean Physical Society*, 49(3).
- Chong, K.B., et al. (2004). Improvement of dielectric loss tangent of Al_2O_3 doped $Ba_{0.5}Sr_{0.5}TiO_3$ thin films for tunable microwave devices. *J. Appl. Phys.*, 95 (3).
- Cole, M.W., et al. (2008). Microwave dielectric properties of graded barium strontium titanate films. *J. Appl. Phys.*, 92.
- Cullity, R.D. and S.R. Stock. (2001). *Element of X Ray Diffraction*. New Jersey: Prentice Hall.
- Dietz, G.W., et al. (1997). Leakage currents in $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ thin films for ultrahigh-density dynamic random access memories. *J. Appl. Phys.*, 82 (5).
- Dongsu Kim. (2004). *Monolithic Analog Phase Shifters Based on Barium Strontium Titanate Coated Sapphire Substrates for WLAN Applications*. Georgia Institute of Technology. Dissertation.

- Fan, M., et al. (2003). Materials science and integration bases for fabrication of $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ thin film capacitors with layered Cu-based electrodes. *J. Appl. Phys. Lett.*, 94(9).
- Fu, C., et al. (2006). *Voltage tunable $Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO_3$ thin films and coplanar phase shifters*. The 3rd Intl. Conf. on Technological Advances of Thin Films & Surface Coatings-Thinfilms.
- Fu Xinghua, et al. (2004). Progress of (Sr,Ba)TiO₃ ferroelectric thin film and tunability. *Bull. Mater. Sci.*, 27 (5).
- Garcia, S., et al. (2001). Effect of Nb Doping on (Sr,Ba)TiO₃ (BST) Ceramic Samples. *Journal of Electroceramics*, 6 (2).
- Giridharan, N. V., et al. (2001). Structural, Morphological and Electrical Studies On Barium Strontium Titanate Thin Films Prepared by Sol-Gel Technique. *Crystal Research Technhnology*, 36 (1).
- Halder, S., Schneller T., & Waser, R. (2005). Crystallization Temperature Limit of (Ba,Sr)TiO₃ Thin Films Prepared by a Non Oxocarbonate Phase Forming CSD Route. *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, 33.
- Halder, S. (2006). *Preparation and characterization of barium-based perovskite dielectrics on different bottom electrodes by chemical solution deposition*. Von der Fakultät für Georessourcen und Materialtechnik der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen, German. Disertasi.
- Hikam, M., Angraini, P.W.K., Sumardi, T. 2006. *Ferroelectric and Crystallographic Studies of Barium Strontium Titanate ThinFilms doped by Nb₂O₅*, Proceedings The 3rd International Conference on Technological Advances of Thin Films & Surface Coatings, Singapore
- Hongwei, C., et al. (2006). The size effect of $Ba_{0.6}Sr_{0.4}TiO_3$ thin films on the ferroelectric properties. *Applied Surface Science*, 252.
- Hong-Wen Wang. (2002). Processing and Characterization of Microwave Dielectric Ceramics and Thin Films- $Nd_2(Ti_{2/3}Al_{1/3})_3O_{9.5}$ and $(Ba_{0.7}Sr_{0.3})TiO_3$. *Tamkang Journal of Science and Engineering*, 5, (2).

