



UNIVERSITAS INDONESIA

**KARAKTERISASI DAN PEMBUATAN LAPISAN TIPIS
 $\text{BaZr}_{(x)}\text{Ti}_{(1-x)}\text{O}_3$ DIDOPING INDIUM PADA SUBSTRAT Pt
MENGUNAKAN METODE CSD (*Chemical Solution
Deposition*)**

SKRIPSI

EDWARD RIZKY

0706262312

FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM

PROGRAM STUDI FISIKA

DEPOK

MEI 2012



UNIVERSITAS INDONESIA

**KARAKTERISASI DAN PEMBUATAN LAPISAN TIPIS
BaZr(x)Ti(1-x)O₃ DIDOPING INDIUM PADA SUBSTRAT Pt
MENGUNAKAN METODE CSD (*Chemical Solution
Deposition*)**

SKRIPSI

Diajukan sebagai salah satu syarat untuk memperoleh gelar sarjana sains

EDWARD RIZKY

0706262312

FAKULTAS MATEMATIKA DAN ILMU PENGETAHUAN ALAM

PROGRAM STUDI FISIKA

PEMINATAN FISIKA MATERIAL

DEPOK

MEI 2012

HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS

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

Nama : Edward Rizky

NPM : 0706262312

Tanda Tangan:



Tanggal : 28 Mei 2012

HALAMAN PENGESAHAN

Skripsi ini telah disahkan oleh

Nama : Edward Rizky
NPM : 0706262312
Program Study : S1 Reguler Fisika UI
Judul Skripsi : Karakterisasi dan Pembuatan Lapisan Tipis
 $\text{BaZr}_{(x)}\text{Ti}_{(1-x)}\text{O}_3$ Didoping Indium
Pada Substrat Pt Menggunakan Metode CSD
(Chemical Solution Deposition)

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

DEWAN PENGUJI

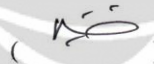
Pembimbing : Dr. Muhammad Hikam



Penguji I : Dr. Bambang Soegiono



Penguji II : Dr. Budhy Kurniawan



Ditetapkan di : Depok

Tanggal : 28 Mei 2012

Universitas Indonesia

KATA PENGANTAR

Puji syukur saya panjatkan kepada Allah SWT yang telah memberikan rahmat dan karunia sehingga saya dapat menyelesaikan skripsi ini. Penulisan skripsi ini dilakukan dalam rangka memenuhi salah satu syarat untuk mencapai gelar Sarjana Sains pada Program Studi Fisika Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam Universitas Indonesia. Saya menyadari bahwa, tanpa bantuan dan bimbingan dari berbagai pihak, dari masa perkuliahan sampai pada penyusunan skripsi ini, sangatlah sulit bagi saya untuk menyelesaikan skripsi ini. Oleh karena itu, saya mengucapkan terima kasih kepada :

1. Bapak Dr. Muhammad Hikam yang telah menyediakan waktu, tenaga, dan pikiran untuk mengarahkan saya dalam penyusunan skripsi ini;
2. Bapak Dr. Bambang, Dr. Azwar, Pak Parno, Pak Maykel, Pak Arief, dan Pak Isom atas bantuannya dalam penggunaan alat-alat lab dan arahnya;
3. Ibu Ratna, Pak Mardi, Pak Kumay, Pak Dwi, dan karyawan sekretariat fisika lainnya yang tidak saya sebutkan; dan
4. Sahabat fisika 2006, fisika 2007, fisika 2008, sahabat WS, fisika material dan teman-teman yang telah banyak membantu saya dalam menyelesaikan skripsi ini.

Akhir kata, saya berharap Allah SWT berkenan untuk membalas kebaikan dari semua pihak yang telah membantu. Semoga skripsi ini membawa manfaat bagi pengembangan ilmu.

Jakarta, 28 Mei 2012

Edward Rizky

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

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

Nama : Edward Rizky
NPM : 0706262312
Program Studi : S1 Reguler Fisika
Departemen : Fisika
Fakultas : Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam
Jenis Karya : Skripsi

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

Karakterisasi dan Pembuatan Lapisan Tipis $\text{BaZr}_{(x)}\text{Ti}_{(1-x)}\text{O}_3$ Didoping Dengan Indium Pada Substrat Pt Menggunakan Metode CSD (Chemical Solution Deposition)

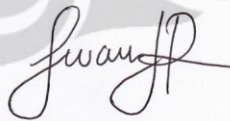
berserta perangkat yang ada (jika diperlukan). Dengan Hak Bebas Royalti Noneksklusif ini Universitas Indonesia berhak menyimpan, mengalih media/format-kan, mengelola dalam bentuk pangkalan data (*database*), merawat dan memublikasikan tugas akhir saya selama tetap mencantumkan nama saya sebagai penulis/pencipta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

Demikian pernyataan ini saya buat dengan sebenarnya,

Dibuat di : Depok

Pada tanggal : 28 Mei 2012

Yang menyatakan



(Edward Rizky)

ABSTRAK

Nama : Edward Rizky

Program Studi : Fisika

Judul : Karakterisasi dan Pembuatan Lapisan Tipis $\text{BaZr}_{(x)}\text{Ti}_{(1-x)}\text{O}_3$
Didoping Indium Pada Substrat Pt Menggunakan Metode
CSD (Chemical Solution Deposition)

Telah dilakukan pembuatan lapisan tipis Barium Zirkonium Titanat dengan menggunakan metode CSD (*Chemical Solution Deposition*) pada substrat Pt. Perbandingan komposisi Zr : Ti, temperatur *annealing*, tebalnya lapisan, dan waktu penahanan temperatur *annealing* menjadi variabel untuk mendapatkan film tipis BZT yang terbaik. BZT dengan variasi perbandingan Zr : Ti sebesar 0,1 : 0,9, temperatur *annealing* 800°C, dan jumlah lapisan sebanyak 5 lapis didapatkan sebagai variabel terbaik. Variabel BZT terbaik digunakan sebagai variabel untuk pendopingan dengan Indium, kemudian hasilnya dianalisa dan diperhitungkan secara teoritik polarisasi spontan dari BZT yang didoping dengan Indium yang nilainya sebesar 22.93 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$.

Kata kunci :

Film tipis, BZT, CSD, doping, ferroelektrik, Polarisasi Spontan

ABSTRACT

Name : Edward Rizky

Study Program : Physics

Title : Characterization and Fabrication of $\text{BaZr}_{(x)}\text{Ti}_{(1-x)}\text{O}_3$ Thin Films
Doped by Indium at Pt Substrate Using CSD (Chemical
Solution Deposition) Method

Experimental study on making of Barium Zirconium Titanate thin films using the CSD (*Chemical Solution Deposition*) method on Pt substrate is reported. The ratio between Zr : Ti, annealing temperature, film thickness, and annealing temperature holding time are the variable to achieve best BZT thin films. BZT with Zr : Ti ratio 0,1 : 0,9, annealing temperature 800°C, and layer number 5 are the best result acquired. The best BZT result is used as variable for doping with Indium, then the result will be analyzed and calculated the spontaneous polarization teoritically from BZT doped by Indium and the spontaneous polarization is 22.93 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$.

Keywords :

Thin films, BZT, CSD, doping, ferroelectric, Spontaneous Polarization

DAFTAR ISI

Halaman

HALAMAN PERNYATAAN ORISINALITAS.....	ii
LEMBAR PENGESAHAN	iii
KATA PENGANTAR	iv
LEMBAR PERSETUJUAN PUBLIKASI KARYA ILMIAH	v
ABSTRAK	vi
ABSTRACT.....	vii
DAFTAR ISI.....	viii
DAFTAR GAMBAR	x
DAFTAR TABEL.....	xii
1. PENDAHULUAN	1
1.1 Latar Belakang Masalah	1
1.2 Batasan Penelitian.....	4
1.3 Tujuan Penelitian	5
1.4 Metode Penelitian	5
2. TINJAUAN PUSTAKA.....	6
2.1 Polarisasi Elektronik.....	6
2.2 Material Ferroelektrik.....	8
2.2.1 Mekanisme Ferroelektrik.....	9
2.2.2 Film Tipis Barium Zirkonium Titanat	11
2.3 Film Tipis BZT Pada Substrat Si dan Pt.....	12
2.4 Metode CSD (Chemical Solution Deposition)	13
2.4.1 Proses Kimia.....	15
2.4.2 Proses Spin Coating.....	16
2.4.3 Pyrolisis dan <i>Annealing</i>	17
2.5 Teori Pendopongan.....	18
2.6 X-Ray Diffraction (XRD).....	19
2.7 Scanning Electron Microscope (SEM)	24
2.8 Pengukuran Ukuran Butir dan Strain Mikro.....	25
2.9 Polarisasi Spontan.....	26

3. METODE PENELITIAN.....	28
3.1 Diagram Alir Penelitian	28
3.1.1 Bahan dan Peralatan Penelitian	29
3.1.2 Tahapan Penelitian	29
3.2 Preparasi Sampel	30
3.3 Pengambilan Data.....	32
3.4 Analisis Data.....	32
4. HASIL DAN PEMBAHASAN	34
4.1 Identifikasi Fase BZT Terbaik Dengan Variasi Beberapa Variabel	34
4.1.1 Variasi Temperatur <i>Annealing</i>	34
4.1.2 Variasi Jumlah Lapisan Film Tipis.....	36
4.1.3 Variasi Persen Mol Zirkonium	38
4.2 Identifikasi Fase BZT Yang Telah Didoping Dengan Indium.....	41
4.3 Perhitungan Polarisasi Spontan Film Tipis BIZT.....	46
4.4 Identifikasi Hasil SEM Pada Film Tipis BIZT	48
5. KESIMPULAN DAN SARAN	51
5.1 Kesimpulan.....	51
5.2 Saran	52
DAFTAR ACUAN	53
LAMPIRAN	

DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1. Dipol Elektrik.....	6
Gambar 2.2. Proses Terjadinya Polarisasi.....	7
Gambar 2.3. Polarisasi Elektronik, Ionik, dan Orientasi.....	8
Gambar 2.4. Struktur Perovskite Pada Fase Kubik dan Tetragonal.....	8
Gambar 2.5. Golongan Pada Kristal Berdasarkan Simetri Kristal.....	9
Gambar 2.6. Kurva Histerisis Material Ferroelektrik PbTiO_3	11
Gambar 2.7. Struktur Perovskite.....	12
Gambar 2.8. Ilustrasi Alat Spin Coating.....	16
Gambar 2.9. Dua Cara Menghasilkan Sinar-X.....	20
Gambar 2.10. Hukum Bragg.....	22
Gambar 2.11. Ilustrasi Alat XRD.....	23
Gambar 2.12. Perangkat SEM.....	24
Gambar 3.1. Diagram Alir Penelitian.....	28
Gambar 3.2. Diagram Alir Preparasi Sampel BZT.....	30
Gambar 3.3. Diagram Alir Preparasi Sampel BZT Dengan Doping Indium.....	31
Gambar 4.1. Grafik Perbandingan BZT Dengan Variasi Temperatur.....	35
Gambar 4.2. Grafik Perbandingan BZT Dengan Variasi Temperatur Pada Sudut $35^\circ - 38^\circ$	35
Gambar 4.3. Grafik Perbandingan BZT Dengan Variasi Jumlah Lapisan.....	37
Gambar 4.4. Grafik Perbandingan BZT Dengan Variasi Jumlah Lapisan Pada Sudut $35^\circ - 38^\circ$	37
Gambar 4.5. Grafik Perbandingan BZT Dengan Variasi Mol Zirkonium.....	39
Gambar 4.6. Grafik Perbandingan BZT Dengan Variasi Mol Zirkonium Pada Sudut $35^\circ - 38^\circ$	39

Gambar 4.7. Grafik Perbandingan BZT Dengan Doping Indium 0-4%	41
Gambar 4.8. Grafik Perbandingan BZT Dengan Doping Indium 0-4% Pada Sudut 35° - 38°	42
Gambar 4.9. Grafik Parameter Kisi a	43
Gambar 4.10. Grafik Parameter Kisi c	43
Gambar 4.11. Grafik Rasio Perbandingan Parameter Kisi c/a	44
Gambar 4.12. Grafik Ukuran Butir Rata-rata BIZT	45
Gambar 4.13. Grafik Nilai Polarisasi Spontan Pada BIZT	47
Gambar 4.14. Hasil SEM BIZT 1% Dengan Perbesaran 500x	48
Gambar 4.15. Hasil SEM BIZT 2% Dengan Perbesaran 500x	49
Gambar 4.16. Hasil SEM BIZT 3% Dengan Perbesaran 500x	49
Gambar 4.17. Hasil SEM BIZT 4% Dengan Perbesaran 500x	50

DAFTAR TABEL

Tabel 1.	Perkembangan Ferroelektrik	2
Tabel 2.1.	Metode Pembuatan Film Tipis	14
Tabel 2.2.	Ion yang Dapat Digunakan Sebagai Soft Doping	18
Tabel 2.3.	Ion yang Dapat Digunakan Sebagai Hard Doping	19
Tabel 4.1.	Ukuran Butir BZT Dengan Variasi Temperatur	36
Tabel 4.2.	Ukuran Butir BZT Dengan Variasi Jumlah Lapisan	38
Tabel 4.3.	Ukuran Butir BZT Dengan Variasi Mol Zirkonium	40
Tabel 4.4.	Parameter Kisi BIZT 0-4%	42
Tabel 4.5.	Ukuran Butir Rata-rata BIZT 0-4%	45
Tabel 4.6.	Nilai Polarisasi Spontan BIZT 0-4%	47

BAB 1

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang Masalah

Ferroelektrik adalah sifat yang dimiliki oleh beberapa material tertentu yang dapat mengalami polarisasi secara spontan akibat adanya medan listrik dari luar. Fenomena ferroelektrik sendiri sudah ditemukan semenjak tahun 1920 oleh J. Valasek yang menyelidiki sifat dari garam Rochelle ($\text{NaKC}_4\text{H}_4\text{O}_6 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$). Juga BaTiO_3 yang ditemukan oleh A von Hippel pada tahun 1944 yang penemuan awalnya berasal dari konstanta dielektrik yang tinggi dari sebuah kapasitor yang berbahan dasar barium titanat (Hikam, 2007). Semenjak penemuan material ferroelektrik ini, mulailah banyak pengembangan industri untuk menemukan aplikasi terbaru dari material ferroelektrik pada zaman tersebut seperti kapasitor dengan konstanta dielektrik yang tinggi dan pengembangan transduser piezoelektrik. Barium titanat dan timbal zirkonium titanat mendominasi pengembangan material ferroelektrik pada zaman tersebut (Haertling, 1999).

