



UNIVERSITAS INDONESIA

STUDI SPEKTROSKOPI IMPEDANSI
BARIUM TITANAT PADA TEMPURUT TINGGI

TESIS

SYAHRIL
1006786940

DEPARTEMEN FISIKA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
UNIVERSITAS INDONESIA
JAKARTA
JUNI 2012



UNIVERSITAS INDONESIA

STUDI SPEKTROSKOPI IMPEDANSI
BARIUM TITANAT PADA TEMPERTUR TINGGI

TESIS

Diajukan sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar Magister Fisika

SYAHRIL
1006786940

DEPARTEMEN FISIKA
FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM
UNIVERSITAS INDONESIA
JAKARTA
JUNI 2012

HALAMAN PENGESAHAN

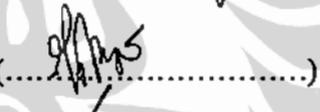
Tesis ini diajukan oleh

Nama : Syahril
NPM : 1006786940
Program Studi : S2
Judul Tesis : Studi Spektroskopi Impedansi Barium Titanat
Pada Temperatur Tinggi

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

Dewan Penguji

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

Pembimbing : Dr. Djoko Triyono (.....)

Penguji I : Prof. Dr. Rosari Saleh (.....)

Penguji II : Dr. Cuk Himawan (.....)

Penguji III : Dr. Muhammad Aziz Majidi (.....)

Ditetapkan di : Depok

Tanggal : 21 Juni 2012

HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS

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

Nama : SYAHRIL

NPM : 1006786940

Tanda tangan :



Tanggal : 21 Juni 2012

**HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI
TUGAS AKHIR UNTUK KEPENTINGAN AKADEMIS**

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

Nama : SYAHRIL
NPM : 1006786940
Program Studi : Fisika Murni Dan Terapan
Departemen : Fisika
Fakultas : Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Jenis Karya : Tesis

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

Spektroskopi Impedansi Barium Titanat Pada Temperatur Tinggi

Beserta perangkat yang ada (jika diperlukan). Dengan Hak Bebas Royalti Noneksklusif ini Universitas Indonesia berhak menyimpan, mengalihmedia/format-kan, 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 : Depok

Pada Tanggal : 21 Juni 2012

Yang menyatakan



(SYAHRIL)

KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis panjatkan kehadirat Allah SWT dan Rasulullah SAW yang telah menunjukkan jalan bagi umatnya kepada yang terang-benderang. Sungguh tidak sebanding dari apa yang telah penulis pelajari didalam tugas akhir ini dibandingkan dengan mempelajari tentang hakikat hidup itu sendiri. Hanya petunjuk Tuhan lah yang penulis harapkan agar penulis dapat meraih ilmu dunia dan akhirat yang seiring dan sejalan.

Tidak terasa waktu dua tahun telah penulis tempuh di departemen fisika, hingga akhirnya di penghujung tahun kedua penulis dapat menyelesaikan tugas akhir ini. Didalam mengerjakan tugas akhir ini penulis tidak akan pernah mampu menyelesaikan pekerjaan ini dengan baik apabila tidak dibantu oleh orang-orang yang sangat berjasa dan yang akan selalu menjadi kenangan bagi penulis. Akan menjadi berlembar-lembar kertas untuk menyatakan ungkapan rasa terima kasih yang begitu banyak bagi orang-orang yang telah menyokong penulis. Akan tetapi untuk orang-orang khusus rasanya perlu bagi penulis untuk dapat menyebutkannya didalam kata pengantar ini.

Dalam kesempatan ini penulis menyampaikan rasa terima kasih yang sedalam-dalamnya kepada :

1. Bapak Dr. Techn. Djoko Triyono sebagai dosen pembimbing penulis yang selalu mengajarkan apa yang tidak penulis ketahui, yang selalu memberikan ide-ide segar didalam pengerjaan tugas akhir, yang selalu memberikan kritik dan saran yang sangat berguna bagi penulis.
2. Ibu Prof. Dr. Rosari Saleh sebagai dosen penguji yang telah meluangkan waktunya untuk penulis dalam melaksanakan sidang tugas akhir.
3. Bapak Dr. Cuk Imawan yang pula telah meluangkan waktunya untuk penulis dalam melaksanakan sidang tugas akhir.
4. Bapak Dr. Muhammad Aziz Majidi selaku ketua sidang dan penguji yang juga telah meluangkan waktunya untuk penulis dalam melaksanakan sidang tugas akhir.

5. Bapak Dr. Yunus Daud selaku ketua Departemen Fisika, yang telah memberikan kemudahan fasilitas bagi mahasiswa yang mengerjakan tugas akhir.
 6. Hamdan (S1 instrumentasi), yang telah membuat alat mikrokontroler, heater beserta program LabViewnya yang penulis gunakan dalam pengambilan data pada penelitian ini.
 7. Bapak Michael (mahasiswa S3 material) yang telah memberikan lem perak secara gratis kepada penulis sehingga penulis dapat mewujudkan penelitian ini.
 8. Muhammad Ali Akbar (mahasiswa S2 FASILKOM,) yang telah meluangkan waktunya menjelaskan kepada penulis segala sesuatunya yang berhubungan dengan penyelesaian tugas akhir ini.
 9. Kedua orang tua penulis yang sangat penulis cintai, Abak jo Amak, (Alm) mudah-mudahan sudah damai di Surganya Allah SWT.beserta keluarga di kampung.
 10. Bapak Untung, yang siap sedia membantu perlengkapan segala sesuatunya selama penulis melakukan penelitian di UPP IPD FMIPA UI.
 11. Pemprof Jambi yang telah memberikan segala dukungan kepada penulis.
 12. Teman-teman seperjuangan selama di fisika S2 khususnya angkatan 2010
- Akhir kata, dengan segala kerendahan hati penulis mengharapkan kritik dan saran dari semua pihak mengenai tugas akhir ini. Penulis berharap tugas akhir ini bermanfaat bagi semua pihak yang memerlukannya terutama sebagai acuan bagi adik-adik kelas nanti yang ingin melanjutkan penelitian pada bidang yang berkaitan.

Depok, Juni 2012

Penulis


Syahril

ABSTRAK

Nama : Syahril
Program Studi : Fisika Murni dan Terapan
Judul Tesis : Studi Spektroskopi Impedansi Barium Titanat
Pada Temperatur Tinggi

Telah dilakukan penelitian tentang sifat ferroelektrik pada material PTC dan BaTiO₃ dengan menggunakan metode spektroskopi impedansi pada temperatur tinggi dengan kisaran antara 25 °C sampai 425 °C. Sampel BaTiO₃ telah disintering pada temperatur 1200 °C selama 0,5 jam, 2 jam, dan 4 jam. Transformasi fase dari material ini dianalisis dari grafik resistansi dan konduktivitas sebagai fungsi temperatur. Sedangkan data impedansi disajikan dalam *Nyquist plot* dan *Bode plot* digunakan untuk mengidentifikasi rangkaian ekuivalen dan parameter sirkuit pada temperatur yang berbeda-beda. Pada semua sampel terjadi kenaikan nilai resistansi secara drastis mencapai tiga orde, yang menunjukkan efek PTC pada material ini. Perbedaan waktu sintering memberikan pengaruh yang signifikan terhadap temperatur transisi material BaTiO₃ dari fase ferroelektrik ke paraelektrik. Analisis *Nyquist* menunjukkan bahwa semakin lama waktu sintering terjadi penurunan yang signifikan terhadap nilai resistansi dari material ini. Hasil fitting rangkaian ekuivalen dengan program ZsimWin 3.10 menunjukkan bahwa ukuran grain, grain boundary, interface dan kontak memberikan kontribusi terhadap sifat listrik dari material ini. Konduktivitas a.c bulk sebagai fungsi temperatur dan frekuensi juga telah diteliti, Dengan persamaan Arrhenius diperoleh nilai energi aktivasi untuk konduktivitas a.c BaTiO₃ adalah 0,44 eV untuk proses relaksasi pertama, dan 0,072 eV untuk proses relaksasi kedua.

Kata kunci: BaTiO₃, spektroskopi, *Nyquist plot*, *Bode plot*, energi aktivasi.

ABSTRACT

Name : Syahril
Study Program : Pure and Applied Physic
Title : Impedance Spectroscopy Study of BaTiO₃
at High Temperature

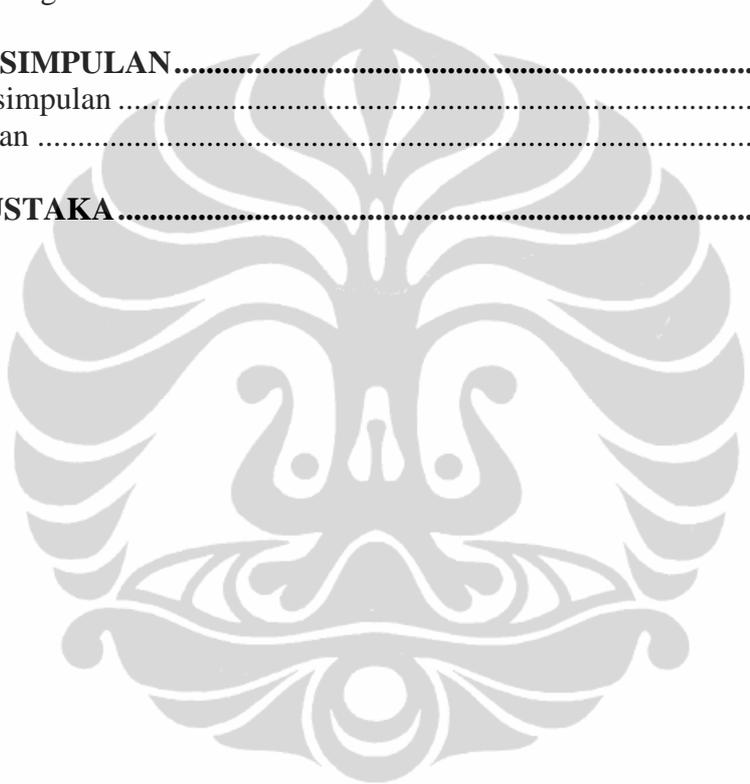
Investigation to electrical property of ferroelectric PTC and BaTiO₃ materials have been done toward by impedance spectroscopy method in high temperature with temperature range 25°C-425 °C. BaTiO₃ samples were sintered a temperature 1200 °C, each for 0,5 hour, 2 hours, and 4 hours. Phase transformation of these materials is analysed from the graphs of resistance and conductivity as a function of temperature. While the impedance data presented in the Nyquist plot and Bode plot is used to identify the equivalent circuit and circuit parameters at different temperatures. All samples show drastically increase in the resistance value up to three(3) orde, that give rise to the PTC effect of these materials. The effect of sintering time results significant changes in the transition temperature of BaTiO₃ from ferroelectric to paraelectric phase. From Nyquist plot analysis shows that increasing in sintering time result in decreasing the resistance values of materials significantly. The fitting results of the equivalent circuits by using ZsimWin 3.10 suggest that the grain size, the grain boundary, interfaces and contacts contribute to the electrical properties of these materials. Bulk a.c conductivity as a function of temperature and frequency have also been studied. By using Arrhenius relation the values of activation energy for a.c conductivity of BaTiO₃ is 0.44 eV and 0.72 eV for the first and the second relaxation process.

Key word: *BaTiO₃, impedance spectroscopy, Nyquist plot, Bode plot, activation energy.*

DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL	i
HALAMAN PENGESAHAN	ii
HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS	iii
HALAMAN PERNYATAAN PERSETUJUAN PUBLIKASI KARYA ILMIAH UNTUK KEPENTINGAN AKADEMIS	iv
KATA PENGANTAR	v
ABSTRAK	vii
ABSTRACT	viii
DAFTAR ISI	ix
DAFTAR TABEL	x
DAFTAR GAMBAR	xi
DAFTAR LAMPIRAN	xiii
BAB I PENDAHULUAN	1
1.1 Latar Belakang	1
1.2 Batasan Masalah	2
1.3 Tujuan Penelitian	2
BAB 2 STUDI LITERATUR	3
2.1 Ferroelektrisitas	3
2.2 Dielektrik	3
2.3 Barium Titanat Dan Aplikasinya	5
2.3.1 Barium Titanat (BaTiO ₃)	5
2.3.2 Aplikasi Barium Titanat	10
2.4 Hasil Penelitian Sebelumnya	14
2.4.1. Nilai Parameter Kisi	14
2.4.2. Grafik XRD BaTiO ₃	14
2.4.3. Ukuran Grain BaTiO ₃	15
2.5 Spektroskopi Impedansi	16
2.5.1 Nyquist Plot	16
2.5.2 Bode Plot	19
2.5.3 Analisis Impedansi	20
BAB III METODE PENELITIAN	22
3.1 Diagram Alur Penelitian	22
3.2 Alat dan Bahan	23
3.3 Pengukuran Dengan Alat Fluke PM 6306	23
3.4 Sistematika Penulisan	25
BAB IV HASIL	27
4.1 Spektroskopi Impedansi Pada Bahan PTC	24
4.2. Spektroskopi Impedansi Pada BaTiO ₃	31
4.2.1. Nyquist Plot pada Temperatur konstan	33
4.2.2. Bode Plot	35

BAB V PEMBAHASAN	41
5.1 Perubahan Fase.....	41
5.1.1 Sampel A.....	41
5.1.2 Sampel B1.....	42
5.1.3 Sampel B2.....	43
5.1.4 Sampel B3.....	45
5.2 Bode Plot.....	46
5.3 Nyquist Plot Dan Rangkaian Ekivalen.....	48
5.3.1 Hasil Fitting Nyquist Plot Dan Nilai Parameter Listrik.....	50
5.4 Spektroskopi Impedansi Setelah Perubahan Fase.....	58
5.4.1 Proses relaksasi.....	58
5.4.2 Energi Aktivasi.....	63
BAB VI KESIMPULAN	66
6.1 Kesimpulan.....	66
6.2 Saran.....	67
DAFTAR PUSTAKA	68



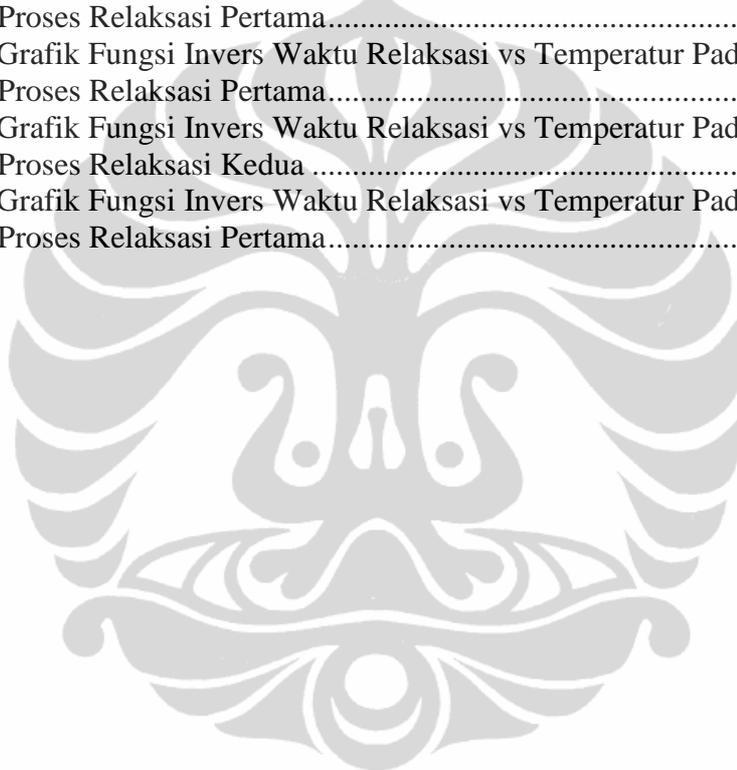
DAFTAR TABEL

Tabel 2.1 Nilai parameter kisi BaTiO ₃ sintering 1200°C.....	14
Tabel 2.2 Elemen Rangkaian Terhadap Nilai Impedansi	17
Tabel 3.1 Ukuran Sampel	24
Tabel 4.1 Kode Sampel Berdasarkan Proses Sintering.....	31
Tabel 5.1 Nilai Parameter Listrik Hasil Fitting Program ZsimWin sampel A dan B	52
Tabel 5.2 Nilai Kapasitansi Grain Sampel B	52
Tabel 5.3 Nilai R _{PTC} sampel B pada Temperatur 100°C	53
Tabel 5.4 Hasil Fitting Rangkaian Ekivalen Sampel A	53
Tabel 5.5 Hasil Fitting Rangkaian Ekivalen Sampel B1	54
Tabel 5.6 Hasil Fitting Rangkaian Ekivalen Sampel B2	54
Tabel 5.7 Hasil Fitting Rangkaian Ekivalen Sampel B3	54
Tabel 5.8 Nilai Parameter Listrik Sampel A dan B pada Temperatur 400°C.	56
Tabel 5.9 Waktu Relaksasi Sampel B2 pada Beberapa Temperatur Berbeda	58
Tabel 5.10 Nilai Parameter Listrik Sampel B2 pada Temperatur 325°C dan 425°C	61
Tabel 5.11 Nilai Kapasitansi Grain Dan Grain Boundary Pada Temperatur Berbeda.....	62
Tabel 5.12 Energi Aktivasi Konduktivitas a.c Pada temperatur Berbeda.....	63
Tabel 5.13 Data frekuensi relaksasi pertama diambil dari hasil fitting program ZsimWin 3.10.....	64
Tabel 5.14 Data frekuensi relaksasi pertama diambil dari hasil fitting ProgramPro.8.....	65
Tabel 5.15 Data frekuensi relaksasi kedua diambil dari hasil fitting program ZsimWin 3.10.....	66
Tabel 5.16 Data frekuensi relaksasi kedua diambil dari hasil fitting program OriginPro.8.....	67

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1 Muatan Positif Dan Muatan Negatif Membentuk Dipol	4
Gambar 2.2 Polarisasi Molekul Dalam Bahan Dielektrik Dalam Medan Listrik	4
Gambar 2.3 Struktur Dasar Dari Bahan Perovskite BaTiO ₃	6
Gambar 2.4 Struktur Kisi Dari BaTiO ₃	7
Gambar 2.5 Parameter Kisi dari BaTiO ₃ Sebagai Fungsi Temperatur	7
Gambar 2.6 Struktur Kristal Dan Penyimpangan Kisi dari BaTiO ₃	8
Gambar 2.7 Perubahan Kriyalografi BaTiO ₃ Sebagai Fungsi Temperatur....	9
Gambar 2.8 Variasi Ukuran grain yang Berakibata pada Prilaku transisi Dari BaTiO ₃	9
Gambar 2.9 Anomali Konduktivitas BaTiO ₃ yang Menunjukkan Efek PTC	11
Gambar 2.10 Skema Kapasitor Multi-lapis konvensional	13
Gambar 2.11 Kebergantungan Konstanta Dielektrik Terhadap Temperatur .	13
Gambar 2.12 Grafik Hasil XRD Pada Temperatur 1200°C	14
Gambar 2.13 Foto SEM Ukuran Grain BaTiO ₃ Sintering 1200°C.....	15
Gambar 2.14 Spektrum Impedansi Sederhana dan rangkaian Ekuivalen	18
Gambar 2.15 Tampilan grafik Bode Plot.....	19
Gambar 2.16 Grafik frekuensi Terhadap Perubahan Sudut Fase.....	20
Gambar 3.1 Diagram Alur Penelitian	22
Gambar 3.2 Pengukuran RCL-meter Dengan Menggunakan Kontak Mekanik	23
Gambar 4.1 Grafik Fungsi resistansi Dan Impedansi Terhadap Temperatur	27
Gambar 4.2 Nyquist Plot Bahan PTC Pada Temperatur Kamar, 100°C dan 400°C	28
Gambar 4.3 Bode Plot Bahan PTC Temperatur Kamar, 100°C dan 400°C	29
Gambar 4.4 Grafik Gabungan Fungsi Resisitansi Terhadap Temperatur.....	32
Gambar 4.5 Grafi fungsi Resistansi vs Temperatur Pada Tegangan DC.....	32
Gambar 4.6 Nyquist plot Gab.Sampel B pada T-kamar.....	33
Gambar 4.7 Nyquist plot Gab. B pada 100°C.....	34
Gambar 4.8 Nyquist plot Gab B pada 400°C.....	34
Gambar 4.9 Bode plot sampel B1 pada T-kamar, 100°C, dan 400°C	35
Gambar 4.10 Bode plot sampel B2 pada T-kamar, 100°C, dan 400°C.....	37
Gambar 4.11 Bode plot sampel B3 pada T-kamar, 100°C, dan 400°C.....	39
Gambar 5.1 Grafik Fungsi Resistansi dan Impedansi vs Temperatur	39
Gambar 5.2 Grafik Fungsi Konduktivitas Terhadap Temperatur Sampel B1	42
Gambar 5.3 Grafik Fungsi Konduktivitas Terhadap Temperatur Sampel B2	43
Gambar 5.4 Grafik Fungsi Resistansi Terhadap Temperatur Pada Pada Tegangan DC.....	45
Gambar 5.5 Grafik Fungsi Konduktivitas Terhadap Temperatur Sampel B3	47
Gambar 5.6 Bode plot Gabungan Sampel B pada T-kamar, 100°C, dan 400C	48
Gambar 5.7 Nyquist plot Gab.Sampel B pada T-kamar.....	49
Gambar 5.8 Nyquist plot Gab. B pada 100°C	50

Gambar 5.9 Nyquist plot Gab B pada 400°C.....	51
Gambar 5.10 Spektrum Impedansi Sampel A Pada Temperatur 400°C	52
Gambar 5.11 Spektrum Impedansi Sampel B1 Pada Temperatur Kamar.....	52
Gambar 5.12 Spektrum Impedansi Sampel B2 Pada Temperatur 100°C.....	53
Gambar 5.13 Spektrum Impedansi Sampel B3 Pada Temperatur 400°C	58
Gambar 5.14 Grafik Fungsi Re-Z vs frekuensi Pada Temperatur Berbeda	60
Gambar 5.15. Grafik Fungsi Im-Z vs frekuensi Pada temperatur Berbeda	61
Gambar 5.16 Nyquist Plot Sampel B2 Pada Temperatur Berbeda	62
Gambar 5.17 Spektrum Impedansi sampel B2 Pada Temperatur 325°C.....	62
Gambar 5.18 Spektrum Impedansi sampel B2 Pada Temperatur 425°C.....	64
Gambar 5.19 Arrhenius Plot Sampel B2 Pada temperatur Berbeda	65
Gambar 5.20 Grafik Fungsi Invers Waktu Relaksasi vs Temperatur Pada Proses Relaksasi Pertama.....	65
Gambar 5.21 Grafik Fungsi Invers Waktu Relaksasi vs Temperatur Pada Proses Relaksasi Pertama.....	66
Gambar 5.22 Grafik Fungsi Invers Waktu Relaksasi vs Temperatur Pada Proses Relaksasi Kedua	67
Gambar 5.23 Grafik Fungsi Invers Waktu Relaksasi vs Temperatur Pada Proses Relaksasi Pertama.....	68



DAFTAR LAMPIRAN

Lampiran 1 Data dan Grafik Hasil <i>Fitting</i> dengan Program ZSimpWin Sampel A T-Kamar	69
Lampiran 2 Data dan Grafik Hasil <i>Fitting</i> dengan Program ZSimpWin Sampel A T.100C	70
Lampiran 3 Data dan Grafik Hasil <i>Fitting</i> dengan Program ZSimpWin Sampel A T. 400C	71
Lampiran 4 Data dan Grafik Hasil <i>Fitting</i> dengan Program ZSimpWin Sampel B1 T-Kamar	72
Lampiran 5 Data dan Grafik Hasil <i>Fitting</i> dengan Program ZSimpWin Sampel B1 T-100C	73
Lampiran 6 Data dan Grafik Hasil <i>Fitting</i> dengan Program ZSimpWin Sampel B1 T-400C	74
Lampiran 7 Data dan Grafik Hasil <i>Fitting</i> dengan Program ZSimpWin Sampel B2 T-Kamar	75
Lampiran 8 Data dan Grafik Hasil <i>Fitting</i> dengan Program ZSimpWin Sampel B2 T-100C	76
Lampiran 9 Data dan Grafik Hasil <i>Fitting</i> dengan Program ZSimpWin Sampel B2 T-400C	77
Lampiran 10 Data dan Grafik Hasil <i>Fitting</i> dengan Program ZSimpWin Sampel B3 T-Kamar	78
Lampiran 11 Data dan Grafik Hasil <i>Fitting</i> dengan Program ZSimpWin Sampel B3 T-100C	79
Lampiran 12 Data dan Grafik Hasil <i>Fitting</i> dengan Program ZSimpWin Sampel B3 T-400C	80

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang Masalah

Sejak penemuan keramik ferroelektrik BaTiO₃ yang mempunyai permitivitas tinggi pada tahun 1943, keramik berbasis barium titanat ini diteliti lebih luas dalam industri elektronik. Salah satu aplikasi yang paling penting pada keramik berbasis BaTiO₃ adalah kapasitor. Bahan ini mendapat perhatian karena banyak manfaatnya; diantaranya sebagai bahan kapasitor, pembatas arus listrik, dan pemanas dengan temperatur konstan, karena memiliki sifat konstanta dielektrik dan ferroelektrik yang tinggi.

Penelitian pada BaTiO₃ terus berlanjut sejalan dengan perkembangan penelitian material Barium Titanat (BaTiO₃) yakni dengan diketemukannya berbagai sifat menarik di antaranya adalah bahan ini sangat praktis karena sifat kimia dan mekaniknya sangat stabil, memiliki perilaku ferroelektrik pada temperatur ruang sampai dengan 120°C [1]. Barium Titanat merupakan bahan ferroelektrik yang termasuk ke dalam kategori perovskite. Bahan yang termasuk ke dalam kategori perovskite banyak diantaranya mengandung unsur Titanat yang banyak digunakan dalam berbagai macam aplikasi elektrokераmik, umumnya memiliki nilai konstanta dielektrik yang tinggi dan banyak dimanfaatkan secara luas untuk pembuatan komponen elektronik seperti *Multilayer Capacitors (MLCs)*, PTC termistor, piezoelektrik *transducer*, dan beragam peralatan elektro-optik [2].

Pada peneliti terdahulu sudah diketahui bahwa pengaruh temperatur sintering dan anealing dapat mengubah ukuran *grain* dari BaTiO₃ yang dapat mempengaruhi mekanisme konduksi dalam material ini. Karena itu pada penelitian kali ini penulis ingin melanjutkan penelitian tersebut untuk mengetahui efek perubahan kenaikan temperatur terhadap impedansi, konduktivitas dari material ini yang diselidiki dengan metode spektroskopi impedansi pada kisaran temperature antara 25°C sampai 425°C .

1.2 Batasan Masalah

Pada penelitian ini penulis mempelajari sifat-sifat listrik pada bahan ferroelektrik BaTiO₃ dalam frekuensi dan temperatur yang bervariasi antara 25 °C -425 °C . Dengan impedansi spektrokopi akan diselidiki respon material BaTiO₃ ini terhadap perubahan kenaikan temperatur dibawah arus bolak-balik. Kemudian data impedansi yang diperoleh dari hasil eksperimen akan diplot pada bidang kompleks, sehingga diperoleh Nyquist diagram pada temperatur yang berbeda-beda. Dari tiap-tiap tipe plot dapat diketahui rangkain equivalen yang dapat memberikan input penting pada aplikasi perangkat. Selanjutnya data konduktivitas a.c sampel yang diperoleh akan dipelajari untuk memperkirakan energi aktivasi untuk proses konduksi.

1.3 Tujuan Penelitian

Adapun tujuan penelitian ini adalah mempelajari :

1. Pengaruh perubahan kenaikan temperatur terhadap , impedansi, reistansi, dan konduktivitas dari keramik BaTiO₃ dengan impedansi spektroskopi pada temperatur tinggi dengan kisaran 25 °C sampai 425 °C.
2. Mekanisme konduktivitas dalam keramik BaTiO₃ selama perubahan fase.
3. Waktu relaksasi dari keramik BaTiO₃ setelah perubahan fase
4. Menentukan energi aktivasi dari konduktivitas a.c BaTiO₃ terhadap laju pemanasan.

BAB II

STUDI LITERATUR

2.1 Feroelektrisitas

Kristal ferroelektrik memperlihatkan momen dipole listrik tanpa adanya medan listrik (diluar medan listrik). Pada ferroelektrik pusat muatan positif dari kristal tidak bertepatan dengan pusat muatan negative. Kurva polarisasi versus medan listrik pada Kristal ferroelektrik memperlihatkan sebuah histerisis loop. Kristal dielektrik normal biasanya tidak memperlihatkan histerisis yang signifikan ketika medan listrik dinaikkan atau kemudian dibalik secara perlahan. Feroelektrisitas biasanya hilang diatas temperature tertentu yang disebut temperature transisi, diatas temperature transisi tersebut kritical sudah menjadi paraelektrik[3].

2.2 Dielektrik

Dielektrik dan isolator dapat didefinisikan sebagai material yang memiliki resistivitas listrik yang tinggi. Dielektrik yang baik tentu saja isolator yang baik, namun isolator yang baik, belum tentu dielektrik yang baik [4]. Isolator yang baik memiliki nilai resistansi yang tinggi sedangkan dielektrik yang baik memiliki nilai konstanta dielektrik yang tinggi dan tidak bergantung pada frekuensi medan listrik [5]. Udara merupakan isolator yang baik tetapi udara memiliki konstanta dielektrik yang rendah ($k=1$). Barium Titanate dengan rumus kimia $BaTiO_3$ merupakan salah satu contoh bahan dielektrik yang baik dan luas aplikasinya karena bahan ini memiliki konstanta dielektrik yang tinggi ($k \gg 1$) sehingga dapat diaplikasikan sebagai kapasitor.

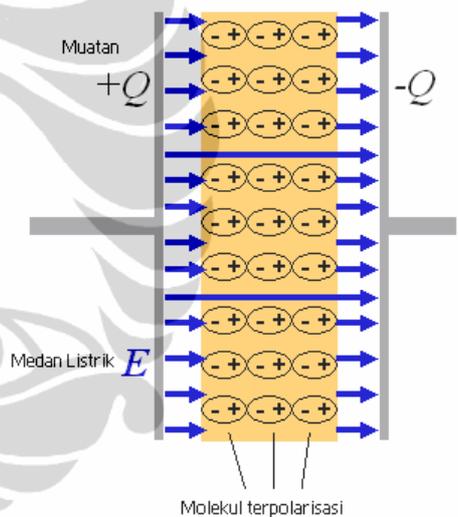
Material-material dielektrik tidak menghantarkan arus listrik. Namun demikian, material-material tersebut tidak sepenuhnya inert terhadap medan listrik. Elektron (muatan negatif) dan nukleus-nukleus atom yang mengandung proton (muatan positif) akan menggeser posisinya sebagai tanggapan terhadap medan listrik. Sebagai contoh, posisi rata-rata elektron akan terletak pada sisi atom yang lebih dekat kepada elektroda positif, sementara nukleus atomiknya sendiri, yang mengandung proton, akan sedikit bergeser ke arah elektroda negatif

(Gambar-2.1). Satu sistem muatan positif dan muatan negatif yang saling bergeser ini disebut sebagai momen dipol listrik. Sedangkan kumpulan dari sistem ini didalam satu unit volume disebut sebagai polarisasi, sehingga polarisasi dapat didefinisikan sebagai jumlah total momen dipol listrik per-satuan volume. Jika diberikan medan AC, maka muatan-muatan internal ini akan bergeser maju-mundur selaras dengan frekuensi medan listrik AC yang diberikan [2].



Gambar-2.1. Muatan positif dan muatan negatif yang saling bergeser membentuk sistem momen dipol listrik

Gambar-2.2. Polarisasi molekul didalam bahan dielektrik yang diberi medan listrik. Elektron-elektron didalam molekul bergeser kearah muatan positif plat [5]



Konstanta dielektrik diukur oleh k , melalui hubungan $C = kC_0$, yang merupakan ukuran kemampuan suatu bahan dapat mengumpulkan flux elektrostatis (garis-garis medan elektrostatis). Konstanta dielektrik ini juga dikenal sebagai permitivitas statis.

Dengan meletakkan bahan dielektrik (Gambar-2.2) diantara plat sejajar kapasitor akan menyebabkan adanya penambahan kapasitansi yang sebanding dengan k (permitivitas relatif material) yang dalam perumusannya dinyatakan sebagai :

$$C = \frac{k\epsilon_0 A}{d} \quad (2.3)$$

ϵ_0 merupakan permitivitas ruang hampa, A adalah luasan yang diliputi oleh plat kapasitor, dan d adalah jarak diantara plat-plat kapasitor.

Penambahan kapasitansi ini disebabkan oleh medan listrik memolarisasi muatan yang terikat didalam bahan dielektrik, hal ini menghasilkan konsentrasi muatan dipermukaan kapasitor sehingga menciptakan medan listrik yang berlawanan dengan medan listrik luar. Oleh karena itu dengan adanya bahan dielektrik ini akan menambah potensial listrik pada kapasitor [5].

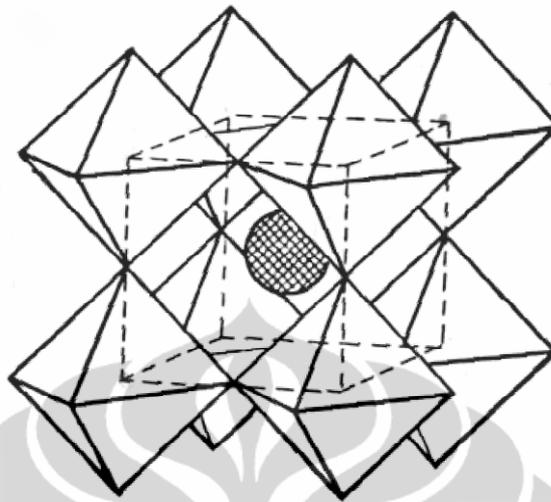
2.3 BARIUM-TITANAT DAN APLIKASINYA

2.3.1 BARIUM TITANAT (BaTiO_3)

Barium-Titanate dengan rumus kimia BaTiO_3 merupakan material ferroelektrik yang paling luas pemanfaatannya dan bahkan sejak enam puluh tahun setelah penemuannya, material ini merupakan keramik dielektrik multi-lapis yang sangat penting. BaTiO_3 ditemukan selama perang dunia II pada tahun 1941 dan 1944 di Amerika, Rusia dan Jepang. Setidaknya di Amerika, penelitian BaTiO_3 dipercepat karena alasan perang. Pada waktu itu, kebanyakan kapasitor menggunakan mika. Awal mulanya diteliti bahwa, pendopongan TiO_2 dengan BaO akan menghasilkan material keramik dengan permitivitas dielektrik yang lebih tinggi [1]. Besarnya permitivitas dielektrik yang dihasilkan mencapai sepuluh kali lebih besar dibandingkan keramik lain yang diketahui pada saat itu, seperti TiO_2 ($\epsilon_r = 110$).