- Hu-Yong Tian, et al. (2002). Influences of annealing temperature on the optical and structural properties of (Ba,Sr)TiO₃ thin films derived from sol-gel technique. *Thin Solid Films*, 408.
- Hyuk Koh, J. (2002) *Processing and Properties of Ferroelectric Ag(Ta,Nb)O₃ Thin Films*. Dissertation.
- Iriani, Y., et al. (2007). *Crystallographic Study of Barium Strontium Titanate (Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃) Thin Films Prepared by Sol-Gel Method*, Proceedings 4th International Conference on Materials for Advanced Technologies (ICMAT), Singapore.
- Jain, M., et al. (2003). Improvement in electrical characteristics of graded manganese doped barium strontium titanate thin films. *J. Appl. Phys. Lett.*, 82.
- Jeon, Y., et al. (2001). Effect of Ni Doping on Improvement of the Tunability and Dielectric Loss of Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃ Thin Films for Microwave Tunable Devices. *Jpn. J. Appl. Phys.*, 40.
- Jona, F. and Shirane, G. (1993). *Ferroelectric Crystal*. New York: Dover Publication.
- Kim, J.K., et al. (2006). Improved ferroelectric properties of Cr-doped Ba_{0,7}Sr_{0,3}TiO₃ thin films prepared by wet chemical deposition. *Materials Letters*, 60.
- Kingon, A.I., J.P. Maria and S.K. Streiffer. (2000). Alternative Dielectrics to Silicon Dioxide for Memory and Logic Devices. *Nature*, Vol. 406.
- Kotecki, D.E., et al. (1999). (Ba,Sr)TiO₃ dielectrics for future stacked capacitor DRAM. *IBM J. Res. Develop.* Vol. 43 No. 3.
- Koutsaroff, I.P., et al. (2003). Dielectric Properties of (Ba,Sr)TiO₃ Thin Film Capacitors Fabricated on Alumina Substrates. *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.*, 748.
- Lines, M.E. and A.M. Glass. (1977). *Principles and Application of Ferroelectric and Related Materials*. Oxford: Clarendon Press.

- Lookman, A., et al. (2004). Effects of poling, and implications for metastable phase behavior in barium strontium titanate thin film capacitor. *Appl. Phys. Lett.*, 85 (21).
- Lu, H., et al. (2006). Influence of annealing temperature on the band structure of sol-gel $\text{Ba}_{0.65}\text{Sr}_{0.35}\text{TiO}_3$ thin films on *n*-type Si(100). *Appl. Phys. Lett.*, 88.
- Noren, B. (2004). Thin Film Barium Strontium Titanate (BST) for a New Class of Tunable RF Component. *Microwave Journal*.
- PDF-ICDD (Powder Diffraction File, International Centre of Diffraction Data) database (CD ROM). (1998).
- Podpirka, A., et al. (2008). Effect of photon irradiation on structural, dielectric, and insulating properties of $\text{Ba}_{0.60}\text{Sr}_{0.40}\text{TiO}_3$ thin films. *J. Appl. Phys. Lett.*, 92.
- Rosyidah, A. (2007). *Defek pada Oksida Aurivillius dan Pengaruhnya terhadap Sifat Ferroelektrik*. Institut Teknologi Bandung. Disertasi.
- Seung, E.M., et al. (2003). Orientation dependent microwave dielectric properties of ferroelectric $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$ thin films. *Appl. Phys. Lett.*, 83(11).
- Sigman, J., et al. (2007). Effect of microstructure on the dielectric properties of compositionally graded $(\text{Ba,S})\text{TiO}_3$ films.
- Sirikulrata, N. (2008). Platinum thin film–antimony doped barium strontium titanate Schottky barrier diode. *J. Appl. Phys. Lett.*, 92.
- Somnath, C., et al. (2004). Effect of Pre-sintering on the structural and dielektrik properties of $(\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5})\text{TiO}_3$ thin films deposited by sol gel technique
- Syamaprasad, U., Galgali RK & Mohanty BC. (1988). Dielectric properties of the $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$ system. *Mater Lett* 7.
- Tae Gon Ha, et al. (2006). Cu-Doping Effects on the Dielectric and Insulating Properties of Sol-Gel Derived $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$ Thin Film. *Journal of the Korean Physical Society*, 49.