Pada tahun akhir tahun 1980, perkembangan material ferroelektrik tertuju kepada metode pembuatan film tipis ferroelektrik dengan teknik deposisi seperti *sputtering*, *pulsed laser deposition* (PLD), *chemical solution deposition* (CSD), dan *chemical vapour deposition* (CVD). Pada proses deposisi ini tidak membutuhkan temperatur *annealing* yang terlalu tinggi jika dibandingkan dengan proses pembuatan menggunakan bubuk (Adem, 2003; Daglish, 2000).

Film tipis ferroelektrik cukup menarik perhatian untuk aplikasi elektronik pada akhir tahun 1989. Perhatian tertuju pada ditemukannya memori non volatil ferroelektrik atau FeRAM (*ferroelectric random access memories*), kemudian diikuti dengan pengembangan film tipis ferroelektrik yang digunakan sebagai bahan dielektrik dengan permitivitas tinggi untuk aplikasi DRAM (*dynamic random access memories*) (Adem 2003).

Perkembangan dari material yang terkait dengan ferroelektrik dari tahun 1824 hingga saat ini dapat dilihat pada tabel 1.

Tabel 1 : Perkembangan Ferroelektrik (Haertling, 1999; Scott, 2007)

Tahun	Perkembangan
1824	Pyroelektrik ditemukan pada garam Rochelle
1880	Piezoelektrik ditemukan pada garam Rochelle, quartz, dan mineral lainnya
1912	Ferroelektrik pertama kali diajukan sebagai sifat dari benda padat
1921	Ferroelektrik ditemukan pada garam Rochelle
1935	Ferroelektrik ditemukan pada KH_2PO_4
1941	Kapasitor BaTiO_3 dengan kapasitansi >1200 dikembangkan
1944	Ferroelektrik ditemukan pada tipe- ABO_3 Perovskite
1945	BaTiO_3 dilaporkan dapat digunakan sebagai piezo transduser
1949	Teori BaTiO_3 secara logis diperkenalkan
1949	LiNbO_3 dan LiTaO_3 dilaporkan memiliki sifat ferroelektrik
1951	Konsep dari anti-ferroelektrik diperkenalkan
1952	PZT dilaporkan sebagai material ferroelektrik dengan sistem larutan padat, diagram fase dibentuk
1953	PbNb_2O_6 dilaporkan sebagai material ferroelektrik
1954	PZT dilaporkan dapat digunakan sebagai piezo transduser
1955	Dilaporkan adanya efek PTC pada BaTiO_3
1955	Pengendapan kimia material ferroelektrik diperkenalkan
1955	Alkali Niobates dilaporkan sebagai material ferroelektrik
1957	Kapasitor pembatas lapisan BaTiO_3 dikembangkan
1961	Teori lattice dynamics untuk material ferroelektrik diperkenalkan

1964	Sintering dengan oksigen untuk material ferroelektrik diperkenalkan
1964	Perangkat semikonduktor ferroelektrik (PTC) dikembangkan
1967	Sifat optik dari keramik ferroelektrik yang diberikan perlakuan hot press dilaporkan
1969	Istilah ferroic dan ferroelasticity diperkenalkan
1969	Sifat transparant optik ditemukan pada PLZT yang diberi perlakuan hot press
1970	Diagram fasa komposisi PLZT dibentuk
1971	Sifat elektrik dan optik dari PLZT dilaporkan
1973	Sintering dengan oksigen untuk material PLZT diperkenalkan
1977	Film tipis ferroelektrik dikembangkan
1978	Komposit material ferroelektrik yang dimodifikasi dikembangkan
1980	Perangkat elektristriktif relaxor PMN dikembangkan
1981	Teknik sol-gel dikembangkan untuk membuat film tipis ferroelektrik
1983	Efek fotostriktif dilaporkan pada material PZT dan PLZT
1993	Teknologi penggabungan film tipis ferroelektrik dengan silikon
1997	Relaxor material single crystal dikembangkan untuk transduser piezoelektrik

Di Universitas Indonesia sendiri perkembangan material yang terkait dengan material ferroelektrik sudah dimulai sejak tahun 1994 dengan mengembangkan material BaTiO_3 , kemudian dilanjutkan dengan dengan penelitian pembuatan piranti lunak untuk menentukan orientasi dominan, ukuran butir dan strain mikro. Pada tahun 2002-2004 dilanjutkan dengan penumbuhan film tipis bahan pyroelektrik PZT dengan metode spin coating. Kemudian bahan

ferroelektrik PZT didoping dengan Galium untuk dibuat untuk transformer efisiensi tinggi dan sel surya pada tahun 2004-2005. Pada tahun 2006-2008 dilakukan pengembangan lapisan tipis BST yang didoping dengan Al, Mg, In, Ga, dan Nb yang diaplikasikan untuk memori ferroelektrik (Hikam, 2011; Irzaman 2006).

Studi terakhir tentang material ferroelektrik adalah memperdalam struktur material ferroelektrik dalam skala nano dan mencoupling sifat ferroelektrik dengan sifat magnetik dan sifat piezoelektrik, sehingga memunculkan golongan material baru, yaitu material multi ferroic (Scott, et al., 2007).

Pada penelitian ini, film tipis Barium Zirkonium Titanat dibuat dengan metode CSD (Chemical Solution Deposition) pada substrat Si/Pt dengan teknik spin coating. Untuk mengkarakterisasi kristalografi dan perhitungan polarisasi spontan dari film tipis akan dilakukan pengujian XRD.

1.2 Batasan Penelitian

Penelitian ini dibatasi oleh variabel perlapisan larutan sebanyak 3, 4, dan 5 lapisan. Kemudian temperatur *annealing* yang digunakan adalah 700°C, 800°C, dan 900°C, lalu dilakukan variasi komposisi $\text{BaZr}_{(x)}\text{Ti}_{(1-x)}\text{O}_3$ dengan nilai $x = 0, 0.1, 0.15, 0.2, 0.25, \text{ dan } 0.3$. Pada penelitian ini hanya menggunakan metode CSD (*Chemical Solution Deposition*). Variasi pendopingan Indium pada penelitian ini hanya sampai 4% mol dari atom barium. Selanjutnya sampel akan dikarakterisasi dengan menggunakan XRD dan sampel di lakukan pengujian SEM untuk melihat morfologi permukaan sampel BZT yang didoping oleh Indium.

1.3 Tujuan Penelitian

Tujuan penelitian ini adalah :

1. Mempelajari cara dan tahap pembuatan film tipis Barium Zirkonium Titanat dengan metode CSD (*Chemical Solution Deposition*)
2. Melakukan karakterisasi sampel film tipis Barium Zirkonium Titanat yang sudah didoping dengan Indium menggunakan XRD dan SEM
3. Menganalisis perhitungan secara teoritik polarisasi spontan dari film tipis yang sudah dibuat berdasarkan hasil analisis kristalografi

1.4 Metodologi Penelitian

Penelitian ini dibagi menjadi 3 tahap, yaitu tahap pertama adalah pembuatan film tipis dengan metode CSD (*chemical solution deposition*) dengan variasi perlapisan dan temperatur *annealing*. Tahap kedua adalah menentukan hasil terbaik dari variasi perlapisan dan temperatur *annealing*. Kemudian membuat sampel BIZT dengan hasil BZT terbaik yang didoping dengan Indium dari konsentrasi 1% hingga 4%. Kemudian melakukan karakterisasi sampel yang telah dibuat dengan menggunakan XRD dan SEM. Tahap terakhir adalah melakukan analisis kristal dari film tipis yang sudah dibuat dan perhitungan polarisasi spontan secara teoritik.

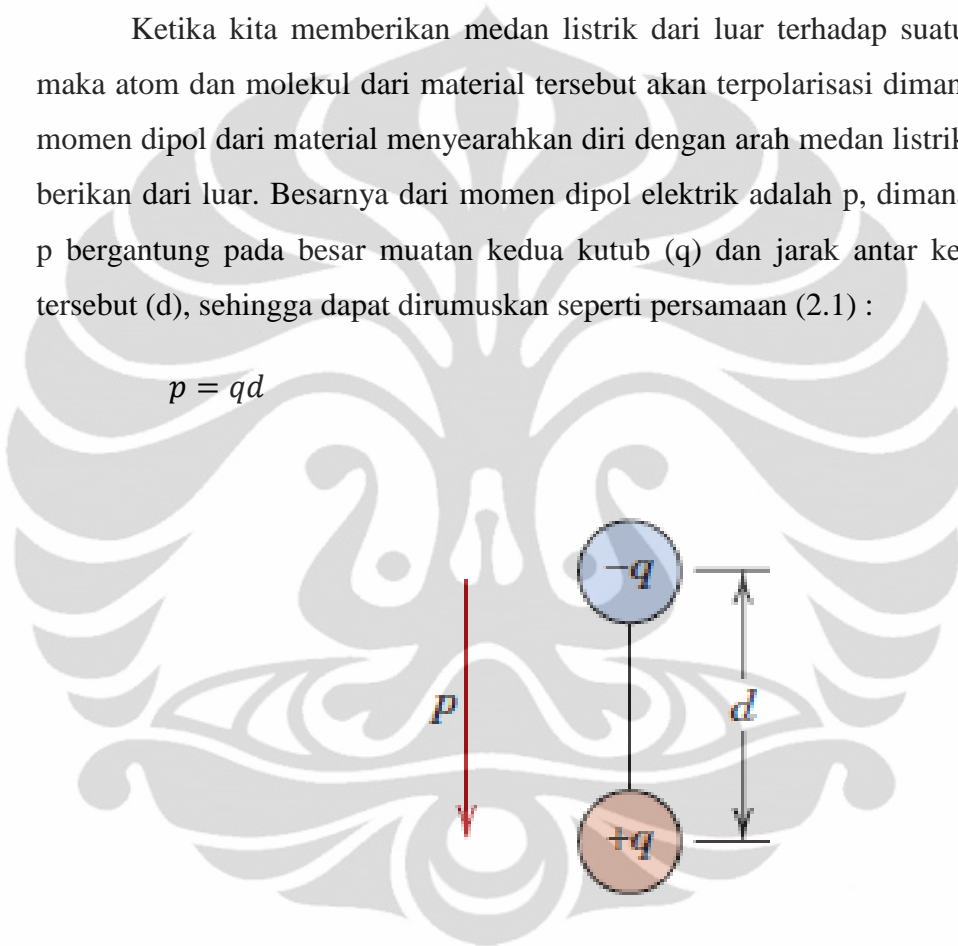
BAB II

TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Polarisasi Elektronik

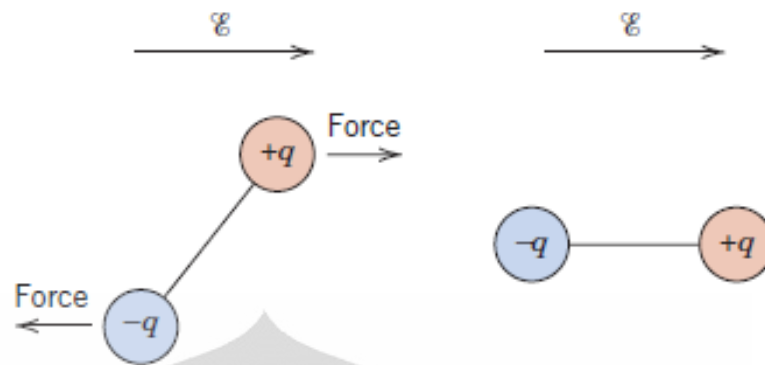
Ketika kita memberikan medan listrik dari luar terhadap suatu material, maka atom dan molekul dari material tersebut akan terpolarisasi dimana momen-dipol dari material menyearahkan diri dengan arah medan listrik yang kita berikan dari luar. Besarnya dari momen dipol elektrik adalah p , dimana besarnya p bergantung pada besar muatan kedua kutub (q) dan jarak antar kedua kutub tersebut (d), sehingga dapat dirumuskan seperti persamaan (2.1) :

$$p = qd \quad (2.1)$$



Gambar 2.1 : Dipol elektrik (Callister, 2007)