Perjalanan untuk mengerti keanehan dielektrik didalam keramik BaO- TiO_2 tetap berlanjut, dan di tahun 1945 dan 1946, Von Hippel (USA), dan Wul dengan Goldman (Rusia) mendemonstrasikan saklar ferroelektrik dari keramik BaO- TiO_2 . Penemuan ferroelektrisitas pada keramik BaO- TiO_2 adalah luar biasa penting. BaTiO_3 merupakan anggota dari keluarga *perovskite* yang berbasis pada mineral CaTiO_3 (Gambar-2.3), seperti yang diperkirakan dari prinsip dasar kimia kristal yang digambarkan lebih awal oleh Goldschmidt (1926). Gambaran detail pertama kali dari struktur kristal BaTiO_3 fase ferroelektrik di temperatur tinggi diusulkan

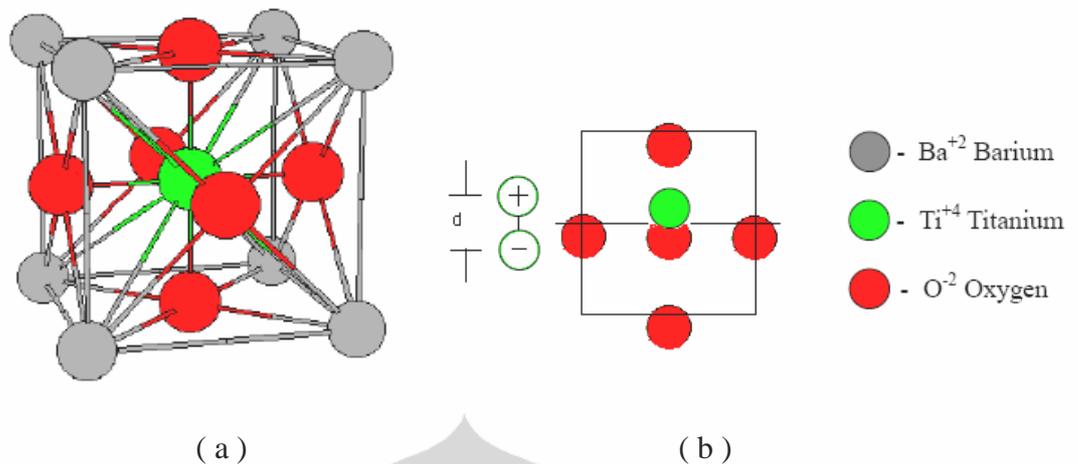
oleh Helen D. Megaw (1945) di United Kingdom dan dikonfirmasi segera setelah pekerjaan yang dilakukan oleh Miyake dan Ueda (1946) [1].



Gambar-2.3. Struktur dasar dari perovskite BaTiO_3 dengan ion Ba terletak di tengah-tengah sel dan ion Ti di dalam oktahedra oksigen [1].

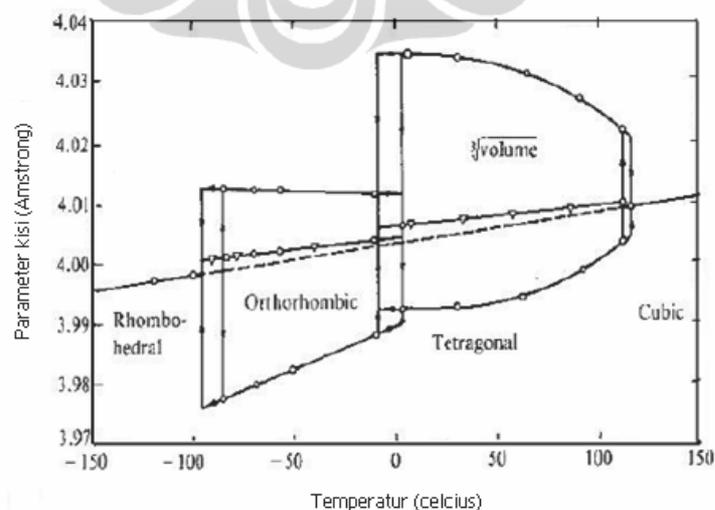
Pemahaman yang lebih baik akan perilaku transisi fasa datang dari penumbuhan kristal BaTiO_3 . Kristal yang pertama kali dibuat pada tahun 1947 ukurannya kecil, kemudian di tahun 1954, Remeika membuat kristal yang lebih besar sehingga memungkinkan para ilmuwan ferroelektrik untuk memperluas pemahaman mendasar tentang anisotropi dielektrik, saklar domain, dan elektro-optik serta sifat elektromekanik dari ferroelektrik BaTiO_3 . Barium-Titanate merupakan pizoelektrik keramik yang pertama kali dikembangkan dan bahkan hingga saat ini masih luas penggunaannya [4] dan material ini dikenal dalam aplikasi kapasitor.

Demikian pula halnya yang terjadi didalam material dielektrik BaTiO_3 yang diberi medan listrik, ion-ion Oksigen akan bergeser ke arah elektroda positif sementara ion-ion Titanium ke arah elektroda negatif (Gambar-2.4).

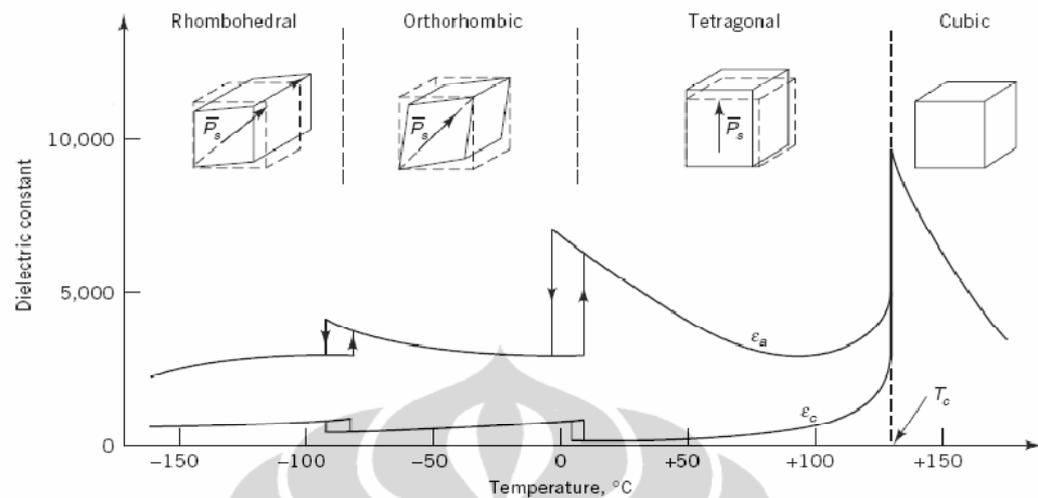


Gambar-2.4. Tetragonal BaTiO₃. (a) Diatas temperatur 120°C, BaTiO₃ berstruktur kubik. (b) Dibawah temperatur tersebut ion-ion bergeser ke sudut ion-ion Ba²⁺. Karena ion-ion Ti dan O bergeser ke arah berlawanan, maka pusat muatan positif dan negatif tidak sama. Sehingga unit selnya menjadi tidak kubik [4]

Dimensi kristalografi kisi Barium-Titanate berubah ketika temperatur berubah. Skema perubahan pada kisi ini ditunjukkan oleh Gambar-2.5. Hal ini disebabkan oleh adanya pergeseran pada oktahedra TiO₆. Adanya penyimpangan oktahedra yang terkopel bersama, menghasilkan polarisasi spontan yang sangat besar, sehingga memberikan konstanta dielektrik yang besar, seperti yang ditunjukkan oleh Gambar-2.6.

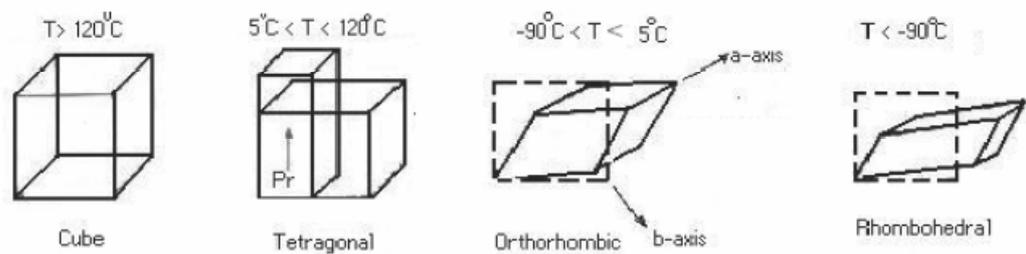


Gambar-2.5. Parameter kisi dari BaTiO₃ sebagai fungsi temperatur [1]



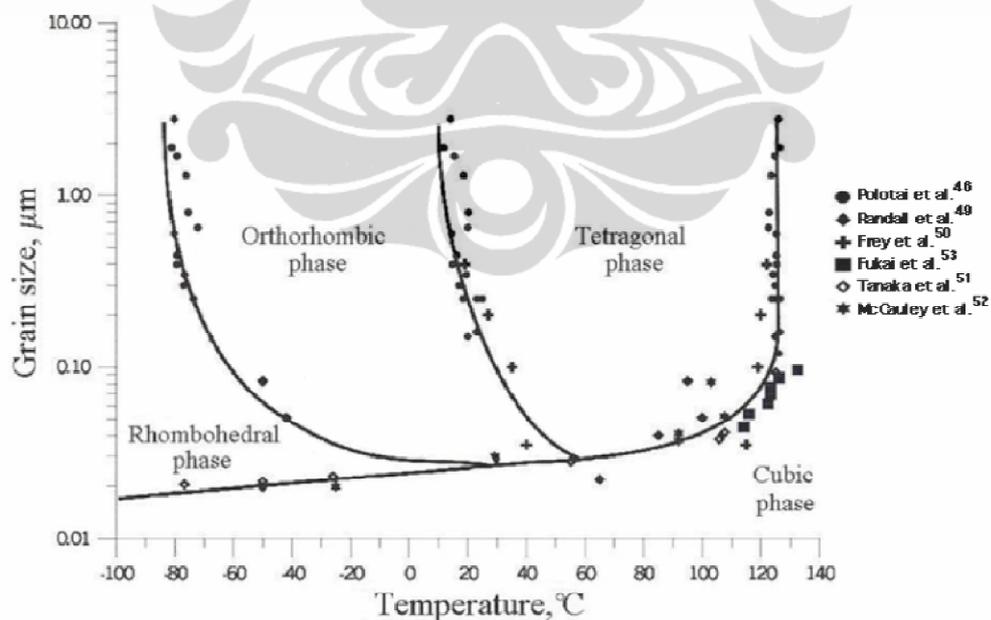
Gambar-2.6. Struktur kristal dan penyimpangan kisi pada unit sel BaTiO_3 , menunjukkan arah polarisasi spontan, konstanta dielektrik resultan ϵ vs temperatur. Subskrip a dan c menunjukkan orientasi sejajar dan tegak lurus pada sumbu tetragonal. Temperatur transisi untuk BaTiO_3 murni adalah -90 , 15 , dan 135°C [6]

Didalam Gambar-2.5 kita dapat melihat bahwa diatas temperatur 120°C , yakni pada titik Curie T_c , keramik Barium-Titanate adalah berstruktur kubik isotropik. Atom-atom Ti semuanya berada dalam posisi setimbang ditengah-tengah pusat oktahedra. Pergeseran atom Ti yang disebabkan oleh medan listrik luar sehingga dapat mengubah struktur yang pada akhirnya menghasilkan dipole-dipole listrik. Sebagai contohnya, ketika temperatur dibawah temperatur Curie, struktur oktahedra berubah dari simetri kubik menuju simetri tetrahedral dan posisi ion titanium menjadi tidak lagi diposisi tengah-tengah terkait dengan dipole listrik permanen. Selama temperatur berubah, dimensi kristalografi berubah pula yang menyebabkan terjadinya pergeseran oktahedra sehingga menghasilkan oktahedra menjadi berpasang-pasangan secara bersama. Hal ini memberikan polarisasi spontan yang sangat besar sehingga membuat konstanta dielektrik menjadi besar pula. Kesensitifan fluktuasi kristalografi terhadap temperatur ini diperlihatkan di dalam Gambar-2.7.



Gambar-2.7. Perubahan kristalografi BaTiO₃ sebagai akibat dari perubahan temperatur [2]

Karakteristik dielektrik BaTiO₃ terhadap temperatur, kuat medan listrik, frekuensi dan waktu (usia) adalah juga sangat bergantung pada substitusi sejumlah kecil ion-ion lainnya, pada mikrostruktur, dan khususnya pada ukuran grain yang kecil [2], karena ukuran grain juga turut memengaruhi transisi fasa pada BaTiO₃ (Gambar-2.8). Dikarenakan pentingnya mekanisme grain, oleh karena itu didalam tugas akhir ini penulis mempelajari tentang bagaimana pengaruh ukuran grain pada spektroskopi impedansi bahan BaTiO₃.



Gambar-2.8. Variasi ukuran grain yang berakibat pada perilaku transisi dari Barium-Titanate murni [1]

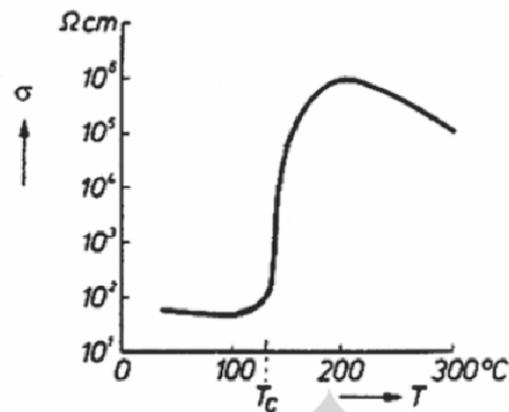
2.3.2 APLIKASI BARIUM TITANATE

A. Positive Temperature Coefficient Resistansi Thermistor

Positif temperatur koefisien resistansi thermistor (PTCR Thermistor) adalah salah satu keramik yang nilai hambatan listriknya bertambah dengan drastis pada temperatur tertentu, keistimewaan ini membuat keramik ini menjadi idola untuk diteliti dan diaplikasikan pada bidang teknik listrik dan elektronik moderen .

PTCR thermistor adalah resistor dari bahan semi konduktor yang sensitif terhadap thermal. Nilai hambatannya naik pesat dengan peningkatan temperatur setelah temperatur tertentu yang disebut temperatur referensi. Positif temperatur koefisien yang naik pesat diatas temperatur referensi dinamakan PTCR thermistor [7].

Material PTC thermistor dibuat dengan jalan mendopping polikristalin keramik BaTiO_3 sebagai basis . Pendopingan ini berakibat pada munculnya suatu resistor yang bersifat non-linear dan dikenal sebagai *Positive Temperature Coefficients Resistors* thermistor (PTCR thermistor). Fenomena ini melibatkan kenaikan resistivitas pada temperatur transisi Curie di 125°C . Gambaran skema dari fenomena PTCR ini ditunjukkan oleh Gambar-2.9. Sifat semikonduktor sangat kuat dipengaruhi oleh transisi ferroelektrik. Besarnya perubahan resistivitas pada termistor PTCR BaTiO_3 yang dicapai saat ini adalah hingga 6-7 orde. Fenomena ini hanya teramati didalam BaTiO_3 polikristalin, dengan polarisasi spontan dari domain-domain ferroelektrik membatasi lengkungan-kurva sehingga transport elektronik melintasi batas grain (grain boundary) [1].



Gambar-2.9. Anomali konduktivitas didalam keramik BaTiO₃, yang menunjukkan efek PTC [1]

Ferroelektrik diatas temperatur Curie, konstanta dielektrik dan polarisasi turun secara drastis menyebabkan pertumbuhan potensial barrier dan reistansi. Dalam daerah temperatur tertentu diatas temperatur Curie (T_c) hambatan dari PTCR thermistor meningkat secara eksponensial. Melebihi batas range positif temperatur koefisien α , jumlah pembawa muatan bebas meningkat oleh aktivasi thermal. Hambatan kemudian berkurang secara drastis menunjukkan karakteristik dari tipe Negative Temperature coefficient (NTC) dari semikonduktor. Resistansi PTC terdiri dari reistansi grain dan resistansi grain boundary dan reistansi grain boundary sangat bergantung pada temperatur [7].

$$R_{PTC} = R_{grain} + R_{grain\ boundary} \quad (2.4)$$

Didalam aplikasinya, PTC digunakan pada berbagai jenis rangkaian elektronik seperti saklar atau pemanas temperatur konstan. Disamping itu, aplikasi PTC termistor juga sebagai pengukur/ pendeteksi/ pengontrol dari temperatur atau parameter-parameter yang terkait dengan temperatur. Oleh karena material ini memiliki koefisien temperatur resistansi yang tinggi disekitar titik Curie dan kemampuan membatasi-diri, sehingga material ini sangat berguna untuk aplikasi sensor. Didalam Tabel-2.1 diperlihatkan pembagian aplikasi BaTiO₃.

Positive Temperature Coefficient of Resistance (PTCR) dapat diklasifikasikan sebagai resistor temperatur kritis karena koefisien positif yang

terkait dengan titik Curie ferroelektrik. Pada kenyataannya, material-material PTCR dapat dibagi kedalam empat grup; komposit polimer, komposit keramik, senyawa V_2O_3 dan senyawa berbasis $BaTiO_3$ ($BaSrTiO_3$, $BaPbTiO_3$...). Setelah didoping dengan donor-donor trivalen (contohnya: La, Sc, Y) yang menggantikan Ba^{+2} atau dengan donor-donor pentavalen (contohnya: Sb, Nb, Ta) yang menggantikan Ti^{+4} , maka $BaTiO_3$ menjadi bersifat semikonduktif yang menunjukkan efek PTCR seperti yang ditunjukkan oleh Gambar-2.9. Disamping memperlihatkan efek PTCR, pendopongan $BaTiO_3$ dengan senyawa $SrTiO_3$ dapat membentuk suatu sistem larutan padat yang biasa dikenal sebagai BST yakni $(Ba,Sr)TiO_3$ dimana temperatur kritis dari $BaTiO_3$ dapat digeser-geser [4].

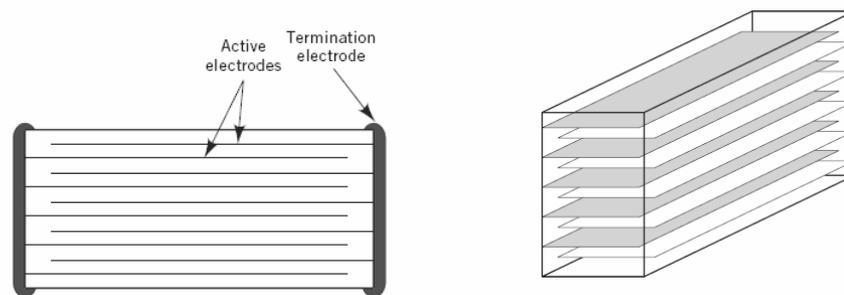
B. Aplikasi PTCR

Aplikasi PTCR ada tiga kelompok yaitu pembatas arus, pemanas pada temperatur konstan, dan sensor termal. Pada pembatas arus PTCR berfungsi sebagai penipis arus yang biasanya dipasang pada fuse, TV berwarna, display komputer, dan starter motor. Pada pemanas temperatur konstan PTCR berfungsi untuk menghambat penurunan dan kenaikan temperatur, sehingga temperatur sistem menjadi konstan, biasanya dipakai pada mosquito-killer, hair drier, dan pemanas pada mobil dan kereta api. Sedangkan pada sensor termal PTCR berfungsi sebagai sakelar otomatis [2].

C. Kapasitor Keramik Multilapis (MLCs)

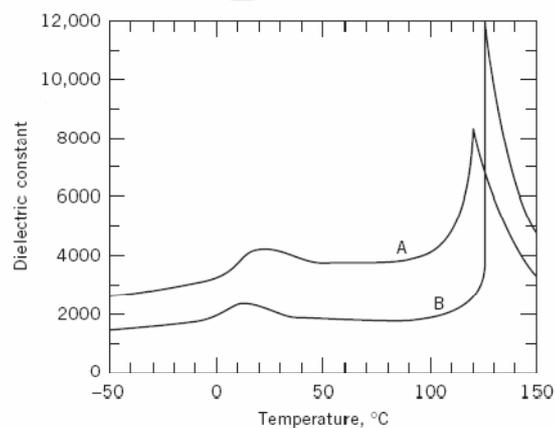
Kapasitor multi-lapis (MLC), diproduksi lebih dari 30 unit setiap tahunnya, melebihi ferroelektrik lain [6]. MLC terdiri dari lapisan-lapisan material dielektrik dan logam elektroda, seperti yang diperlihatkan oleh Gambar-2.10. Alasan untuk konfigurasi seperti ini ialah untuk memperkecil ukuran kapasitor.

Kapasitansi dirumuskan seperti pada Pers-2.1, oleh sebab itu nilai kapasitansi akan bertambah dengan bertambahnya luas dan berkurangnya ketebalan. MLC biasanya terdiri dari 100 lapisan tipis dengan ketebalan material dielektriknya 10-35 μm .



Gambar-2.10. Skema kapasitor multi-lapis konvensional [5].

Material-material dielektrik yang digunakan didalam kapasitor lapis-banyak harus memenuhi beberapa syarat sifat listrik. Diantaranya adalah permitivitas dielektrik yang tinggi dengan kebergantungan temperatur yang rendah, hal ini dibutuhkan untuk aplikasi MLC pada range-temperatur yang luas. Keramik berbasis BaTiO_3 memperlihatkan permitivitas dielektrik yang tinggi, akan tetapi permitivitas dielektrik BaTiO_3 memiliki kebergantungan terhadap temperatur dan mencapai maksimum pada titik Curie (Gambar-2.11). Meskipun titik Curie dapat digeser hingga ke temperatur kamar melalui substitusi parsial dari Ba atau Ti, permitivitas dielektrik keramik BaTiO_3 juga bergantung pada ukuran grain material.



Gambar-2.11. Kebergantungan Konstanta dielektrik (1 kHz) BaTiO_3 terhadap temperatur pada A (ukuran grain 1-mikrometer) dan B (ukuran grain 50-mikrometer) [6].

2.4 Hasil penelitian sebelumnya

2.4.1 Nilai Parameter Kisi

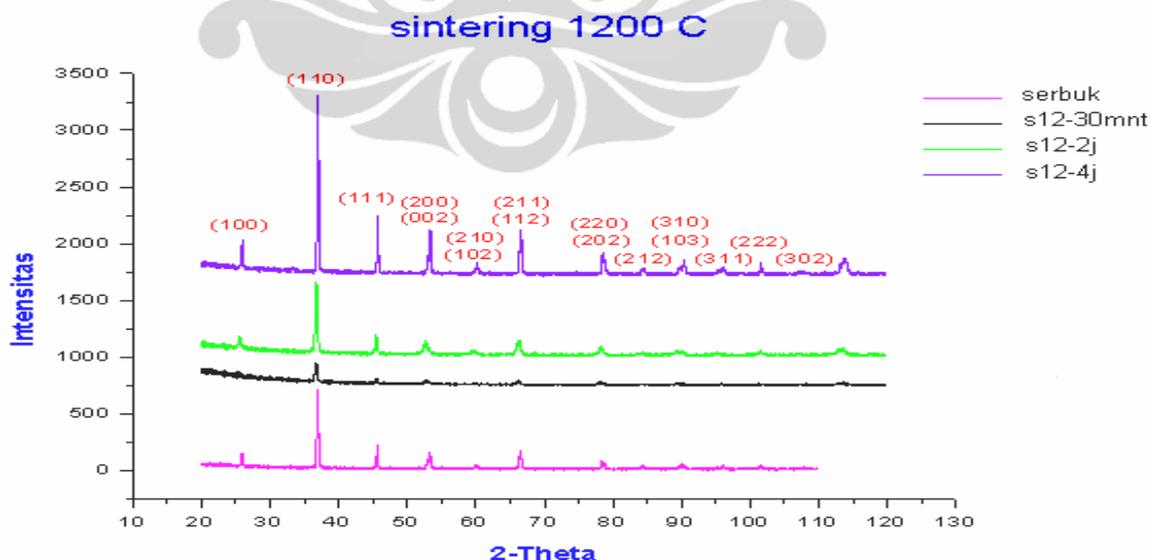
Hasil penelitian terdahulu menunjukkan bahwa waktu sintering yang berbeda-beda tidak memberikan perbedaan nilai parameter kisi yang signifikan, sehingga dapat dikatakan bahwa variasi waktu sinter tidak memengaruhi nilai parameter kisi pada bahan. Nilai parameter kisi pada perubahan waktu sintering ini diperlihatkan didalam Tabel-2.1 [4].

Tabel-4.5. nilai parameter kisi pada sintering 1200 C

Parameter kisi	s12-30mnt	s1200-2j	s1200-4j
a (Å)	3.9948	3.9974	3.9878
c (Å)	4.0259	4.0243	4.0179

2.4.2 Grafik XRD BaTiO₃

Hasil XRD dari barium titanat yang telah disintering pada temperatur 1200 °C selama 0,5 jam, 2 jam, dan 4 jam dapat dilihat seperti gambar-4.3 dibawah ini:

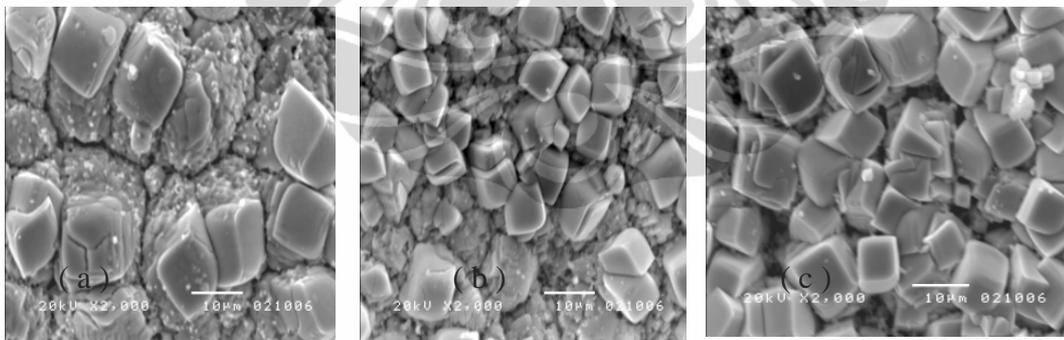


Gambar-2.12 Grafik hasil XRD pada temperatur 1200°C dengan variasi waktu sintering [4].
Sumber: Muhammad Dorris Caniago.

Dari penelitian sebelumnya diperoleh grafik hasil XRD untuk BaTiO₃ yang disintering pada temperatur 1200 °C dengan berbagai variasi waktu sintering seperti gambar-2.12. Gambar memperlihatkan bahwa, semakin lama temperatur sinter dari 30 menit hingga 4 jam waktu pemanasan diperoleh derajat kristalin yang semakin tinggi dengan diperlihatkannya nilai intensitas difraksi yang tertinggi pada waktu 4 jam sintering[4].

2.4.3 Ukuran grain BaTiO₃

Berdasarkan pengamatan hasil foto SEM (Gambar-2.13) diperoleh nilai perkiraan ukuran grain dari BaTiO₃ yang disintering pada temperatur 1200 °C dengan berbagai variasi waktu sintering. Untuk BaTiO₃ sintering 1200C selama 2 jam ukuran grainnya sekitar 10 μm dengan distribusi grain yang renggang, sementara untuk BaTiO₃ sintering 1200 °C selama 30 menit belum dapat diketahui ukuran secara kasarnya, karena pada s12-30mnt terjadi keadaan dimana grain-grain, baru mulai akan tercipta, dengan kata lain serbuk-serbuk barium titanat saling menggabungkan diri untuk bertransisi menjadi butiran-butiran yang dalam hal ini disebut sebagai grain.



Gambar-2.13. foto SEM yang memperlihatkan ukuran grain pada (a) s12-30mnt (b) s12-2j (c) s12-4j [4]. Sumber: Muhammad Dorris Caniago

Penggabungan serbuk barium titanat terlihat berdasarkan foto SEM dimana grain-grain yang belum tumbuh secara sempurna. Sedangkan untuk BaTiO₃ yang disintering pada temperatur 1200 °C selama 4 jam memiliki ukuran

grain yang berkisar antara 10-20 μm dengan distribusi ukuran grain antara yang berukuran kecil dan besar yang tidak merata [4].

2.4 Spektroskopi Impedansi

2.5.1 Nyquist Plot

Konsep impedansi listrik pertama-kali diperkenalkan oleh Oliver Heaviside pada tahun 1880 dan tak lama kemudian telah dikembangkan ke dalam bentuk diagram vektor dengan representasi kompleks oleh A.E.Kennelly dan C.P.Steinmets. Impedansi merupakan sebuah konsep yang lebih umum dari resistansi, karena diperhitungkan juga mengenai perbedaan fase antara arus dan tegangan. Oleh karena itu, impedansi dapat didefinisikan sebagai nilai resistansi kompleks dari suatu rangkaian listrik sebagai respon terhadap tegangan listrik AC yang diberikan pada rangkaian tersebut [4].

Spektroskopi impedansi merupakan peralatan analitik yang populer didalam penelitian dan pengembangan ilmu material, karena alat ini memberikan pengukuran listrik yang relatif sederhana secara otomatis dan hasilnya sering kali dihubungkan dengan banyak variabel-variabel material yang kompleks: mulai dari transport massa, laju reaksi kimia, korosi, sifat dielektrik, cacat, mikrostruktur dan pengaruh komposisi pada konduktansi dari zat padat [4].

Data impedansi eksperimen Z dapat diwakili oleh impedansi rangkaian ekuivalen (model rangkaian listrik) Z yang terdiri dari resistor-resistor ideal, kapasitor-kapasitor ideal, boleh jadi juga induktansi-induktansi ideal, dan kemungkinan variasi distribusi rangkaian. Untuk menjadi berguna, elemen-elemen didalam model ini harus memiliki dasar fisis dari sistem. Didalam rangkaian tersebut, resistansi menyatakan aliran konduktif, dan resistor didalam rangkaian dapat dianggap sebagai konduktivitas bulk dari material atau bahkan mekanisme yang terkait dengan suatu elektroda. Sama juga halnya dengan kapasitansi dan induktansi yang secara umum terkait dengan daerah-daerah polarisasi muatan ruang dan proses adsorpsi serta elektrokristalisasi khusus pada

suatu elektroda [4]. Didalam Tabel-2.2 diperlihatkan elemen-elemen listrik yang umum dipakai didalam pemodelan rangkaian listrik ekivalen..

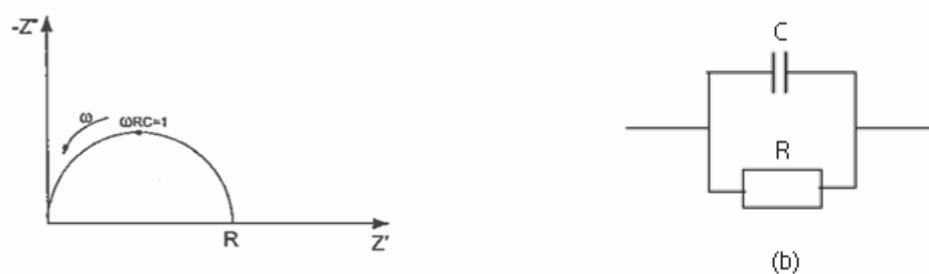
Tabel 2.2 Elemen rangkaian terhadap nilai impedansi [8] .

Circuit Element	Impedance Equation
	$Z = R + 0j$ $j = \sqrt{-1}$
	$Z = 0 - j / \omega C$ $\omega = 2\pi f$
	$Z = 0 + j \omega L$ $\omega = 2\pi f$
	$Z = \frac{R}{1 + \omega^2 C^2 R^2} - \frac{j\omega CR^2}{1 + \omega^2 C^2 R^2}$

Sumber: Basic EIS Princeton <http://www.princetonappliedresearch.com>

Disamping kelebihan yang dimiliki metode spektroskopi impedansi, metode ini juga memiliki kekurangan terutama yang terkait dengan adanya kemungkinan interpretasi dua arti. Kesulitan terpenting dari analisa berdasarkan rangkaian ekivalen adalah elemen-elemen rangkaian ideal menggambarkan sifat konstanta yang tak diinginkan. Bila keadaanya demikian, elemen-elemen rangkaian ideal tidak cukup untuk menggambarkan suatu respon listrik. Oleh karenanya, sering dijumpai impedansi eksperimen Z yang tidak dapat dimodelkan dengan baik oleh impedansi rangkaian ekivalen yang hanya memiliki sejumlah elemen-elemen yang terbatas. Untuk mengatasi kesulitan ini digunakan elemen-elemen impedansi yang terdistribusi -contohnya, *constant-phase elements* (CPEs)- didalam rangkaian ekivalen, sehingga diperoleh fitting data impedansi yang lebih baik.

Spektrum impedansi untuk material paramagnetik secara sederhana dapat ditampilkan seperti pada gambar-2.15.



Gambar-2.14. Spektrum impedansi yang sederhana (a) dan pemodelan rangkaian paralel RC tunggal yang bersesuaian (b).

Plot antara komponen real dari impedansi Z' dan komponen imajiner Z'' menghasilkan suatu pola setengah lingkaran. Secara teoritis pola ini dapat diekivalen dengan model rangkaian sederhana dari paralel R//C tunggal. Pemodelan ini hanya berlaku untuk material yang homogen secara elektronis[9]

Impedansi Z untuk rangkaian tunggal R//C paralel dapat dinyatakan dengan persamaan:

$$Z = \frac{R}{1 + j\omega RC} = Z' + jZ'' \quad (2.5)$$

$$Z' = \frac{R}{1 + (\omega RC)^2} \quad (2.6)$$

$$Z'' = \frac{\omega R^2 C}{1 + (\omega RC)^2} \quad (2.7)$$

Persamaan (2.4) ini tersusun atas bagian real dan imajiner. Bila bagian real diplot pada sumbu-x dan bagian imajiner pada sumbu-y ke dalam sebuah grafik, maka kita memperoleh “plot Nyquist” (Gambar-2.17) [9]. Pengukuran impedansi yang dilakukan pada suatu bahan dalam tugas akhir ini bahan BaTiO₃ dengan frekuensi yang berbeda-beda, kemudian hasil pengukuran tersebut kita plot kedalam plot Nyquist, sehingga diperoleh sebuah spektrum impedansi, metode seperti inilah yang disebut sebagai metode spektroskopi impedansi (SI).

Plot Z' terhadap Z'' dapat diwakili oleh model-model rangkaian ekuivalen yang ditampilkan dalam inset angka-angka. Setiap semicircle diwakili oleh rangkaian paralel RC yang ekuivalen dengan komponen individu dari material bulk dan batas grain. Plot impedansi real terhadap impedansi imajiner membentuk semicircle tunggal mempresentasikan sifat elektronis dari material bulk, sedangkan yang menampilkan dua semicircle mempresentasikan perilaku dari

material bulk dan batas grain [9]. Resistansi dari tiap-tiap elemen langsung dihasilkan dari titik potong dengan sumbu x yaitu bagian real dari impedansi. Kapasitansi dapat dihitung dengan menggunakan persamaan:

$$\omega \tau = 1 \quad (2.8)$$

$\tau = RC$ dan $\omega = 2\pi f$, maka persamaan (2.7) dapat ditulis

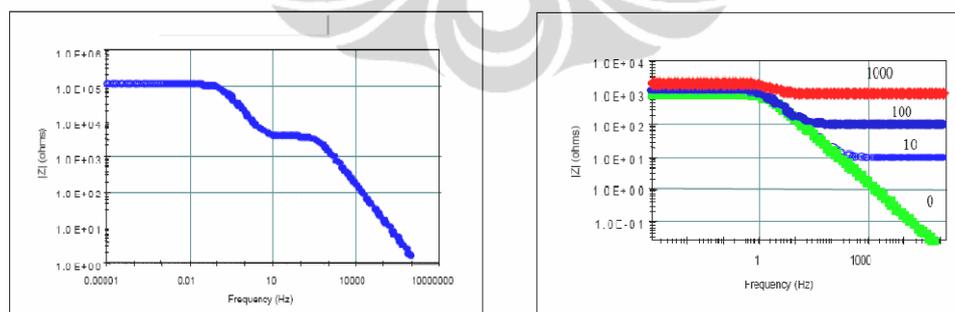
$$\omega RC = 1, \text{ sehingga}$$

$$C = \frac{1}{2\pi f R} \quad (2.9)$$

Dimana f adalah frekuensi puncak atau frekuensi relaksasi, dan τ adalah waktu relaksasi yang merupakan parameter penting karena nilainya hanya bergantung pada sifat material tidak bergantung pada geometrinya [12].