- Tahan et al. (1997). Effect of oxygen to argon ratio on properties of $(\text{Ba,Sr})\text{TiO}_3$ Thin films prepared by radio-frequency magnetron sputtering. *J. Appl. Phys.*, Vol. 82(7).
- Tao Hu. (2004). *BST-Based Low Temperature Co-Fired Ceramic (LTCC) Modules for Microwave Tunable Components*. Dissertation.
- Uchino, K.. (2000). *Ferroelectric Devices*. New York: Macel Dekker.
- Ustinov, A.B., Srinivasana, B. A. Kalinikos. (2007). Ferrite-ferroelectric hybrid wave phase shifters. *J. Appl. Phys. Lett.*, 90.
- Vlack, L.V., diterjemahkan oleh Sriati Djaprie. (2001). *Ilmu dan Teknologi Bahan (Ilmu Logam dan Bukan Logam)*. Jakarta: Erlangga.
- Wang, S.Y., et al. (2005). Influence of Ce doping on leakage current in $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ films. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 38.
- Xu, Y. (1991). *Ferroelectric Materials and Their Application*. USA: University of Calofornia Los Angeles.
- Yakovlev, S. (2004). *Lanthanide Ions Doping Effects on Structural, electrophysical and Functional Properties of Sol-gel Fabricated PbTiO_3 Thin Films*. Der Technischen Fakultät der Christian-Albrechts-Universität zu, Kiel. Dissertation.
- Yan, L., et al. (2004). $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{TiO}_3$ - $\text{Bi}_{1.5}\text{Zn}_{1.0}\text{Nb}_{1.5}\text{O}_7$ composite thin films with promising microwave dielectric properties for microwave device applications. *J. Appl. Phys. Lett.*, 85,(16).
- Zhong, S., et al. (2007). Highly tunable and temperature insensitive multilayer barium strontium titanate films. *J. Appl. Phys. Lett.*, 90.
- Zhu, X.H., et al. (2006). Enhanced dielectric properties of Mn doped $\text{Ba}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{TiO}_3$ thin films fabricated by pulsed laser deposition. *Materials Letter*, 60.



Lampiran A

Makalah yang Telah Dipublikasikan

1. Yofentina I., Viska I.V., M. Hikam, B. Soegijono, Batasan kecepatan putar Lapisan Tipis Barium Strontium Titanat 0,5M yang Ditumbuhkan Menggunakan Metode Sol Gel, Seminar Hamburan Neutron dan Sinar-X, Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir-Badan Tenaga Atom, Serpong, Oktober 2009
2. D. Fasquelle, M. Mascot, J.C. Carru , M. Hikam, Y. Iriani and B. Soegijono, *Study of Lead Free Ferroelectric Films for New Solar Cells*, Int. Workshop on Advanced Materials for Renewable and New Energy, Jakarta, 2009
3. M. Hikam, B. Soegijono, Y. Iriani, I. Mudzakir, *Characterization of Barium Strontium Titanate Thin Film Doped Indium*, Int. Workshop on Advanced Materials for Renewable and New Energy, Jakarta, 2009.
4. Y. Iriani, M. Hikam, B. Soegijono, I. Mudzakir, *Pengaruh Heating Rate Dan Jumlah Lapisan terhadap Sifat Listrik (Kurva Histerisis) pada Lapisan Tipis Barium Strontium Titanat*, Jurnal Sains Material Indonesia, 2008.
5. A. Jamaludin, M. Hikam, B. Soegijono, Y. Iriani, *Pembuatan Lapisan $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ yang Didoping Cu dengan Metode Spin Coating Dan Karakterisasinya*, Seminar Nasional Material & Metalurgi II, ITB Bandung 20-21 Agustus 2008
6. Y. Iriani, M. Hikam, B. Soegijono, A. Jamaludin, I. Mudzakir, *Sifat Ferroelektrik BST dan BST yang didadah Mg yang Dibuat dengan metode Chemical Solution Deposition*, Seminar Nasional Fisika Universitas Negri Malang, Malang, Agustus 2008
7. N. Sueta, Y. Iriani, M. Hikam, B. Soegijono, A. Jamaludin, *Studi Kekristalan Barium Strontium Titanat ($Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$) yang Didoping Magnesium dengan Metode Spin Coating*, Jurnal Sains Material Indonesia, 2008