Dalam realitanya, momen dipol biasanya digambarkan dengan vektor yang memiliki arah dari muatan negatif menuju muatan positif seperti yang digambarkan pada gambar 2.1. Ketika terdapat medan listrik E , dimana medan listrik juga merupakan besaran vektor, akan ada gaya yang mengakibatkan momen dipol menyearahkan diri dengan arah medan listrik dari luar, fenomena penyearahan momen dipol ini disebut dengan polarisasi (gambar 2.2)

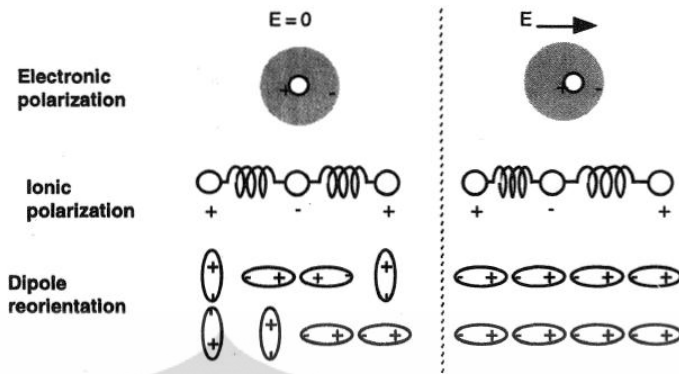


Gambar 2.2 : Proses terjadinya polarisasi (Callister, 2007)

Ketika sebuah material diberikan medan listrik, maka akan ada ukuran mudah atau tidaknya material tersebut terpolarisasi. Hubungan antara medan listrik (E) dan polarisasi (P) dapat digambarkan dengan suseptibilitas elektrik (χ), yaitu ukuran seberapa mudah material terpolarisasi akibat adanya medan listrik dari luar.

$$P = \chi \varepsilon_0 E \quad (2.2)$$

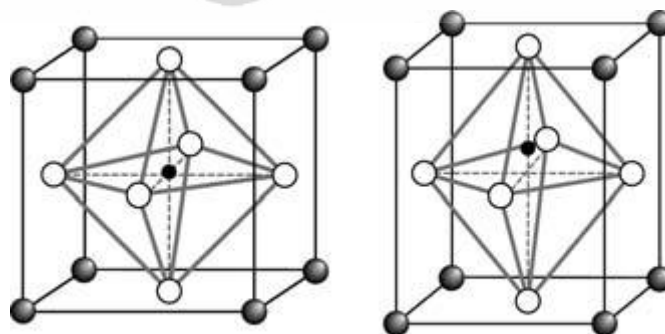
Polarisasi yang terdapat material dapat dibagi menjadi 3 jenis polarisasi yaitu, polarisasi elektronik, polarisasi ionik, dan polarisasi orientasi. Material dielektrik biasanya akan mengalami salah satu dari tipe polarisasi diatas bergantung pada jenis material dielektrik dan perlakuan dari medan listrik dari luar yang kita berikan. Polarisasi elektronik adalah polarisasi yang diakibatkan oleh terjadinya perpindahan dari nukleus pada atom yang bermuatan positif yang dikelilingi oleh awan elektron yang bermuatan negatif akibat adanya medan listrik dari luar. Polarisasi ionik adalah polarisasi yang diakibatkan oleh medan listrik dari luar yang mengubah posisi kation dan anion, dimana kation akan bergerak berlawanan arah dengan medan listrik sedangkan anion akan bergerak berlawanan dengan medan listrik. Polarisasi orientasi adalah polarisasi yang diakibatkan oleh rotasi dari momen dipol yang permanen yang mempunyai arah sesuai dengan arah medan listrik dari luar yang diberikan (Uchino, 2000).



Gambar 2.3 : Polarisasi elektronik, ionik, dan orientasi (Uchino, 2000)

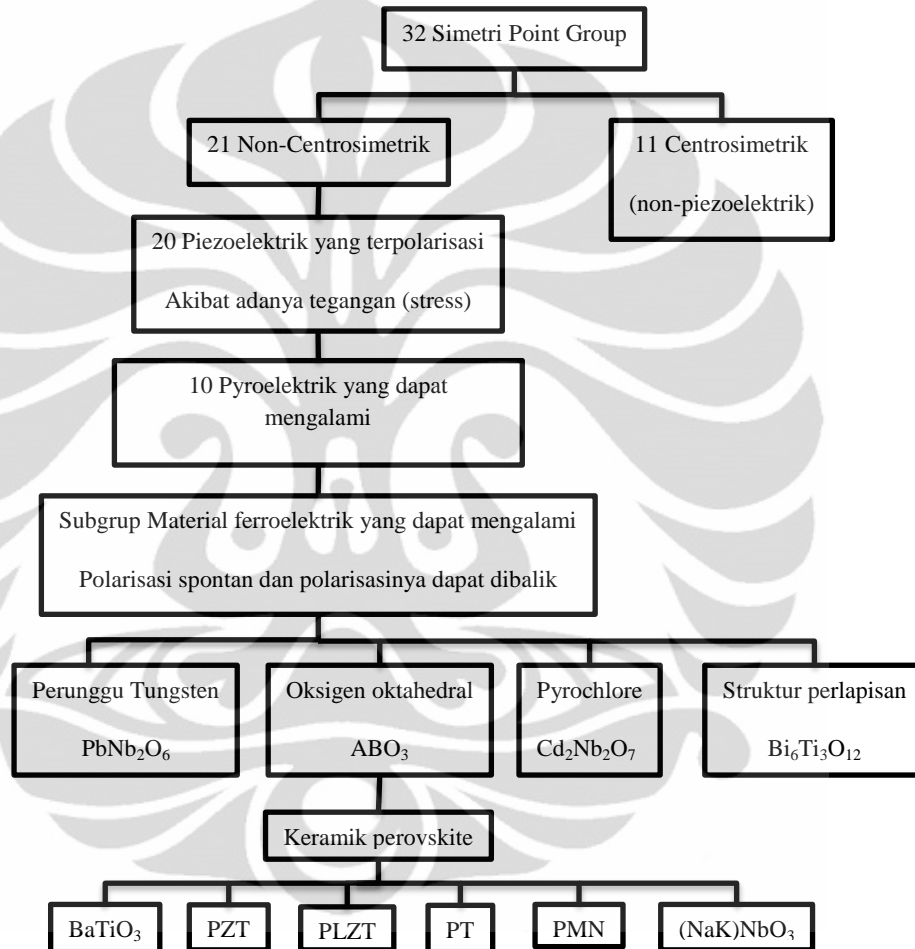
2.2 Material Ferroelektrik

Ferroelektrik adalah sifat yang dimiliki oleh beberapa material dimana material tersebut dapat mengalami polarisasi secara spontan akibat adanya medan listrik dari luar (Son Hoang, n.d.). Material yang mempunyai sifat ferroelektrik umumnya adalah material yang mempunyai struktur kristal perovskite (gambar 2.4). Atom yang berada pada pusat struktur perovskite berada pada posisi kesetimbangan ketika tidak ada medan luar dengan distribusi muatan secara keseluruhan tersebar secara merata, namun ketika diberikan medan listrik dari luar maka posisi atom yang berada di pusat tidak tepat berada di pusat struktur, melainkan condong ke atas atau ke bawah mengikuti arah medan listrik yang diberikan, sehingga distribusi muatan pada kristal tidak lagi merata (Moura, 2008).



Gambar 2.4 : Struktur perovskite pada fase kubik dan tetragonal (Mayergoyz, 2006)

Gambar 2.5 menunjukkan golongan pada kristal berdasarkan simetri kristal. Material ferroelektrik yang dipakai untuk perkembangan teknologi merupakan keramik yang mempunyai struktur perovskite meliputi BaTiO_3 (Barium Titanat), PZT (Timbal Zirkonat Titanat), PLZT (Timbal Lanthanum Zirkonat Titanat), PT (Timbal Titanat), PMN (Timbal Magnesium Niobat), dan larutan padat dari elemen lain yang membentuk struktur perovskite (Adem, 2003).



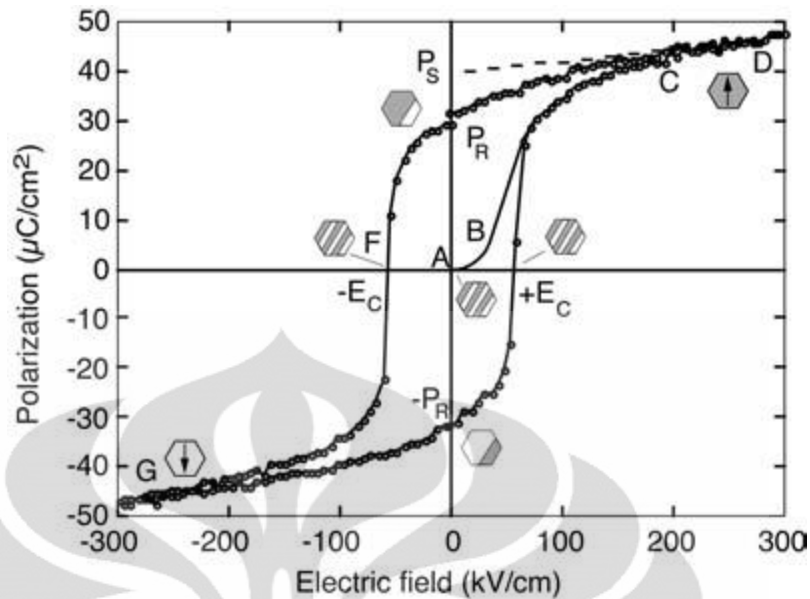
Gambar 2.5 : Golongan pada kristal berdasarkan simetri kristal (Haertling, 1999)

2.2.1 Mekanisme ferroelektrik

Material ferroelektrik yang pada kondisi tanpa medan listrik dari luar distribusi total muatannya akan sama dengan nol, yaitu terjadi kesetimbangan sehingga tidak terdapat polarisasi (Agrawal, n.d.). Ketika medan listrik dari luar diberikan maka distribusi total muatan tidak sama dengan nol karena atom yang

berada di pusat kristal berpindah posisi sesuai dengan arah medan listrik yang diberikan dan akan terjadi kelebihan muatan di salah satu sisi kristal sehingga terjadi polarisasi. Diatas temperatur Curie material ferroelektrik berada pada struktur sentrosimetrik dan tidak akan menghasilkan polarisasi spontan, fase ini dikenal sebagai fase paraelektrik. Ketika material suhunya diturunkan hingga temperaturnya berada dibawah temperatur Curie maka material tersebut berada pada struktur non-sentrosimetrik, fase material berubah dari keadaan paraelektrik menjadi keadaan ferroelektrik (Daglish, 2000).

Hubungan antara medan listrik dengan polarisasi pada material ferroelektrik tidak linear, melainkan membentuk kurva histerisis (gambar 2.6). Ketika medan listrik diberikan domain menyearahkan diri dengan medan listrik yang diberikan secara linear. Ketika medan listrik semakin besar dan domain semakin mudah menyearahkan diri maka polarisasi akan terjadi semakin cepat. Ketika semua domain sudah menyearahkan diri dan arah dari polarisasi mengalami saturasi, sehingga medan listrik sudah tidak mempengaruhi polarisasi, titik maksimum polarisasi ini dinamakan polarisasi saturasi (P_s , polarization saturation). Ketika medan listrik dihilangkan, nilai polarisasi akan turun ke nilai tertentu, titik ini dinamakan polarisasi remanen (P_r , remanent polarization). Pemberian medan listrik pada arah berlawanan secara terus menerus akan mengakibatkan arah domain menjadi acak seperti awal, medan yang dibutuhkan untuk membuat polarisasi menjadi nol dinamakan medan koersif (E_c), kemudian polarisasi akan mengalami saturasi pada arah yang berlawanan. Jika diberi medan listrik yang arahnya berlawanan kembali maka akan terbentuk kurva histerisis (Son Hoang, n.d.).

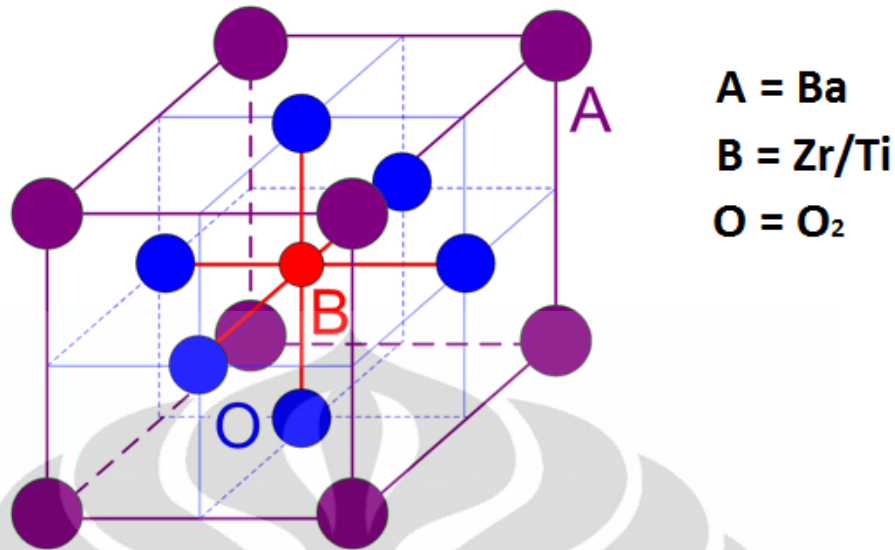


Gambar 2.6 : Kurva histerisis material ferroelektrik PbTiO_3 (Mayergoyz, 2006)

2.2.2 Film Tipis Barium Zirkonium Titanat

Dalam beberapa tahun terakhir banyak penelitian material keramik yang bebas timbel (Pb) yaitu $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$. Dilihat dari komposisinya, beberapa diantaranya menghasilkan sifat ferroelektrik yang bergantung pada substitusi ionik dan laju substitusi. Beberapa material ini cukup bernilai tinggi karena tidak mengandung timbel (Pb). Keramik barium zirkonium titanat, $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ adalah campuran yang dapat menghasilkan sifat paraelektrik dan ferroelektrik yang bergantung pada komposisi dan temperatur (Zhai, 2004).