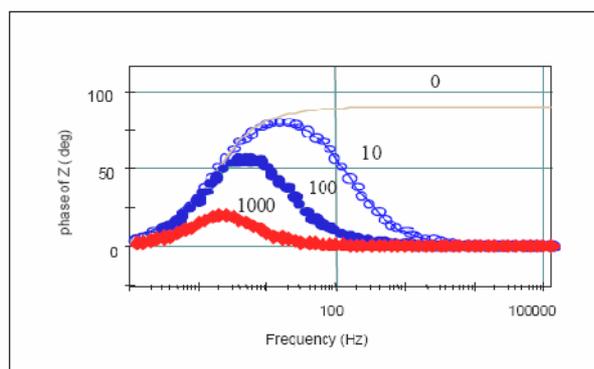
2.5.2 Bode plot

Format bode plot memudahkan untuk menyelidiki nilai impedansi absolut ($|Z|$), pergeseran fasa (Φ), dari suatu gejala impedansi sebagai fungsi dari frekuensi. Dikarenakan frekuensi muncul pada sumbu aksis, maka terlihat bagaimana pengaruh impedansi bergantung terhadap frekuensi sebagaimana kasus dari kapasitor [8].



Gambar 2.15 Tampilan grafik Bode plot [8]

Sumber: Basic EIS Princeton <http://www.princetonappliedresearch.com>



Gambar 2.16 Grafik frekuensi terhadap Perubahan sudut fasa
 Sumber: Basic EIS Princeton <http://www.princetonappliedresearch.com>

Secara umum bode plot memberikan deskripsi secara jelas dari suatu sistem elektrokimia yang memiliki perilaku ketergantungan terhadap frekuensi, di mana nilai frekuensi muncul secara eksplisit.

Bode plot juga dapat memberikan informasi mengenai interaksi konduktivitas pada *grain* dan daerah batas *grain* terhadap perlakuan panas baik secara self-heatin, *sintering* maupun secara *annealing* yang optimum dari bahan yang diujikan. Mikrostruktur material terdiri dari grain dan grain boundary yang merupakan mekanisme konduksi dalam material tersebut. Bagian yang tidak stabil adalah grain boundary sehingga saat terjadi pemanasan bagian yang lebih sensitive untuk merespon adalah daerah grain boundary ,disamping itu efek pemanasan juga berpengaruh pada daerah frekuensi rendah, sehingga disimpulkan bahwa pada daerah frekuensi ini spektrum impedansi merupakan hasil dari sumbangan konduksi listrik pada grain boundary[9].

2.5.3 Analisis Impedansi

Bahan polikristalin biasanya menunjukkan efek grain dan batas grain dengan konstanta waktu yang berbeda, mengarah ke dua suksesi semicircle. Dalam hal ini kasus intercept kedua dari frekuensi tinggi setengah lingkaran sesuai dengan properti bulk, dan frekuensi rendah setengah lingkaran sesuai dengan properti batas grain. Sifat listrik sering diwakili dalam hal parameter seperti konstanta dielektrik kompleks ϵ , impedansi kompleks Z , modulus listrik M ,

admitansi dan tangen loss ($\tan \delta$) [10]. Sifat-sifat tersebut diatas masing-masing ditulis dengan persamaan:

$$M = M' - jM'' = j\omega C_0 Z \quad (2.10)$$

$$\epsilon = \epsilon' - j\epsilon'' = M^{-1} \quad (2.11)$$

$$Y = Z^{-1} = j\omega C_0 \epsilon \quad (2.12)$$

$$\tan \delta = \frac{\epsilon''}{\epsilon'} \quad (2.13)$$

Dimana C_0 adalah kapasitansi vacum dari pengukuran sel dan elektroda dengan celah udara didalam sampel, $C_0 = \epsilon_0/k$, dimana ϵ_0 adalah permitivitas ruang hampa ($\epsilon_0 = 8,85 \times 10^{-14}$) dan $k = l/a$ konstanta sel, dimana l adalah ketebalan dan a adalah luas bidang sampel [10]. R dan C adalah resistansi dan kapasitansi dalam hubungan seri dan $j = \sqrt{-1}$ adalah imajiner operator.

Variasi impedansi real dengan frekuensi pada temperatur berbeda dimana nilai impedansi real menurun sejalan dengan kenaikan temperatur menunjukkan peningkatan konduktivitas ac. Nilai impedansi real konvergen pada frekuensi tinggi pada semua temperature menunjukkan adanya polarisasi ruang muatan dalam sampel. Sedangkan variasi impedansi imajiner dengan frekuensi pada temperature berbeda dapat digunakan untuk mengevaluasi frekuensi relaksasi dari kontribusi resistif. Peak impedansi imajiner bergeser ke frekuensi yang lebih tinggi sejalan dengan kenaikan temperatur menandakan terjadi relaksasi dalam system. Proses relaksasi terjadi karena kehadiran electron/immobile spesies pada temperatur rendah dan defek pada temperatur tinggi [10].

Dari plot variasi konduktivitas dengan temperatur (Arrhenius Plot) pada frekuensi berbeda maka energi aktivasi dapat dihitung [11]. Energi aktivasi bahan barium titanat dapat dihitung dengan Arrhenius:

$$\sigma = \sigma_0 \exp(-E_a/K_B T) \quad (2.14)$$

$$\tau = \tau_0 \exp(-E_a/K_B T) \quad (2.15)$$

Dimana σ adalah konduktivitas, τ adalah waktu relaksasi, E_a adalah energi aktivasi, k_B konstanta Boltzman, T adalah temperatur mutlak.

BAB II STUDI LITERATUR

2.1 Feroelektrisitas

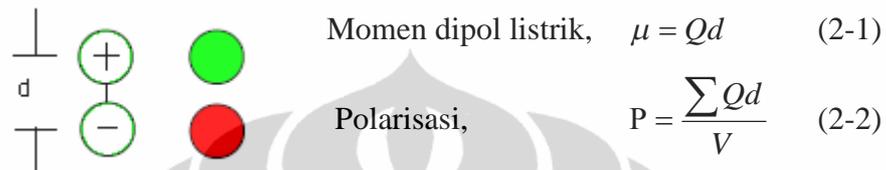
Kristal ferroelektrik memperlihatkan momen dipole listrik tanpa adanya medan listrik (diluar medan listrik). Pada ferroelektrik pusat muatan positif dari kristal tidak bertepatan dengan pusat muatan negative. Kurva polarisasi versus medan listrik pada Kristal ferroelektrik memperlihatkan sebuah histerisis loop. Kristal dielektrik normal biasanya tidak memperlihatkan histerisis yang signifikan ketika medan listrik dinaikkan atau kemudian dibalik secara perlahan. Feroelektrisitas biasanya hilang diatas temperature tertentu yang disebut temperature transisi, diatas temperature transisi tersebut kritical sudah menjadi paraelektrik[3].

2.2 Dielektrik

Dielektrik dan isolator dapat didefinisikan sebagai material yang memiliki resistivitas listrik yang tinggi. Dielektrik yang baik tentu saja isolator yang baik, namun isolator yang baik, belum tentu dielektrik yang baik [4]. Isolator yang baik memiliki nilai resistansi yang tinggi sedangkan dielektrik yang baik memiliki nilai konstanta dielektrik yang tinggi dan tidak bergantung pada frekuensi medan listrik [5]. Udara merupakan isolator yang baik tetapi udara memiliki konstanta dielektrik yang rendah ($k=1$). Barium Titanate dengan rumus kimia $BaTiO_3$ merupakan salah satu contoh bahan dielektrik yang baik dan luas aplikasinya karena bahan ini memiliki konstanta dielektrik yang tinggi ($k \gg 1$) sehingga dapat diaplikasikan sebagai kapasitor.

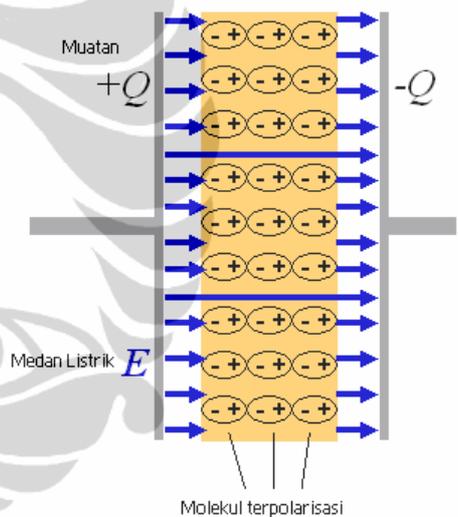
Material-material dielektrik tidak menghantarkan arus listrik. Namun demikian, material-material tersebut tidak sepenuhnya inert terhadap medan listrik. Elektron (muatan negatif) dan nukleus-nukleus atom yang mengandung proton (muatan positif) akan menggeser posisinya sebagai tanggapan terhadap medan listrik. Sebagai contoh, posisi rata-rata elektron akan terletak pada sisi atom yang lebih dekat kepada elektroda positif, sementara nukleus atomiknya sendiri, yang mengandung proton, akan sedikit bergeser ke arah elektroda negatif

(Gambar-2.1). Satu sistem muatan positif dan muatan negatif yang saling bergeser ini disebut sebagai momen dipol listrik. Sedangkan kumpulan dari sistem ini didalam satu unit volume disebut sebagai polarisasi, sehingga polarisasi dapat didefinisikan sebagai jumlah total momen dipol listrik per-satuan volume. Jika diberikan medan AC, maka muatan-muatan internal ini akan bergeser maju-mundur selaras dengan frekuensi medan listrik AC yang diberikan [2].



Gambar-2.1. Muatan positif dan muatan negatif yang saling bergeser membentuk sistem momen dipol listrik

Gambar-2.2. Polarisasi molekul didalam bahan dielektrik yang diberi medan listrik. Elektron-elektron didalam molekul bergeser kearah muatan positif plat [5]



Konstanta dielektrik diukur oleh k , melalui hubungan $C = kC_0$, yang merupakan ukuran kemampuan suatu bahan dapat mengumpulkan flux elektrostatis (garis-garis medan elektrostatis). Konstanta dielektrik ini juga dikenal sebagai permitivitas statis.

Dengan meletakkan bahan dielektrik (Gambar-2.2) diantara plat sejajar kapasitor akan menyebabkan adanya penambahan kapasitansi yang sebanding dengan k (permitivitas relatif material) yang dalam perumusannya dinyatakan sebagai :

$$C = \frac{k\epsilon_0 A}{d} \quad (2.3)$$

ϵ_0 merupakan permitivitas ruang hampa, A adalah luasan yang diliputi oleh plat kapasitor, dan d adalah jarak diantara plat-plat kapasitor.

Penambahan kapasitansi ini disebabkan oleh medan listrik memolarisasi muatan yang terikat didalam bahan dielektrik, hal ini menghasilkan konsentrasi muatan dipermukaan kapasitor sehingga menciptakan medan listrik yang berlawanan dengan medan listrik luar. Oleh karena itu dengan adanya bahan dielektrik ini akan menambah potensial listrik pada kapasitor [5].

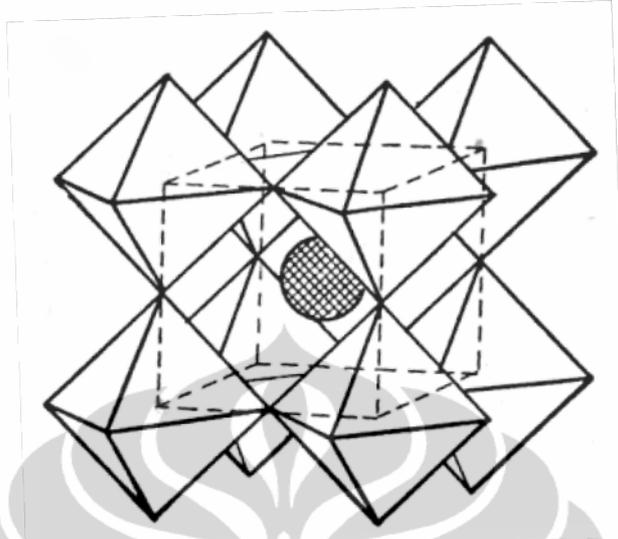
2.3 BARIUM-TITANAT DAN APLIKASINYA

2.3.1 BARIUM TITANAT (BaTiO_3)

Barium-Titanate dengan rumus kimia BaTiO_3 merupakan material ferroelektrik yang paling luas pemanfaatannya dan bahkan sejak enam puluh tahun setelah penemuannya, material ini merupakan keramik dielektrik multi-lapis yang sangat penting. BaTiO_3 ditemukan selama perang dunia II pada tahun 1941 dan 1944 di Amerika, Rusia dan Jepang. Setidaknya di Amerika, penelitian BaTiO_3 dipercepat karena alasan perang. Pada waktu itu, kebanyakan kapasitor menggunakan mika. Awal mulanya diteliti bahwa, pendopongan TiO_2 dengan BaO akan menghasilkan material keramik dengan permitivitas dielektrik yang lebih tinggi [1]. Besarnya permitivitas dielektrik yang dihasilkan mencapai sepuluh kali lebih besar dibandingkan keramik lain yang diketahui pada saat itu, seperti TiO_2 ($\epsilon_r = 110$).

Perjalanan untuk mengerti keanehan dielektrik didalam keramik BaO- TiO_2 tetap berlanjut, dan di tahun 1945 dan 1946, Von Hippel (USA), dan Wul dengan Goldman (Rusia) mendemonstrasikan saklar ferroelektrik dari keramik BaO- TiO_2 . Penemuan ferroelektrisitas pada keramik BaO- TiO_2 adalah luar biasa penting. BaTiO_3 merupakan anggota dari keluarga *perovskite* yang berbasis pada mineral CaTiO_3 (Gambar-2.3), seperti yang diperkirakan dari prinsip dasar kimia kristal yang digambarkan lebih awal oleh Goldschmidt (1926). Gambaran detail pertama kali dari struktur kristal BaTiO_3 fase ferroelektrik di temperatur tinggi diusulkan

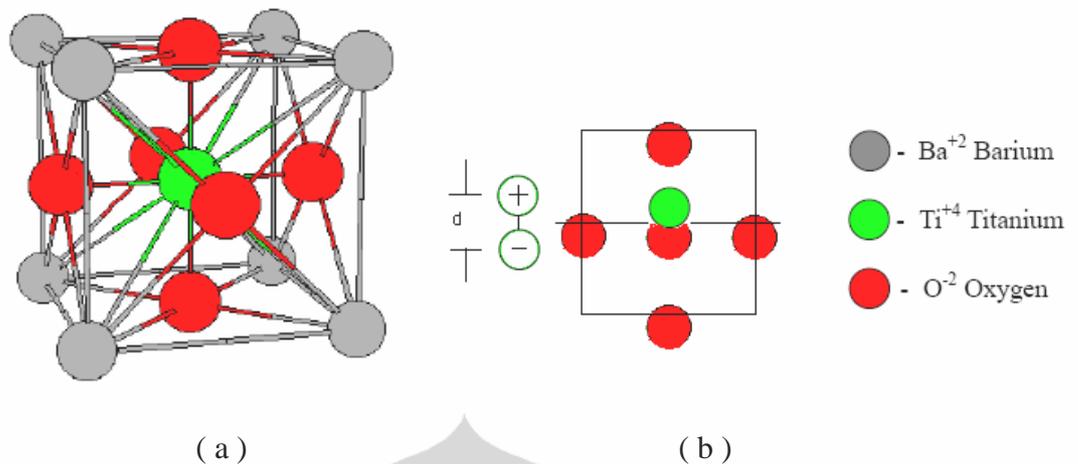
oleh Helen D. Megaw (1945) di United Kingdom dan dikonfirmasi segera setelah pekerjaan yang dilakukan oleh Miyake dan Ueda (1946) [1].



Gambar-2.3. Struktur dasar dari perovskite BaTiO_3 dengan ion Ba terletak di tengah-tengah sel dan ion Ti didalam oktahedra oksigen [1].

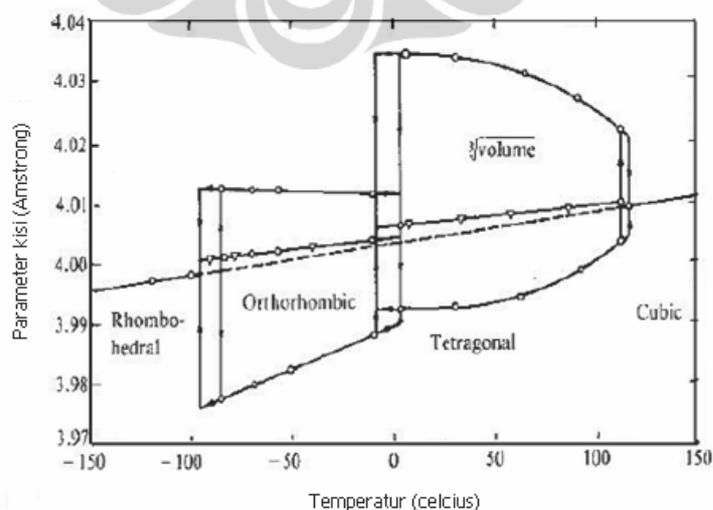
Pemahaman yang lebih baik akan perilaku transisi fasa datang dari penumbuhan kristal BaTiO_3 . Kristal yang pertama kali dibuat pada tahun 1947 ukurannya kecil, kemudian di tahun 1954, Remeika membuat kristal yang lebih besar sehingga memungkinkan para ilmuwan ferroelektrik untuk memperluas pemahaman mendasar tentang anisotropi dielektrik, saklar domain, dan elektro-optik serta sifat elektromekanik dari ferroelektrik BaTiO_3 . Barium-Titanate merupakan pizelektrik keramik yang pertama kali dikembangkan dan bahkan hingga saat ini masih luas penggunaannya [4] dan material ini dikenal dalam aplikasi kapasitor.

Demikian pula halnya yang terjadi didalam material dielektrik BaTiO_3 yang diberi medan listrik, ion-ion Oksigen akan bergeser kearah elektroda positif sementara ion-ion Titanium kearah elektroda negatif (Gambar-2.4).

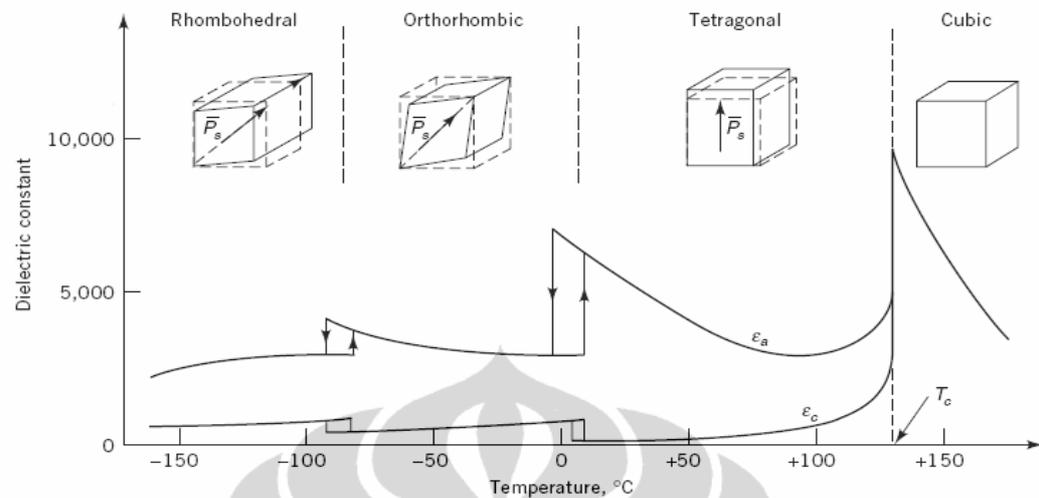


Gambar-2.4. Tetragonal BaTiO₃. (a) Diatas temperatur 120°C, BaTiO₃ berstruktur kubik. (b) Dibawah temperatur tersebut ion-ion bergeser ke sudut ion-ion Ba²⁺. Karena ion-ion Ti dan O bergeser ke arah berlawanan, maka pusat muatan positif dan negatif tidak sama. Sehingga unit selnya menjadi tidak kubik [4]

Dimensi kristalografi kisi Barium-Titanate berubah ketika temperatur berubah. Skema perubahan pada kisi ini ditunjukkan oleh Gambar-2.5. Hal ini disebabkan oleh adanya pergeseran pada oktahedra TiO₆. Adanya penyimpangan oktahedra yang terkopel bersama, menghasilkan polarisasi spontan yang sangat besar, sehingga memberikan konstanta dielektrik yang besar, seperti yang ditunjukkan oleh Gambar-2.6.

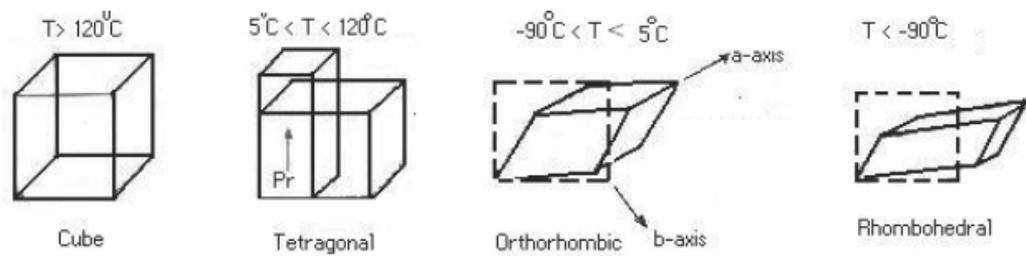


Gambar-2.5. Parameter kisi dari BaTiO₃ sebagai fungsi temperatur [1]



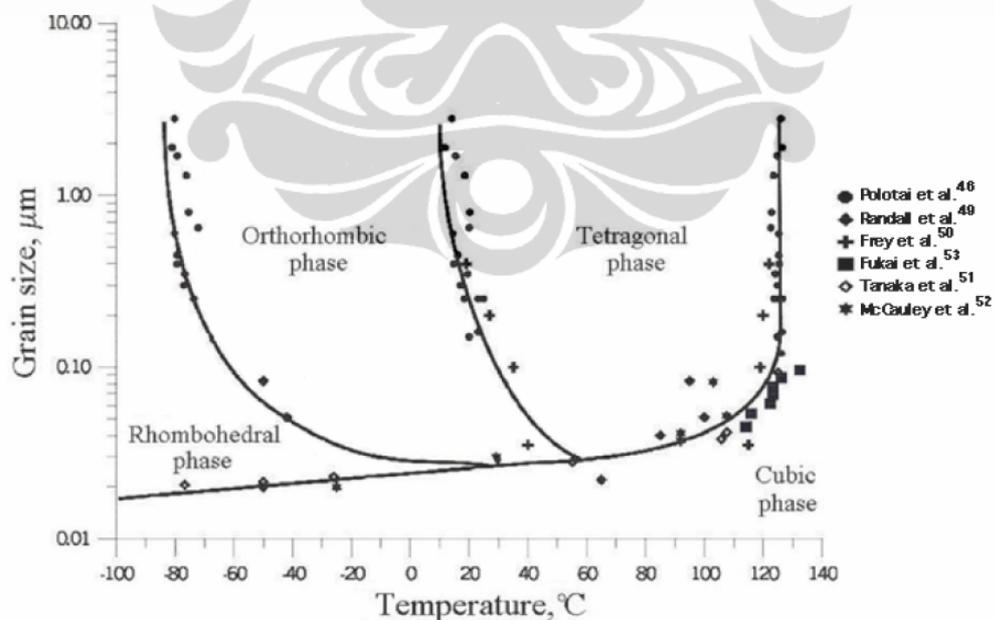
Gambar-2.6. Struktur kristal dan penyimpangan kisi pada unit sel BaTiO_3 , menunjukkan arah polarisasi spontan, konstanta dielektrik resultan ϵ vs temperatur. Subskrip a dan c menunjukkan orientasi sejajar dan tegak lurus pada sumbu tetragonal. Temperatur transisi untuk BaTiO_3 murni adalah -90 , 15 , dan 135°C [6]

Didalam Gambar-2.5 kita dapat melihat bahwa diatas temperatur 120°C , yakni pada titik Curie T_c , keramik Barium-Titanate adalah berstruktur kubik isotropik. Atom-atom Ti semuanya berada dalam posisi setimbang ditengah-tengah pusat oktahedra. Pergeseran atom Ti yang disebabkan oleh medan listrik luar sehingga dapat mengubah struktur yang pada akhirnya menghasilkan dipole-dipole listrik. Sebagai contohnya, ketika temperatur dibawah temperatur Curie, struktur oktahedra berubah dari simetri kubik menuju simetri tetrahedral dan posisi ion titanium menjadi tidak lagi diposisi tengah-tengah terkait dengan dipole listrik permanen. Selama temperatur berubah, dimensi kristalografi berubah pula yang menyebabkan terjadinya pergeseran oktahedra sehingga menghasilkan oktahedra menjadi berpasang-pasangan secara bersama. Hal ini memberikan polarisasi spontan yang sangat besar sehingga membuat konstanta dielektrik menjadi besar pula. Kesensitifan fluktuasi kristalografi terhadap temperatur ini diperlihatkan di dalam Gambar-2.7.



Gambar-2.7. Perubahan kristalografi BaTiO₃ sebagai akibat dari perubahan temperatur [2]

Karakteristik dielektrik BaTiO₃ terhadap temperatur, kuat medan listrik, frekuensi dan waktu (usia) adalah juga sangat bergantung pada substitusi sejumlah kecil ion-ion lainnya, pada mikrostruktur, dan khususnya pada ukuran grain yang kecil [2], karena ukuran grain juga turut memengaruhi transisi fasa pada BaTiO₃ (Gambar-2.8). Dikarenakan pentingnya mekanisme grain, oleh karena itu didalam tugas akhir ini penulis mempelajari tentang bagaimana pengaruh ukuran grain pada spektroskopi impedansi bahan BaTiO₃.



Gambar-2.8. Variasi ukuran grain yang berakibat pada perilaku transisi dari Barium-Titanate murni [1]

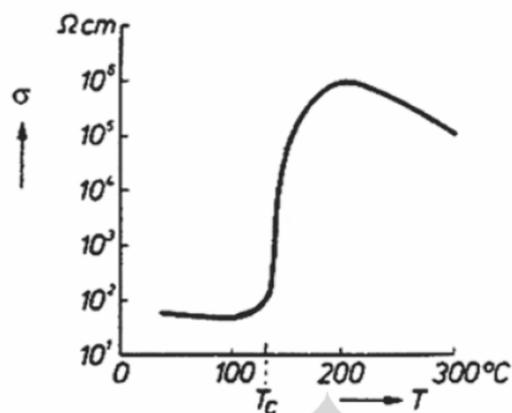
2.3.2 APLIKASI BARIUM TITANATE

A. Positive Temperature Coefficient Resistansi Thermistor

Positif temperatur koefisien resistansi thermistor (PTCR Thermistor) adalah salah satu keramik yang nilai hambatan listriknya bertambah dengan drastis pada temperatur tertentu, keistimewaan ini membuat keramik ini menjadi idola untuk diteliti dan diaplikasikan pada bidang teknik listrik dan elektronik moderen .

PTCR thermistor adalah resistor dari bahan semi konduktor yang sensitif terhadap thermal. Nilai hambatannya naik pesat dengan peningkatan temperatur setelah temperatur tertentu yang disebut temperatur referensi. Positif temperatur koefisien yang naik pesat diatas temperatur referensi dinamakan PTCR thermistor [7].

Material PTC thermistor dibuat dengan jalan mendopping polikristalin keramik BaTiO_3 sebagai basis . Pendopingan ini berakibat pada munculnya suatu resistor yang bersifat non-linear dan dikenal sebagai *Positive Temperature Coefficients Resistors* thermistor (PTCR thermistor). Fenomena ini melibatkan kenaikan resistivitas pada temperatur transisi Curie di 125°C . Gambaran skema dari fenomena PTCR ini ditunjukkan oleh Gambar-2.9. Sifat semikonduktor sangat kuat dipengaruhi oleh transisi ferroelektrik. Besarnya perubahan resistivitas pada termistor PTCR BaTiO_3 yang dicapai saat ini adalah hingga 6-7 orde. Fenomena ini hanya teramati didalam BaTiO_3 polikristalin, dengan polarisasi spontan dari domain-domain ferroelektrik membatasi lengkungan-kurva sehingga transport elektronik melintasi batas grain (grain boundary) [1].



Gambar-2.9. Anomali konduktivitas didalam keramik BaTiO₃, yang menunjukkan efek PTC [1]

Ferroelektrik diatas temperatur Curie, konstanta dielektrik dan polarisasi turun secara drastis menyebabkan pertumbuhan potensial barrier dan reistansi. Dalam daerah temperatur tertentu diatas temperatur Curie (T_c) hambatan dari PTCR thermistor meningkat secara eksponensial. Melebihi batas range positif temperatur koefisien α , jumlah pembawa muatan bebas meningkat oleh aktivasi thermal. Hambatan kemudian berkurang secara drastis menunjukkan karakteristik dari tipe Negative Temperature coefficient (NTC) dari semikonduktor. Resistansi PTC terdiri dari reistansi grain dan resistansi grain boundary dan reistansi grain boundary sangat bergantung pada temperatur [7].

$$R_{PTC} = R_{grain} + R_{grain\ boundary}$$

(2.4)

Didalam aplikasinya, PTC digunakan pada berbagai jenis rangkaian elektronik seperti saklar atau pemanas temperatur konstan. Disamping itu, aplikasi PTC termistor juga sebagai pengukur/ pendeteksi/ pengontrol dari temperatur atau parameter-parameter yang terkait dengan temperatur. Oleh karena material ini memiliki koefisien temperatur resistansi yang tinggi disekitar titik Curie dan

kemampuan membatasi-diri, sehingga material ini sangat berguna untuk aplikasi sensor. Didalam Tabel-2.1 diperlihatkan pembagian aplikasi BaTiO₃.

Positive Temperature Coefficient of Resistance (PTCR) dapat diklasifikasikan sebagai resistor temperatur kritis karena koefisien positif yang terkait dengan titik Curie ferroelektrik. Pada kenyataannya, material-material PTCR dapat dibagi kedalam empat grup; komposit polimer, komposit keramik, senyawa V₂O₃ dan senyawa berbasis BaTiO₃ (BaSrTiO₃, BaPbTiO₃...). Setelah didoping dengan donor-donor trivalen (contohnya: La, Sc, Y) yang menggantikan Ba⁺² atau dengan donor-donor pentavalen (contohnya: Sb, Nb, Ta) yang menggantikan Ti⁺⁴, maka BaTiO₃ menjadi bersifat semikonduktif yang menunjukkan efek PTCR seperti yang ditunjukkan oleh Gambar-2.9. Disamping memperlihatkan efek PTCR, pendopongan BaTiO₃ dengan senyawa SrTiO₃ dapat membentuk suatu sistem larutan padat yang biasa dikenal sebagai BST yakni (Ba,Sr)TiO₃ dimana temperatur kritis dari BaTiO₃ dapat digeser-geser [4].

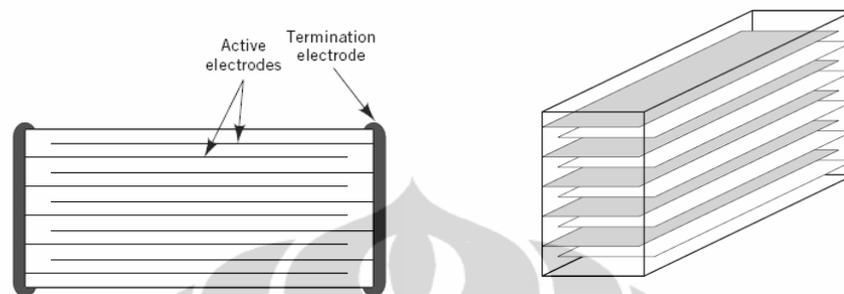
B. Aplikasi PTCR

Aplikasi PTCR ada tiga kelompok yaitu pembatas arus, pemanas pada temperatur konstan, dan sensor termal. Pada pembatas arus PTCR berfungsi sebagai penipis arus yang biasanya dipasang pada fuse, TV berwarna, display komputer, dan starter motor. Pada pemanas temperatur konstan PTCR berfungsi untuk menghambat penurunan dan menaikkan temperatur, sehingga temperatur sistem menjadi konstan, biasanya dipakai pada mosquito-killer, hair drier, dan pemanas pada mobil dan kereta api. Sedangkan pada pada termal sensor PTCR berfungsi sebagai sakelar otomatis [2].

C. Kapasitor Keramik Multilapis (MLCs)

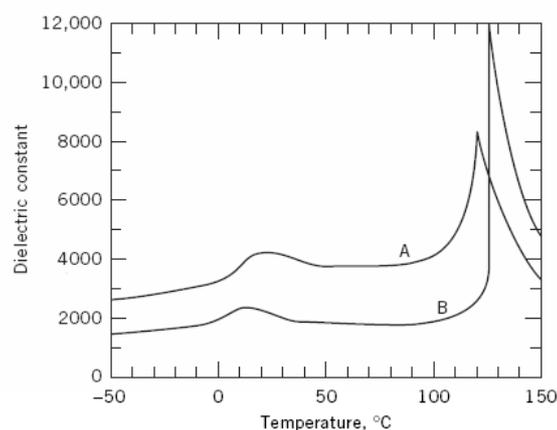
Kapasitor multi-lapis (MLC), diproduksi lebih dari 30 unit setiap tahunnya, melebihi ferroelektrik lain [6]. MLC terdiri dari lapisan-lapisan material dielektrik dan logam elektroda, seperti yang diperlihatkan oleh Gambar-2.10. Alasan untuk konfigurasi seperti ini ialah untuk memperkecil ukuran kapasitor.

Kapasitansi dirumuskan seperti pada Pers-2.1, oleh sebab itu nilai kapasitansi akan bertambah dengan bertambahnya luas dan berkurangnya ketebalan. MLC biasanya terdiri dari 100 lapisan tipis dengan ketebalan material dielektriknya 10-35 μm .



Gambar-2.10. Skema kapasitor multi-lapis konvensional [5].

Material-material dielektrik yang digunakan didalam kapasitor lapis-banyak harus memenuhi beberapa syarat sifat listrik. Diantaranya adalah permitivitas dielektrik yang tinggi dengan kebergantungan temperatur yang rendah, hal ini dibutuhkan untuk aplikasi MLC pada range-temperatur yang luas. Keramik berbasis BaTiO_3 memperlihatkan permitivitas dielektrik yang tinggi, akan tetapi permitivitas dielektrik BaTiO_3 memiliki kebergantungan terhadap temperatur dan mencapai maksimum pada titik Curie (Gambar-2.11). Meskipun titik Curie dapat digeser hingga ke temperatur kamar melalui substitusi parsial dari Ba atau Ti, permitivitas dielektrik keramik BaTiO_3 juga bergantung pada ukuran grain material.