8. Y. Iriani, M. Hikam, B. Soegiyono, A. Jamaludin, N. Sueta, *Annealing Process Optimization on Growing Barium Strontium Thin Films: Crystallographic Consideration*, 2nd USM Penang International Postgraduate International (International Conference Young Chemist), Malaysia, 2008.
9. M. Hikam, Y. Iriani, B. Soegiyono, A. Jamaludin, N. Sueta, *The Influence of Mg Doped of Barium Strontium Titanate Thin Films to Strain Micro and Grain Size*, 2nd USM Penang International Postgraduate International (International Conference Young Chemist), Malaysia, 2008.
10. Y. Iriani, M. Hikam, B. Soegiyono, A. Jamaludin, N. Sueta, *Pengaruh Suhu Suhu Annealing terhadap Ukuran Butir Dan Strain Mikro, Lapisan Tipis Barium Strontium Titanat ($Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$)*, Seminar Nasional Fundamental Dan Aplikasi Teknik Kimia ITS, Surabaya, 2007.
11. Y. Iriani, M. Hikam, A. Darmawan, *Studi Sifat Ferroelektrik Barium Strontium Titanat Doping Indium*, Proceedings 4th Ketingan Physics Forum, Solo, 28 Juli 2007.
12. A. Darmawan, M. Hikam, Y. Iriani, *Deposisi Barium Strontium Titanat ($Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$) yang Didadah Indium dengan Metode Chemical Solution Deposition*, Proceedings 4th Ketingan Physics Forum, Solo, 28 Juli 2007.

Lampiran B

Data Pendukung dari LEMCEL (Laboratoire d'Etudes des Materiaux et Composants pour l'Electronique)

Lapisan tipis barium strontium titanat adalah salah satu material ferroelektrik. Sifat listrik suatu material ditentukan beberapa parameter diantaranya ukuran butir (*grain size*), ketebalan lapisan, serta struktur kristal. Penelitian yang dilakukan pada bagian utama telah membahas sifat ferroelektrik dari BST dan BST yang didoping. Pada lampiran ini ditampilkan beberapa data pendukung untuk memperkuat dari isi disertasi ini. Pengambilan data dilakukan di LEMCEL Universite du Littoral Cote d'Opale Calais France pada bulan November 2009. Beberapa parameter yang diukur meliputi ukuran butir, ketebalan lapisan tipis menggunakan SEM *high resolution* serta sifat listrik yang meliputi konstanta dielektrik dan tangen δ (*loss tangent*) menggunakan HP 4284 RLC meter.

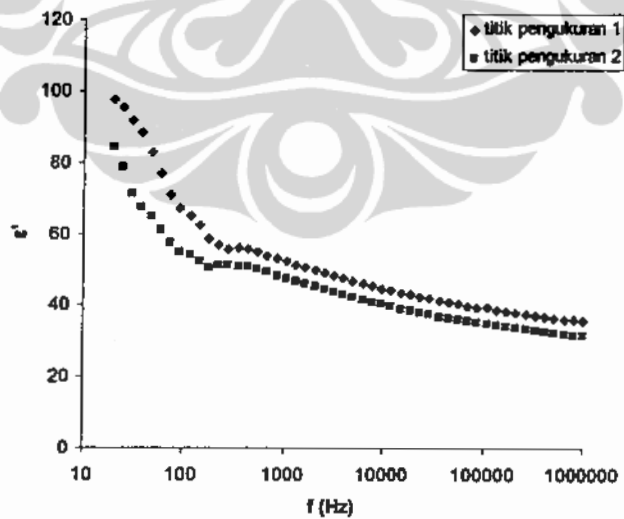
BST Murni

Barium strontium titanat murni dibuat dengan metode *sol gel* yang dideposisikan di atas substrat Pt/Si dengan kecepatan putar 4000 rpm, suhu *annealing* 800°C selama 3 jam, *heating rate* 2°/menit dengan jumlah lapisan 5 lapis. Hasil foto

SEM seperti ditunjukkan pada Gambar L-1 . Ukuran butir yang terukur sekitar 50-95 nm, sedangkan ketebalan lapisan sekitar 300 nm.