Film tipis dan keramik $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ cukup menyita perhatian karena memiliki level strain yang tinggi dan efek piezoelektrik yang tinggi pada single kristal maupun keramik. Lebih lanjut, sistem menunjukkan adanya sedikit transisi fase dengan meningkatnya konsentrasi Zr, hasil ini didapat dengan mensubstitusi ion pada bagian B dari BaTiO_3 dengan Zr pada struktur perovskite (gambar 2.7). Hasil penelitian juga menunjukkan meningkatnya konsentrasi Zr mengakibatkan berkurangnya ukuran grain rata-rata, mengurangi konstanta dielektrik, dan menjaga arus bocor tetap rendah dan stabil. Hal ini dapat terjadi, karena ion Zr^{4+} mempunyai ukuran ion yang lebih besar (0,087 nm) dibandingkan dengan Ti^{4+} (0,068 nm) (Zhai, 2006).



Gambar 2.7 : Struktur perovskite (Sheng-Yuan, 2007)

$\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ mempunyai sistem kristal orthorombik atau rhombohedral pada temperatur ruang. Diperkirakan sifat ferroelektrik dapat ditingkatkan pada suhu ruang pada film tipis BZT dengan orientasi $\{1\ 0\ 0\}$. Karena $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$ dapat diaplikasikan ke kapasitor, perangkat microwave, aktuator, dan DRAM (dynamic random access memories), efek dari ketebalan menjadi faktor yang penting dalam mempengaruhi sifat ferroelektrik (Haiyan, 2008).

2.3 Film tipis BZT pada substrat Si dan Pt

Interaksi antara film tipis dengan substrat dapat menjadi faktor yang sangat penting dalam menentukan sifat elektrik dari film. Ketika sebuah film terintegrasi ke sebuah perangkat, ada *interface* antara film dengan substrat, dan antara film dengan satu atau lebih elektroda yang dideposisikan di atas film. Biasanya perangkat yang digunakan akan dipakai untuk proses selanjutnya, melibatkan pemanasan sistem hingga sekian derajat, sehingga interaksi antara film dengan perangkat dapat terlihat secara jelas (Adem, 2003).

Emas dan perak bereaksi dengan struktur perovskite selama proses pembuatan, oleh karena itu hanya platina yang tersisa sebagai logam yang layak untuk dijadikan elektroda film ferroelektrik-dielektrik. Platina memiliki nilai

konduktivitas termal yang tinggi, stabilitas yang baik di lingkungan oksigen pada suhu tinggi, dan arus bocor (*leakage current*) yang rendah (Adem, 2003).

Masalah yang sering dihadapi penggunaan substrat Pt/Si sebagai elektroda adalah terbentuknya Hillocks pada permukaan substrat ketika sintering. Hillocks adalah cembungan tipis yang mengarah ke luar dari permukaan logam (Pt/Si) pada proses sintering. Pembentukan Hillocks menjadi hambatan dalam pengembangan perangkat ferroelektrik, karena Hillocks memungkinkan terjadinya hubungan arus pendek (*short*) pada kapasitor ferroelektrik. Hillocks diduga terbentuk akibat pelepasan tegangan kompresif film Pt pada saat sintering (Adem, 2003).

2.4 Metode CSD (*Chemical Solution Deposition*)

Film tipis BZT merupakan polikristal yang sifatnya sangat dipengaruhi oleh komposisi, stoikiometri, struktur mikro (ukuran butiran dan distribusi ukuran butiran), ketebalan film, karakteristik dari elektroda yang digunakan, dan homogenitas dari film. Metode pertumbuhan kristal film tipis BZT sangat mempengaruhi komposisi, stoikiometri, kristanilitas, dan ukuran butiran. Berbagai metode (tabel 2.1) seperti chemical solution deposition (CSD), pulsed laser deposition (PLD), sputtering, dan chemical vapour deposition (CVD) dapat digunakan untuk membuat film tipis BZT. Metode-metode tersebut mempunyai kelebihan dan kekurangan masing-masing dalam hal homogenitas, temperatur saat proses pembuatan dan biaya yang dibutuhkan (Adem, 2003).

Metode CSD merupakan salah satu metode untuk fabrikasi film tipis, dan metode CSD ini meliputi spin coating, pyrolisis, dan *annealing*. Larutan yang sudah dibuat dengan stoikiometrik yang ditentukan kemudian dideposisikan ke atas substrat dengan proses spin coating. Setelah proses spin coating, dilakukan proses pyrolisis untuk menguapkan pelarut dan menghilangkan bahan organik yang terdapat pada material, juga untuk pengkristalisasi awal ke fase perovskite. Kemudian proses deposisi dan pyrolisis dilakukan secara berulang kali untuk mendapatkan ketebalan film yang kita inginkan. Kemudian dilakukan proses *annealing* untuk mengubah struktur kristal menjadi perovskite secara keseluruhan

dan menghilangkan bahan organik yang masih tersisa (Dixit, 2002; Nakamura, 2002).

Tabel 2.1 : Metode pembuatan film tipis (Adem, 2003)

Metode	Kelebihan	Kekurangan
Chemical Solution Deposition (CSD)	<ul style="list-style-type: none"> - Biaya tidak terlalu mahal - Dapat membuat sampel dengan waktu yang tidak terlalu lama - Homogenitas - Tidak membutuhkan temperatur tinggi untuk pembuatan 	<ul style="list-style-type: none"> - Kontrol fase - Morfologi - Sulit memproduksi sampel yang sama dengan sebelumnya
Pulsed Laser Deposition (PLD)	<ul style="list-style-type: none"> - Dapat membuat sampel dengan waktu yang tidak terlalu lama - Dapat memproduksi sampel yang sama dengan waktu yang cepat 	<ul style="list-style-type: none"> - Morfologi - Konsentrasi point defect - Terbatas untuk material tertentu - Uniformitas - Residual stress tinggi
Sputtering	<ul style="list-style-type: none"> - Biaya tidak terlalu mahal - Uniformitas - Dapat digunakan untuk membuat banyak jenis material 	<ul style="list-style-type: none"> - Konsentrasi point defect - Residual stress - Kontrol stoikiometri - Laju deposisi yang lambat untuk material oksida

	<ul style="list-style-type: none"> - Tidak membutuhkan temperatur yang tinggi untuk pembuatan 	
Chemical Vapour Deposition (CVD)	<ul style="list-style-type: none"> - Uniformitas - Morfologi - Dapat digunakan untuk membuat banyak jenis material 	<ul style="list-style-type: none"> - Biaya mahal - Ketersediaan prekursor - Teknologi belum berkembang
Molecular Beam Epitaxy (MBE)	<ul style="list-style-type: none"> - Dapat membuat material dengan morfologi yang sangat akurat - Dapat membuat sampel dengan keakuratan hingga skala nano 	<ul style="list-style-type: none"> - Biaya sangat mahal - Membutuhkan waktu yang lama untuk membuat 1 sampel

2.4.1 Proses kimia

Material yang digunakan pada keramik modern dan perangkat berteknologi membutuhkan kemurnian yang tinggi dan kontrol yang baik terhadap komposisi dan struktur mikro dari material yang ingin dibuat. Karena bahan kimia yang digunakan pada metode CSD dapat dimurnikan dengan distilasi dan kristalisasi, maka film tipis dengan kemurnian tinggi dapat dihasilkan dengan metode CSD (Adem, 2003).

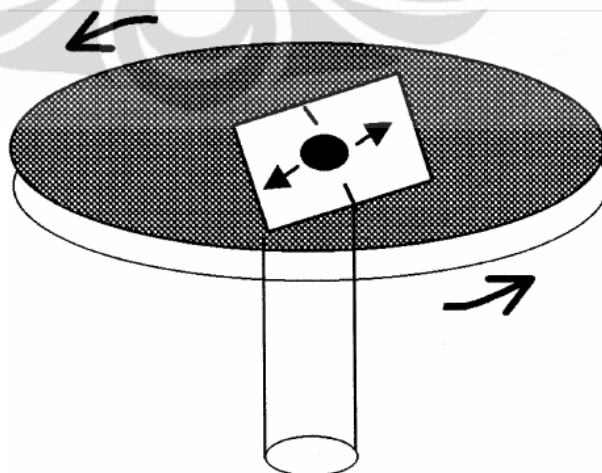
Setelah terjadinya deposisi pada substrat, terjadi proses transformasi dari larutan menjadi padat yang disebut dengan *Gelation*, dimulai dari proses hidrolisis dan kondensasi, reaksinya sebagai berikut :



Dengan R adalah alkali radikan (CH_3 , C_2H_5), reaksi antara *Organometallics* dengan pelarut akan membentuk ikatan M-O-M (*Metal-Oxide-Metal*) dan mengubah larutan menjadi padat (gel). Parameter yang dapat digunakan untuk mempengaruhi derajat *Gelation* antara lain : jumlah air, pelarut, temperatur, dan pH. Keuntungan utama dari metode CSD adalah homogenitas gel, sehingga pengaturan preparasi material menjadi sangat penting (Adem, 2003).

2.4.2 Proses Spin Coating

Ada dua metode utama untuk membuat lapisan (coating) pada metode CSD, yaitu spin coating dan dip coating. Spin coating lebih sering digunakan dibandingkan dengan dip coating, dan pada penelitian ini akan dijelaskan tahap-tahap pada spin coating (Adem, 2003).



Gambar 2.8 : Ilustrasi alat spin coating (Rout, 2007)

Proses dari spin coating secara efektif dapat dibagi menjadi 3 tahap : deposisi dan spin up, spin off, dan pengeringan film (*film drying*). Pada tahap pertama, larutan yang telah dibuat diteteskan di atas substrat menggunakan pipet lalu substrat diputar dengan kecepatan sesuai dengan yang kita inginkan. Larutan yang berada di atas substrat akan menyebar ke arah luar dari lingkaran akibat adanya gaya sentrifugal. Pada tahap kedua, ketika kecepatan mencapai maksimum dan konstan, maka perlahan ketebalan dari film akan berkurang, hal ini diakibatkan oleh menguapnya pelarut yang terdapat pada larutan campuran. Pada tahap terakhir, gaya sentrifugal hilang dan lapisan semakin menipis diakibatkan pelarut yang terus menguap (Rout, 2007).

Keuntungan dari metode spin coating adalah film yang terbuat dari larutan cenderung memiliki ketebalan yang merata selama tahap spin off, setelah merata film cenderung untuk tetap merata dan berlaku untuk setiap substrat yang digunakan. Kecenderungan untuk mendapat ketebalan yang merata didapatkan dari keseimbangan antara dua gaya utama yang berkerja saat proses berlangsung, yaitu gaya sentrifugal yang menyebabkan larutan bergerak menyebar ke arah luar dari lingkaran dan gaya viskositas (gaya gesek), yang mengarah ke pusat rotasi (Adem, 2003).

2.4.3 Pyrolisis dan Annealing

Pada metode CSD, ketika substrat telah dideposisi dengan larutan yang dibuat menggunakan metode spin coating, maka larutan tersebut akan mengalami perlakuan pyrolisis. Pyrolisis dalam metode CSD ini adalah dengan memanaskan sampel pada suhu dimana zat pelarut yang terkandung dalam sampel akan menguap. Serta tujuan lain dari pyrolisis ini adalah untuk pengkristalisasi awal ke fase pervoskite (Dixit, 2002).

Setelah dilakukan pyrolisis, sampel akan dimasukkan ke alat furnace untuk dilakukan proses *annealing*. Sampel akan dipanaskan pada suhu diatas suhu kristalisasinya, kemudian ditahan suhunya dengan waktu tertentu kemudian didinginkan secara perlahan. Annealing biasanya mempunyai fungsi untuk membuat sifat material menjadi lentur (*ductile*), menghilangkan tegangan internal

(*internal stress*), dan memperbaiki struktur material menjadi homogen (Dixit, 2002).

2.5 Teori Pendopongan

Untuk mendapatkan sifat yang kita inginkan dari material yang kita buat maka dapat dilakukan pendopongan. Pendopongan dapat dilakukan dengan ion yang memiliki jari-jari yang sebanding dengan jari-jari ion yang terdapat dalam material yang kita buat. Jenis pendopongan pada material dapat dibagi menjadi 2 jenis, yaitu *soft doping* dan *hard doping*. Perlakuan *soft doping* membuat material memiliki sifat resistivitas elektrik yang lebih tinggi, medan koersif yang rendah, polarisasi remanen yang tinggi, konstanta dielektrik yang tinggi, kehilangan sifat dielektrik yang lebih besar, dan mengurangi laju penuaan. Perlakuan *hard doping* membuat material memiliki sifat konstanta dielektrik yang rendah, kehilangan sifat dielektrik lebih rendah, laju penuaan yang tinggi (Yakovlev, 2004).