Gambar-2.11. Kebergantungan Konstanta dielektrik (1 kHz) BaTiO₃ terhadap temperatur pada A (ukuran grain 1-mikrometer) dan B (ukuran grain 50-mikrometer) [6].

2.4 Hasil penelitian sebelumnya

2.4.1 Nilai Parameter Kisi

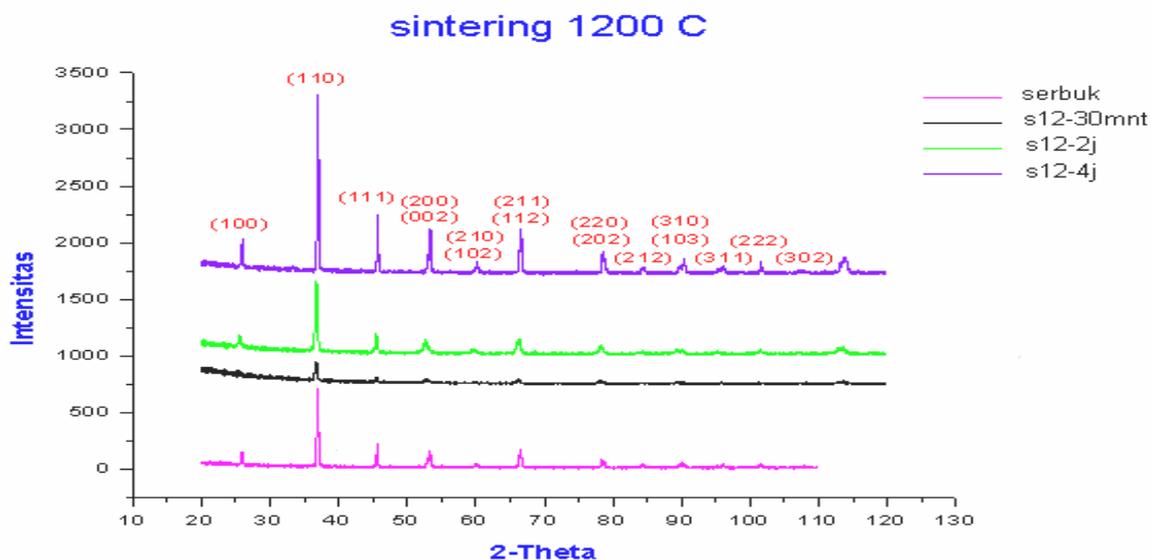
Hasil penelitian terdahulu menunjukkan bahwa waktu sintering yang berbeda-beda tidak memberikan perbedaan nilai parameter kisi yang signifikan, sehingga dapat dikatakan bahwa variasi waktu sinter tidak memengaruhi nilai parameter kisi pada bahan. Nilai parameter kisi pada perubahan waktu sintering ini diperlihatkan didalam Tabel-2.1 [4].

Tabel-4.5. nilai parameter kisi pada sintering 1200 C

Parameter kisi	s12-30mnt	s1200-2j	s1200-4j
a (Å)	3.9948	3.9974	3.9878
c (Å)	4.0259	4.0243	4.0179

2.4.2 Grafik XRD BaTiO₃

Hasil XRD dari barium titanat yang telah disintering pada temperatur 1200 °C selama 0,5 jam, 2 jam, dan 4 jam dapat dilihat seperti gambar-4.3 dibawah ini:

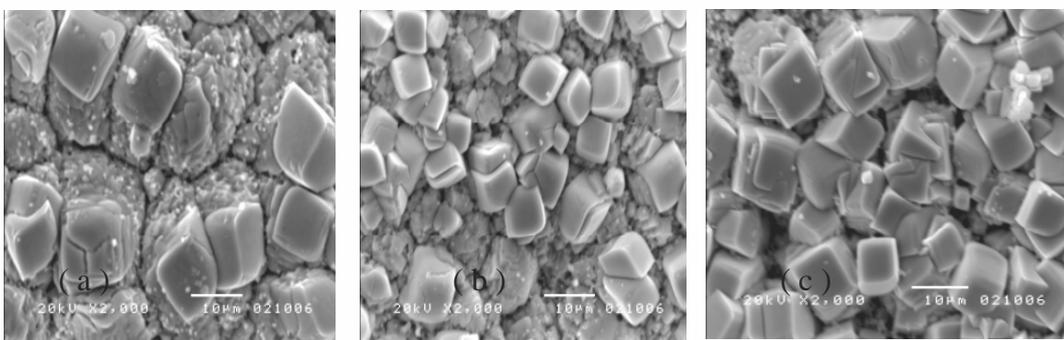


Gambar-2.12 Grafik hasil XRD pada temperatur 1200°C dengan variasi waktu sintering [4].
Sumber: Muhammad Dorris Caniago.

Dari penelitian sebelumnya diperoleh grafik hasil XRD untuk BaTiO₃ yang disintering pada temperatur 1200 °C dengan berbagai variasi waktu sintering seperti gambar-2.12. Gambar memperlihatkan bahwa, semakin lama temperatur sinter dari 30 menit hingga 4 jam waktu pemanasan diperoleh derajat kristalin yang semakin tinggi dengan diperlihatkannya nilai intensitas difraksi yang tertinggi pada waktu 4 jam sintering [4].

2.4.3 Ukuran grain BaTiO₃

Berdasarkan pengamatan hasil foto SEM (Gambar-2.13) diperoleh nilai perkiraan ukuran grain dari BaTiO₃ yang disintering pada temperatur 1200 °C dengan berbagai variasi waktu sintering. Untuk BaTiO₃ sintering 1200C selama 2 jam ukuran grainnya sekitar 10 µm dengan distribusi grain yang renggang, sementara untuk BaTiO₃ sintering 1200 °C selama 30 menit belum dapat diketahui ukuran secara kasarnya, karena pada s12-30mnt terjadi keadaan dimana grain-grain, baru mulai akan tercipta, dengan kata lain serbuk-serbuk barium titanat saling menggabungkan diri untuk bertransisi menjadi butiran-butiran yang dalam hal ini disebut sebagai grain.



Gambar-2.13. foto SEM yang memperlihatkan ukuran grain pada (a) s12-30mnt (b) s12-2j (c) s12-4j [4]. Sumber: Muhammad Dorris Caniago

Penggabungan serbuk barium titanat terlihat berdasarkan foto SEM dimana grain-grain yang belum tumbuh secara sempurna. Sedangkan untuk BaTiO₃ yang disintering pada temperatur 1200 °C selama 4 jam memiliki ukuran grain yang berkisar antara 10-20 μm dengan distribusi ukuran grain antara yang berukuran kecil dan besar yang tidak merata [4].

2.4 Spektroskopi Impedansi

2.5.1 Nyquist Plot

Konsep impedansi listrik pertama-kali diperkenalkan oleh Oliver Heaviside pada tahun 1880 dan tak lama kemudian telah dikembangkan ke dalam bentuk diagram vektor dengan representasi kompleks oleh A.E.Kennelly dan C.P.Steinmets. Impedansi merupakan sebuah konsep yang lebih umum dari resistansi, karena diperhitungkan juga mengenai perbedaan fase antara arus dan tegangan. Oleh karena itu, impedansi dapat didefinisikan sebagai nilai resistansi kompleks dari suatu rangkaian listrik sebagai respon terhadap tegangan listrik AC yang diberikan pada rangkaian tersebut [4].

Spektroskopi impedansi merupakan peralatan analitik yang populer didalam penelitian dan pengembangan ilmu material, karena alat ini memberikan pengukuran listrik yang relatif sederhana secara otomatis dan hasilnya sering kali dihubungkan dengan banyak variabel-variabel material yang kompleks: mulai dari transport massa, laju reaksi kimia, korosi, sifat dielektrik, cacat, mikrostruktur dan pengaruh komposisi pada konduktansi dari zat padat [4]

Data impedansi eksperimen Z dapat diwakili oleh impedansi rangkaian ekuivalen (model rangkaian listrik) Z yang terdiri dari resistor-resistor ideal, kapasitor-kapasitor ideal, boleh jadi juga induktansi-induktansi ideal, dan kemungkinan variasi distribusi rangkaian. Untuk menjadi berguna, elemen-elemen didalam model ini harus memiliki dasar fisis dari sistem. Didalam rangkaian tersebut, resistansi menyatakan aliran konduktif, dan resistor didalam rangkaian dapat dianggap sebagai konduktivitas bulk dari material atau bahkan

mekanisme yang terkait dengan suatu elektroda. Sama juga halnya dengan kapasitansi dan induktansi yang secara umum terkait dengan daerah-daerah polarisasi muatan ruang dan proses adsorpsi serta elektrokristalisasi khusus pada suatu elektroda [4]. Didalam Tabel-2.2 diperlihatkan elemen-elemen listrik yang umum dipakai didalam pemodelan rangkaian listrik ekivalen..

Tabel 2.2 Elemen rangkaian terhadap nilai impedansi [8] .

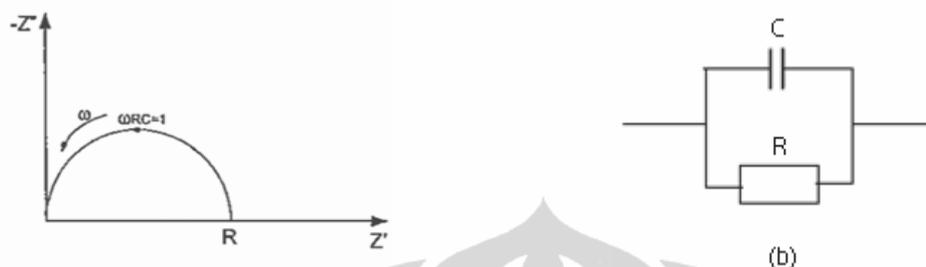
Circuit Element	Impedance Equation
	$Z = R + 0j$ $j = \sqrt{-1}$
	$Z = 0 - j / \omega C$ $\omega = 2\pi f$
	$Z = 0 + j \omega L$ $\omega = 2\pi f$
	$Z = \frac{R}{1 + \omega^2 C^2 R^2} - \frac{j\omega CR^2}{1 + \omega^2 C^2 R^2}$

Sumber: Basic EIS Princeton <http://www.princetonappliedresearch.com>

Disamping kelebihan yang dimiliki metode spektroskopi impedansi, metode ini juga memiliki kekurangan terutama yang terkait dengan adanya kemungkinan interpretasi dua arti. Kesulitan terpenting dari analisa berdasarkan rangkaian ekivalen adalah elemen-elemen rangkaian ideal menggambarkan sifat konstanta yang tak diinginkan. Bila keadaanya demikian, elemen-elemen rangkaian ideal tidak cukup untuk menggambarkan suatu respon listrik. Oleh karenanya, sering dijumpai impedansi eksperimen Z yang tidak dapat dimodelkan dengan baik oleh impedansi rangkaian ekivalen yang hanya memiliki sejumlah elemen-elemen yang terbatas. Untuk mengatasi kesulitan ini digunakan elemen-elemen impedansi yang terdistribusi -contohnya, *constant-phase elements* (CPEs)-

didalam rangkaian ekivalen, sehingga diperoleh fitting data impedansi yang lebih baik.

Spektrum impedansi untuk material paramagnetik secara sederhana dapat ditampilkan seperti pada gambar-2.15.



Gambar-2.14. Spektrum impedansi yang sederhana (a) dan pemodelan rangkaian paralel RC tunggal yang bersesuaian (b).

Plot antara komponen real dari impedansi Z' dan komponen imajiner Z'' menghasilkan suatu pola setengah lingkaran. Secara teoritis pola ini dapat diekivalen dengan model rangkaian sederhana dari paralel $R//C$ tunggal. Pemodelan ini hanya berlaku untuk material yang homogen secara elektronis[9]

Impedansi Z untuk rangkaian tunggal $R//C$ paralel dapat dinyatakan dengan persamaan:

$$Z = \frac{R}{1 + j\omega RC} = Z' + jZ'' \quad (2.5)$$

$$Z' = \frac{R}{1 + (\omega RC)^2} \quad (2.6)$$

$$Z'' = \frac{\omega R^2 C}{1 + (\omega RC)^2} \quad (2.7)$$

Persamaan (2.4) ini tersusun atas bagian real dan imajiner. Bila bagian real diplot pada sumbu-x dan bagian imajiner pada sumbu-y ke dalam sebuah grafik, maka kita memperoleh “plot Nyquist” (Gambar-2.17) [9]. Pengukuran impedansi yang dilakukan pada suatu bahan dalam tugas akhir ini bahan $BaTiO_3$ dengan frekuensi yang berbeda-beda, kemudian hasil pengukuran tersebut kita plot kedalam plot Nyquist, sehingga diperoleh sebuah spektrum impedansi, metode seperti inilah yang disebut sebagai metode spektroskopi impedansi (SI).

Plot Z' terhadap Z'' dapat diwakili oleh model-model rangkaian ekivalen yang ditampilkan dalam inset angka-angka. Setiap semisircle diwakili oleh

rangkaian paralel RC yang ekuivalen dengan komponen individu dari material bulk dan batas grain. Plot impedansi real terhadap impedansi imajiner membentuk semicircle tunggal mempresentasikan sifat elektronis dari material bulk, sedangkan yang menampilkan dua semicircle mempresentasikan perilaku dari material bulk dan batas grain [9]. Resistansi dari tiap-tiap elemen langsung dihasilkan dari titik potong dengan sumbu x yaitu bagian real dari impedansi. Kapasitansi dapat dihitung dengan menggunakan persamaan:

$$\omega \tau = 1 \quad (2.8)$$

$$\tau = RC \quad \omega = 2\pi f$$

dan , maka persamaan (2.7) dapat ditulis

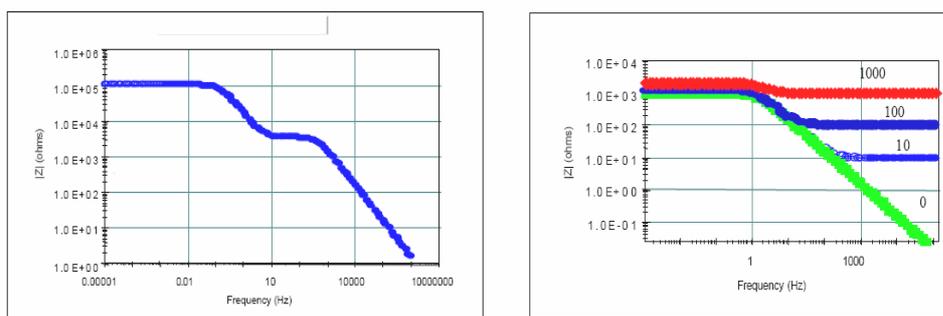
$$\omega RC = 1, \text{ sehingga}$$

$$C = \frac{1}{2\pi f R} \quad (2.9)$$

Dimana f adalah frekuensi puncak atau frekuensi relaksasi, dan τ adalah waktu relaksasi yang merupakan parameter penting karena nilainya hanya bergantung pada sifat material tidak bergantung pada geometrinya [12].

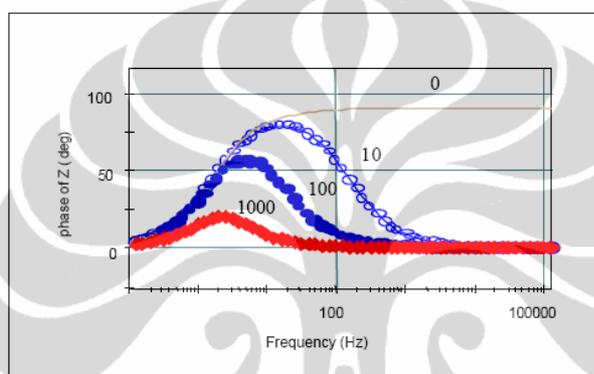
2.5.2 Bode plot

Format bode plot memudahkan untuk menyelidiki nilai impedansi absolut (IZI), pergeseran fasa (Φ), dari suatu gejala impedansi sebagai fungsi dari frekuensi. Dikarenakan frekuensi muncul pada sumbu aksis, maka terlihat bagaimana pengaruh impedansi bergantung terhadap frekuensi sebagaimana kasus dari kapasitor [8].



Gambar 2.15 Tampilan grafik Bode plot [8]

Sumber: Basic EIS Princeton <http://www.princetonappliedresearch.com>



Gambar 2.16 Grafik frekuensi terhadap Perubahan sudut fasa

Sumber: Basic EIS Princeton <http://www.princetonappliedresearch.com>

Secara umum bode plot memberikan deskripsi secara jelas dari suatu sistem elektrokimia yang memiliki perilaku ketergantungan terhadap frekuensi, di mana nilai frekuensi muncul secara eksplisit.

Bode plot juga dapat memberikan informasi mengenai interaksi konduktivitas pada *grain* dan daerah batas *grain* terhadap perlakuan panas baik secara *self-heatin*, *sintering* maupun secara *annealing* yang optimum dari bahan yang diujikan. Mikrostruktur material terdiri dari *grain* dan *grain boundary* yang merupakan mekanisme konduksi dalam material tersebut. Bagian yang tidak stabil adalah *grain boundary* sehingga saat terjadi pemanasan bagian yang lebih sensitive untuk merespon adalah daerah *grain boundary*, disamping itu efek pemanasan juga berpengaruh pada daerah frekuensi rendah, sehingga disimpulkan bahwa pada daerah frekuensi ini spektrum impedansi merupakan hasil dari sumbangan konduksi listrik pada *grain boundary*[9].

2.5.3 Analisis Impedansi

Bahan polikristalin biasanya menunjukkan efek grain dan batas grain dengan konstanta waktu yang berbeda, mengarah ke dua sukseksi semicircle. Dalam hal ini kasus intercept kedua dari frekuensi tinggi setengah lingkaran sesuai dengan properti bulk, dan frekuensi rendah setengah lingkaran sesuai dengan properti batas grain. Sifat listrik sering diwakili dalam hal parameter seperti konstanta dielektrik kompleks ϵ , impedansi kompleks Z , modulus listrik M , admitansi dan tangen loss ($\tan \delta$) [10]. Sifat-sifat tersebut diatas masing-masing ditulis dengan persamaan:

$$M = M' - jM'' = j\omega C_0 Z \quad (2.10)$$

$$\epsilon = \epsilon' - j\epsilon'' = M^{-1} \quad (2.11)$$

$$Y = Z^{-1} = j\omega C_0 \epsilon \quad (2.12)$$

$$\tan \delta = \frac{\epsilon''}{\epsilon'} \quad (2.13)$$

Dimana C_0 adalah kapasitansi vacum dari pengukuran sel dan elektroda dengan celah udara didalam sampel, $C_0 = \epsilon_0/k$, dimana ϵ_0 adalah permitivitas ruang hampa ($\epsilon_0=8,85 \times 10^{-14}$) dan $k = l/a$ konstanta sel, dimana l adalah ketebalan dan a adalah luas bidang sampel [10]. R dan C adalah resistansi dan kapasitansi dalam hubungan seri dan $j = \sqrt{-1}$ adalah imajiner operator.

Variasi impedansi real dengan frekuensi pada temperatur berbeda dimana nilai impedansi real menurun sejalan dengan kenaikan temperatur menunjukkan peningkatan konduktivitas ac. Nilai impedansi real konvergen pada frekuensi tinggi pada semua temperature menunjukkan adanya polarisasi ruang muatan

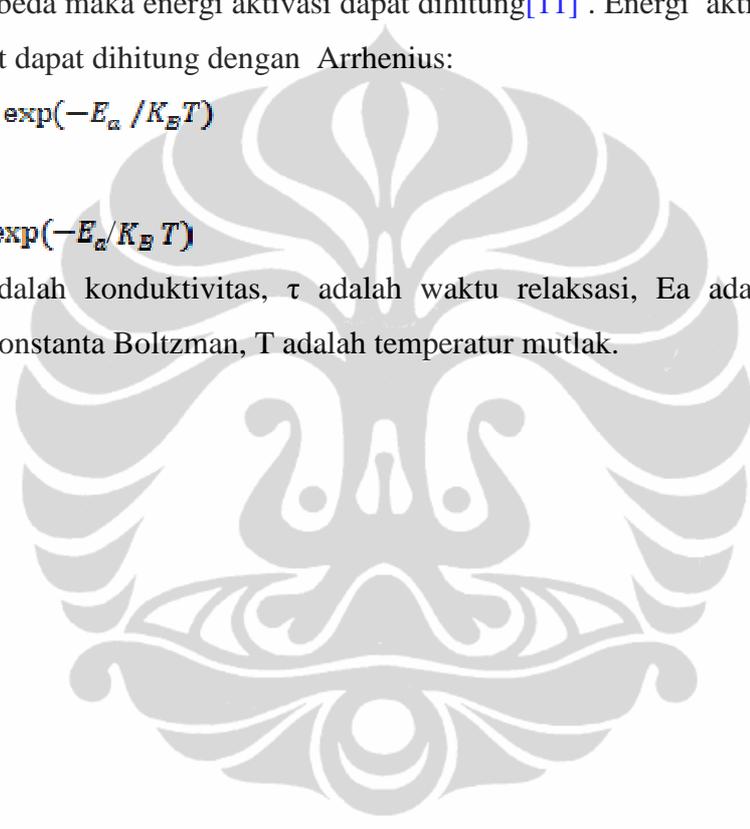
dalam sampel. Sedangkan variasi impedansi imajiner dengan frekuensi pada temperature berbeda dapat digunakan untuk mengevaluasi frekuensi relaksasi dari kontribusi resistif. Peak impedansi imajiner bergeser ke frekuensi yang lebih tinggi sejalan dengan kenaikan temperatur menandakan terjadi relaksasi dalam system. Proses relaksasi terjadi karena kehadiran electron/immobile spesies pada temperatur rendah dan defek pada temperatur tinggi [10].

Dari plot variasi konduktivitas dengan temperatur (Arrhenius Plot) pada frekuensi berbeda maka energi aktivasi dapat dihitung[11]. Energi aktivasi bahan barium titanat dapat dihitung dengan Arrhenius:

$$\sigma = \sigma_0 \exp(-E_a / K_B T) \quad (2.14)$$

$$\tau = \tau_0 \exp(-E_a / K_B T) \quad (2.15)$$

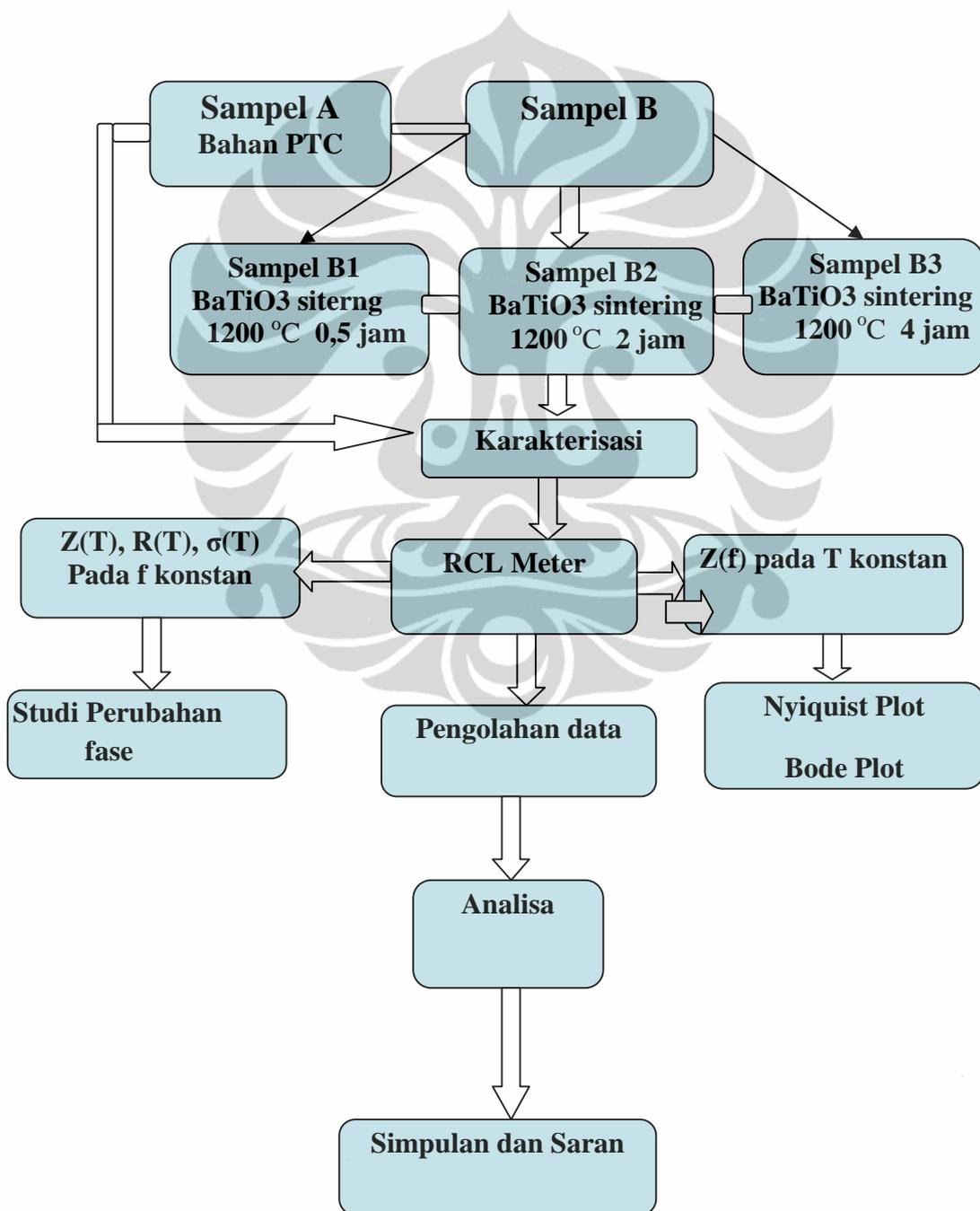
Dimana σ adalah konduktivitas, τ adalah waktu relaksasi, E_a adalah energi aktivasi, k_B konstanta Boltzman, T adalah temperatur mutlak.



BAB III
METODE PENELITIAN

3.1 Diagram Alur Penelitian

Penelitian ini dilakukan dengan langkah pada diagram alur sebagai berikut:



Sampel PTC yang berbentuk silinder tipis dan sampel BaTiO₃ yang berbentuk pellet persegi panjang dengan ukuran seperti terlihat pada tabel-3.1. telah disediakan pembimbing dari peneliti sebelumnya dan telah disintering pada temperatur 1200 °C selama 0,5 jam 2 jam, dan 4 jam , kemudian kedua permukaan sampel tersebut dihaluskan dengan ampelas selanjutnya, direkatkan dengan lem perak setelah itu dipanaskan sampai temperatur 100 °C , kemudian didinginkan sampai temperatur kamar, selanjutnya sampel dikarakterisasi dengan metode RCL-meter.

3.2 Alat dan Bahan

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini yaitu sampel BaTiO₃ 98% berbentuk pellet persegi panjang dan material PTC berbentuk silinder tipis yang belum diketahui bahannya. Asam Fluorida, Alkohol 90%, lem perak (Leicht, n-Butylacetat) , dan amplas Eagle Brand CC400Cw.

Alat-alat yang dipergunakan dalam penelitian ini adalah RCL meter tipe Fluke PM 6306 yang terintegrasi dengan satu set komputer merek Lenovo, mikrokontroler, pemanas vakum rakitan, pompa vakum merek TRIVAC, dan jangka sorong..

3.3 Pengukuran Impedansi dengan Alat FLUKE PM 6306



Gambar 3.2 Pengukuran RCL-meter dengan menggunakan kontak mekanik.

Sampel barium titanat berbentuk persegi panjang dengan ukuran seperti terlihat pada tabel berikut:

Tabel-3.1. ukuran sampel yang digunakan

Sampel	Panjang (cm)	Lebar (cm)	Tebal (cm)	Luas (cm ²)
A			0,3	0,385
B1	0,63	0,57	0,25	0,395
B2	0,60	0,57	0,28	0,342
B3	0,62	0,50	0,26	0,310

Sampel-sampel tersebut permukaannya dihaluskan dengan amplas Eagle brand CC400Cw, setelah halus direkatkan dengan lem perak (Leicht, n-Butylacetat). setelah itu dipanaskan sampai temperatur 100C, kemudian didinginkan sampai temperatur kamar, lalu sampel siap diukur nilai impedansinya dengan menggunakan RLC meter Fluke PM 6306. Penggunaan *interface* dengan lem perak akan menghasilkan data yang cukup mewakili. Pada penggunaan lem perak proses pencampuran resin dan hardener yang tidak sesuai, dan juga proses pembakaran yang tidak optimum maka akan menghasilkan *interface* yang kurang baik. Pada penelitian ini pembakaran lem perak menggunakan *furnance* memmert dengan suhu 100°C selama 1 jam, untuk keempat sampel. Pada pengujian sampel tersebut penulis menggunakan kontak mekanik seperti gambar 3.2.

Setiap penggunaan alat RLC meter maka hal yang pertama kali dilakukan adalah mengkalibrasi alat dengan cara kedua kontak dihubungkan terus atur untuk pengukuran AC dengan voltase ac 1,5 VAC, lalu atur frekuensi antara rentang 1 kHz sampai 10 kHz, lalu menekan fixture set dan atur sehingga *display* menunjukkan 1. Langkah berikutnya tekan *Zero trim* dan atur *display* sehingga menunjukkan angka 1, akan muncul di layar tampilan “*Busy SCT*”, tidak lama kemudian akan muncul tampilan dilayar “*Busy OCT*” maksudnya *open circuit*, dan supaya kedua kontak dilepas lalu tekan kembali *Zero Trim* maka akan muncul dilayar tulisan “*PASS*”, berarti kalibrasi telah selesai dilakukan.

Untuk menghindari terjadinya oksida selama pengambilan data, sampel ditempatkan dalam silinder vacum, setengah jam sebelum pengambilan data

pompa vacum telah dihidupkan, agar selama pengambilan data sampel benar-benar bebas dari oksida.

Data yang diambil dalam pengukuran impedansi ini adalah data perubahan nilai kapasitansi (C), Resistansi (R), dan impedansi (Z), terhadap perubahan temperatur (T) pada frekuensi (f) konstan. Nilai frekuensi yang digunakan pada penelitian ini adalah 100 Hz, 1 kHz, 10 kHz, 100 kHz, dan 1000 kHz.

Data yang diambil berikutnya yaitu data perubahan nilai kapasitansi (C), Resistansi (R), impedansi (Z), dan sudut fase (Φ) terhadap perubahan frekuensi (f) pada temperatur (T) konstan. Temperatur yang digunakan pada penelitian ini masing-masing adalah diatas temperatur Curie, yakni 325 °C , 350 °C , 375 °C, dan 425 °C .

Data yang diperoleh dalam penelitian ini diolah dengan menggunakan origin 6 untuk mendapatkan tampilan beberapa kurva tunggal dan kurva gabungan. Untuk mencari rangkaian ekivalennya menggunakan software ZsimpWin 3.10, digunakan model rangkaian ekivalen yang didapat pada sampel, mencoba menginterpretasikan secara fisis fenomena yang terjadi pada sampel yang diujikan.

3.4 Sistematika Penulisan

Sistematika penulisan tesis ini terdiri dari bab-bab yang memuat beberapa sub-bab. Untuk memudahkan pembacaan dan pemahaman maka penulisan tesis ini terdiri atas 5 bab dan secara garis besar dapat diuraikan sebagai berikut

BAB I PENDAHULUAN

Pendahuluan berisi latar belakang, permasalahan, batasan masalah, dan tujuan penelitian.

BAB II STUDI LITERATUR

Teori dasar yang berisi landasan teori sebagai hasil dari studi literatur yang berhubungan dengan permasalahan yang akan dijelaskan.

BAB III METODE PENELITIAN

Pada bab ini akan menjelaskan tentang penyempurnaan bahan sampel dan pengujian dalam berapa tahap langkah pengujian sampel.

BAB IV HASIL

Bab ini menjelaskan tentang hasil pengukuran impedansi spektroskopi, dari pengujian bahan yang diinterpretasikan dalam grafik, lalu data tersebut diolah menggunakan software Origin-8. Kemudian dilakukan pemodelan rangkaian ekuivalen dengan menggunakan software Zsimpwin terhadap sampel yang diujikan. Hasil pengujian tersebut kemudian di analisa.

BAB V PEMBAHASAN

Hasil olahan data dari program Origin-8 dan ZsimWin yang berupatampilan kurva kemudian dianalisis dan disesuaikan dengan referensi untuk mengambil suatu kesimpulan dari data eksperimen yang diperoleh.

BAB VI KESIMPULAN DAN SARAN

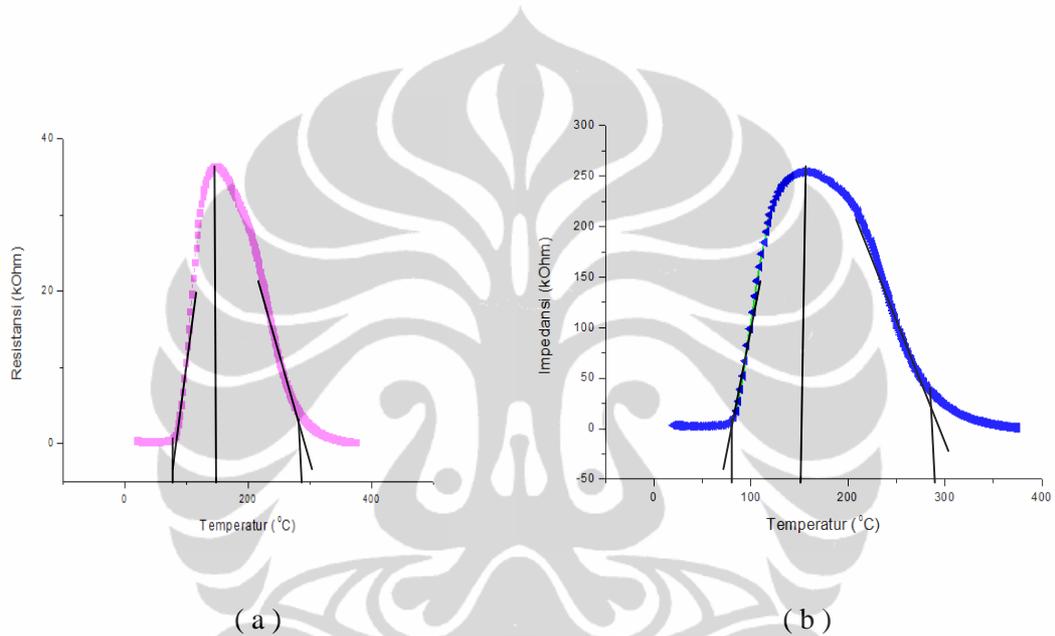
Bab penutup ini berisi kesimpulan penulis yang diperoleh berdasarkan pengujian sistem dan pengambilan data selama penelitian berlangsung, selain itu penutup juga berisikan tentang saran-saran dari penulis untuk mendapatkan hasil yang lebih baik dalam pengembangan lebih lanjut dari penelitian ini baik dari perangkat keras (hardware) maupun perangkat lunak (software).