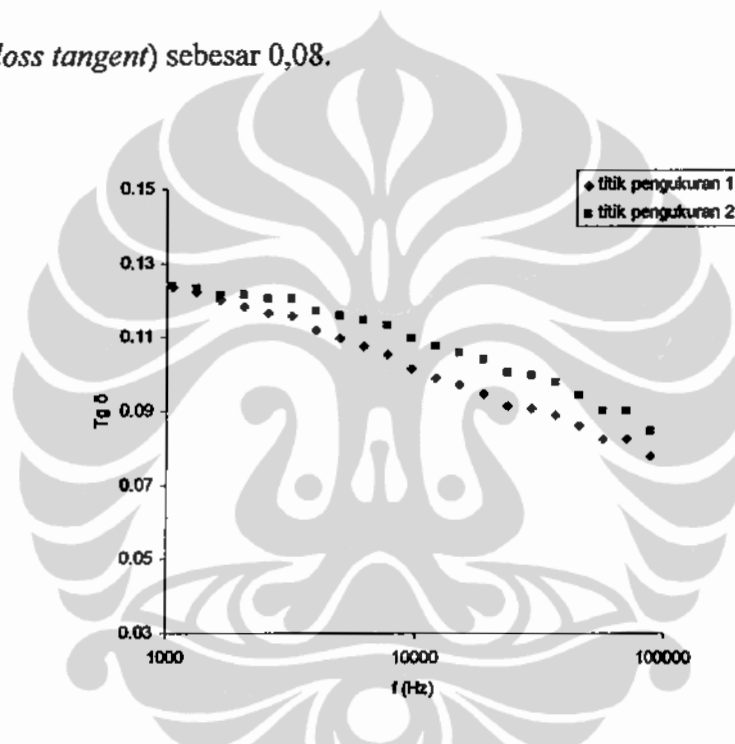


Gambar L-1 Hasil foto SEM BST murni
kecepatan putar 4000 rpm, suhu 800⁰C selama 3 jam, *heating rate* 2⁰/menit, 5 lapis
(a) ukuran butir (b) tampang lintang



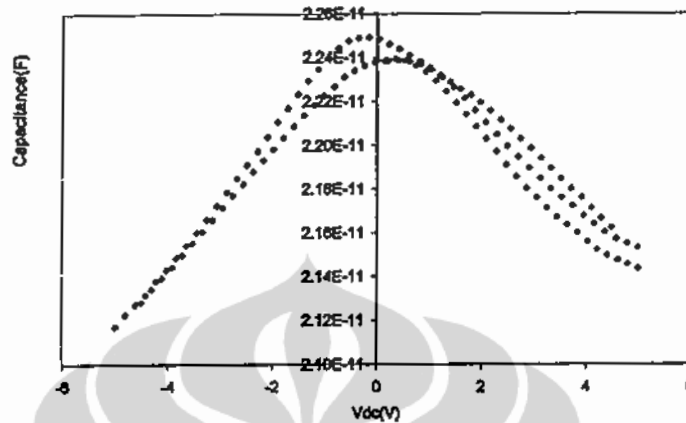
Gambar L-2 Grafik hubungan frekuensi dengan konstanta dielektrik
variasi titik pengukuran untuk sampel BST murni
kecepatan putar 4000 rpm, suhu 800⁰C selama 3 jam, *heating rate* 2⁰/menit, 5 lapis

Grafik hubungan antara frekuensi dengan konstanta dielektrik yang diukur dengan titik yang berbeda menggunakan HP 4284 RLC meter seperti ditampilkan pada Gambar L-2, sedangkan grafik hubungan antara frekuensi dengan $\text{tg } \delta$ (*loss tangent*) seperti ditampilkan pada Gambar L-3. Diameter titik yang diukur adalah $80 \mu\text{m}$. Konstanta dielektrik yang didapatkan pada frekuensi 1 MHz sebesar 35 dan tangen δ (*loss tangent*) sebesar 0,08.



Gambar L-3 Grafik hubungan frekuensi dengan tangen δ variasi titik pengukuran untuk sampel BST murni kecepatan putar 4000 rpm, suhu 800°C selama 3 jam, *heating rate* $2^{\circ}/\text{menit}$, 5 lapis

Gambar L-4 adalah grafik hubungan antara tegangan dengan kapasitansi. Dari gambar tersebut nampak bahwa kurva berbentuk kupu-kupu (*butterfly shape*). Hal ini menggambarkan bahwa sampel yang dibuat bersifat ferroelektrik.