Bahan pendopongan yang dapat digunakan sebagai hard doping dan soft doping ditunjukkan pada tabel 2.2.

Tabel 2.2 : Ion yang dapat digunakan sebagai soft doping (Yoven, 2009; Xu, 2000)

Ion Kecil	Jari-jari Ion (Å)	Ion Besar	Jari-jari Ion (Å)
Ti ⁴⁺	0,68	Pb ²⁺	1,32
Zr ⁴⁺	0,79	La ³⁺	1,22
Nb ⁵⁺	0,69	Nd ³⁺	1,15
Ta ⁵⁺	0,68	Sb ³⁺	0,9
Sb ⁵⁺	0,63	Th ⁴⁺	1,10
W ⁶⁺	0,65	Bi ³⁺	1,14
		In ³⁺	0,92

Tabel 2.3 : Ion yang dapat digunakan sebagai hard doping (Yoven, 2009; Xu 2000)

Ion Kecil	Jari-jari Ion (Å)	Ion Besar	Jari-jari Ion (Å)
Ti ⁴⁺	0,68	Pb ²⁺	1,32
Zr ⁴⁺	0,79	K ⁺	1,33
Fe ³⁺	0,67	Na ⁺	0,94
Al ³⁺	0,57	Ga ²⁺	1,41
Sc ³⁺	0,83	Cu ⁺	1,35
Cr ³⁺	0,64		
Mg ²⁺	0,65		

Pada material BZT, ion Barium menempati posisi A pada struktur kristal perovskite, sedangkan ion Titanium menempati posisi B. Ion yang memiliki jari-jari yang sebanding dengan jari-jari ion Barium akan menggantikan ion Barium pada posisi A, sedangkan ion yang memiliki jari-jari yang sebanding dengan jari-jari ion Titanium/Zirkonium akan menempati posisi B untuk menggantikan ion Titanium/Zirkonium.

Penambahan ion Indium yang memiliki jari-jari mendekati jari-jari ion Barium akan menggantikan posisi Barium secara acak. Karena selisih muatan antara ion Indium (In³⁺) dengan ion Barium (Ba²⁺) adalah satu muatan positif, maka gaya elektrostatis antara ion Indium dengan Titanium, sehingga mengakibatkan terlepasnya ion Titanium.

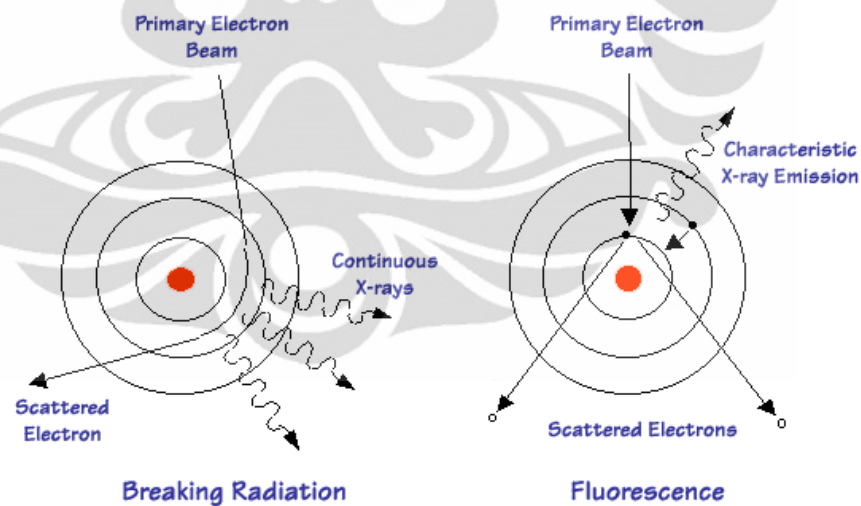
2.6 X-Ray Diffraction (XRD)

XRD atau X-Ray Diffraction merupakan suatu metode untuk mengetahui informasi struktur kristal, identifikasi campuran, analisa kimia secara kuantitatif dan kualitatif, analisa residual stress, distribusi elektron dalam kristal, dan analisa efek temperatur dari interaksi Sinar X terhadap material yang ingin kita uji (Hikam, 2007).

Sinar X ditemukan oleh Wilhem Conrad Rontgen pada tahun 1895, penemuan sinar-x ini membuat Rontgen mendapat hadiah nobel pada bidang

fisika pada tahun 1901. Pada awalnya sinar-x digunakan dalam bidang medis untuk melihat tulang manusia, namun seiring dengan berkembangnya ilmu pengetahuan sinar-x digunakan dalam bidang kristalografi (Bruker, 2001).

Sinar-x dapat dihasilkan dengan 2 cara yaitu dengan Bremsstrahlung yang bersifat kontinu dan sinar-x karakteristik yang bersifat diskrit. Sinar-x Bremsstrahlung terbentuk akibat elektron yang dipercepat oleh beda potensial pada anoda dan katoda mengarah ke inti atom lalu melambat dan berbelok akibat tertarik oleh inti atom yang bermuatan positif. Pada saat elektron melambat, elektron diperlambat akibat ditarik oleh inti atom, pada saat kecepatan elektron berkurang inilah elektron mengemisikan sinar-x. Sinar-x karakteristik adalah sinar-x yang terbentuk akibat elektron menumbuk elektron yang terdapat pada kulit K, sehingga terjadi kekosongan pada kulit K sehingga elektron dari kulit terluar akan mengisi kekosongan tersebut (kulit L, M, N). Pada saat elektron pada kulit terluar berpindah ke kulit K, maka elektron tersebut mengemisikan sinar-x (Bruker, 2001).



Gambar 2.9 : Dua cara menghasilkan sinar-x (X-Ray Analysis Robert Gordon University, 2012)

Gelombang elektromagnetik yang merambat pada suatu material akan berinteraksi dengan material tersebut, interaksi ini terjadi karena sifat listrik dan

magnetik dari dari gelombang EM. Interaksi yang mungkin terjadi ketika sinar-x mengenai suatu material antara lain (Bruker, 2001) :

1. Interaksi Koheren

Interaksi ini terjadi ketika gelombang sinar-x yang datang diserap seluruhnya oleh elektron kemudian diemisikan kembali dengan energi yang sama besar. Jadi pada interaksi ini energi tidak digunakan untuk mengubah keadaan elektron.

2. Interaksi Inkoheren

Interaksi ini terjadi ketika gelombang sinar-x yang datang diserap seluruhnya oleh elektron kemudian diemisikan kembali tidak seluruhnya. Sebagian energi sinar-x yang diserap elektron digunakan untuk mengubah keadaan elektron.

3. Fotoelektron

Interaksi ini terjadi ketika gelombang sinar-x yang datang diserap seluruhnya oleh elektron kemudian energi ini melebihi fungsi kerja elektron sehingga elektron keluar dari atom. Elektron ini disebut foto elektron, efek ini juga dikenal sebagai efek fotolistrik.

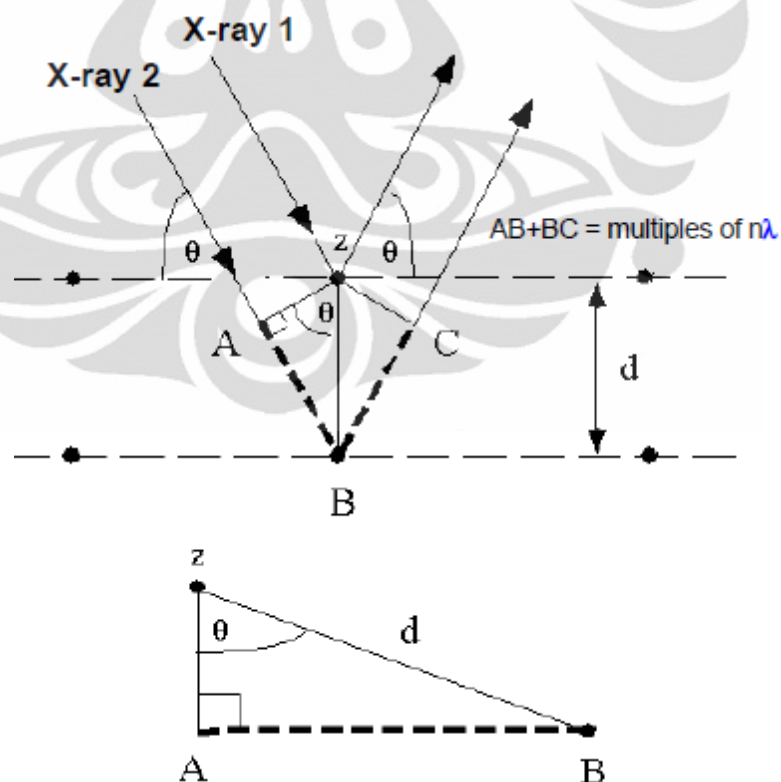
4. Interaksi Fluroscent

Interaksi ini terjadi ketika gelombang sinar-x yang datang diserap oleh elektron pada kulit K kemudian elektron tersebut tereksitasi keluar atom. Karena terjadi kekosongan pada kulit K maka elektron yang berada pada energi yang lebih rendah (kulit L dan M) akan mengisi kekosongan pada kulit K. Pada saat elektron pada kulit L dan M berpindah pada ke kulit K, elektron ini mengemisikan gelombang.

5. Elektron Auger

Interaksi ini terjadi ketika gelombang sinar-x yang datang diserap oleh elektron pada kulit K kemudian elektron tersebut tereksitasi. Pada saat terjadi kekosongan elektron pada kulit K, elektron pada kulit terluar mengisi kekosongan tersebut dan pada saat yang bersamaan elektron dari kulit yang sama tereksitasi untuk menyamakan momentum. Elektron kedua yang tereksitasi ini disebut elektron Auger.

Ketika sebuah badan ditabrak oleh sinar-x, maka ada beberapa kemungkinan yang terjadi, salah satu diantaranya adalah difraksi, hal ini yang menjadi dasar dalam metode difraksi sinar-x. Adalah Sir W.H. Bragg dan anaknya Sir W.L. Bragg yang menemukan hubungan antara jarak antar bidang (d) pada kristal dengan panjang gelombang sinar-x (λ). Sir W.H. Bragg dan Sir W.L. Bragg mendapat nobel dalam bidang fisika pada tahun 1915 untuk penemuannya ini (X-Ray Diffraction Basic, n.d.).



Gambar 2.10 : Hukum Bragg (X-Ray Diffraction Basic, n.d.)

Interferensi konstruktif hanya akan terjadi ketika $AB=BC$, maka :

$$n\lambda = AB + BC \quad (2.3)$$

Karena $AB=BC$, maka :

$$n\lambda = 2AB \quad (2.4)$$

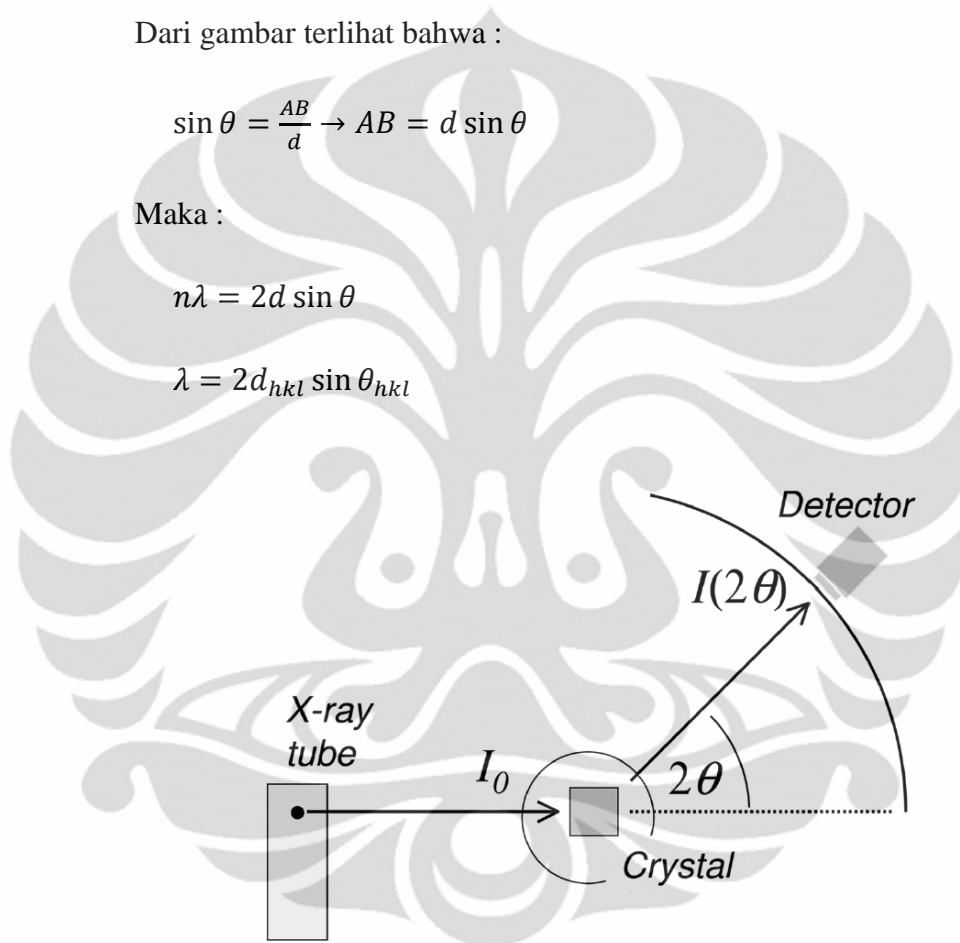
Dari gambar terlihat bahwa :

$$\sin \theta = \frac{AB}{d} \rightarrow AB = d \sin \theta \quad (2.5)$$

Maka :