BAB IV

HASIL

4.1. Spektroskopi Impedansi Pada Bahan PTC

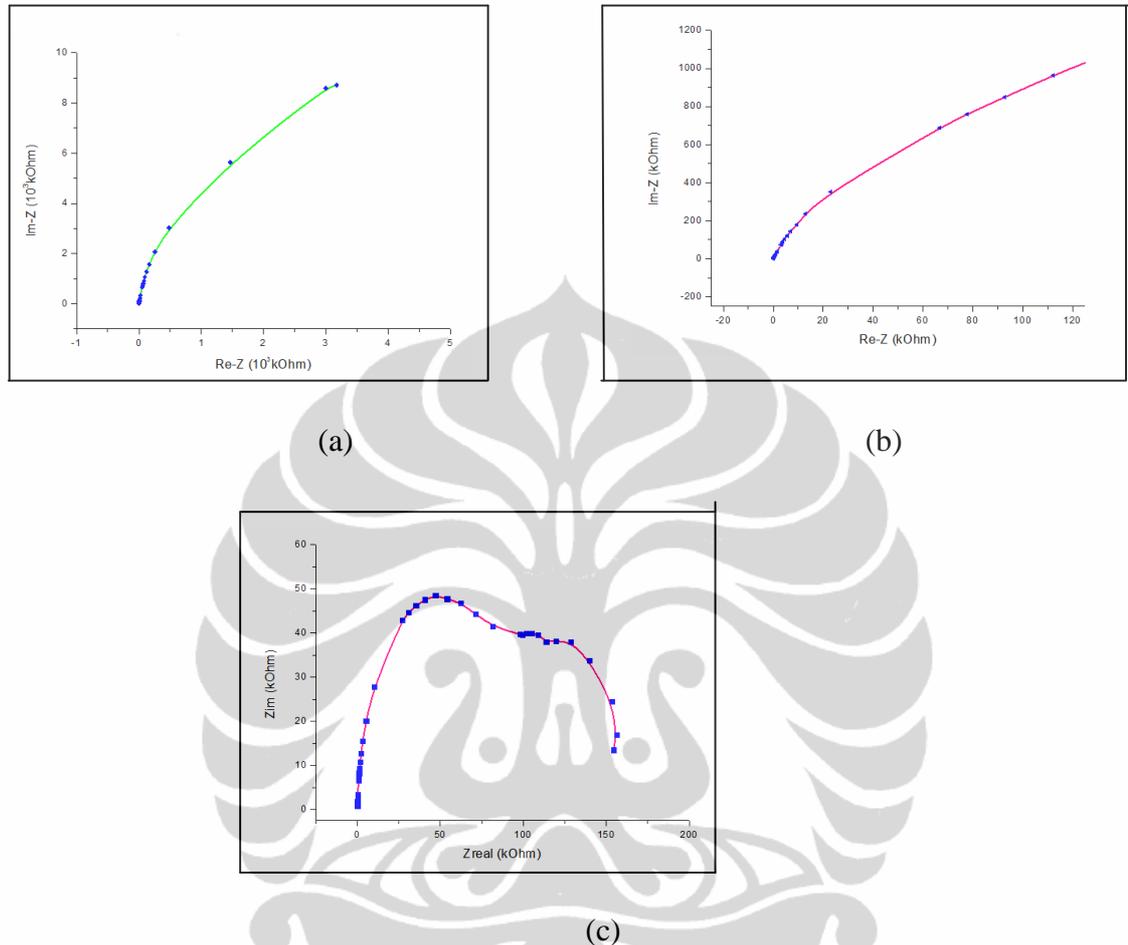
Gambar-4.1 adalah grafik fungsi resistansi terhadap temperature (a) dan grafik fungsi impedansi terhadap temperature (b) dari bahan PTC.



Gambar 4.1 Grafik fungsi Resistansi terhadap temperatur (a) dan grafik fungsi impedansi terhadap temperatur (b), Kedua kurva naik naik secara drastis sampai mencapai 3 orde pada temperatur 150 °C .

Kedua grafik pada gambar-4.1. memberikan tampilan kurva yang mirip. Dari tampilan kedua kurva tersebut dapat dilihat bahwa kurva mulai naik sekitar temperatur 90 °C , dan berakhir pada temperatur 290 °C . Kedua kurva naik naik secara drastis sampai mencapai 3 orde pada temperatur 150 °C . Diatas temperatur 150 °C kurva mengalami penurunan.

Nyquist plot



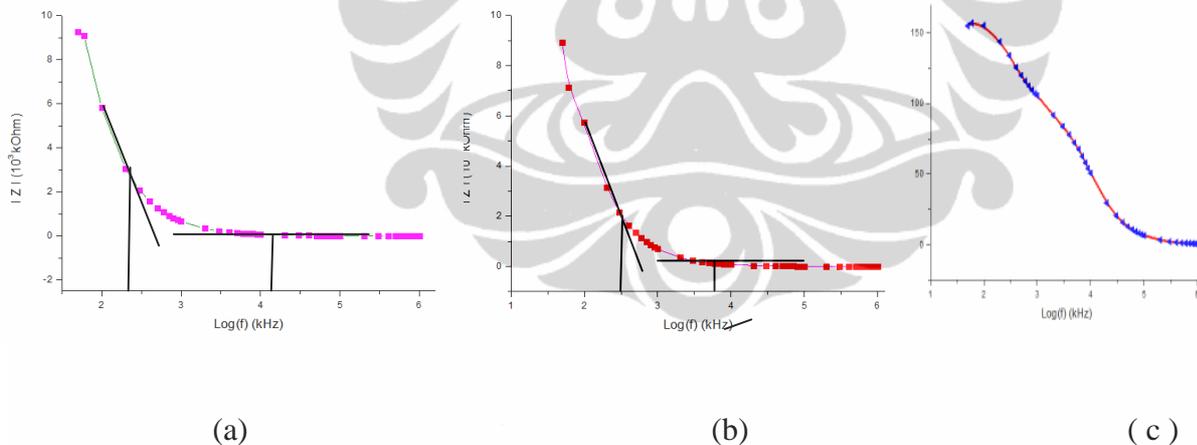
Gambar-4.2. Nyquist plot bahan PTC pada (a) temperatur kamar (b) temperatur 100 °C (c) temperatur 400 °C .

Pada gambar-4.2.(a) memperlihatkan plot Nyquist bahan PTC pada temperatur kamar. Dari plot Nyquist pada gambar ini terlihat bahwa pada frekuensi tinggi kurva menaik secara linier hingga pada frekuensi tertentu, kemudian kurva impedansi naik dengan bentuk kurva melengkung keatas, tampilan kurva bahan PTC pada temperatur kamar belum memunculkan kurva impedansi setengah lingkaran.

Pada gambar-4.2. (b) kurva masih memiliki kecenderungan mirip dengan kurva pada gambar-4.2. (a). Dari frekuensi tinggi kurva naik dengan bentuk kurva melengkung keatas, kedua kurva belum membentuk setengah lingkaran (semicircle).

Sedangkan pada gambar-4.2. (c) memberikan tampilan plot Nyquist setengah lingkaran, jika diperhatikan ada dua bentuk kurva semicircle yang ditampilkan, yakni kurva setengah lingkaran yang besar dan kurva setengah lingkaran yang kecil. Kurva setengah lingkaran yang besar berada pada daerah berfrekuensi tinggi mengindikasikan sifat kelistrikan dari material bulk, sedangkan kurva setengah lingkaran yang kecil berada pada daerah berfrekuensi rendah mengindikasikan sifat kelistrikan dari grain boundary.

Bode plot



Gambar-4.3. Bode plot bahan PTC pada (a) temperatur kamar (b) temperatur 100°C (c) temperatur 400°C .

Pada gambar-4.3. memperlihatkan bode plot bahan PTC pada temperatur berbeda yakni temperatur kamar (gambar a), temperatur 100 °C gambar (b), dan temperatur 400 °C gambar (c).

Pada gambar-4.3 (a) terlihat bahwa kurva menurun agak melengkung kebawah sampai frekuensi tertentu sejalan dengan kenaikan frekuensi, kurva mulai membelok pada frekuensi 400 Hz, dan berakhir pada frekuensi 5 kHz. Diatas frekuensi kritis 5 kHz kurva mendatar sampai frekuensi 1 MHz.

Hal ini menunjukkan bahwa nilai impedansi menurun sejalan kenaikan nilai frekuensi sampai pada frekuensi 400 Hz, kemudian dari frekuensi 400 Hz nilai impedansi sudah mulai berangsur konstan dan mencapai konstan mulai dari frekuensi 5 kHz sampai frekuensi 1 MHz.

Pada gambar-4.3.(b) tampak bahwa tampilan kuva mirip dengan tampilan pada kurva pada gambar (a), tetapi pada kurva (b) ini terlihat kurva mulai membelok pada frekuensi 500 Hz dan berakhir pada frekuensi 9 kHz. Dari model grafik tersebut dapat diartikan bahwa nilai impedansi mengalami penurunan sampai frekuensi 500 Hz, dari frekuensi 500 Hz ini nilai impedansi mulai berangsur konstan. Nilai impedansi konstan dicapai pada frekuensi 9 kHz sampai pada frekuensi 1 MHz.

Dari grafik 4.3.a dan 4.3. b dapat diketahui bahwa pada daerah berfrekuensi tinggi nilai impedansi cenderung konstan, sedangkan pada daerah berfrekuensi rendah nilai impedansi menurun.

Sedangkan pada gambar-4.3.c terlihat bahwa terjadi penurunan grafik tetapi arah lengkungannya keatas sampai pada frekuensi 50 kHz. Dari frekuensi 50 kHz tersebut kurva mulai membelok dan berakhir pada frekuensi 800 kHz, kemudian mendatar sampai frekuensi 1 MHz. Dari grafik tersebut dapat diketahui bahwa didaerah frekuensi rendah nilai impedansi menurun secara linier sejalan kenaikan frekuensi sampai pada frekuensi 50 kHz. Dari frekuensi 50 kHz nilai

impedansi sudah mulai konstan, dan mencapai konstan mulai dari frekuensi 800 kHz sampai 1 MHz.

4.2. Spektroskopi Impedansi Pada BaTiO₃

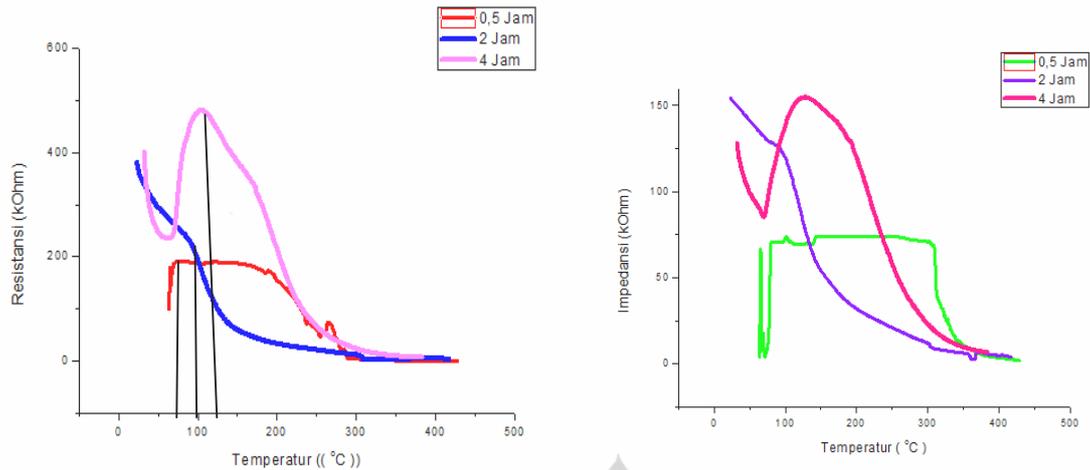
Dalam tabel-4.1 diperlihatkan kode sampel yang digunakan dalam penulisan tesis ini.

Tabel-4.1 Kode sampel berdasarkan proses sintering

Kode sampel	Keterangan
A	Sampel bahab PTC
B1	BaTiO ₃ yang disinter pada temperatur 1200 °C selama 0,5 jam
B2	BaTiO ₃ yang disinter pada temperatur 1200 °C selama 2 jam
B3	BaTiO ₃ yang disinter pada temperatur 1200 °C selama 0,5 jam

A. Grafik fungsi resistansi dan impedansi terhadap temperatur

Pada grafik fungsi resistansi dan impedansi terhadap temperatur ini terdiri dari grafik gabungan fungsi resistansi dan impedansi terhadap temperature untuk sampel B1, B2, dan B3 seperti terlihat pada gambar-4.4 berikut ini.



Gambar 4.4 Grafik gabungan fungsi resistansi terhadap temperatur (a), dan grafik gabungan fungsi impedansi terhadap temperature (b) dari sampel B1, B2, dan B3.

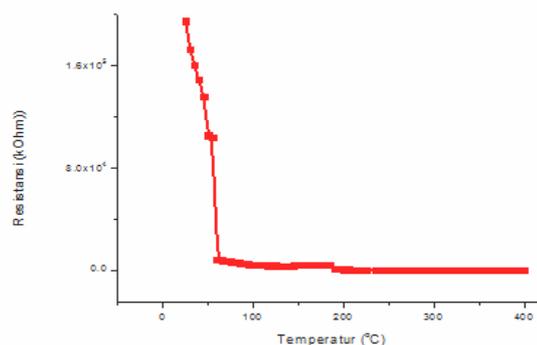
Dari grafik 4.4.a. terlihat bahwa untuk sampel B1 peak kurva belum begitu jelas hal ini disebabkan karena serbuk sampel baru mulai membentuk grain dan serbuk BaTiO₃ masih banyak yang belum membentuk grain. Dari grafik juga terlihat bahwa nilai resistansi naik secara drastis pada temperatur 80°C untuk sampel B1, 100°C untuk sampel B2, dan 125°C untuk sampel B3.

Untuk kurva pada sampel B2 peak kurva mulai agak jelas karena sampel sudah membentuk grain, sedangkan kurva pada sampel B3 peak kurva sudah jelas karena grain pada sampel B3 sudah mengalami pertumbuhan jadi ukuran grainnya lebih besar dari sampel B2, karena waktu sintering lebih lama

Dari tampilan kedua grafik diatas terlihat bahwa nilai resistansi dan nilai impedansi yang tinggi berada pada temperatur kamar sampai temperatur 200 °C diatas temperatur 200 °C nilai impedansinya sudah menurun.

Untuk pengukuran resistansi dengan tegangan DC dapat dilihat seperti pada gambar-4.5 dibawah ini:

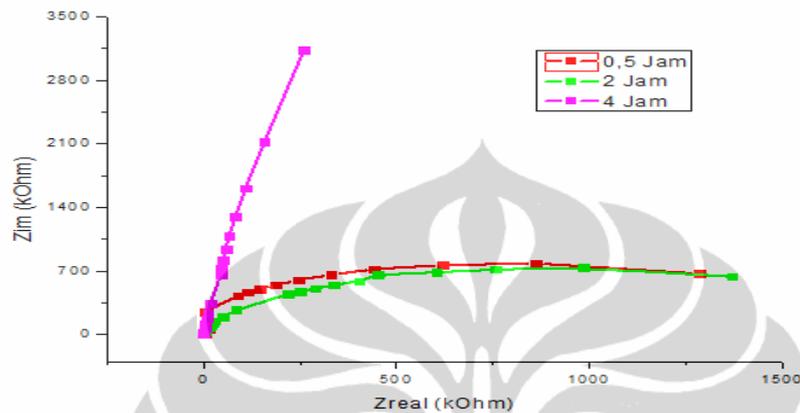
Gambar-4.5 Grafik fungsi Resistansi Terhadap temperatur pada tegangan DC



4.2.1 Nyquist Plot Pada Pemanasan Konstan

Pada temperatur kamar

Hasil Nyquist plot gabungan untuk sampel B1, B2, dan B3 pada temperatur kamar diperlihatkan pada gambar-4.6 dibawah ini:

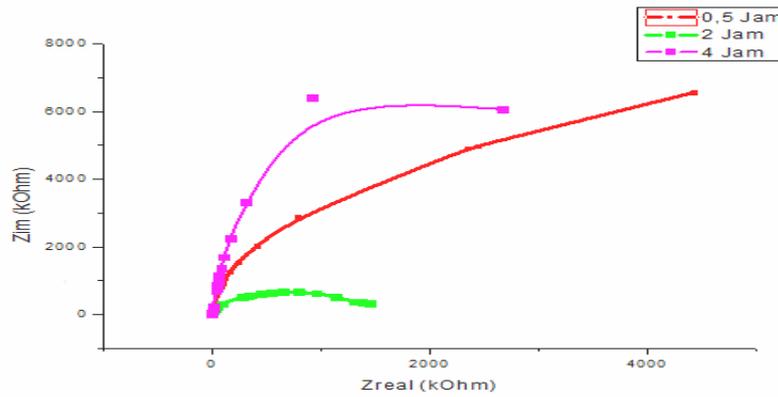


Gambar-4.6. Nyquist sampel B1, B2, dan B3 pada temperatur kamar, terlihat bahwa sampel B3 menduduki spektrum impedansi paling atas.

Dari gambar-4.6 spektrum impedansi sampel B pada temperatur kamar, terlihat bahwa sampel B3 kurva berwarna ungu menduduki spectrum impedansi paling atas, dan spectrum impedansi sampel B2 berwarna hijau menduduki posisi paling bawah.

Pada temperatur 100 °C

Hasil Nyquist plot gabungan untuk sampel B1, B2, dan B3 pada temperatur 100 °C diperlihatkan pada gambar-4.7:

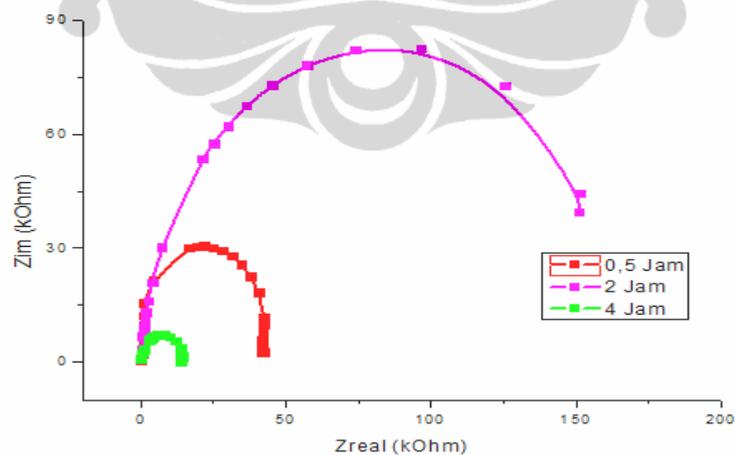


Gambar-4.7. Nyquist sampel B1, B2, dan B3 pada temperatur 100 °C, terlihat bahwa sampel B3 menduduki spectrum impedansi paling atas.

Dari gambar-4.7 spektrum impedansi sampel B pada temperatur 100 °C, terlihat bahwa sampel B3 kurva berwarna ungu menduduki spectrum impedansi paling atas, dan spectrum impedansi sampel B2 berwarna hijau menduduki posisi paling bawah.

Pada temperatur 400 °C

Hasil Nyquist plot gabungan untuk sampel B1, B2, dan B3 pada temperatur 400 °C diperlihatkan pada gambar-4.8 dibawah ini:

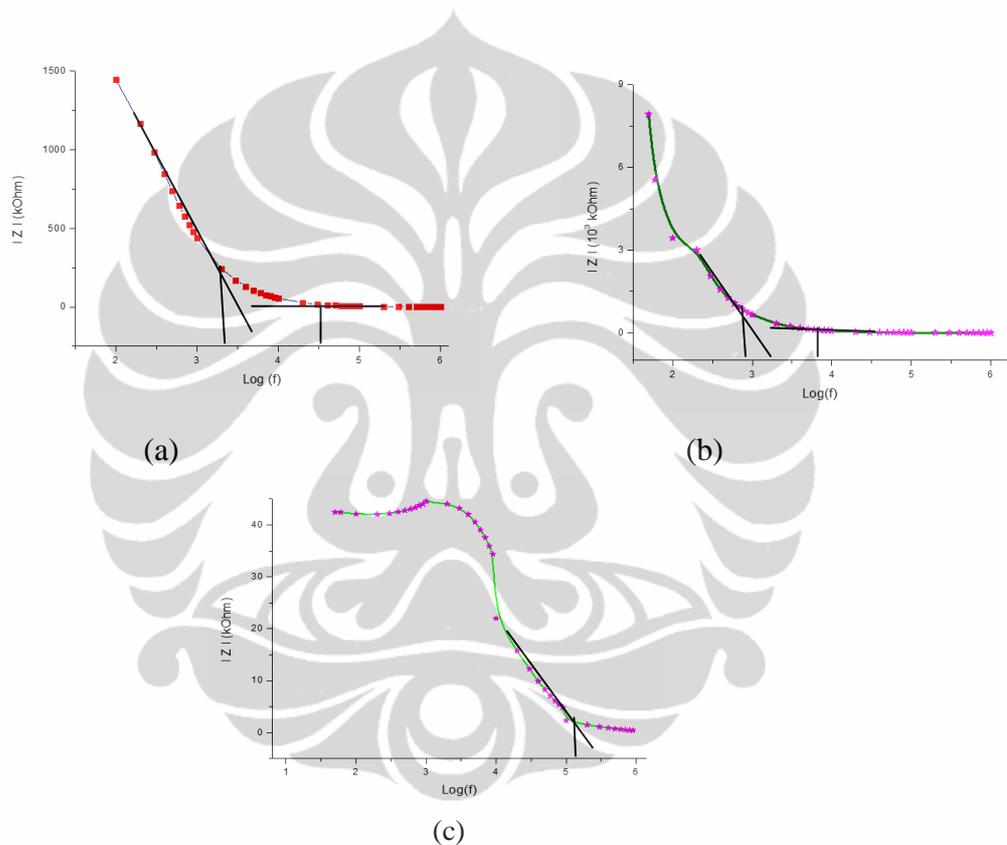


Gambar-4.8. Nyquist sampel B1, B2, dan B3 pada temperatur 400 °C, terlihat bahwa sampel B2 menduduki spektrum impedansi paling atas.

Dari gambar-4.8 spektrum impedansi sampel B pada temperatur 400 °C, terlihat bahwa sampel B2 kurva berwarna ungu menduduki spectrum impedansi paling atas, dan spektrum impedansi sampel B3 berwarna hijau menduduki posisi paling bawah.

4.2.2 Bode plot

Sampel B1



Gambar-4.9. Bode plot sampel B1 pada (a) temperatur kamar (b) temperatur 100 °C (c) temperatur 400 °C

Pada gambar-4.9. memperlihatkan bode plot sampel B1 pada temperatur berbeda yakni temperatur kamar gambar (a), temperatur 100 °C gambar (b), dan temperatur 400 °C gambar (c).

Pada gambar-4.9. (a) terlihat bahwa kurva menurun secara linier sampai frekuensi tertentu sejalan dengan kenaikan frekuensi, kurva mulai membelok pada frekuensi 2,5 kHz, dan berakhir pada frekuensi 50 kHz. Diatas frekuensi kritis 50 kHz kurva mendatar sampai frekuensi 1 MHz.

Hal ini menunjukkan bahwa nilai impedansi real menurun secara linier sejalan kenaikan nilai frekuensi sampai frekuensi pada frekuensi 2,5 kHz, kemudian dari frekuensi kritis 2,5 kHz nilai impedansi real sudah mulai berangsur konstan dan mencapai konstan mulai dari frekuensi 50 kHz sampai frekuensi 1 MHz.

Pada gambar-4.9.(b) tampak bahwa tampilan kurva mirip dengan tampilan pada kurva pada gambar (a), tetapi pada kurva (b) ini terlihat kurva mulai membelok pada frekuensi 900 Hz dan berakhir pada frekuensi 8 kHz. Dari model grafik tersebut dapat diartikan bahwa nilai impedansi mengalami penurunan secara linier sampai frekuensi 900 Hz sampai frekuensi kritis 8 kHz, dari frekuensi 900 Hz ini nilai impedansi mulai berangsur konstan sampai frekuensi kritis 8 kHz. Nilai impedansi konstan dicapai pada frekuensi 8 kHz sampai frekuensi 1 MHz.

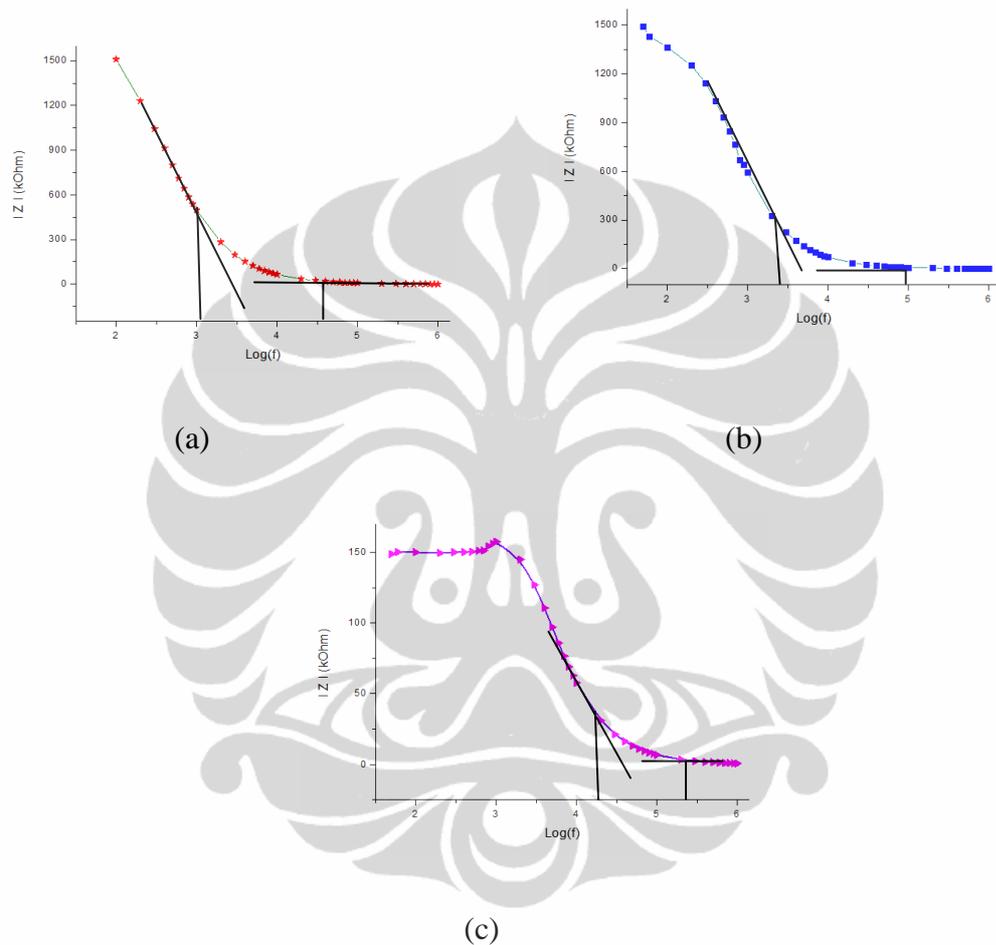
Dari grafik 4.9.a dan 4.9. b dapat diketahui bahwa pada daerah berfrekuensi tinggi nilai impedansi cenderung konstan, sedangkan pada daerah berfrekuensi rendah nilai impedansi menurun dengan kurva melengkung ke bawah.

Sedangkan pada gambar-4.9.c terlihat bahwa terjadi sedikit kenaikan kurva dari frekuensi 50 Hz sampai frekuensi 1kHz. Kemudian dari frekuensi 1 kHz kurva mengalami penurunan sejalan dengan kenaikan frekuensi dan berakhir pada frekuensi 200 kHz. Diatas frekuensi kritis 200 kHz kurva nampak mendatar sampai frekuensi 1 MHz.

Dari tampilan kurva tersebut dapat diketahui bahwa pada frekuensi 50 Hz sampai frekuensi 1 kHz terjadi sedikit kenaikan nilai impedansi total, kemudian

menurun sampai frekuensi kritis 200 kHz sejalan kenaikan frekuensi. Diatas frekuensi kritis nilai impedansi keramik menjadi konstan.

Sampel B2



Gambar-4.10 .Bode plot sampel B2 pada (a) temperatur kamar (b) temperatur 100 °C (c) temperatur 400 °C.

Pada gambar-4.10. memperlihatkan bode plot sampel B2 pada temperatur berbeda yakni temperatur kamar (gambar a), temperatur 100 °C gambar (b), dan temperatur 400 °C gambar (c).

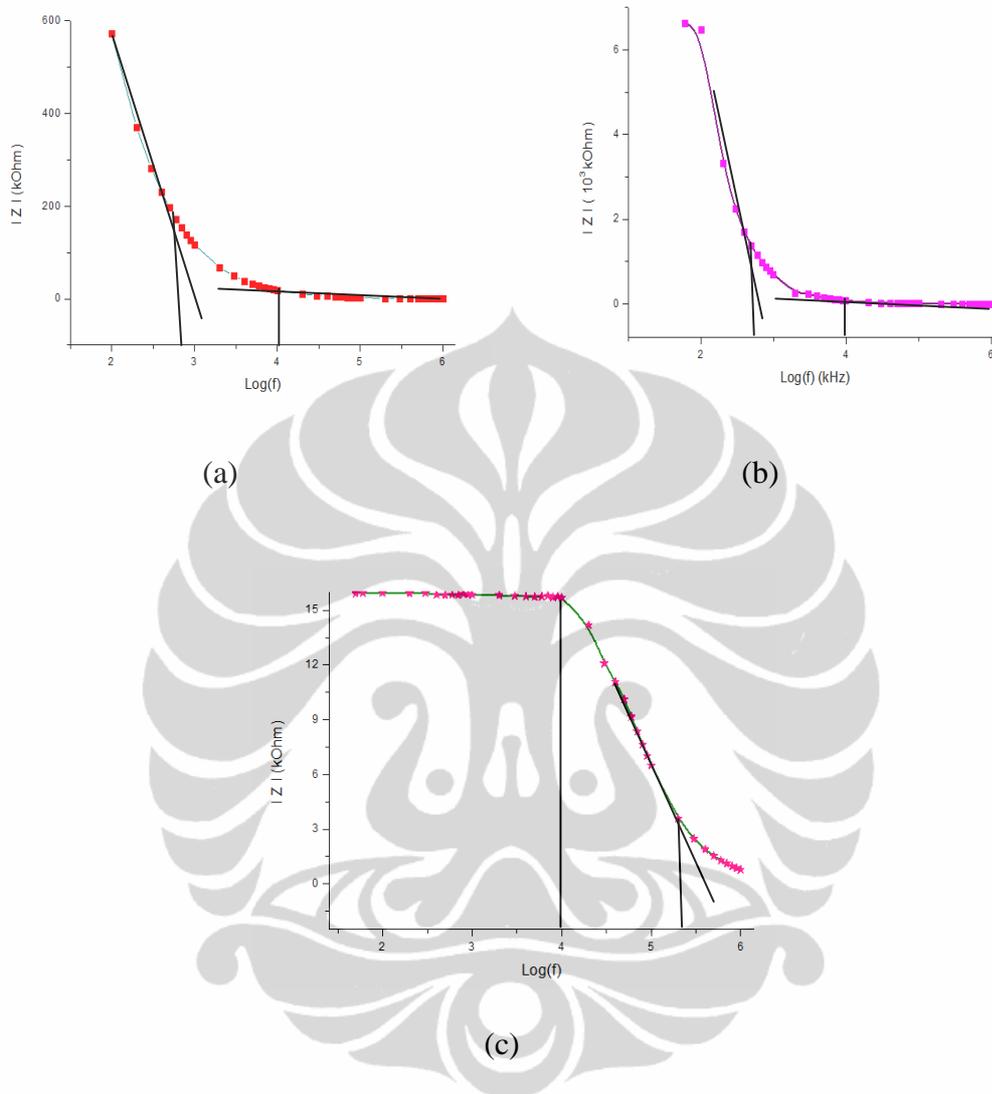
Pada gambar-4.10. (a) terlihat bahwa kurva menurun secara linier dengan kurva agak melengkung kebawah, sampai frekuensi tertentu sejalan dengan kenaikan frekuensi sampai frekuensi 4 kHz dari sini kurva mulai membelok dan berakhir pada frekuensi kritis 55 kHz. Diatas frekuensi kritis 55 kHz kurva mendatar sampai frekuensi 1 MHz.

Hal ini menunjukkan bahwa nilai impedansi real menurun sejalan kenaikan nilai frekuensi sampai frekuensi 4 kHz. Dari frekuensi 4 kHz ini nilai impedansi sudah mulai konstan, dan mencapai konstan mulai pada frekuensi kritis 55 kHz sampai frekuensi 1 MHz.

Pada gambar-4.10.(b) tampak bahwa tampilan kurva menurun sejalan kenaikan frekuensi hampir mirip dengan kurva pada gambar (a) sampai frekuensi tertentu, selanjutnya kurva menurun dengan kurva agak melengkung kebawah sejalan kenaikan frekuensi, dan mulai membelok pada frekuensi 4,5 kHz dan berakhir pada frekuensi 100 kHz. Dari model kurva tersebut dapat diartikan bahwa nilai impedansi awalnya mengalami penurunan yang tidak begitu pesat sampai frekuensi 500 Hz, setelah frekuensi 500 Hz nilai impedansi menurun dengan pesat sampai frekuensi 4,5 kHz, dari frekuensi 4,5 kHz ini nilai impedansi mulai berangsur konstan. Nilai impedansi konstan dicapai pada frekuensi 100 kHz sampa frekuensi 1 MHz.

Sedangkan pada kurva-4.10.c awalnya nilai impedansi konstan sampai frekuensi 1 kHz, setelah itu nilai impedansi mengalami penurunan sampai frekuensi 2,5 kHz, dari frekuensi ini nilai impedansi mulai berangsur konstan sampai frekuensi 1 MHz.

Sampel B3



Gambar-4.11. Bode plot dari sampel B3 pada (a) temperatur kamar (b) temperatur 100 °C (c) temperatur 400 °C.

Pada gambar-4.11.a. terlihat bahwa kurva menurun agak melengkung kebawah sampai frekuensi tertentu sejalan dengan kenaikan frekuensi sampai frekuensi 900 Hz dari sini kurva mulai membelok dan berakhir pada frekuensi

kritis 10 kHz. Diatas frekuensi kritis 10 kHz kurva mendatar sampai frekuensi 1 MHz.

Hal ini menunjukkan bahwa nilai impedansi real menurun sejalan kenaikan nilai frekuensi sampai frekuensi 900 Hz. Dari frekuensi 900 Hz ini nilai impedansi sudah mulai konstan, dan mencapai konstan mulai pada frekuensi kritis 10 kHz sampai frekuensi 1 MHz.

Begitu pula pada gambar-4.11.b. terlihat bahwa kurva menurun secara linier agak melengkung kebawah sampai frekuensi tertentu sejalan dengan kenaikan frekuensi sampai frekuensi 800 Hz dari sini kurva mulai membelok dan berakhir pada frekuensi kritis 100 kHz. Diatas frekuensi kritis 100 kHz kurva mendatar sampai frekuensi 1 MHz.