Gambar L-4 Grafik hubungan antara tegangan dengan kapasitansi BST murni kecepatan putar 4000 rpm, suhu 800⁰C selama 3 jam *heating rate* 2⁰/menit, 5 lapis

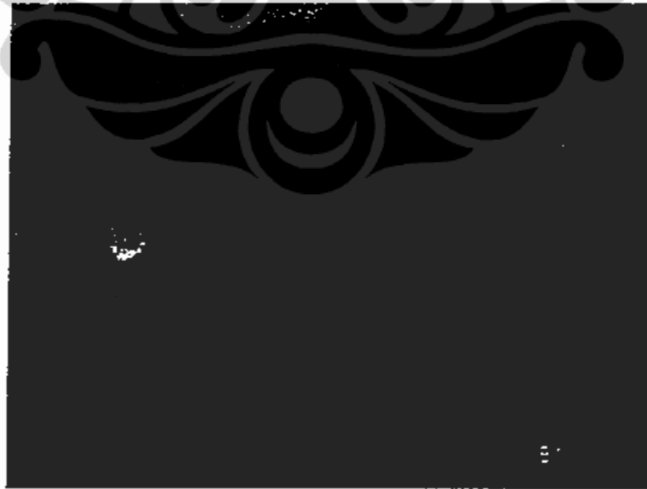
Penumbuhan lapisan tipis BST murni dengan suhu *annealing* yang berbeda yaitu 900⁰C dengan kecepatan putar 4000 rpm, waktu tahan selama 3 jam, dan *heating rate* 2⁰C/menit dilakukan di atas substrat Pt/Si. Hasil foto SEM seperti ditunjukkan pada Gambar L-5. Ukuran butir yang didapatkan sebesar 45-135 nm dengan ketebalan lapisan sekitar 170 nm. Ukuran butir yang didapatkan pada sampel ini lebih besar jika dibandingkan dengan sampel sebelumnya yaitu dengan suhu *annealing* 800⁰C. Hal ini karena suhu mempengaruhi proses difusi antar butir-butir. Makin tinggi suhu makin banyak butir-butir yang berdifusi yang akhirnya membentuk butiran dengan ukuran yang lebih besar.



Gambar L-5 Hasil foto SEM BST murni
kecepatan putar 4000 rpm, suhu 900°C selama 3 jam, *heating rate* $2^{\circ}/\text{menit}$, 5 lapis
(a) ukuran butir (b) tampang lintang

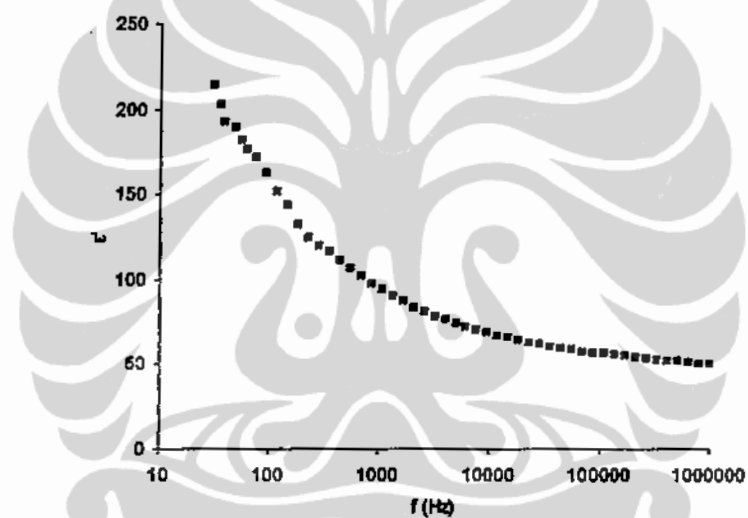
BST Doping

BMST 1%



Gambar L-6 Hasil foto SEM BMST 1%
kecepatan putar 3000 rpm, suhu 800°C selama 3 jam, *heating rate* $2^{\circ}/\text{menit}$, 3 lapis