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (2.6)$$

$$\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta_{hkl} \quad (2.7)$$

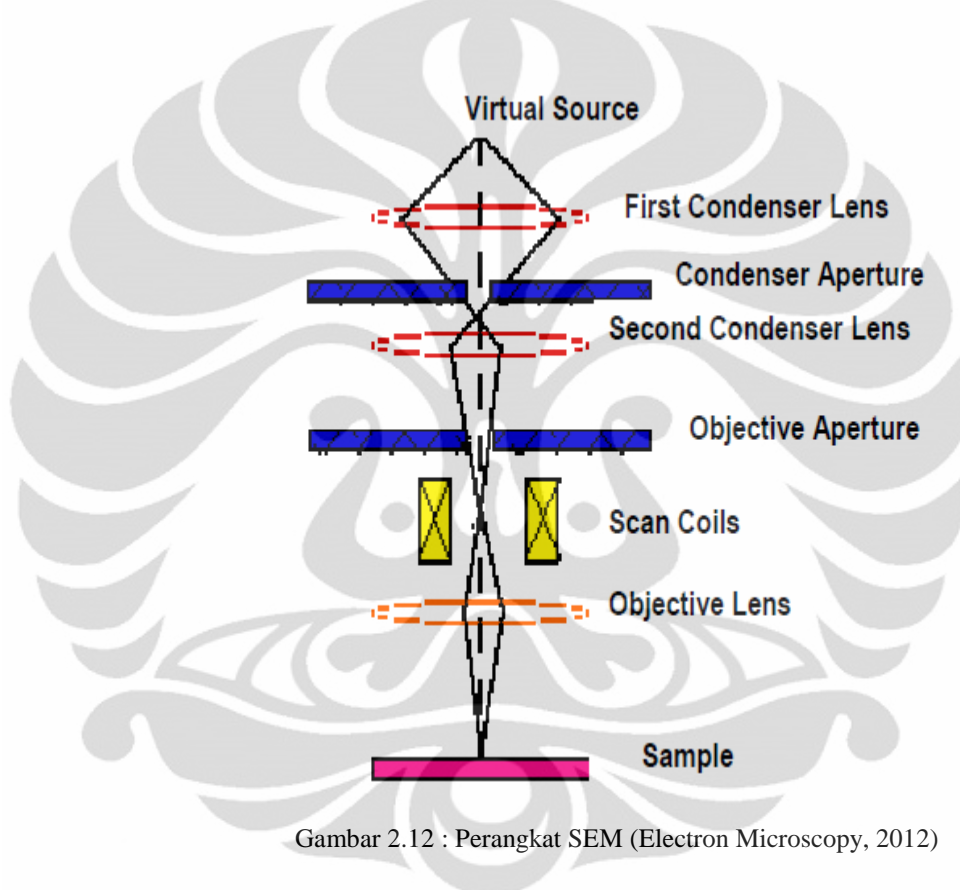


Gambar 2.11 : Ilustrasi alat XRD (Principles of X-Ray Diffraction, n.d.)

Hasil akhir dari XRD adalah berupa grafik dengan sumbu Y adalah I (intensitas) dan sumbu X adalah 2θ . Hasil XRD ini adalah menggambarkan seberapa banyak foton yang diterima detektor ketika foton tersebut mengenai kristal pada bidang tertentu, sehingga kita dapat mengetahui geometri kristal dari material yang diuji.

2.7 Scanning Electron Microscope (SEM)

SEM atau Scanning Electron Microscope adalah sebuah perangkat yang digunakan untuk melihat permukaan sebuah spesimen dengan memanfaatkan sinar elektron dan dapat menghasilkan gambar sampai dengan skala nanometer. SEM memiliki resolusi hingga 1,5nm, dengan kedalaman hingga 30 μ m, dan perbesaran dengan rentang 10-500.000 kali (Callister, 2007).



Gambar 2.12 : Perangkat SEM (Electron Microscopy, 2012)

Cara kerja SEM adalah sinar elektron dihasilkan oleh filamen yang kemudian mengenai lensa penkondensasi pertama untuk memusatkan aliran elektron dan membatasi elektron yang mengalir. Elektron kemudian difilter oleh apertur kondenser, perangkat ini menyaring elektron yang memiliki sudut besar (*High Angle Electron*). Elektron kemudian melewati lensa pengkondensasi kedua untuk menghasilkan elektron dengan karakteristik tipis, padat, dan koheren. Kemudian sinar elektron yang memiliki sudut besar kembali difilter oleh apertur objektif. Kemudian sinar elektron melewati kumparan pemindai (*scan coils*) yang berfungsi untuk memindai sinar elektron agar sinar elektron membentuk grid,

kemudian sinar elektron mengenai lensa objektif yang berfungsi untuk memfokuskan sinar yang sudah dipindai ke objek yang diinginkan. Ketika sinar elektron mengenai sampel maka akan terjadi interaksi di dalam sampel, dan akan terdeteksi oleh detektor yang dirangkai sedemikian rupa (Electron Microscopy, 2012).

2.8 Pengukuran Ukuran Butir dan Strain Mikro

Hal yang dapat dianalisa dalam suatu kurva hasil difraksi sinar-x adalah terjadinya pelebaran puncak-puncak yang muncul. Pelebaran puncak-puncak ini dapat disebabkan oleh faktor ukuran butir, strain mikro, dan faktor instrumentasi. Untuk mengukur ukuran butir rata-rata dengan memanfaatkan kurva hasil difraksi sinar-x, maka dapat digunakan persamaan Scherrer (Cullity, 2001) :

$$d = \frac{0,9\lambda}{B \cos \theta} \quad (2.8)$$

Dengan d adalah ukuran butir rata-rata dari sampel (\AA), λ adalah panjang gelombang dari target yang digunakan dalam XRD (\AA), B adalah pelebaran kurva puncak difraksi yaitu FWHM (Full Width at Half Maximum), θ adalah sudut dari puncak kurva difraksi sinar-x.

Sedangkan pelebaran kurva yang disebabkan oleh adanya strain mikro dalam sampel dapat diperhitungkan menggunakan Persamaan 2.9 :

$$B_{microstrain} = \varepsilon \tan \theta \quad (2.9)$$

Dengan ε merupakan parameter yang menunjukkan adanya strain mikro.

Jika kedua persamaan diatas diolah dan hasilnya dapat digunakan untuk mencari parameter strain mikro dengan menggunakan pendekatan metode kuadrat terkecil (least square) seperti Persamaan 2.10 :

$$B_{total} = B_{grain\ size} + B_{microstrain} = \frac{0,9\lambda}{d \cos \theta} + \varepsilon \tan \theta = \frac{0,9\lambda}{d \cos \theta} + \varepsilon \frac{\sin \theta}{\cos \theta}$$

Maka nilai total pelebaran kurva akibat ukuran butir dan strain mikro :

$$B_{total} \cos \theta = \frac{0,9\lambda}{d} + \varepsilon \sin \theta \quad (2.10)$$

Dengan membuat kurva dengan komponen sumbu y adalah $B \cos \theta$ dan sumbu x adalah $\sin \theta$, maka gradien dari kurva yang terbentuk adalah ε .

2.9 Polarisasi Spontan

Untuk memperhitungkan polarisasi spontan dari kristal yang memiliki struktur perovskite dapat menggunakan pendekatan teori *bond-valence polarization*. Dari sudut pandang klasik, polarisasi dari kristal didefinisikan sebagai momen dipol per unit sel seperti persamaan (2.11).

$$P = \frac{p}{V} = \sum_i \frac{q_i r_i}{V} \quad (2.11)$$

Dimana q adalah muatan dan r adalah posisi vektor dari atom i . Pada model ini perpindahan dari atom pada struktur kubik dapat menghasilkan pergerakan atom pada pusat struktur kubik sehingga muatan tidak tersebar secara merata maka dapat menghasilkan polarisasi spontan tanpa adanya medan listrik dari luar (Tan, 2009).

Polarisasi secara makroskopik berdasarkan pada kontribusi elektronik akan memiliki satuan (dipol per satuan panjang). Pengembangan modern perhitungan polarisasi spontan secara teoritik sudah banyak dilakukan oleh peneliti, walaupun hasil penelitian dari para peneliti berbeda, namun konsep utama dari setiap perhitungan polarisasi spontan tersebut adalah fungsi gelombang Bloch. Untuk menggabungkan pendekatan secara klasik dan modern maka diformulasikan polarisasi secara makroskopik seperti persamaan 2.12 :

$$P = \hat{P} P_{el} \quad (2.12)$$

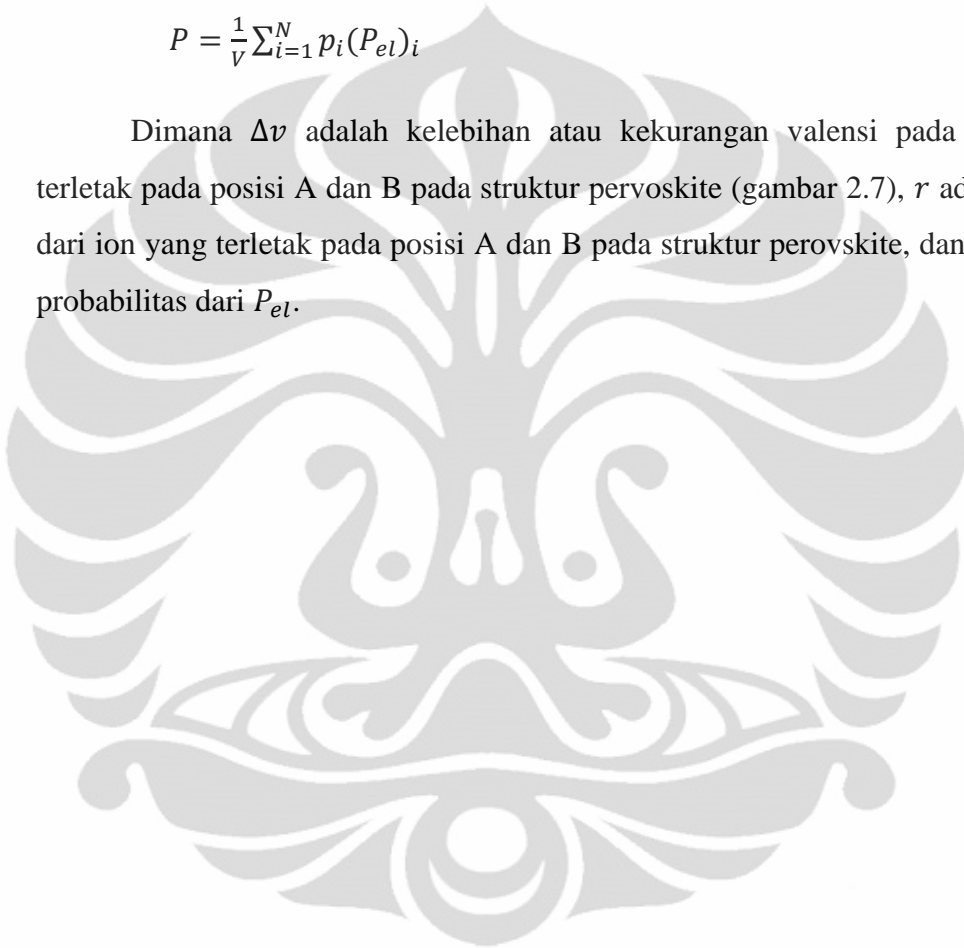
Dimana \hat{P} adalah operator yang berfungsi sebagai elemen kontribusi dari P_{el} yang menghasilkan polarisasi makroskopik P . Alternatif pendekatan pada polarisasi dasar (elementary polarzation) P_{el} dan hubungannya dengan struktur kristal dapat menggunakan evaluasi statistik dari distribusi valensi pada ikatan

logam dengan oksigen. Pendekatan ini sangat akurat secara empirik sehingga sering dipakai untuk menentukan posisi atom pada struktur kristal. Sehingga formula akhir yang digunakan untuk menentukan polarisasi spontan seperti persamaan 2.13 (Tan, 2009) :

$$P_{el} = \Delta v \times r \quad (2.13)$$

$$P = \frac{1}{V} \sum_{i=1}^N p_i (P_{el})_i \quad (2.14)$$

Dimana Δv adalah kelebihan atau kekurangan valensi pada ion yang terletak pada posisi A dan B pada struktur perovskite (gambar 2.7), r adalah jarak dari ion yang terletak pada posisi A dan B pada struktur perovskite, dan p_i adalah probabilitas dari P_{el} .