Hal ini menunjukkan bahwa nilai impedansi real menurun secara sejalan kenaikan nilai frekuensi sampai frekuensi 800 Hz. Dari frekuensi 800 Hz ini nilai impedansi sudah mulai konstan, dan mencapai konstan mulai pada frekuensi kritis 10 kHz sampai frekuensi 1 MHz, sama dengan pada tampilan kurva 4.11.a tetapi disini nilai skala impedansi dikalikan dengan 10^3 kHz.

Tetapi pada grafik 4.11.c kurva mendatar dari frekuensi 50 Hz sampai frekuensi 10 kHz, kemudian kurva menurun dengan model kurva agak melengkung keatas sampai frekuensi 450 kHz. Dari tampilan kurva ini dapat diketahui bahwa dari frekuensi 50 Hz sampai 10 kHz nilai impedansi konstan, kemudian turun dan berakhir pada frekuensi 450 kHz, setelah itu nilai impedansi konstan sampai frekuensi 1 MHz.

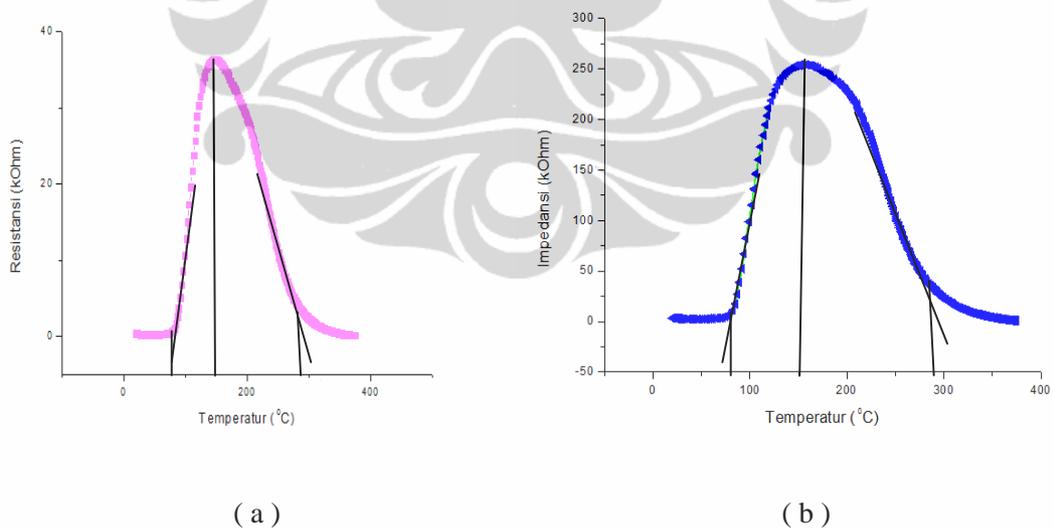
BAB V

PEMBAHASAN

5.1 Perubahan Fase

5.1.1 Sampel A

Dari tampilan kedua kurva pada gambar-4.1 dapat dilihat bahwa kurva mulai naik sekitar temperatur 90 °C, dan berakhir pada temperatur 290 °C. Kedua kurva naik secara drastis sampai mencapai 3 orde pada temperatur 150 °C. Diatas temperatur 150 °C kurva mengalami penurunan. Hal ini menunjukkan bahwa nilai hambatan mulai mengalami kenaikan pada temperatur 90 °C, nilai hambatan naik secara drastis sampai 3 orde dan mencapai nilai maksimum pada temperatur 150 °C, fakta ini menunjukkan adanya efek PTC [7], kenaikan nilai resistivitas berakhir pada temperatur 290 °C.



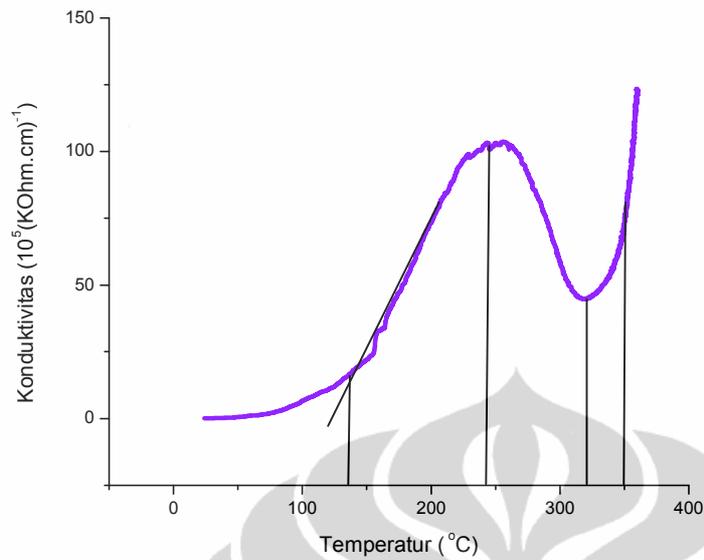
Gambar 5.1 Grafik fungsi Reistansi terhadap temperatur (a) dan grafik fungsi impedansi terhadap temperatur (b), Kedua kurva naik naik secara drastis sampai mencapai 3 orde pada temperatur 150 °C yang menunjukkan efek PTC pada material ini.

Dari tampilan kurva tersebut memberikan informasi bahwa perubahan fase dari ferroelektrik ke paraelektrik keramik ini dimulai pada temperatur $90\text{ }^{\circ}\text{C}$, dan selesai mengalami perubahan fase pada temperatur $290\text{ }^{\circ}\text{C}$, jadi diatas temperatur $290\text{ }^{\circ}\text{C}$ keramik ini sudah berubah fasenya menjadi paraelektrik.

5.1.2 Sampel B1

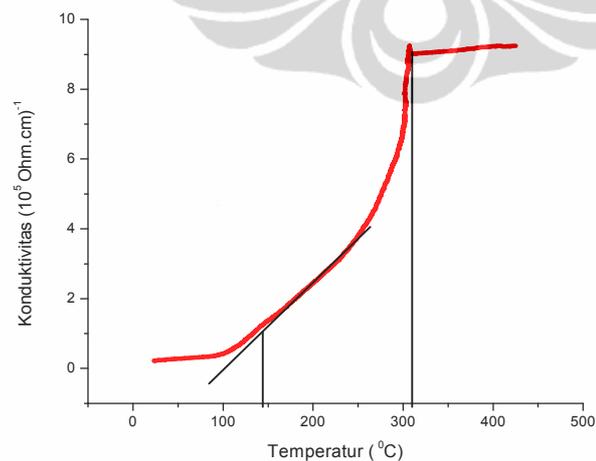
Gambar-5.2. adalah grafik fungsi konduktivitas terhadap temperatur dari sampel B1. Dari kurva tersebut terlihat bahwa nilai konduktivitas mulai naik secara drastis dari temperature $130\text{ }^{\circ}\text{C}$ sampai temperatur $240\text{ }^{\circ}\text{C}$ pada temperatur ini nilai konduktivitas naik mencapai 3 orde. Hal ini membuktikan adanya efek PTC pada sampel ini [7]. nilai konduktivitasnya turun hingga temperature $320\text{ }^{\circ}\text{C}$, kemudian naik lagi dan mencapai nilai maksimum pada temperature $350\text{ }^{\circ}\text{C}$, hal ini diduga karena pada sampel B1 ini masih banyak serbuk BaTiO_3 yang belum membentuk grain.

Dari kurva ini juga memberikan informasi bahwa keramik ini mulai mengalami perubahan fase dari ferroelektrik keparaelektrik mulai dari temperature $130\text{ }^{\circ}\text{C}$ dan selesai pada temperature $350\text{ }^{\circ}\text{C}$. Diatas temperatur $350\text{ }^{\circ}\text{C}$ keramik ini sudah berubah fase menjadi paraelektrik.



Gambar-5.2. Grafik fungsi konduktivitas terhadap temperatur dari sampel B1, temperatur transisi sampel B1 ini sekitar 130°C, sampel ini mengalami perubahan fase dari temperatur transisi 130 °C dan selesai mengalami perubahan fase pada temperatur 350 °C.

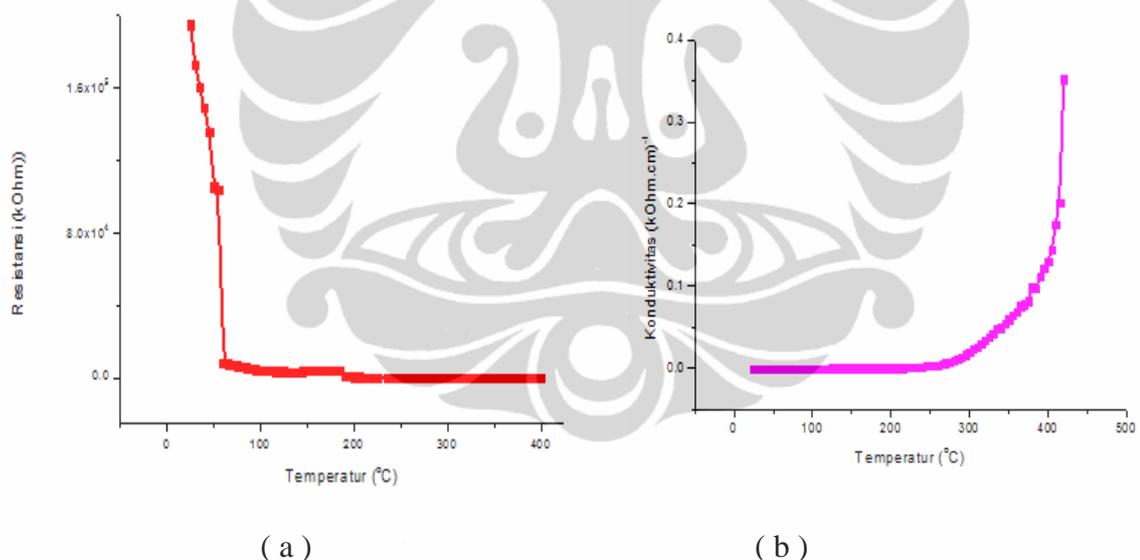
5.1.3 Sampel B2



Gambar-5.3. Grafik fungsi konduktivitas terhadap temperatur dari sampel B2, temperatur transisi sekitar 140 °C, sampel ini mengalami perubahan fase dari temperatur transisi 140 °C dan selesai mengalami perubahan fase pada temperatur 310 °C.

Gambar-5.3. Grafik fungsi konduktivitas terhadap temperature dari sampel B2, terlihat bahwa dari temperatur 140 °C kurva naik secara drastic mencapai 2 orde sampai pada temperature 310 °C diatas temperature 310 terlihat kurva sudah mendatar, fenomena ini menunjukkan bahwa dari temperatur 140 °C nilai konduktivitas keramik ini mengalami kenaikan secara drastis sampai temperatur 310 °C. kenaikan nilai konduktivitas pada temperature 310 °C ini sampai mencapai 2 orde yang menunjukkan efek PTC dari material ini [7] . Dari sini diketahui pula bahwa perubahan fase dari keramik ini dari ferroelektrik ke paraelektrik mulai pada temperatur 140 °C, dan selesai pada temperatur 310 °C, artinya diatas temperatur 310 °C keramik ini sudah berubah fase dari ferroelektrik menjadi paraelektrik.

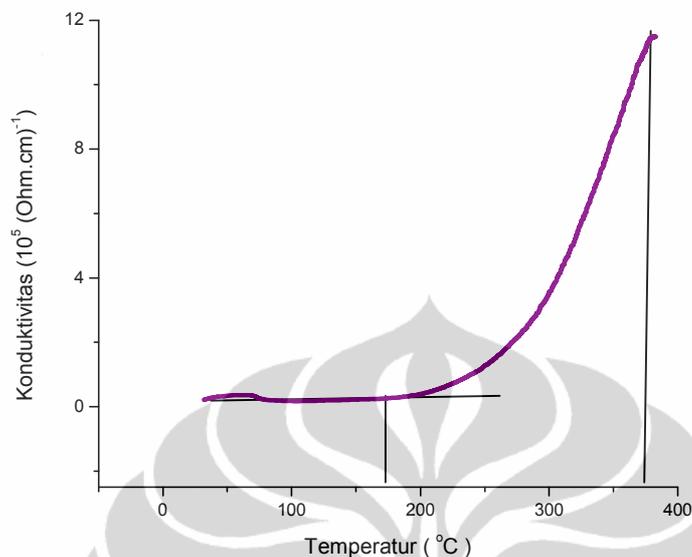
Grafik fungsi resistansi terhadap temperatur pada tegangan DC untuk sampel B2 dapat dilihata pada gambar-5.4 berikut ini:



Gambar-5.4 (a) Grafik fungsi resistansi terhadap temperatur pada tegangan DC
(b) Grafik fungsi konduktivitas DC terhadap temperatur

Dari gambar-5.4 terlihat bahwa nilai konduktivitas DC naik secara drastis pada temperatur 400 °C. Berdasarkan data diketahui bahwa nilai konduktivitas terendah 3.4×10^{-5} dan tertinggi 0.34. Dengan demikian pada temperatur 400 °C nilai konduktivitas naik drastis sampai mencapai 4 orde yang menunjukkan efek PTC pada sampel ini.

5.1.4 Sampel B3



Gambar-5.5. Grafik fungsi konduktivitas terhadap temperatur dari sampel B3, temperatur transisi sekitar 170 °C , sampel B3 ini mengalami perubahan fase dari temperatur transisi 170 °C dan selesai mengalami perubahan fase pada temperatur 375 °C .

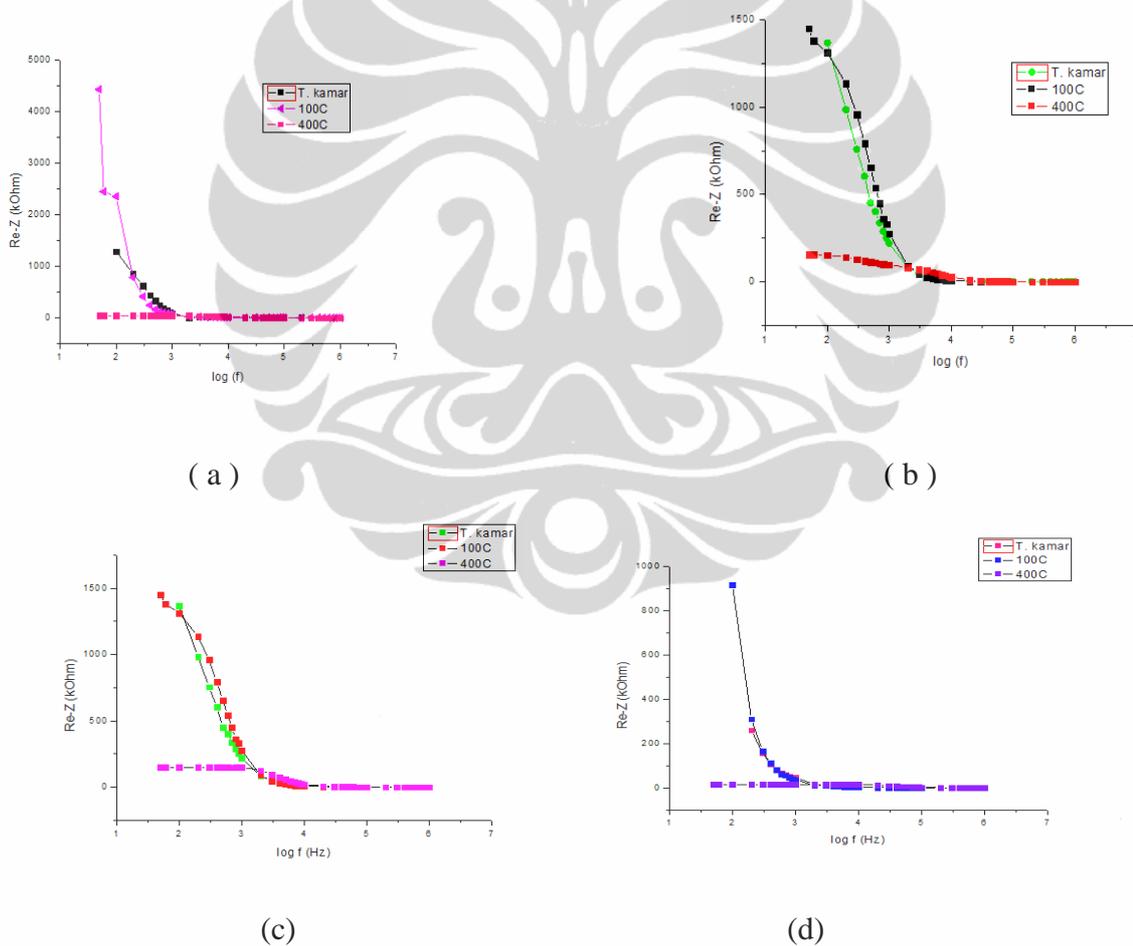
Gambar-5.5. menampilkan grafik fungsi konduktivitas dalam skala $10^5 (\Omega.\text{cm})^{-1}$ terhadap temperatur dari sampel B3 , terlihat bahwa kenaikan kurva secara drastis dimulai sekitar temperatur 170 °C dan berakhir sekitar temperature 375 °C . Dari kecenderungan kurva ini dapat diketahui bahwa nilai konduktivitas sampel ini naik secara tajam pada temperatur 170 °C, pada temperature 375 °C nilai konduktivitas mencapai nilai maksimum dengan kenaikan mencapai 2 orde.

Dari tampilan kurva tersebut dapat diketahui pula bahwa keramik ini mulai mengalami perubahan fase dari ferroelektrik ke paraelektrik dari temperatur 170 °C, dan selesai pada temperatur 375 °C, diatas temperature 375 °C sudah fasenya sudah menjadi paraelektrik.

Dari keseluruhan grafik-grafik diatas diketahui bahwa masing-masing sampel memiliki temperature transisi yang berbeda, sampel B1 memiliki temperature transisi sekitar 130 °C, B2 140 °C, dan B3 170 °C, ketiga sampel

selesai mengalami perubahan fase pada diatas temperatur 300 °C. Pada temperature sintering 1200 °C, variasi lama waktu sintering menyebabkan bertambah besarnya ukuran grain BaTiO₃ [4], pada penelitian ini ditemukan bahwa bertambahnya ukuran grain keramik BaTiO₃ menyebabkan semakin tingginya temperature transisi. Ketiga sampel menunjukkan kenaikan nilai konduktivitas yang drastis seperti halnya kenaikan nilai hambatan pada bahan PTC.

5.2 Bode plot



Gambar-5.6. Grafik fungsi impedansi real terhadap log frekuensi pada temperatur kamar, 100 °C , dan 400 °C dari sampel (a) sampel A (b) sampel B1, (c) sampel B2, dan (d) sampel B3, terlihat kurva konvergen pada frekuensi tinggi untuk semua temperatur.

Berdasarkan grafik fungsi impedansi real terhadap frekuensi (dalam skala logaritma) pada gambar-5.6. terlihat bahwa pada semua sampel, impedansi real konvergen pada frekuensi tinggi untuk semua temperatur memberikan informasi bahwa adanya polarisasi ruang muatan (space charges) dalam bahan ^[62] [12] . Sedangkan pada temperatur 400 °C besaran impedansi real menurun terhadap kenaikan frekuensi, hal ini menunjukkan terjadinya penurunan konduktivitas a.c pada sampel ^[62] [12]. Kurva pada temperatur 100 °C dan 400 °C berada dibawah kurva temperatur kamar hal ini menunjukkan bahwa saat terjadi perubahan fase nilai resistivitas sampel lebih tinggi dari pada sebelum perubahan fase ^[63] [12]. Nilai resistivitas yang tinggi disebabkan karena munculnya efek PTC pada sampel saat terjadi perubahan fase ferroelektrik ke paraelektrik.

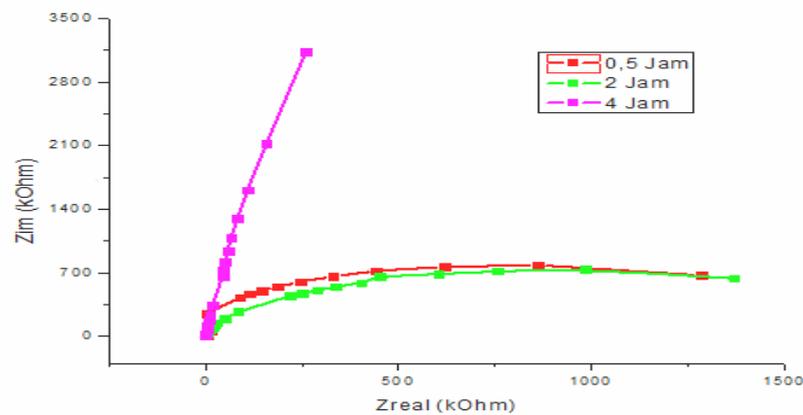
Pada frekuensi tinggi, nilai impedansi real-nya semua menuju kepada satu garis yang konvergen yakni membentuk kurva horisontal . Hal ini memberikan bukti bahwa pada frekuensi tinggi impedansi bersifat linier, artinya impedansi lebih bersifat resistif murni, sumbangan sifat ini diduga berasal dari komponen ionik didalam material BaTiO₃[10].

Nilai impedansi real ini juga berkurang sejalan dengan kenaikan temperatur hal ini menunjukkan bahwa saat sampel mengalami perubahan fase dari ferroelektrik ke para elektrik sampel mengalami peningkatan Loss [10].

5.3 Nyquist plot

Pada temperatur kamar

Hasil Nyquist plot gabungan untuk sampel B1, B2, dan B3 pada temperatur kamar diperlihatkan pada gambar-5.7 dibawah ini:

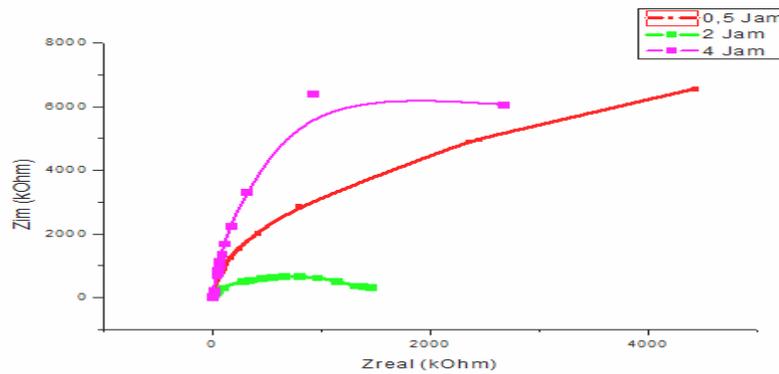


Gambar-5.7. Nyquist sampel B1, B2, dan B3 pada temperatur kamar, terlihat bahwa sampel B3 menduduki spektrum impedansi paling atas.

Dari gambar-5.7 spektrum impedansi sampel B pada temperatur kamar, terlihat bahwa ketiga spectrum impedansi belum membentuk semicircle. Sampel B3 kurva berwarna ungu menduduki spectrum impedansi paling atas, dan spectrum impedansi sampel B2 berwarna hijau menduduki posisi paling bawah. Jika diperhatikan mikrostruktur dari kedua sampel ini, sampel B3 dengan ukuran grain lebih kecil dari sampel B2 menduduki puncak spektrum tertinggi pada temperatur kamar saat sampel masih dalam fase ferroelektrik.

Pada temperatur 100 °C

Hasil Nyquist plot gabungan untuk sampel B1, B2, dan B3 pada temperatur 100 °C diperlihatkan pada gambar-5.8 berikut ini:

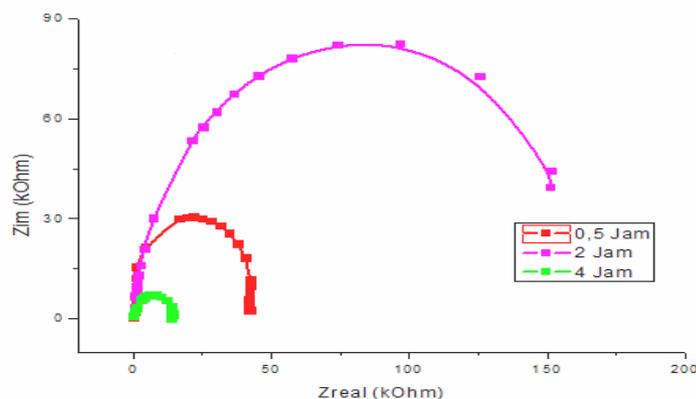


Gambar-5.8 Nyquist sampel B1, B2, dan B3 pada temperatur 100 °C, terlihat bahwa sampel B3 menduduki spectrum impedansi paling atas.

Dari gambar-5.8 spektrum impedansi sampel B pada temperatur 100 °C, terlihat bahwa sampel B3 kurva berwarna ungu menduduki spectrum impedansi paling atas, dan spectrum impedansi sampel B2 berwarna hijau menduduki posisi paling bawah. Jika diperhatikan mikrostruktur dari kedua sampel ini, sampel B2 dengan ukuran grain lebih kecil dari sampel B3 menduduki puncak spektrum tertinggi pada temperatur 100 °C saat sampel sedang proses perubahan fase ke paraelektrik.

Pada temperatur 400 °C

Hasil Nyquist plot gabungan untuk sampel B1, B2, dan B3 pada temperatur 400 °C diperlihatkan pada gambar-5.9 berikut ini:



Gambar-5.9 Nyquist sampel B1, B2, dan B3 pada temperatur 400 °C, terlihat bahwa sampel B2 menduduki spectrum impedansi paling atas.

Dari gambar-5.9 spektrum impedansi sampel B pada temperatur 400 °C, terlihat bahwa sampel B2 kurva berwarna ungu menduduki spektrum impedansi paling atas, dan spektrum impedansi sampel B3 berwarna hijau menduduki posisi paling bawah. Jika diperhatikan mikrostruktur dari kedua sampel ini, sampel B3 dengan ukuran grain lebih besar dari sampel B2 menduduki spektrum paling rendah, berarti sampel B3 memiliki nilai resistansi paling kecil. Pada fase paraelektrik kurva Nyquist ketiga sampel sudah membentuk semicircle.

5.3.1 Hasil fitting plot Nyquist dan nilai parameter listrik

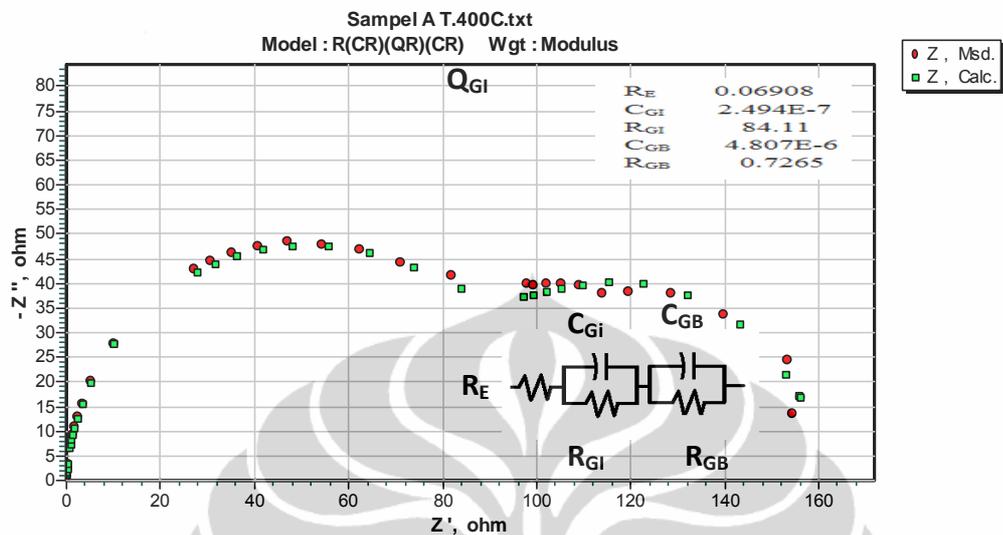
Untuk melihat mekanisme konduksi listrik didalam bahan, penulis mencoba memodelkan mekanisme konduksi listrik didalam bahan tiap-tiap sampel. Didalam mekanisme tersebut, penulis mengasumsikan bahwa elemen-elemen rangkaian listrik yang memberikan kontribusi terhadap impedansi terdiri dari R, dan C, jadi hanya bersifat resistansi (menghambat aliran arus) dan kapasitansi (polarisasi muatan). Resistansi berasal dari grain boundary (R_{GB}), grain interior (R_{GI}) dan elektroda (R_E) sedangkan kapasitansi berasal dari grain boundary (C_{GB}) dan grain interior (C_{GI}).

Gambar berikut ini memperlihatkan beberapa kurva impedansi hasil fitting yang dilakukan oleh program ZsimpWin 3.10 yang mewakili sampel A dan B beserta rangkain ekivalen yang dipilih sebagai model. Model rangkaian yang dipilih untuk semua sampel disesuaikan dengan keadaan sampel yang meliputi ukuran grain dan ketidak seragaman ukuran grain akibat pengaruh waktu sintering terhadap sampel.

Sampel A

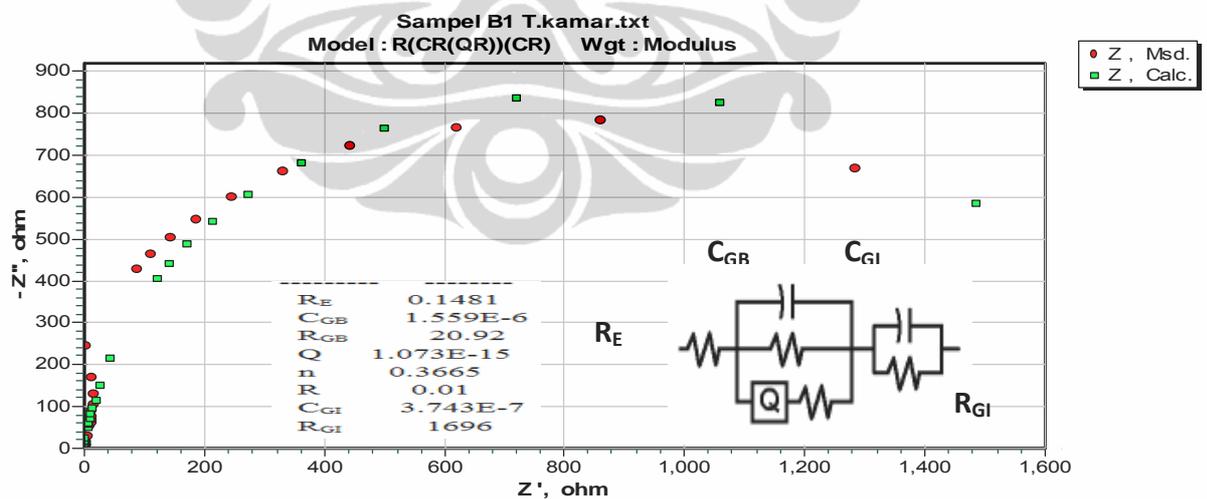
Untuk sampel A , B2, dan B3 rangkaian ekivalen yang dipilih adalah rangkaian resistor yang seri dengan 2 rangkaian paralel resistor dan kapasitor dengan tidak memasukkan factor *constant face element* (CPE) dalam rangkaian

tersebut. Sedangkan untuk sampel B1 dipilih rangkaian dengan memasukkan factor (CPE) kedalam rangkaian tersebut.

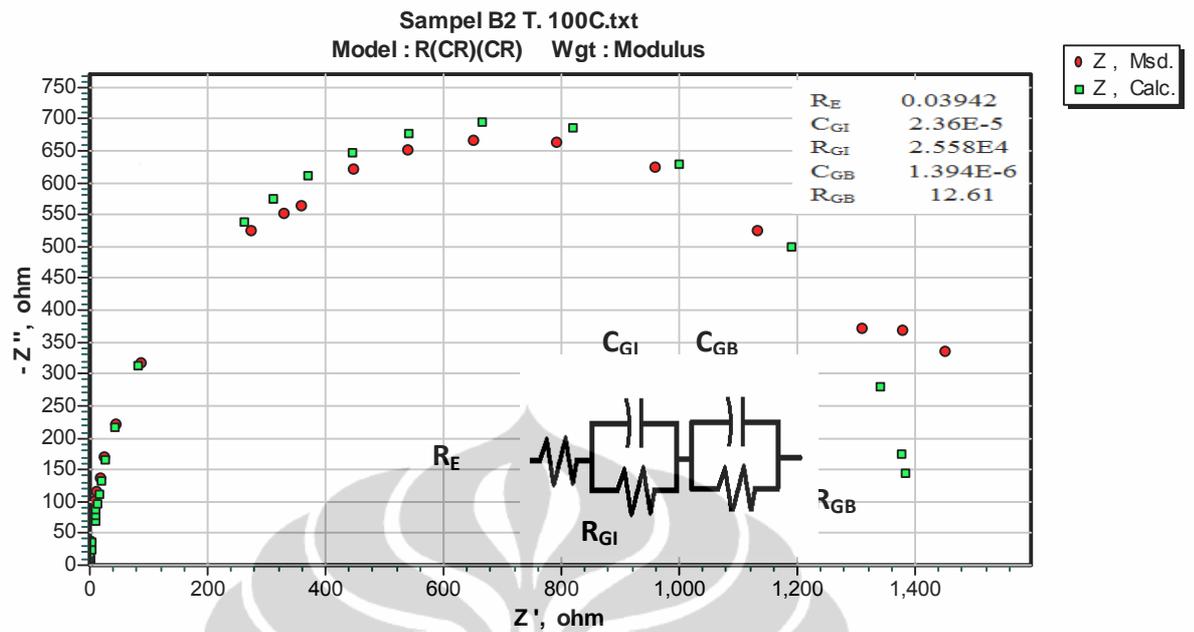


Gambar-5.10. Spektrum impedansi sampel A pada temperatur 400 °C hasil fitting program ZsimpWin 3.10 beserta rangkaian ekivalen dengan nilai-nilai parameter listrik yang dihasilkan.

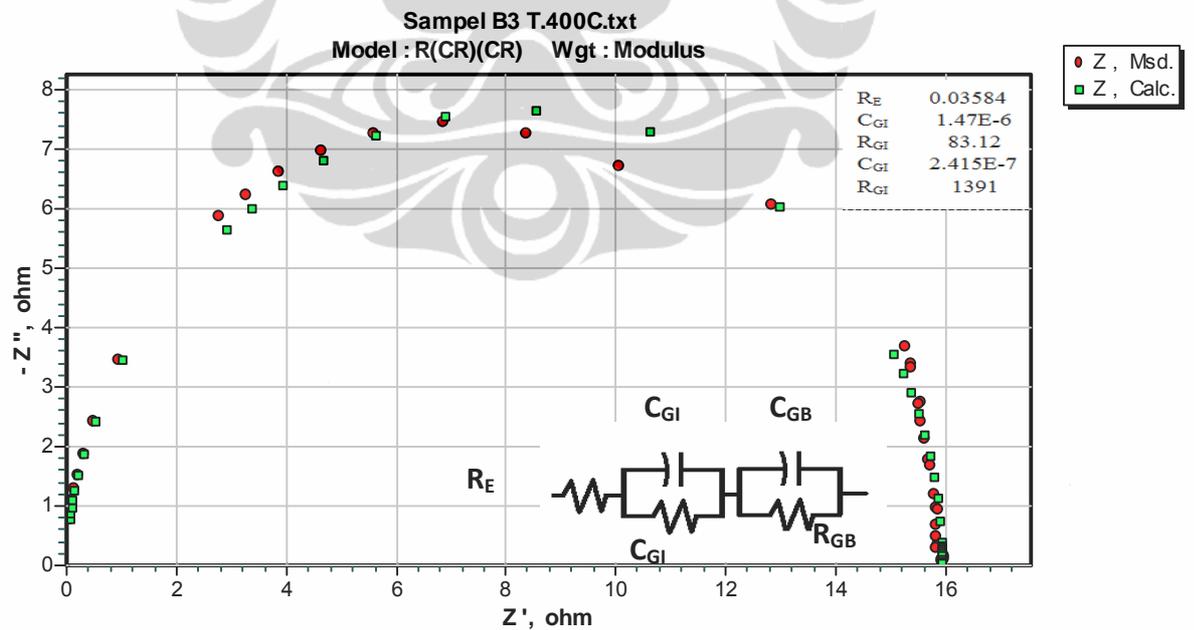
Sampel B



Gambar-5.11. Spektrum impedansi sampel B1 pada temperatur kamar hasil fitting program ZsimpWin beserta rangkaian ekivalen dengan nilai-nilai parameter listrik yang dihasilkan.