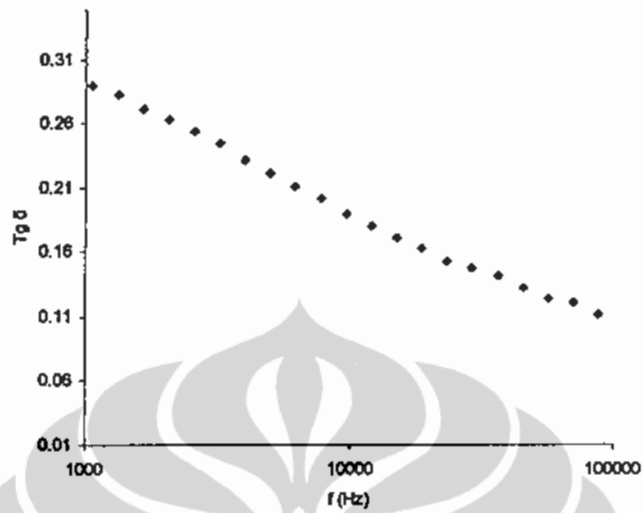
Deposisi lapisan tipis BST yang didoping magnesium (Mg) 1% mol di atas substrat Pt/Si dilakukan dengan *spin coater* dengan kecepatan 300 rpm, suhu *annealing* 800°C selama 3 jam dan *heating rate* 2°C/menit dan jumlah lapisan tiga. Hasil foto SEM seperti pada Gambar L-6 menunjukkan ukuran butir yang didapatkan sekitar 20-40 nm. Sedangkan ketebalan lapisan tipis yang diukur dengan dektak adalah sebesar 200 nm.



Gambar L-7

Grafik hubungan frekuensi dengan konstanta dielektrik sampel BMST 1% kecepatan putar 3000 rpm, suhu 800°C selama 3 jam, *heating rate* 2°C/menit, 3 lapis

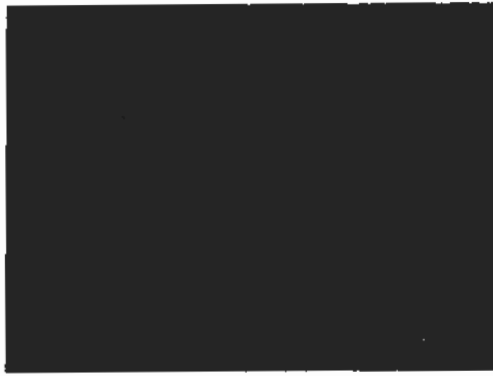
Gambar L-7 menampilkan grafik hubungan antara frekuensi dengan konstanta dielektrik untuk lapisan tipis BST yang didoping Mg 1% mol. Sedangkan grafik hubungan antara frekuensi dan $\tan \delta$ seperti ditampilkan pada Gambar L-8. Konstanta dielektrik yang didapatkan pada frekuensi 1 MHz sebesar 50 dan tangen δ (*loss tangent*) sebesar 0,11.



Gambar L-8
 Grafik hubungan frekuensi dengan tangen δ sampel BMST 1%
 kecepatan putar 3000 rpm, suhu 800°C selama 3 jam, *heating rate* $2^{\circ}/\text{menit}$, 3 lapis

BLST 1%

Penumbuhan lapisan tipis BST yang didoping lanthanum (La) 1% mol di atas substrat Pt/Si menggunakan *spin coater*. Lapisan yang dibuat sebanyak 3 lapis yang dipanaskan dengan *furnace* dengan suhu *annealing* 800°C selama 3 jam, *heating rate* $2^{\circ}\text{C}/\text{menit}$. Hasil foto SEM untuk sampel in seperti disajikan pada Gambar L-9. Ukuran butir yang didapatkan sebesar 20-40 nm dengan ketebalan lapisan sebesar 310 nm.