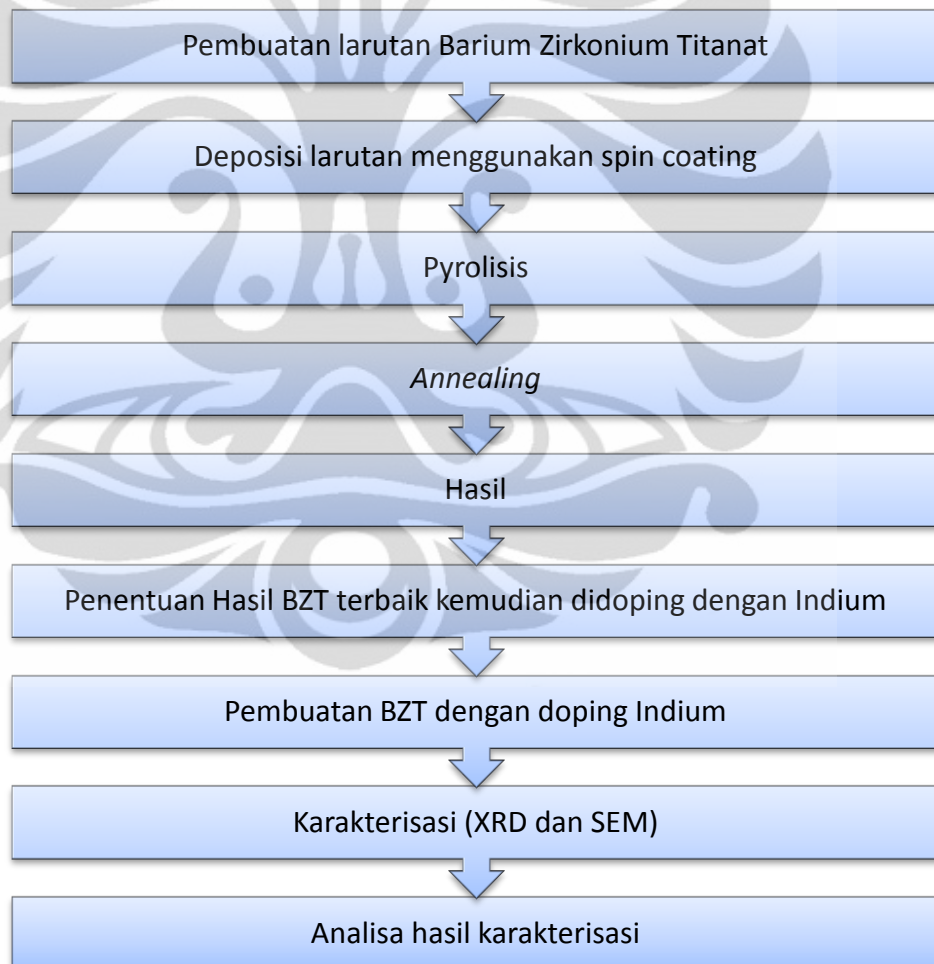


BAB III

METODE PENELITIAN

3.1 Diagram alir penelitian

Pada penelitian ini, penelitian dimulai dengan mencari parameter terbaik dalam membuat Barium Zirkonium Titanat, dengan variabel yang digunakan adalah banyak perlapisan, temperatur *annealing*, dan perbandingan mol atom Zirkonium dengan Titanium, secara lengkap pada gambar 3.1. diperlihatkan diagram alir penelitian yang menjadi acuan dasar dalam penelitian ini.



Gambar 3.1 : Diagram alir penelitian

3.1.1 Bahan dan peralatan penelitian

Bahan-bahan utama dari penelitian ini antara lain, Barium Asetat (99%), Titanium Isopropoxide (99%), Zirconium n-Butoxide (99%), Ethylene Glycol (99,5%), Asam Asetat (99%), Indium Asetat, dan substrat Platina.

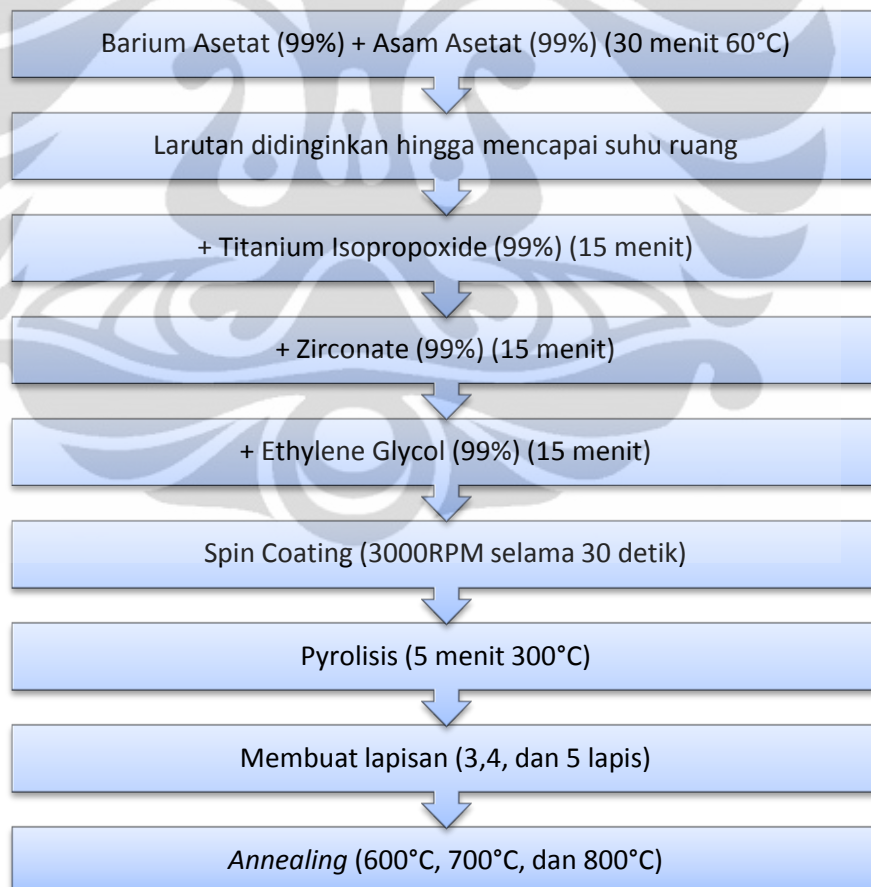
Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini antara lain, timbangan digital, hot plate dan stirer, spin coating, furnace thermolyn. Peralatan untuk pengujian sampel menggunakan X-Ray Diffractometer (XRD) Philips PW 3710 dengan kontrol komputer yang dilengkapi dengan PC APD dan menggunakan radiasi Co K α dengan $\lambda=1,7889 \text{ \AA}$ pada kondisi tegangan 40 kV dan arus 30 mA pada rentang sudut difraksi 20°-100°.

3.1.2 Tahapan penelitian

Kegiatan utama dari penelitian ini adalah pembuatan sampel film tipis dengan menggunakan metode CSD (*Chemical Solution Deposition*) dan mengkarakterisasi sampel film tipis tersebut berdasarkan sifat ferroelektriknya antara lain dengan melakukan pengujian XRD. Sampel yang dibuat dengan membuat solusi dari Barium Zirkonium Titanat kemudian dilakukan proses spin coating agar larutan tersebut tersebar secara merata di atas substrat yang ditentukan. Kemudian sampel di *annealing* untuk memperbesar ukuran grain dan menghilangkan impuritas. Setelah itu sampel dilakukan serangkaian pengujian untuk mendapatkan karakterisasinya antara lain dengan melakukan uji XRD untuk mengetahui apakah fase yang diharapkan sudah terbentuk dengan baik. Setelah mendapatkan data hasil eksperimen, ditentukan hasil eksperimen BZT dengan hasil terbaik kemudian komposisi ini ditentukan untuk pendopingan dengan Indium. Pendopingan dengan Indium dilakukan dengan konsentrasi Indium dengan rentang 0% - 4%, kemudian dilakukan deposisi menggunakan metode CSD dan *annealing*. Kemudian hasil data BZT yang didoping dengan Indium dianalisa kristalografinya

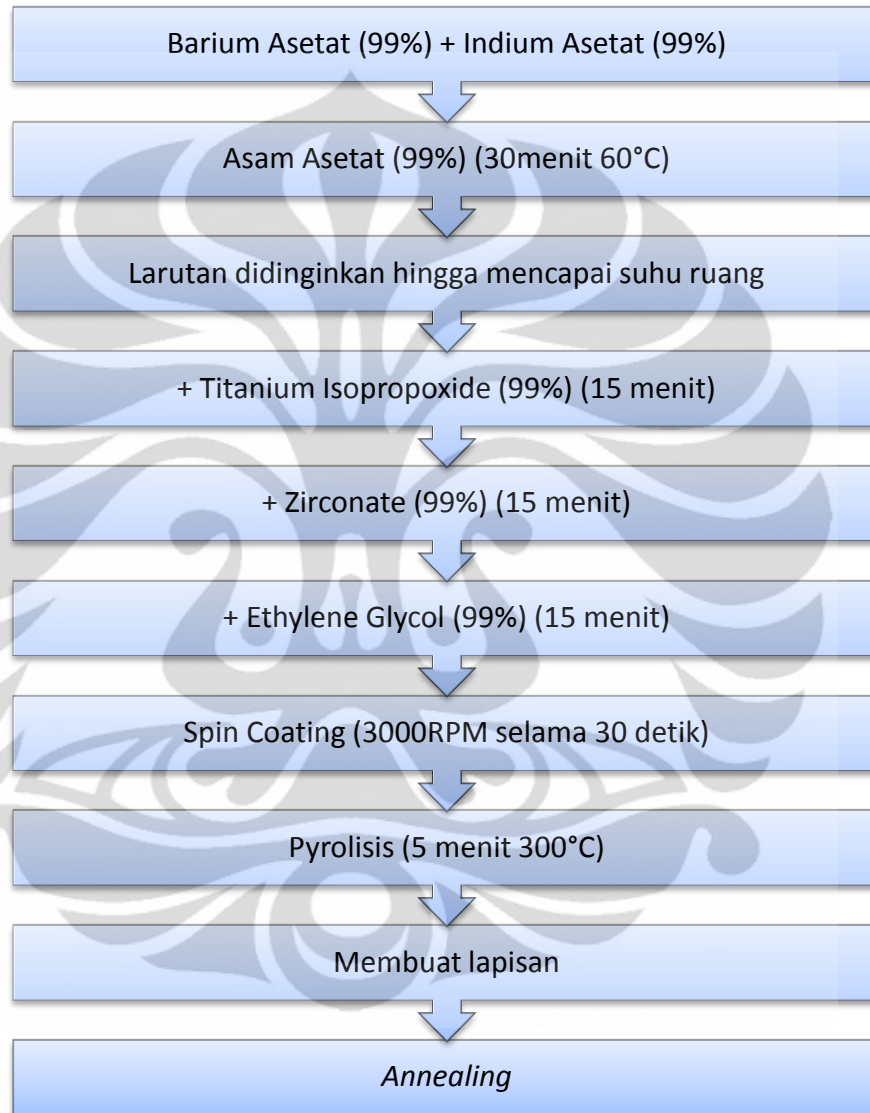
3.2 Preparasi sampel

Proses preparasi sampel meliputi proses pembuatan larutan BZT, pembuatan film tipis dengan metode spin coating, dan *annealing*. Proses awal yaitu pembuatan larutan BZT dilakukan dengan menimbang bahan-bahan dasar seperti barium asetat, titanium isopropoxide, zirconium n-butoxide, ethylene glycol, dan asam asetat secara stoikiometrik. Kemudian bahan dasar dicampur sesuai urutan yang terdapat pada diagram alir pembuatan sampel BZT (gambar 3.2). Setelah larutan dibuat, selanjutnya melakukan deposisi larutan di substrat Pt yang dilakukan dengan proses spin coating pada kecepatan 3000 RPM selama 30 detik untuk tiap perlapisannya. Setelah larutan terdeposisi di permukaan substrat, sampel dimasukkan ke dalam furnace dengan suhu 600°C, 700°C, dan 800°C selama 60 menit.



Gambar 3.2 : Diagram alir preparasi sampel BZT

Setelah menganalisa data hasil eksperimen BZT dan ditentukan BZT dengan komposisi terbaik, kemudian pembuatan BZT dengan doping Indium dilakukan sesuai dengan diagram alir pembuatan sampel BZT dengan doping Indium (gambar 3.3).



Gambar 3.3 : Diagram alir preparasi sampel BZT dengan doping Indium

3.3 Pengambilan data

Pengujian sampel menggunakan X-Ray Diffractometer (XRD) Philips PW 3710 dengan kontrol komputer yang dilengkapi dengan PC APD dan menggunakan radiasi Co K α dengan $\lambda=1,7889 \text{ \AA}$ pada kondisi tegangan 40 kV dan arus 30 mA pada rentang sudut difraksi 20°-100° yang dilakukan di Laboratorium Program Studi Ilmu Material Program Pascasarjana FMIPA, Universitas Indonesia, Salemba – Jakarta.

Pengujian sampel Scanning Electron Microscope (SEM) menggunakan Jeol dengan range tegangan filamen 10 kV hingga 30 kV dan perbesaran hingga 200.000x. SEM juga dilengkapi dengan kontrol komputer yang dilengkapi dengan software SEM Afore. Pengujian dilakukan di Laboratorium Program Studi Ilmu Material Program Pascasarjana FMIPA, Universitas Indonesia, Salemba – Jakarta.

3.4 Analisis data

Analisa data dimulai dari hasil uji XRD, setelah mendapatkan kurva XRD, dilakukan identifikasi fasa apa yang terdapat pada sampel yang telah dibuat dengan menggunakan software Match! dan GSAS, juga untuk mengetahui parameter kisi sampel yang dibuat yang tidak terdapat dalam data XRD dan database.

Analisa selanjutnya adalah menganalisa ukuran butir dan strain mikro dari sampel yang dibuat. Data hasil XRD yang diconvert menggunakan software APD kemudian dengan menggunakan software Bella untuk mengetahui besar FWHM (Full Width at Half Maximum). Setelah mengetahui data FWHM dilakukan perhitungan ukuran butir dan strain mikro dengan menggunakan Scherrer Formula.