Gambar-5.12. Spektrum impedansi sampel B2 pada temperatur 100C hasil fitting program ZsimpWin beserta rangkaian ekivalen dengan nilai-nilai parameter listrik yang dihasilkan.



Gambar-5.13. Spektrum impedansi sampel B3 pada temperatur 400 °C hasil fitting program ZsimpWin beserta rangkaian ekivalen dengan nilai-nilai parameter listrik yang dihasilkan.

Nilai parameter listrik dari tiap-tiap sampel hasil fitting dengan program ZsimWin 3.10 dapat dilihat pada tabel-5.1.

Tabel-5.1. Nilai parameter listrik hasil fitting dengan program ZsimWin 3.10 pada sampel A dan B:

Sampel/ Temperatur	R _E (kΩ)	R _{GI} (kΩ)	R _{GB} (kΩ)	C _{GI} (F)	C _{GB} (F)	Q (F)
A T.Kamar	0,042	3,74	2,6x10 ⁴	1,19x10 ⁻⁶	2,55x10 ⁻⁷	1,07x10 ⁻¹⁵ 7,87x10 ⁻⁷ 12,37
T.100°C	430	1,039x10 ⁴	1,17x10 ⁸	2,15x10 ⁻⁷	2,64x10 ⁹	
T.400°C	0,069	84,11	0,7265	2,49x10 ⁻⁷	4,80x10 ⁻⁶	
B1 T.Kamar	0,15	16,96	20,92	3,74x10 ⁻⁷	1,55x10 ⁻⁶	
T.100°C	0,0026	46312	10 ¹⁵	4,07x10 ⁻⁷	3,77x10 ⁻⁷	
T.400°C	0,078	48,67	7,25x10 ¹⁵	3,58x10 ⁻⁷	0,006088	
B2 T. Kamar	48,49	8,533	1092	2,57x10 ⁻⁶	2,53x10 ⁻⁷	
T.100 °C	0,036	83,12	1391	1,47x10 ⁻⁶	2,41x10 ⁻⁷	
T.400 °C	0,0491,0	155,6	101	2,56x10 ⁻⁹	1,22x10 ⁻⁶	
B3 T.Kamar	1,012	707,6	14,69	1,42x10 ⁻⁶	1,07x10 ⁻⁶	
T.100 °C	0,039	2,55x10 ⁴	12,61	2,36x10 ⁻⁵	1,39x10 ⁻⁶	
T.400 °C	0,131	1,384	14,57	8,17x10 ⁻⁷	2,73x10 ⁻⁷	

Nilai kapasitansi grain

Dari tabel-5.1 diperoleh nilai kapasitansi grain tiap-tiap sampel seperti terlihat pada tabel- 5.2.

Tabal-5.2. Nilai kapasitansi grain pada tiap-tiap sampel hasil fitting ZsimWin 3.10

Temperatur/Sampel	B1	B2	B3
T. Kamar	3.74x10 ⁻⁷ F	2.58x10 ⁻⁶ F	1.42x10 ⁻⁶ F
100 °C	4.08x10 ⁻⁷ F	1.47x10 ⁻⁶ F	2.36x10 ⁻⁵ F
400 °C	3.58x10 ⁻⁷ F	2.57x10 ⁻⁹ F	8.18x10 ⁻⁶ F

Berdasarkan tabel-5.2 terlihat bahwa pada sampel B2 dengan ukuran grain lebih kecil dari B3, memiliki nilai kapasitansi grain terkecil.

Nilai resistansi positive temperature coefisient (R_{PTC})

Dengan persamaan (2.4) didapat nilai R_{PTC} untuk sampel B pada temperatur 100°C seperti terlihat pada tabel-5.3 berikut ini:

Tabel-5.3 Nilai R_{PTC} dari sampel B pada temperatur 400°C

R-PTC	B1	B2	B3
T.100C	$7,2 \times 10^{15} \text{ k}\Omega$	256,6 k Ω	15,95 k Ω

Berdasarkan tabel-5.3 diatas terlihat bahwa nilai R_{PTC} terbesar yaitu pada sampel B1, hal ini disebabkan karena masih banyak serbuk BaTiO_3 yang belum membentuk grain menyebabkan laju transpor muatan berkurang ^[64] [12]. Sedangkan nilai R_{PTC} terkecil terdapat pada sampel B3, dengan demikian diketahui bahwa ukuran grain terbesar memiliki ukuran R_{PTC} terkecil.

Dari hasil fitting rangkaian ekivalen keseluruhan sampel pada temperature kamar, 100°C , dan 400°C diperoleh nilai dari komponen listrik seperti pada tabel berikut ini:

Tabel-5.4. Hasil fitting rangkaian ekivalen sampel A

Parameter/temperature	T.kamar	100°C	400°C
R_E	0,042k Ω	430 k Ω	0,069 k Ω
R_{GB}	$2,61 \times 10^4 \text{ k}\Omega$	$1,17 \times 10^8 \text{ k}\Omega$	0,726 k Ω
R_{GI}	3,74 k Ω	$1,03 \times 10^4 \text{ k}\Omega$	84,11 k Ω
C_{GB}	$2,55 \times 10^{-7} \text{ F}$	$2,64 \times 10^{-9} \text{ F}$	$4,80 \times 10^{-6} \text{ F}$
C_{GI}	$1,19 \times 10^{-6} \text{ F}$	$2,15 \times 10^{-7} \text{ F}$	$2,49 \times 10^{-7} \text{ F}$
Peak	50 Hz	100 Hz	6 kHz

Akibat pemanasan bagian mikrostruktur material yang lebih cepat merespon adalah grain boundary karena bagian ini tidak stabil karena itu lebih sensitive untuk merespon perubahan temperatur ^[19] [9]. Terlihat dari tabel tampak bahwa saat perubahan fase sampel memiliki nilai R_{GB} terbesar dan C_{GB} terkecil.

Dari hasil fitting rangkaian ekivalen dari sampel B1 pada temperature kamar, 100°C , dan 400°C diperoleh nilai dari komponen listrik dari bahan tersebut adalah seperti pada table-5.5.

Tabel-5.5. Hasil fitting rangkaian ekivalen sampel B1

Parameter/Temperatur	Kamar	100 °C	400 °C
R_E	0,148 Ω	0,0026 Ω	0,077 Ω
R_{GB}	20,92 Ω	1 x10 ¹⁵ Ω	7,25 x10 ¹⁵ Ω
R_{GI}	16,96 Ω	4631 Ω	48,67 Ω
C_{GB}	1,55 x10 ⁻⁶ F	3,77 x10 ⁻⁷ F	0,006 F
C_{GI}	3,74 x10 ⁻⁷ F	4,07 x10 ⁻⁷ F	3,58 x10 ⁻⁷ F
Peak	200 Hz		8 kHz

Dari table tersebut terlihat bahwa nilai R_{GB} terbesar dan C_{GB} terkecil juga pada saat sampel mengalami perubahan fase.

Nilai dari komponen listrik dari sampel B2 yang diperoleh dari hasil fitting program ZsimpWin seperti pada table-5.6.

Tabel-5.6. Hasil fitting rangkaian ekivalen sampel B2

Parameter/Temperatur	Kamar	100 °C	400 °C
R_E	1,012 Ω	0,039 Ω	0,13 Ω
R_{GB}	14,69 Ω	12,61 Ω	14,57 Ω
R_{GI}	707,6 Ω	2,55 x10 ⁴ Ω	1,384 Ω
C_{GB}	1,07 x10 ⁶ F	1,39 x10 ⁻⁷ F	2,73 x10 ⁻⁷ F
C_{GI}	1,42 x10 ⁻⁶ F	2,36 x10 ⁻⁵ F	8,17 x10 ⁻⁷
Peak	200 Hz	500 Hz	3 kHz

Berdasarkan data pada tabel tersebut terlihat bahwa nilai C_{GB} terkecil juga saat sampel mengalami perubahan fase pada temperature 100 °C.

Nilai dari komponen listrik dari sampel B3 yang diperoleh dari hasil fitting program ZsimpWin seperti pada table-5.7.

Tabel-5.7. Hasil fitting rangkaian ekivalen sampel B3

Parameter/Temperatur	Kamar	100 °C	400 °C
R_E	48,49 Ω	0,035 Ω	0,049 Ω
R_{GB}	1092 Ω	1391 Ω	101 Ω
R_{GI}	8,33 x10 ¹⁴ Ω	83,12 Ω	155,6 Ω
C_{GB}	2,53 x10 ⁻⁷ F	2,41 x10 ⁻⁷ F	1,22 x10 ⁻⁶ F
C_{GI}	2,57 x10 ⁻⁶ F	1,47 x10 ⁻⁶ F	2,56 x10 ⁻⁹ F
Peak	100 Hz		40 kHz

Dari table tersebut diketahui bahwa nilai C_{GB} terkecil terjadi saat sampel mengalami perubahan fase.

Berdasarkan data dari keseluruhan tabel ditemukan bahwa saat terjadi perubahan fase, dari ferroelektrik ke paraelektrik sampel memiliki nilai resistansi terbesar dan kapasitansi terkecil pada grain boundary, hal ini menunjukkan munculnya suatu anomali resistor yang bersifat non-linier (efek PTC) pada sampel, Begitu juga peak maksimum (frekuensi relaksasi) dimana (f_r) pada fase ferroelektrik lebih rendah dari (f_r) paraelektrik dengan demikian terjadi penurunan waktu relaksasi dari ferroelektrik ke paraelektrik maka saat fase paraelektrik pada keramik terjadi peningkatan Loss [1].

Dari tampilan keseluruhan kurva Nyquist diatas terlihat bahwa pada temperature kamar dan $100\text{ }^{\circ}\text{C}$, dan $400\text{ }^{\circ}\text{C}$ memberikan spektrum impedansi yang berbeda dimana pada temperature kamar belum membentuk semicircle, pada temperatur $100\text{ }^{\circ}\text{C}$ hamper membentuk semicircle, sedangkan pada temperature $400\text{ }^{\circ}\text{C}$ spectrum impedansi sudah membentuk semicircle penuh. Hal ini menunjukkan bahwa adanya perbedaan sifat elektroik dalam material sebelum, saat, dan setelah perubahan fase dari ferroelektrik ke paraelektrik.

Spektrum impedansi yang tampil setelah selesai perubahan fase pada temperatur $400\text{ }^{\circ}\text{C}$, kurva spectrum telah membentuk semisircle penuh, dengan demikian kurva memiliki titik potong dengan sumbu real, degan demikian nilai resistansi bulk setelah perubahan fase pada temperatur $400\text{ }^{\circ}\text{C}$ dapat diketahui.

Karena setelah perubahan fase spektrum impedansi telah membentuk semicircle penuh maka dari puncak maksimum dan titik potong kurva dengan sumbu real dapat diketahui frekuensi relaksasi (f_r) dan nilai hambatan dari bulk (R_b) , dengan demikian melalui persamaan (2.9) nilai τ , C_b dapat dihitung. Hasil perhitungan nilai- nilai besaran diatas untuk tiap-tiap sampel setelah perubahan fase, dapat dilihat pada tabel-5.8:

Tabel-5.8. Beberapa nilai parameter listrik setiap sampel dari hasil plot Nyquist pada temperatur 400 °C

Parameter/Sampel	A	B1	B2	B3
Fr	6 kHz	8 kHz	3 kHz	50 kHz
R _b	110 kΩ	42 kΩ	150 kΩ	16 kΩ
C _b	241 Pf	473 Pf	350 Pf	199 Pf
τ	2,62x10 ⁻⁵ s	1,99x10 ⁻⁵ s	5,07x10 ⁻⁵ s	3,18x10 ⁻⁶ s

Berdasarkan tabel diketahui bahwa pada fase paraelektrik keramik memiliki waktu relaksasi terkecil pada keramik yang memiliki ukuran grain yang terbesar yaitu pada sampel B3 yaitu keramik BaTiO₃ yang disintering pada temperature 1200 °C selama 4 jam. Pada sampel B3 terjadi penurunan waktu relaksasi satu orde dari sampel A, B1, dan B2 maka keramik B3 mengalami peningkatan Loss terbesar pada pase paraelektrik[12].

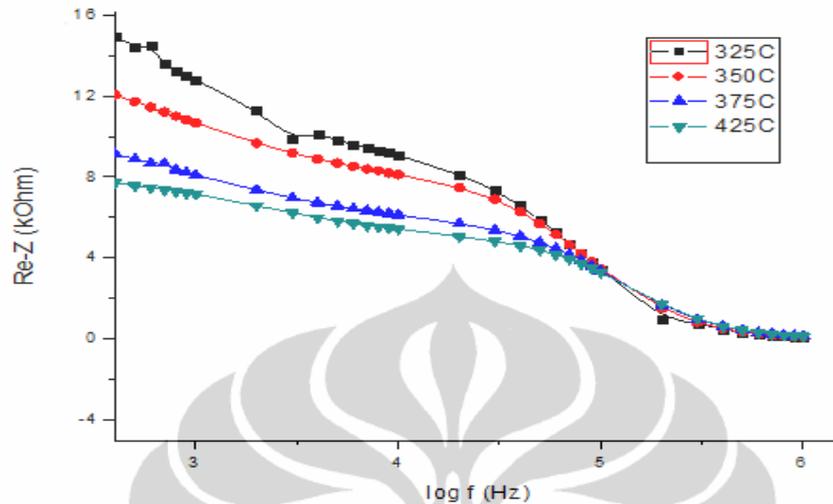
5.4 Spektroskopi Impedansi Setelah Perubahan Fase

Untuk mengetahui perilaku dari keramik BaTiO₃ yang sudah mendapat perlakuan berbagai sintering setelah perubahan fase, penulis melakukannya pada salah satu sampel saja, dari empat sampel yang ada, penulis memilih sampel B2 untuk dieksplorasi lebih lanjut. Hasil yang diperoleh pada eksplorasi ini dapat dilihat pada berbagai tampilan kurva pada pembahasan berikut.

5.4.1 Proses relaksasi

Gambar-5.13 menunjukkan perubahan impedansi real terhadap frekuensi pada temperatur 325C,350C, 375C, dan 425C. Dari tampilan tersebut terlihat bahwa kurva konvergen pada frekuensi tinggi dan disvergen pada frekuensi rendah, dan terlihat bahwa nilai impedansi real menurun sejalan dengan kenaikan frekuensi untuk setiap temperatur, hal ini menunjukkan terjadinya peningkatan

konduktivitas a.c dalam sampel. Peningkatan konduktivitas a.c ini membuktikan terjadinya proses relaksasi yaitu single relaksasi dalam sampel ^[252] [12] .



Gambar-5.14. variasi impedansi real terhadap perubahan frekuensi dari sampel B2 pada beberapa temperatur berbeda. Nilai Re-Z menurun sejalan kenaikan temperatur dan frekuensi menunjukkan adanya proses relaksasi dan peningkatan konduktivitas a.c dalam sampel ^[252] [12].

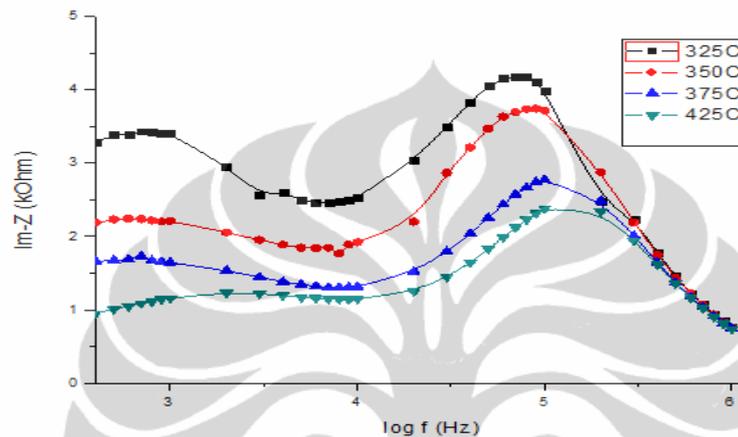
Impedansi real konvergen pada frekuensi tinggi untuk semua temperatur memberikan informasi bahwa adanya polarisasi ruang muatan (space charges polarisation) dalam sampel ^[253] [10] .

Proses relaksasi tunggal dapat juga diobservasi dari plot impedansi imajiner terhadap frekuensi pada temperature berbeda. Gambar-5.14. menunjukkan perubahan impedansi imajiner terhadap frekuensi pada temperatur konstan 325C, 350C, 375C, dan 425C. Dari tampilan tersebut terlihat bahwa kurva menggabung (konvergen) pada frekuensi 1 MHz dan disvergen pada frekuensi rendah, dan terlihat pula bahwa nilai impedansi imajiner menurun sejalan dengan kenaikan temperatur.

Nilai impedansi imajiner mencapai puncak maksimum terhadap frekuensi pada temperatur 325C, puncak impedansi real bergeser ke frekuensi yang lebih rendah sejalan dengan kenaikan temperatur menunjukkan penurunan relaksasi

dalam sistem. Waktu relaksasi dihitung dari frekuensi dimana nilai impedansi imajiner maksimum teramati. Puncak maksimum ditemukan meningkat sejalan dengan kenaikan frekuensi dan penurunan temperatur menunjukkan peningkatan Loss dalam sampel [12].

Untuk mencari nilai frekuensi relaksasi (f_r) yang spesifik yaitu dengan menggunakan semicircle dari plot diagram Cole-cole.



Gambar-5.15. Plot variasi impedansi imajiner pada temperatur berbeda dari sampel B2, puncak Im-Z bergeser ke daerah frekuensi yang lebih rendah sejalan dengan peningkatan temperature menunjukkan adanya penurunan relaksasi dalam sampel. Puncak maksimum meningkat dengan kenaikan temperatur menunjukkan peningkatan Loss dalam sampel

Dimana frekuensi puncak dari semicircle tersebut adalah merupakan frekuensi relaksasi. Dari Nyquist plot dengan program ZsimpWin 3.10 diperoleh nilai frekuensi relaksasi dari sampel B2, setelah dihitung dengan persamaan (2.8) diperoleh nilai waktu relaksasi untuk tiap-tiap temperatur dari keramik ini seperti pada tabel-5.9. berikut ini :

Tabel-5.9. waktu relaksasi sampel B2 pada beberapa temperatur berbeda

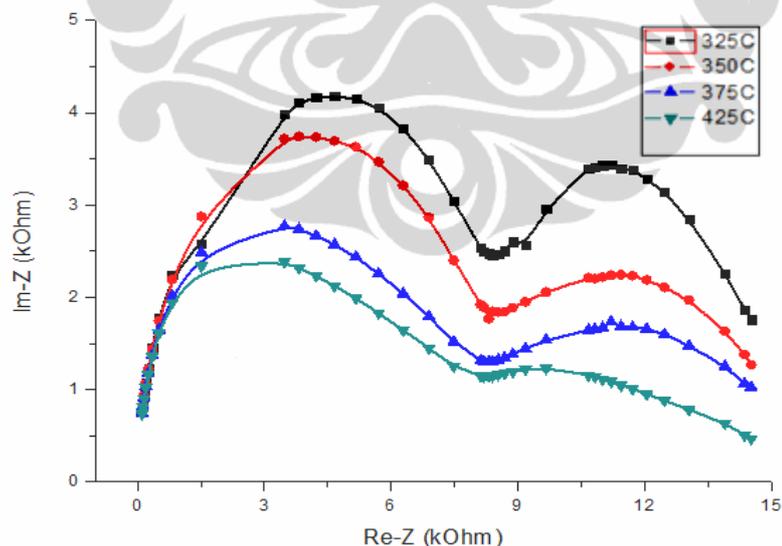
	Temperatur ($^{\circ}\text{C}$)			
	325	350	375	425
Frekuensi relaksasi	70 kHz	80 kHz	100 kHz	800 kHz
Waktu relaksasi	2.275E-6 s	1.990E-6 s	1.592E-6 s	7.960E-7 s

Pergeseran puncak ke frekuensi yang lebih tinggi sejalan dengan kenaikan temperature, menunjukkan kebergantungan space charges terhadap

frekuensi dan temperature. Kenaikkan frekuensi relaksasi sejalan dengan penurunan temperatur, dan penurunan waktu relaksasi sejalan dengan kenaikan frekuensi dan temperatur, seperti terlihat pada tabel gejala ini menunjukkan juga peningkatan Loss dalam sampel ^[248] [12] .

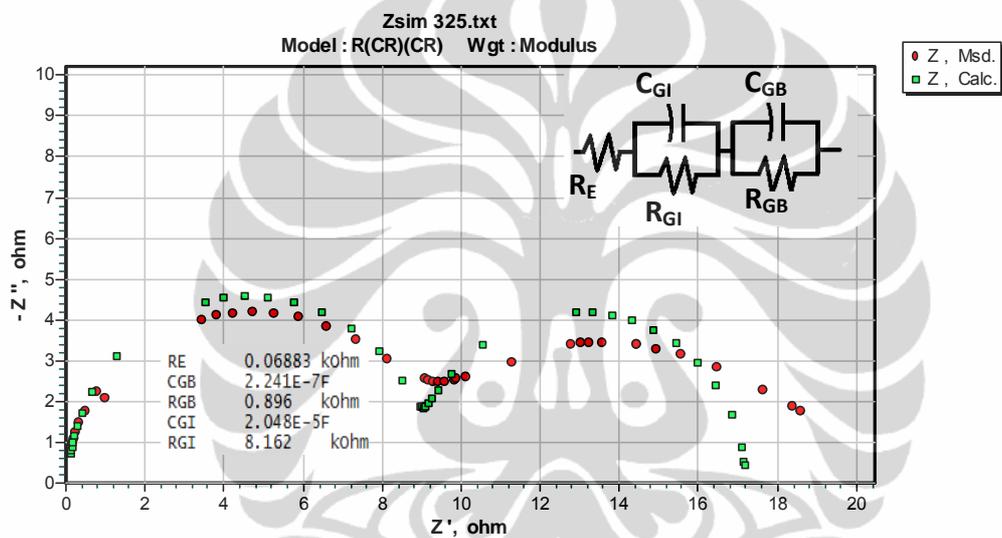
Diagram Nyquist yang diperoleh dari temperatur yang berbeda ditampilkan pada gambar-5.12, tiap-tiap titik berelasi dengan frekuensi yang berbeda. Plot bidang kompleks ini menampilkan dua semicircle yang terselesaikan dengan meningkatnya temperatur. Puncak plot maksimum berkurang sejalan dengan penambahan temperatur. Frekuensi maksimum bergeser ke nilai yang lebih besar sejalan dengan peningkatan temperatur. Dari puncak maksimum waktu relaksasi keramik dapat dihitung dengan persamaan (2.8).

Data impedansi pada gambar-5.15. dapat dipasangkan kedalam dua semicircle yang menunjukkan adanya dua proses relaksasi. Pasangan dua semicircle untuk temperatur 325 °C dan 425 °C dapat dilihat seperti gambar-5.16 dan 5.17.

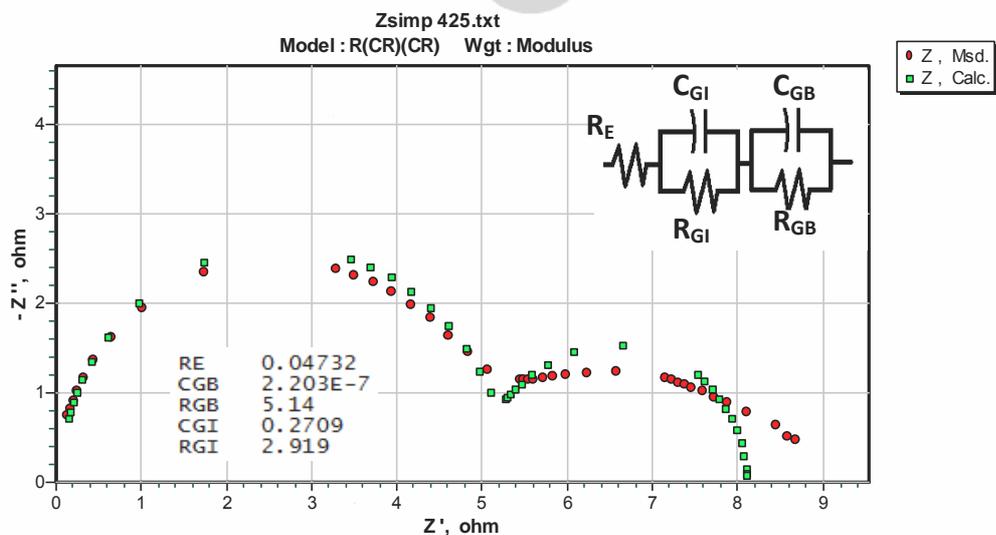


Gambar-5.16. Nyquist plot pada beberapa temperatur berbeda dari sampel B2, terlihat bahwa puncak plot maksimum berkurang sejalan dengan meningkatnya temperatur. Dari puncak maksimum waktu relaksasi dapat ditentukan ^[248] [11].

Kedua gambar tersebut memperlihatkan plot impedansi pada bidang kompleks yang masing-masing terdiri dari dua semicircle yang besar dan yang kecil. Yang besar pada frekuensi tinggi menunjukkan efek grain, dan yang kecil pada frekuensi rendah menunjukkan efek grain boundary [13]. Setiap semicircle diwakili oleh rangkaian paralel RC yang sesuai dengan komponen individual materi. Perpotongan dari semicircle pada sumbu real memberikan resistansi pada komponen yang memberikan kontribusi terhadap impedansi sampel.



Gambar-5.17. Spektrum impedansi Sampel B2 pada temperature 325C, hasil fitting program ZsimpWin 3.10 beserta rangkaian ekivalen dengan nilai-nilai parameter listrik yang dihasilkan.



Gambar-5.18. spektrum impedansi Sampel B2 pada temperature 452 °C, hasil fitting program ZsimpWin 3.10 beserta rangkaian ekivalen dengan nilai-nilai parameter listrik yang dihasilkan.

Dari fitting program ZsimpWin ditasa diperole data seperti terlihat pada table-5.10. berikut :

Tabel-5.10. Nilai komponen listrik hasil fitting ZimpWin 3.10 terhadap sampel B pada temperature 325 °C dan 425 °C

Parameter/Temperatur	325 °C	425 °C
R _{GI}	0,896 kΩ	5,14 kΩ
R _{GB}	8,162 kΩ	2,919 kΩ
R _b	10 kΩ	5,5 kΩ
Peak	70 kHz	200 kHz

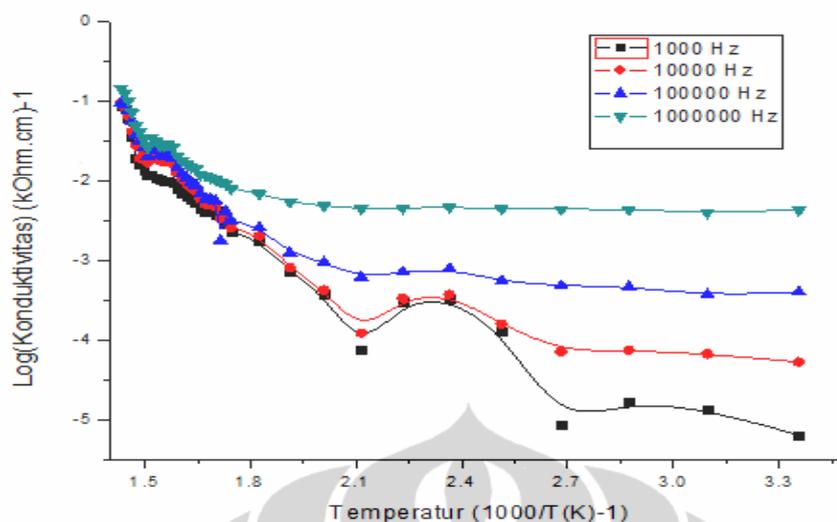
Dengan persamaan (2.8) dan (2.9) diperoleh nilai kapasitansi bulk dan waktu relaksasi keramik ini pada temperatur 325 °C dan 425 °C seperti terlihat pada tabel:

Tabel-5.11. nilai kapasitansi dari grain dan grain boundary pada temperatur berbeda:

Parameter/Temperatur	325 °C	425 °C
C _b	227,4 Pf	144,7 pF
τ	2,274x10 ⁻⁶ s	7,96x10 ⁻⁷ s

5.4.2 Energi aktivasi

Pada gambar-5.18 menunjukkan plot konduktivitas a.c sampel B2 sebagai fungsi frekuensi dan temperatur. Konduktivitas a.c sebagai fungsi frekuensi menunjukkan perubahan kemiringan (slope) pada frekuensi tertentu. Dari spektrum tersebut terlihat bahwa daerah spektrum untuk temperatur 325 °C berada pada daerah paling bawah dan daerah spektrum 425 °C berada pada daerah paling atas.



Gambar-5.19 Arrhenius plot konduktivitas a.c sampel B2 pada beberapa temperatur berbeda, energi aktivasi dapat dihitung dari slope kurva. Energi aktivasi dihitung dari slope kurva.

Energi aktivasi dihitung dari slope plot Arrhenius^[250] [12]. Energi aktivasi dari konduktivitas a.c dari sampel ini dihitung dalam rentangan 0,94 eV sampai 0,46 eV. Nilai energi aktivasi untuk tiap-tiap frekuensi dapat dilihat pada tabel berikut:

Tabel-5.12. Energi aktivasi konduktivitas a.c pada temperature bebeda

Energi Aktivasi Konduktivitas a.c (eV)					
Temperatur (°C)	Frekuensi (kHz)				
	0.1	1	10	100	1000
T.kamar-160	0.94	0.90	0.93	0.88	0.75
180-430	0.66	0.61	0.65	0.60	0.46

Dari tabel diatas dapat dilihat bahwa nilai energi aktivasi berkurang sejalan dengan kenaikan temperatur, dan penurunan frekuensi.

Proses relaksasi pertama

Berdasarkan gambar-5.16 terlihat bahwa pada kurva Nyquist terdiri dari dua semicircle, yaitu semicircle yang besar pada daerah frekuensi tinggi dan semicircle kecil pada daerah frekuensi rendah, yang menunjukkan terjadinya dua

proses relaksai pada setiap treatment pemanasan. Energi aktivasi diperoleh dari kemiringan kurva waktu relaksasi terhadap invers temperatur.

Persamaan (2.15) dapat diubah ke dalam persamaan linear menjadi:

$$Y = \alpha + bX$$

$$\tau = \tau_0 \exp(-E_a/K_B T)$$

$$\log \tau_0 = \log \tau - \frac{E_a}{k_B} \frac{1}{T}$$

Persamaan di atas dapat digunakan untuk membuat grafik hubungan antara log waktu relaksasi ($\log \tau$) dengan sepeitemperatur. \log waktu relaksasi ($\log \tau$) diplot pada sumbu-y, sedangkan sepeitemperatur diplot pada sumbu-x. τ_0 adalah waktu relaksasi bahan mula-mula, k_B adalah konstanta Boltzman dan $\frac{E_a}{k_B}$ merupakan *slope* yang digunakan untuk menentukan besarnya energi aktivasi.

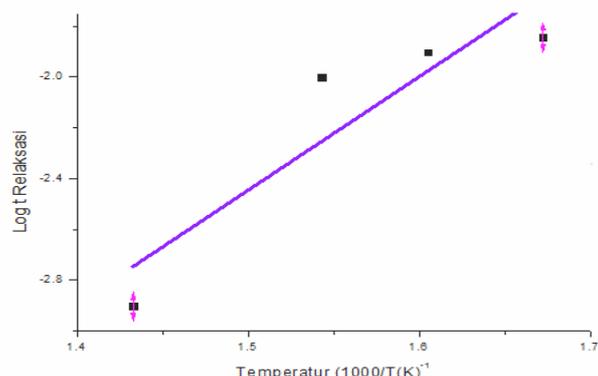
Data frekuensi relaksasi pada proses relaksasi pertama diambil dari Nyquist plot dengan program ZsimWin 3.10 seperti pada tabel-5.13

Tabel-5.13. Data frekuensi relaksasi pertama diambil dari hasil fitting program ZsimWin 3.10:

Temperatur (K)	1000/T(K) ⁻¹	fr (kHz)	τ (s)	Log τ
598	1.672	70	0.0142	-1.845
623	1.605	80	0.0125	-1.903
648	1.543	100	0.0100	-2.000
698	1.432	800	0.0012	-2.903

Dari tabel di atas kemudian dapat dibuat grafik hubungan antara waktu relaksasi (τ) dengan temperatur dalam 1000/T (K), seperti gambar-5.20:

Gambar-5.20. Grafik fungsi waktu Relaksasi terhadap temperature dari slope kurva diatas ditemukan energy aktivasi konduktivitas pada proses relaksasi pertama dari sampel B2 adalah 0,40 eV.



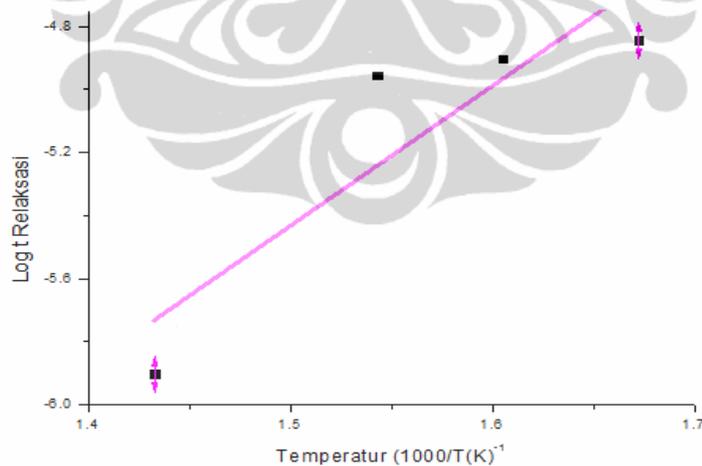
Dari gambar-5.20 terlihat bahwa waktu relaksasi bervariasi secara linier dengan invers temperature. Energi aktivasi total dapat dicari dengan gradien dari grafik hubungan antara waktu relaksasi dengan $1000/T$ dalam Kelvin. Besar energi aktivasi total pada proses relaksasi pertama ini adalah 0.40 eV.