(a)

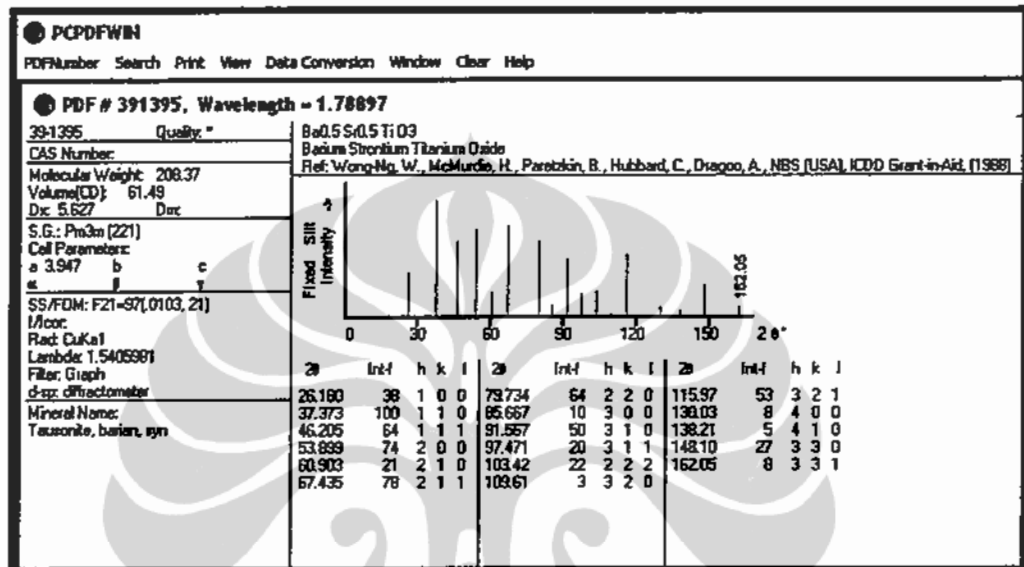


(b)

Gambar L-9 Hasil foto SEM BLST 1%
kecepatan putar 3000 rpm, suhu 800⁰C selama 3 jam, *heating rate* 2⁰/menit, 3 lapis
(a) ukuran butir (b) tampang lintang

Lampiran C

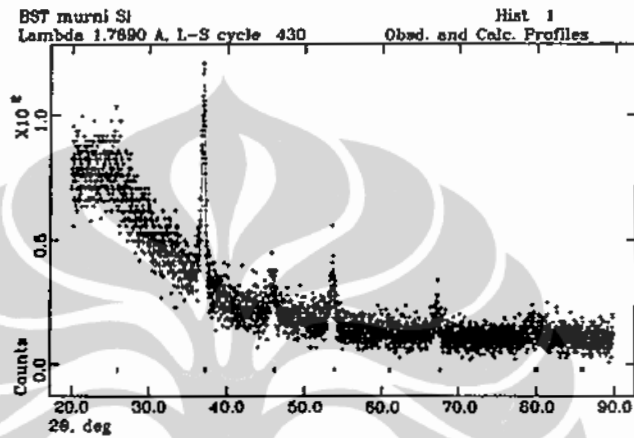
Data ICDD Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃



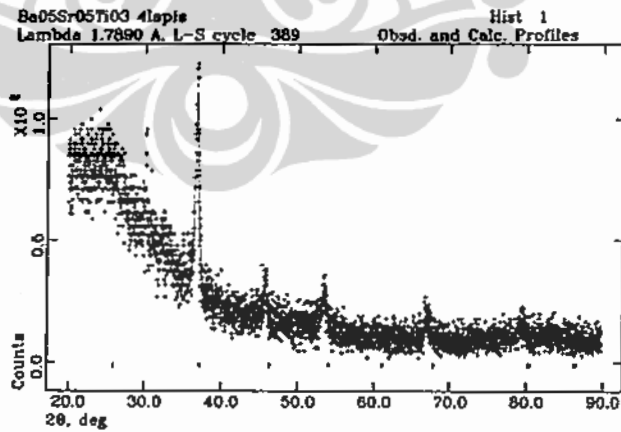
Lampiran D

Hasil penghalusan GSAS variasi jumlah lapisan untuk $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$

1. 5 lapis



2. 4 lapis



3. 3 lapis