Sedangkan data frekuensi relaksasi pada proses relaksasi pertama yang diambil dari grafik gabungan fungsi impedansi imajiner terhadap log frekuensi (gambar-5.15) oleh program OriginPro.8 dapat dilihat seperti pada tabel-5.14:

Tabel-5.14. Data frekuensi relaksasi pertama diambil dari grafik-5.15

Temperatur (K)	$1000/T(K)^{-1}$	Log fr	Fr (kHz)	τ (s)	Log τ
598	1.672	4.80	70	1.42×10^{-5}	-4.845
623	1.605	4.90	80	1.25×10^{-5}	-4.903
648	1.543	4.95	90	1.11×10^{-5}	-4.954
698	1.432	5.90	800	1.25×10^{-6}	-5.903

Dari tabel di atas kemudian dapat dibuat grafik hubungan antara waktu relaksasi (τ) dengan temperatur dalam $1000/T$ (K). Hasil dari plot table 5.14 dapat ditampilkan oleh grafik 5.21 di bawah ini.



Gambar-5.21. Grafik fungsi waktu relaksasi terhadap temperature dari slope kurva di atas ditemukan energi aktivasi konduktivitas pada proses relaksasi pertama dari sampel B2 adalah 0,44 eV.

Dari slope kurva diatas didapatkan nilai energi aktivasi konduktivitas a.c pada proses relaksasi pertama dari sampel B2 adalah 0,44 eV.

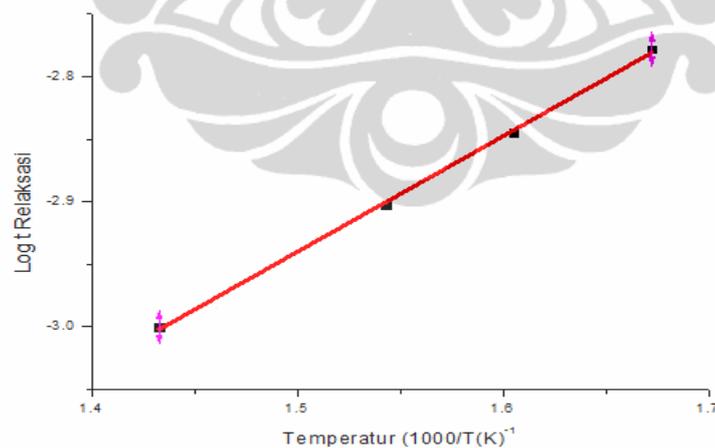
Proses relaksasi kedua

Data frekuensi relaksasi pada proses relaksasi kedua yang diambil dari Nyquist plot hasil fitting dengan program ZsimWin 3.10 dapat dilihat seperti pada tabel-5.15:

Tabel-5.15. Data frekuensi relaksasi pada proses relaksasi kedua diambil dari hasil fitting program ZsimWin 3.10:

Temperatur (K)	1000/T(K)-1	fr (Hz)	τ (s)	Log(τ)
598	1.672	600	0.00166	-2.778
623	1.605	700	0.00142	-2.845
648	1.543	800	0.00125	-2.903
698	1.432	1000	0.00100	-3.000

Dari tabel di atas kemudian dapat dibuat grafik hubungan antara waktu relaksasi (τ) dengan temperatur dalam 1000/T (K). Hasil dari plot table 5.15 dapat ditampilkan oleh grafik 5.22 di bawah ini:



Gambar-5.22. Grafik fungsi waktu relaksasi terhadap temperature dari slope kurva diatas ditemukan energi aktivasi konduktivitas pada proses relaksasi kedua dari sampel B2 adalah 0,07 eV.

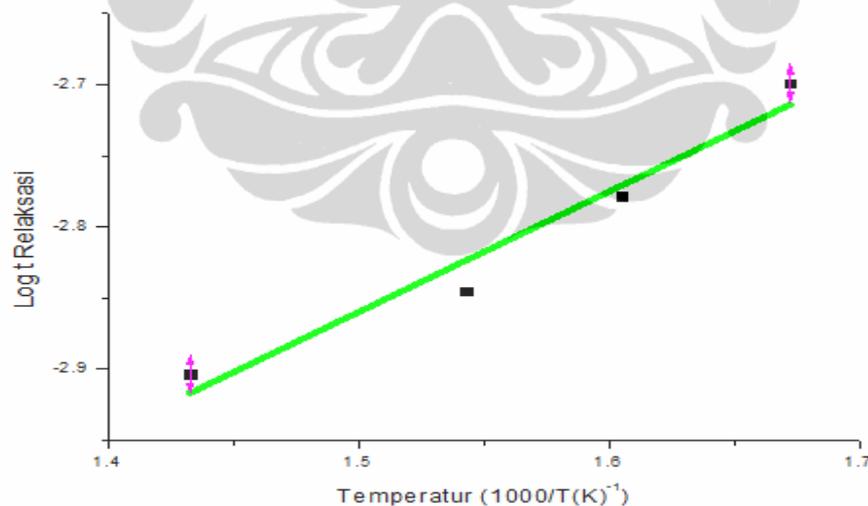
Energi aktivasi total dapat dicari dengan gradient dari grafik hubungan antara waktu relaksasi dengan $1000/T$ dalam Kelvin. Besar energi aktivasi total pada proses relaksasi kedua ini adalah 0.07 eV.

Data frekuensi relaksasi pada proses relaksasi kedua yang diambil dari grafik gabungan fungsi impedansi imajiner terhadap log frekuensi (gambar-5.15) oleh program OriginPro.8 dapat dilihat seperti pada tabel-5.16:

Tabel-5.16.Data frekuensi relaksasi kedua diambil dari OriginPro.8

Tempaturer (C)	Temperatur (K)	$1000/T(K)^{-1}$	$\log(fr)$	Fr	τ (s)	Log τ
325	598	1.672	2.69	500	0.0020	-2.698
350	623	1.605	2.77	600	0.0016	-2.778
375	648	1.543	2.84	700	0.0014	-2.845
425	698	1.432	2.90	800	0.0013	-2.903

Dari tabel di atas kemudian dapat dibuat grafik hubungan antara waktu relaksasi (τ) dengan temperatur dalam $1000/T$ (K). Hasil dari plot table 5.16 dapat ditampilkan oleh grafik 5.23 di bawah ini:



Gambar-5.23. Grafik fungsi waktu relaksasi terhadap temperature dari slope kurva diatas ditemukan energi aktivasi konduktivitas pada proses relaksasi kedua dari sampel B2 adalah 0,072 eV.

Dari slope kurva diatas ditemukan energi aktivasi konduktivitas a.c pada proses relaksasi kedua dari sampel B2 adalah 0,072 eV.

BAB VI SIMPULAN DAN SARAN

5.1 SIMPULAN

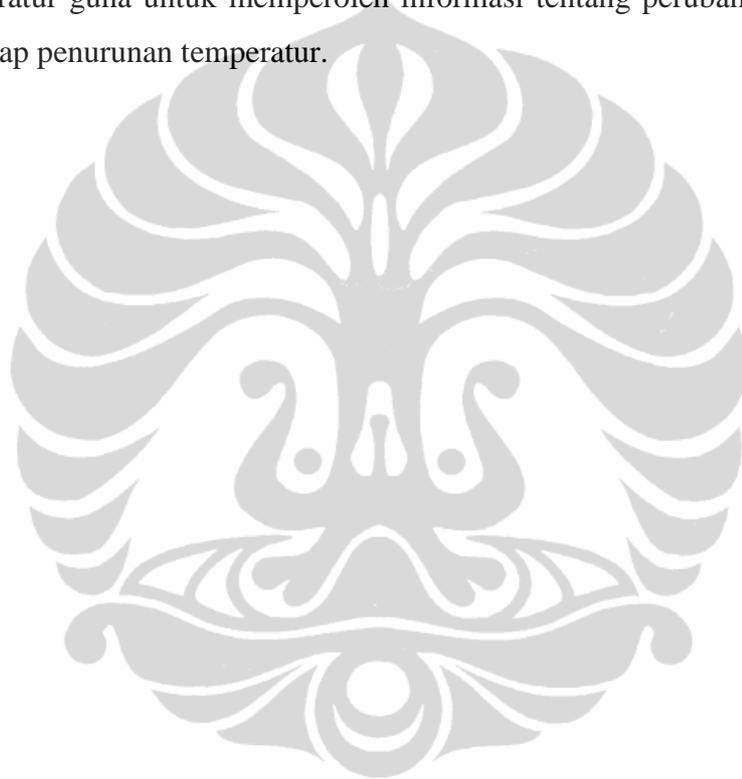
Berdasarkan hasil yang didapat dari penelitian dan pembahasan maka dapat disimpulkan bahwa:

1. Dari grafik fungsi konduktivitas terhadap temperatur untuk semua sampel menunjukkan bahwa perubahan fase dari ferroelektrik ke paraelektrik untuk bahan PTC dan BaTiO_3 bergantung pada temperatur.
2. Untuk bahan PTC perubahan fase dimulai pada temperatur 90°C dan selesai pada temperatur 375°C , Nilai resistivitas maksimum dicapai pada temperatur 150°C , dimana pada temperatur ini nilai resistivitas naik sampai 3 orde.
3. Untuk keramik BaTiO_3 yang disinterring pada temperature 1200°C ditemukan bahwa semakin lama waktu siterning semakin naik temperatur transis fase dari ferroelektrik ke paraelektrik.
4. Pada semua sampel terjadi kenaikan nilai resistansi secara drastis mencapai tiga orde, yang menunjukkan efek PTC pada material BaTiO_3 .
5. Ukuran grain, grain boundary, interface dan kontak memberikan kontribusi terhadap sifat listrik dari material BaTiO_3 .
6. Studi konduktivitas untuk menentukan energi aktivasi, nilai energi aktivasi untuk BaTiO_3 yang disinterring pada temperatur 1200°C selama 2 jam adalah 0,44 eV untuk proses relaksasi pertama dan 0,072 untuk proses relaksasi kedua.

5.2 SARAN

Adapun saran-saran yang perlu dilakukan guna memperoleh eksperimen dan pemahaman yang lebih baik lagi akan sifat BaTiO₃ adalah :

1. Melakukan eksplorasi lebih lanjut terhadap sampel B1, dan sampel B3 yang belum sempat dikarakterisasi pada temperatur setelah perubahan fase pada penelitian ini.
2. Melakukan percobaan spektroskopi impedansi terhadap penurunan temperatur guna untuk memperoleh informasi tentang perubahan fasenya terhadap penurunan temperatur.



DAFTAR PUSTAKA

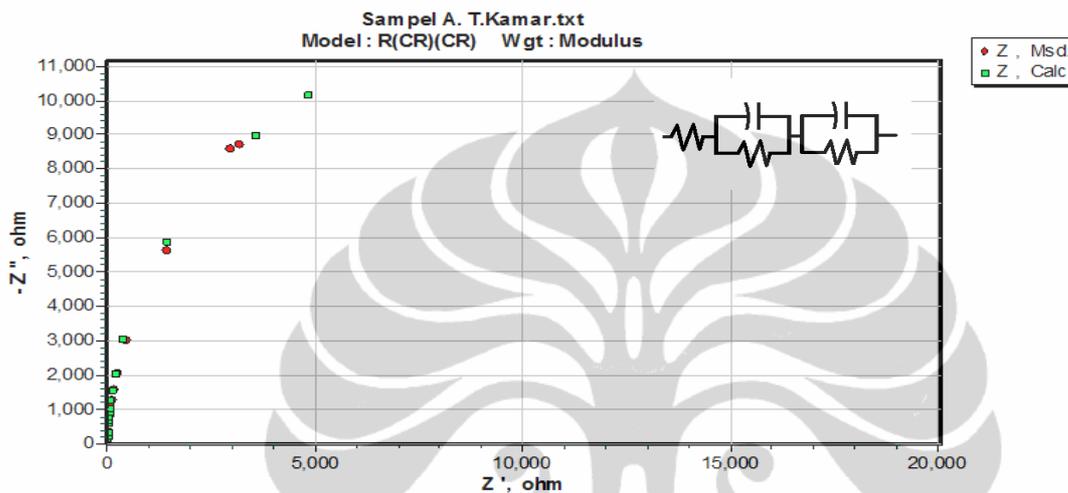
1. C.A.Randall, R.E.Newnham, L.E.Cross. *History of the First Ferroelectric Oxide, BaTiO₃*. Materials Research Institute, The Pennsylvania State University, University Park, PA 16802 USA.
2. Hsiao-Lin, Wang. *Structure and Dielectric Properties of Perovskite –Barium Titanate (BaTiO₃)*. San Jose State University. 2002
3. Kittel Charles, *Introduction to Solid State Physics*, Six Eddition.
4. M.Dorris. Pengaruh Ukuran Grain Terhadap Spektroskopi Impedansi Bahan Perovskite BaTiO₃. Univeritas Indonesia. Depok. 2003.
5. J.R. Macdonald. *Impedance Spectroscopy*. John Wiley & Sons, inc. 1987
6. Kirk-Othmer Encyclopedia of Chemical Technology. *Ferroelectrics*. Vol-11.
7. PTC Thermistor, General technical information, EPCOS AG 2012.
8. Basic EIS Princeton <http://www.princetonappliedresearch.com>
9. Vivi Fauzia, Cuk Imawan, *Spektroskopi Impedansi dari BaTiO₃: Studi Efek Self-Heating*. Departemen Fisika Universitas Indonesia, Kampus Depok, Indonesia 2004
10. S.Sen, R.N.P.Choudhary, P.Pramanik. Impedance. *Impedance Spectroscopy of Ba_{1-x}Sr_xSn_{0.15}Ti_{0.85}O₃ ceramics*. British Ceramics Transactions. Vol.103, No.6. 2004
11. K Srinivas, P Sarah, SV Suryanaryana . *Impedance Spectroscopy Studi Polycrystalin Bi₆Fe₂TiO₃*. Departemen of physics, CVR College of Engineering, Mangalpalli, RR (Dist) 501 510, India 2002
12. M. Ali Akbar, Studi Pengaruh Ukuran Grain Terhadap Kurva Bode Dan Nyquist Plot Pada Bahan PTC. Univeritas Indonesia. Depok. 2009.

Lampiran 1

HASIL FITTING DENGAN PROGRAM ZsimWin 3.10

Sampel A

Sampel A pada temperatur kamar



6/13/2012, 9:21:49 AM

...\par\Sampel A. T.Kamar, R(CR)(CR).par

1 = detect the sign of Zim

1 = modulus weighting factor

1.000 = sample area in square cm

R(CR)(CR)

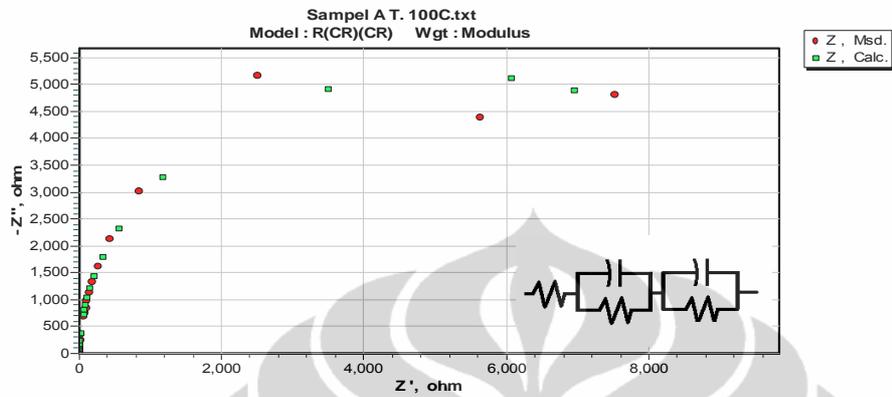
2.695e-03 = chi squared

index	fixed	symbol	start	end	% error
-------	-------	--------	-------	-----	---------

1	0	R	0.04172	0.04173	47.77
2	0	C	1.194E-6	1.193E-6	8.988
3	0	R	3.74	37.41	24.71
4	0	C	2.559E-7	2.559E-7	1.552
5	0	R	2.614E4	2.614E4	8.221

Lampiran 2

Sampel A pada temperatur 100C



5/18/2012, 10:18:01 AM

...\par\Sampel A T. 100C, R(CR)(CR).par

1 = detect the sign of Zim

1 = modulus weighting factor

1.000 = sample area in square cm

R(CR)(CR)

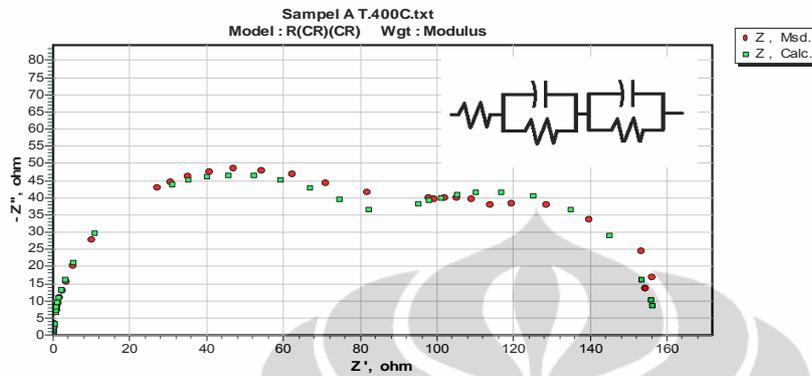
6.176e-03 = chi squared

index	fixed	symbol	start	end	% error
-------	-------	--------	-------	-----	---------

1	0	R	430	0.043	68.72
2	0	C	2.152E-7	2.152E-7	16.77
3	0	R	1.039E4	1.039E4	36.19
4	0	C	2.644E9	2.591E9	2.023E17
5	0	R	1.175E8	5.458E7	6.082E36

Lampiran 3

Sampel A pada temperatur 400C



5/18/2012, 10:09:10 AM

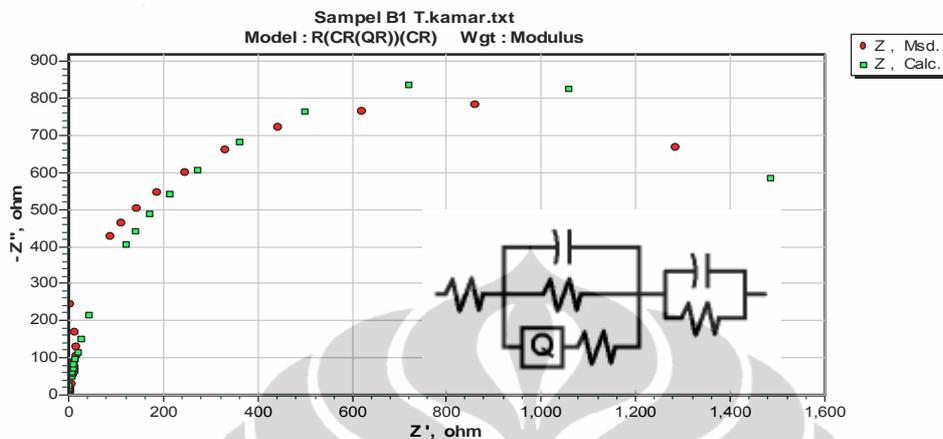
...\par\Sampel A T.400C, R(CR)(CR).par

1 = detect the sign of Zim
 1 = modulus weighting factor
 1.000 = sample area in square cm
 R(CR)(CR)
 3.344e-03 = chi squared

index	fixed	symbol	start	end	% error
1	0	R	0.06908	0.06908	28.67
2	0	C	2.494E-7	4.807E-6	11.01
3	0	R	84.11	72.66	5.555
4	0	C	4.807E-6	2.494E-7	1.397
5	0	R	0.7265	84.11	3.064

Lampiran 4

Sampel B1 pada temperatur kamar



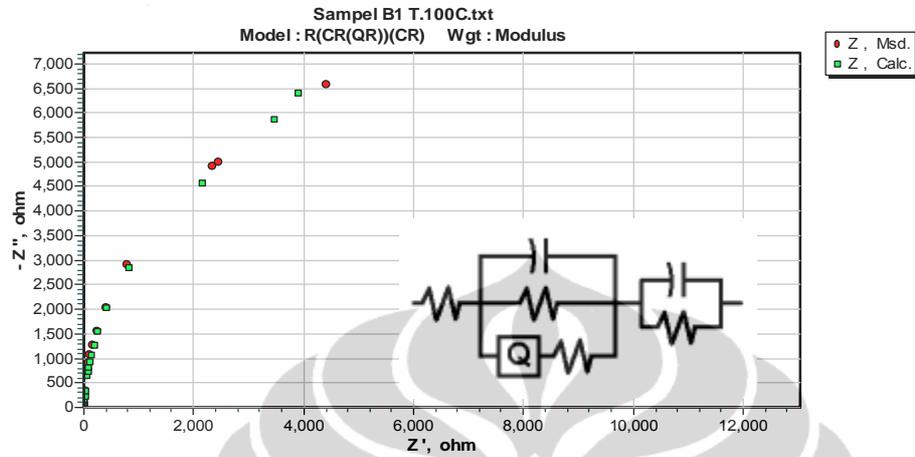
6/13/2012, 10:04:58 AM

...\par\Sampel B1 T.kamar, R(CR(QR))(CR).par

1 = detect the sign of Zim
1 = modulus weighting factor
1.000 = sample area in square cm
R(CR(QR))(CR)
4.148e-02 = chi squared

index	fixed	symbol	start	end	% error
1	0	R	0.1481	0.1481	61.1
2	0	C	1.559E-6	1.559E-6	411.1
3	0	R	20.92	20.92	2300
4	0	Q	1.073E-15	1.073E-15	1.333E16
5	0	n	0.3665	0.3665	3.463E15
6	0	R	0.01	0.01	4.635E30
7	0	C	3.743E-7	3.743E-7	23.95
8	0	R	1696	1696	15.5

Lampiran 5
Sampel B1 pada temperatur 100C



6/13/2012, 10:09:35 AM

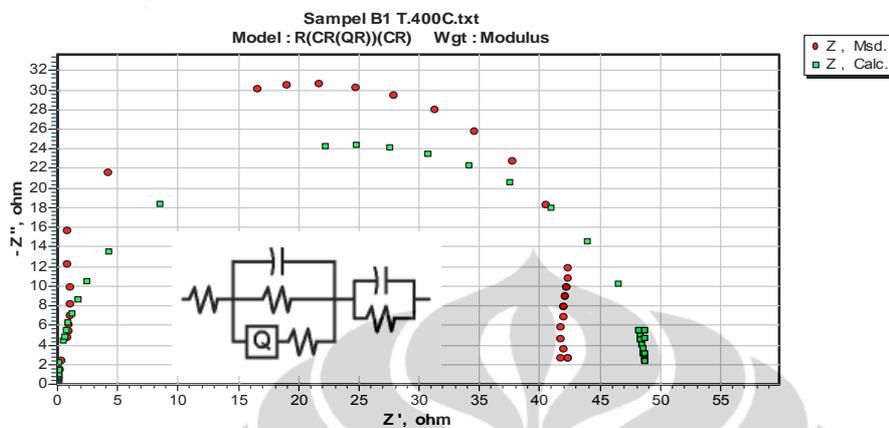
...\par\Sampel B1 T.100C, R(CR(QR))(CR).par

1 = detect the sign of Zim
 1 = modulus weighting factor
 1.000 = sample area in square cm
 R(CR(QR))(CR)
 2.085e-03 = chi squared

index	fixed	symbol	start	end	% error
1	0	R	0.002608	0.02608	75.19
2	0	C	3.77E-7	3.77E-7	13.5
3	0	R	1E15	3.422E14	1.529E12
4	0	Q	7.877E-7	7.879E-7	67.87
5	0	n	0.8	0.8598	6.485
6	0	R	28.93	28.91	43.61
7	0	C	4.079E-7	4.079E-7	14.28
8	0	R	4631	4632	30.87

Lampiran 6

Sampel B1 pada temperatur 400C



6/13/2012, 10:12:06 AM

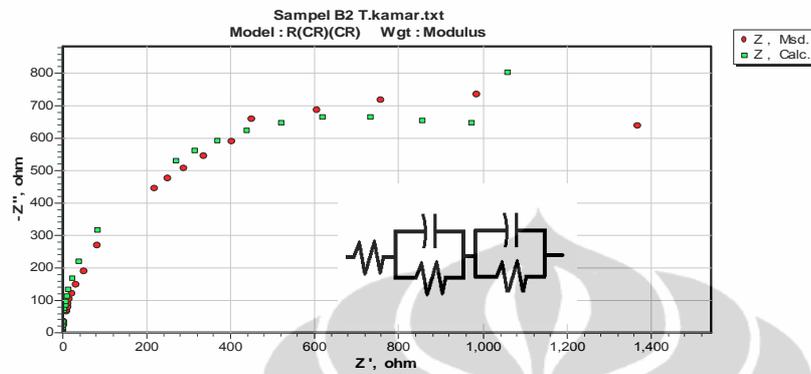
...\par\Sampel B1 T.400C, R(CR(QR))(CR).par

1 = detect the sign of Zim
 1 = modulus weighting factor
 1.000 = sample area in square cm
 R(CR(QR))(CR)
 3.653e-02 = chi squared

index	fixed	symbol	start	end	% error
1	0	R	0.07764	0.07764	56.26
2	0	C	0.0006088	0.0006088	384.8
3	0	R	7.253E15	7.253E15	1.382E25
4	0	Q	12.37	12.37	1.252E34
5	0	n	0.8	0.8	3.069E33
6	0	R	1.031E14	1.031E14	1.964E23
7	0	C	3.581E-7	3.581E-7	4.267
8	0	R	48.67	48.67	5.197

Lampiran 7

Sampel B2 pada temperatur kamar

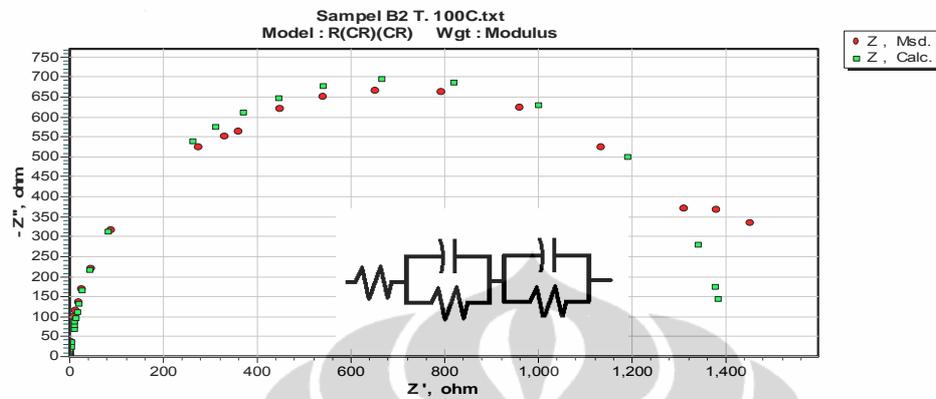


6/13/2012, 10:14:52 AM

...\par\Sampel B2 T.kamar, R(CR)(CR).par

1						= detect the sign of Zim
1						= modulus weighting factor
1.000						= sample area in square cm
R(CR)(CR)						
1.766e-02						= chi squared
index	fixed	symbol	start	end		% error
1	0	R	48.49	0.04854		95.42
2	0	C	2.576E-6	2.577E-6		27.03
3	0	R	8.533E14	5.062E14		2.758E13
4	0	C	2.553E-7	2.553E-7		3.486
5	0	R	1092	1092		9.758

Lampiran 8
Sampel B2 pada temperatur 100C



6/13/2012, 10:17:01 AM

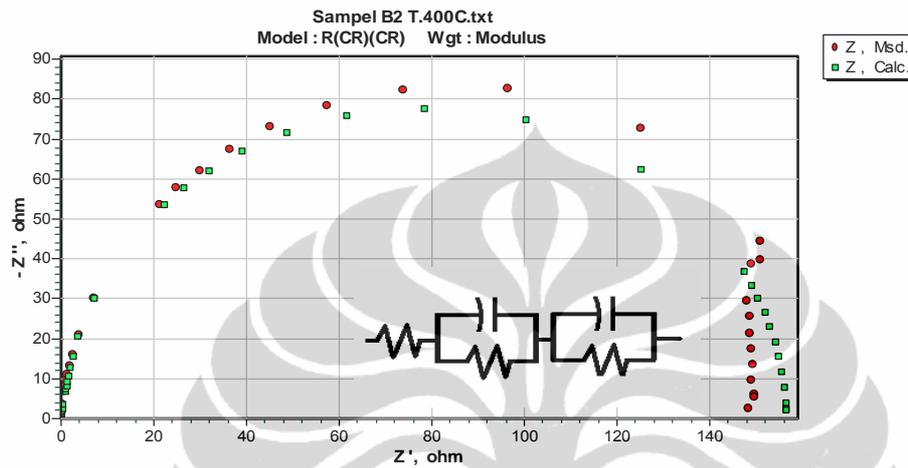
...\par\Sampel B2 T. 100C, R(CR)(CR).par

1 = detect the sign of Zim
1 = modulus weighting factor
1.000 = sample area in square cm
R(CR)(CR)
2.339e-03 = chi squared

index	fixed	symbol	start	end	% error
1	0	R	0.03584	0.03589	52.73
2	0	C	1.47E-6	1.47E-6	12.64
3	0	R	83.12	8.307	34
4	0	C	2.415E-7	2.415E-7	1.763
5	0	R	1391	1391	1.837

Lampiran 9

Sampel B2 pada temperatur 400C



6/13/2012, 10:18:24 AM

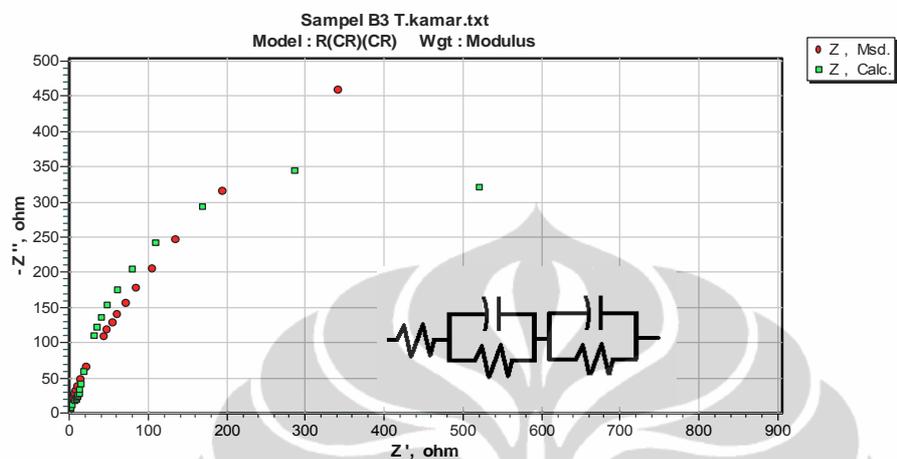
...\par\Sampel B2 T.400C, R(CR)(CR).par

1 = detect the sign of Zim
 1 = modulus weighting factor
 1.000 = sample area in square cm
 R(CR)(CR)
 1.783e-03 = chi squared

index	fixed	symbol	start	end	% error
1	0	R	0.04921	0.04925	36.61
2	0	C	2.565E-9	2.565E-7	1.471
3	0	R	155.6	155.6	1.091
4	0	C	1.223E-6	1.223E-6	10.49
5	0	R	1.01	1.01	23.47

Lampiran 10

Sampel B3 pada temperatur kamar



6/13/2012, 10:20:28 AM

...\par\Sampel B3 T.kamar, R(CR)(CR).par

1 = detect the sign of Zim

1 = modulus weighting factor

1.000 = sample area in square cm

R(CR)(CR)

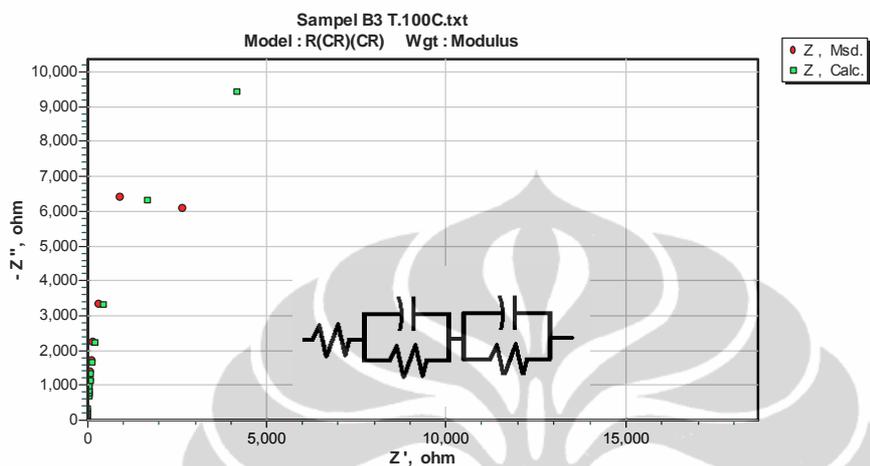
2.475e-02 = chi squared

index	fixed	symbol	start	end	% error
-------	-------	--------	-------	-----	---------

1	0	R	0.01151	0.1151	19.2
2	0	C	1.422E-6	1.422E-6	5.242
3	0	R	707.6	707.5	12.24
4	0	C	1.077E-6	1.077E-6	7.179
5	0	R	14.69	14.69	16.51

Lampiran 11

Sampel B3 pada temperatur 100C



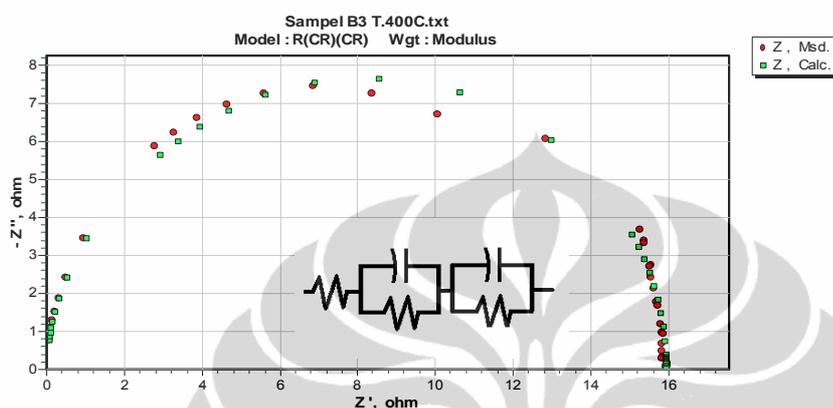
6/13/2012, 10:23:25 AM

...\par\Sampel B3 T.100C, R(CR)(CR).par

1					= detect the sign of Zim
1					= modulus weighting factor
1.000					= sample area in square cm
R(CR)(CR)					
7.429e-03					= chi squared
index	fixed	symbol	start	end	% error
-----	-----	-----	-----	-----	-----
1	0	R	0.03942	0.0394	87.84
2	0	C	2.36E-5	2.36E-7	2.275
3	0	R	2.558E4	2.558E4	16.79
4	0	C	1.394E-6	1.394E-6	18.12
5	0	R	12.61	12.6	47.23

Lampiran 12

Sampel B3 pada temperatur 400C



6/13/2012, 10:24:31 AM

...\par\Sampel B3 T.400C, R(CR)(CR).par

1 = detect the sign of Zim

1 = modulus weighting factor

1.000 = sample area in square cm

R(CR)(CR)

8.837e-04 = chi squared

index	fixed	symbol	start	end	% error
-------	-------	--------	-------	-----	---------

1	0	R	0.131	0.01311	104.7
2	0	C	8.178E-7	8.179E-7	22.37
3	0	R	1.348	1.349	45.53
4	0	C	2.739E-7	2.739E-7	8.025
5	0	R	14.57	14.57	4.129