Setelah melakukan analisa fase dan parameter kisi dari data XRD dengan menggunakan software Match! dan GSAS maka selanjutnya dapat dilakukan analisa sistem kristal dari sampel yang telah dibuat. Kemudian dengan memasukan parameter kisi serta jarak antar ion yang terdapat pada posisi A dan B

pada struktur perovskite serta kelebihan atau kekurangan valensi pada ion maka polarisasi spontan dapat diperhitungkan secara teoritik. Setelah mendapatkan nilai polarisasi spontan secara teoritik, dimasukan faktor probabilitas polarisasi untuk mendapatkan nilai polarisasi spontan akhir secara teoritik.

Analisa selanjutnya yang dilakukan adalah dengan melakukan pengujian Scanning Electron Microscope (SEM) untuk melihat morfologi permukaan film tipis yang dibuat.



BAB IV

HASIL DAN PEMBAHASAN

Pada penelitian ini, untuk mencari variabel terbaik dalam pembuatan film tipis Barium Zirkonium Titanat maka dilakukan variasi temperatur *annealing*, jumlah lapisan film tipis, dan persen mol Zirkonium. Variabel yang tidak berubah dari awal eksperimen ini antara lain :

- Temperatur pyrolysis (300°C)
- Kecepatan spin coating (3000 RPM)
- Laju *heating rate annealing* (13°C/menit)
- Lama waktu penahanan *annealing* (3 jam)

Kemudian setelah mendapatkan variabel terbaik maka akan dianalisa nilai parameter kisi a dan c/a . Dengan menggunakan Scherrer formula akan diperhitungkan ukuran butir dan strain mikro serta polarisasi spontan dari Barium Zirkonium Titanat yang didoping dengan Indium.

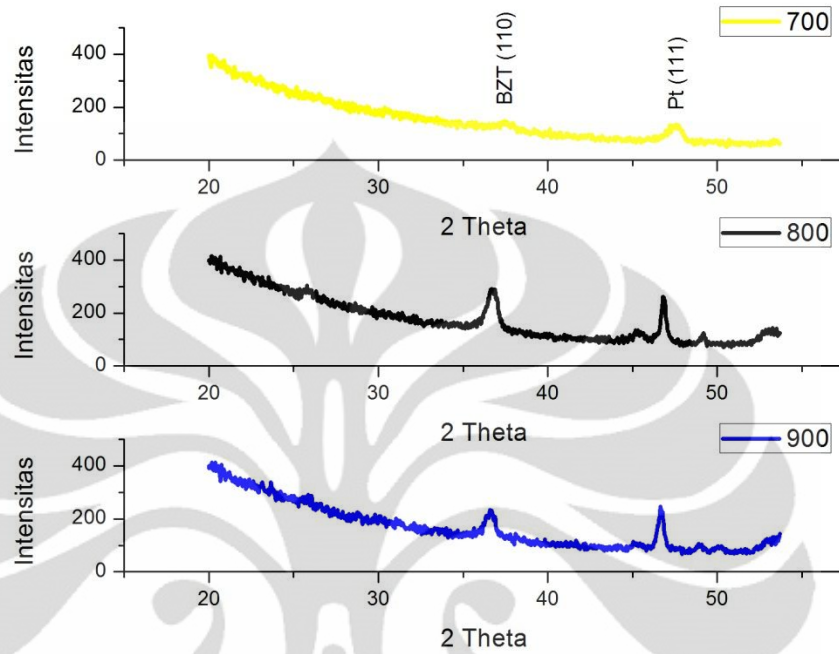
4.1 Identifikasi fase BZT terbaik dengan variasi beberapa variabel

Untuk mendapatkan BZT dengan fase terbaik, maka dilakukan beberapa eksperimen untuk mencari variabel-variabel yang dapat menentukan hasil akhir dalam pembuatan film tipis BZT, variabel yang dicari pada penelitian ini antara lain adalah variasi temperatur *annealing*, jumlah lapisan film tipis, dan persen mol Zirkonium.

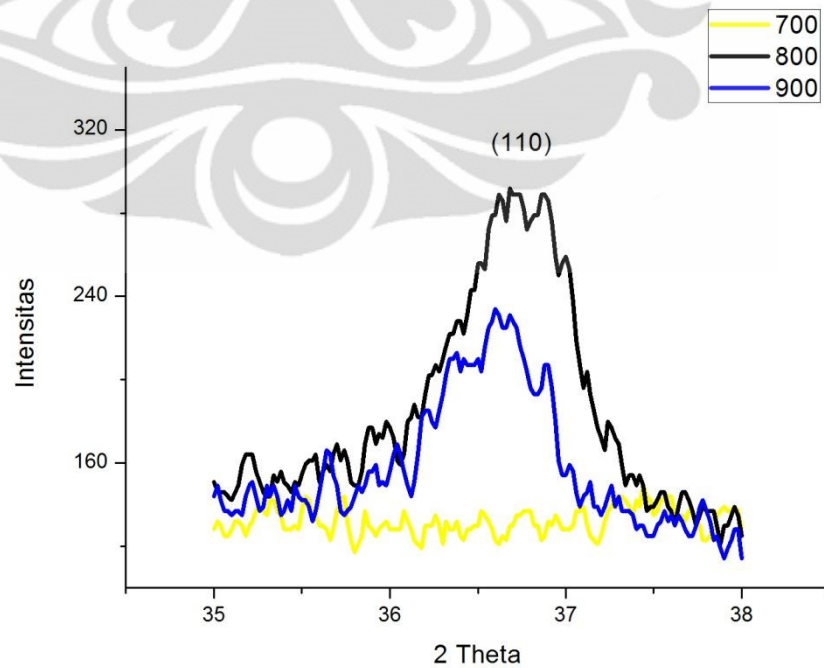
4.1.1 Variasi temperatur *annealing*

Pola difraksi sinar-x dari sampel Barium Zirkonium Titanat yang dibuat dengan komposisi persen mol Zirkonium sebesar 25% yang mensubstitusi atom

Titanium divariasikan pada temperatur 700°C, 800°C, dan 900°C dengan masing-masing sampel dibuat 5 lapisan Barium Zirkonium Titanat (gambar 4.1)



Gambar 4.1 : Grafik perbandingan BZT dengan variasi temperatur



Gambar 4.2 : Grafik perbandingan BZT dengan variasi temperatur pada sudut 35° - 38°

Dari hasil difraksi sinar-x terlihat bahwa puncak-puncak BZT sudah muncul pada suhu 700°C, 800°C, dan 900°C, menandakan bahwa BZT berhasil tumbuh pada sudut 36,7°. Selain itu juga terlihat pergeseran puncak ke arah sudut yang lebih besar, berdasarkan hukum Bragg maka hal ini menandakan terjadinya jarak antar bidang, dengan peak pada temperatur 800°C memiliki jarak antar bidang paling besar.

Dari hasil difraksi sinar-x (gambar 4.2) terlihat bahwa intensitas sinar-x pada sudut 36,4° meningkat dari suhu 700°C hingga 800°C namun menurun ketika suhu dinaikan menjadi 900°C. Karena film tipis Barium Zirkonium Titanat dengan temperatur *annealing* 800°C memiliki intensitas tertinggi dibandingkan dengan temperatur lainnya maka suhu *annealing* 800°C dijadikan variabel tetap untuk penentuan variabel lainnya.

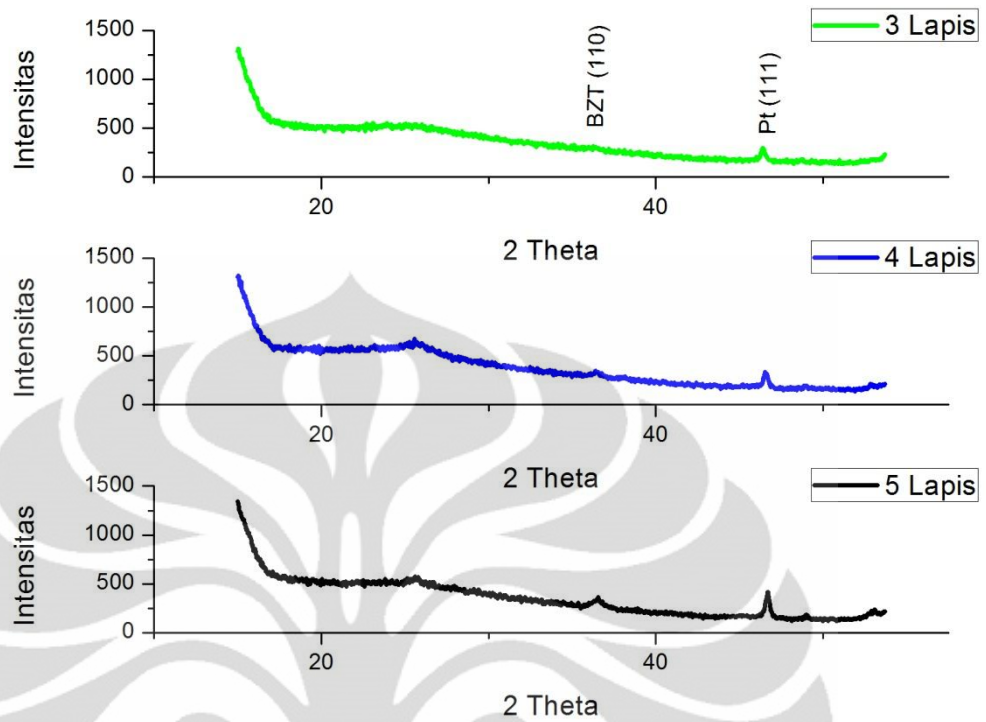
Tabel 4.1 : Ukuran butir BZT dengan variasi temperatur

Temperatur	D (nm)
700°C	8,39
800°C	15,05
900°C	16,43

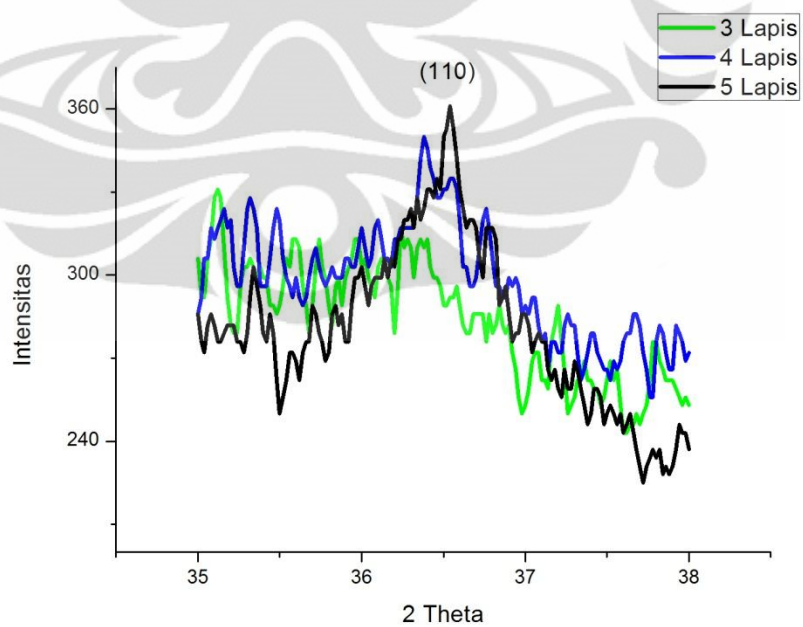
Hasil pengukuran ukuran butir rata-rata BZT dengan variasi temperatur menunjukkan bahwa ukuran butir rata-rata akan meningkat sesuai dengan kenaikan temperatur *annealing*. Hal ini disebabkan karena semakin tinggi suhu *annealing* maka kristal akan memiliki energi yang lebih besar untuk tumbuh, sehingga semakin tinggi suhu *annealing* maka akan semakin besar ukuran butirnya.

4.1.2 Variasi jumlah lapisan film tipis

Pola difraksi sinar-x dari sampel Barium Zirkonium Titanat yang dibuat dengan komposisi persen mol Zirkonium sebesar 10% yang mensubstitusi atom Titanium divariasikan dengan jumlah lapisan 3, 4, dan 5 lapis dengan masing-masing sampel di*annealing* pada temperatur 800°C.



Gambar 4.3 : Grafik perbandingan BZT dengan variasi jumlah lapisan



Gambar 4.4 : Grafik perbandingan BZT dengan variasi jumlah lapisan pada sudut 35- 38°

Variasi jumlah lapisan film tipis barium titanat menghasilkan perubahan puncak BZT pada sudut 36.5° dimana puncak BZT semakin tinggi sesuai dengan semakin banyak jumlah lapisan. Hal ini mungkin disebabkan oleh semakin banyaknya lapisan BZT maka BZT yang terdeposisi di atas substrat Pt tumbuh dengan baik sehingga intensitas puncak BZT semakin tinggi.

Jumlah lapisan pada film tipis ini berhubungan dengan ketebalan lapisan film BZT dan dari hasil difraksi sinar-x terlihat bahwa film tipis Barium Zirkonium Titanat dengan jumlah lapisan 5 lapis memiliki intensitas tertinggi dibandingkan dengan jumlah lapisan lainnya, maka variasi jumlah lapisan dengan jumlah lapisan 5 lapis dianggap sebagai variabel terbaik.

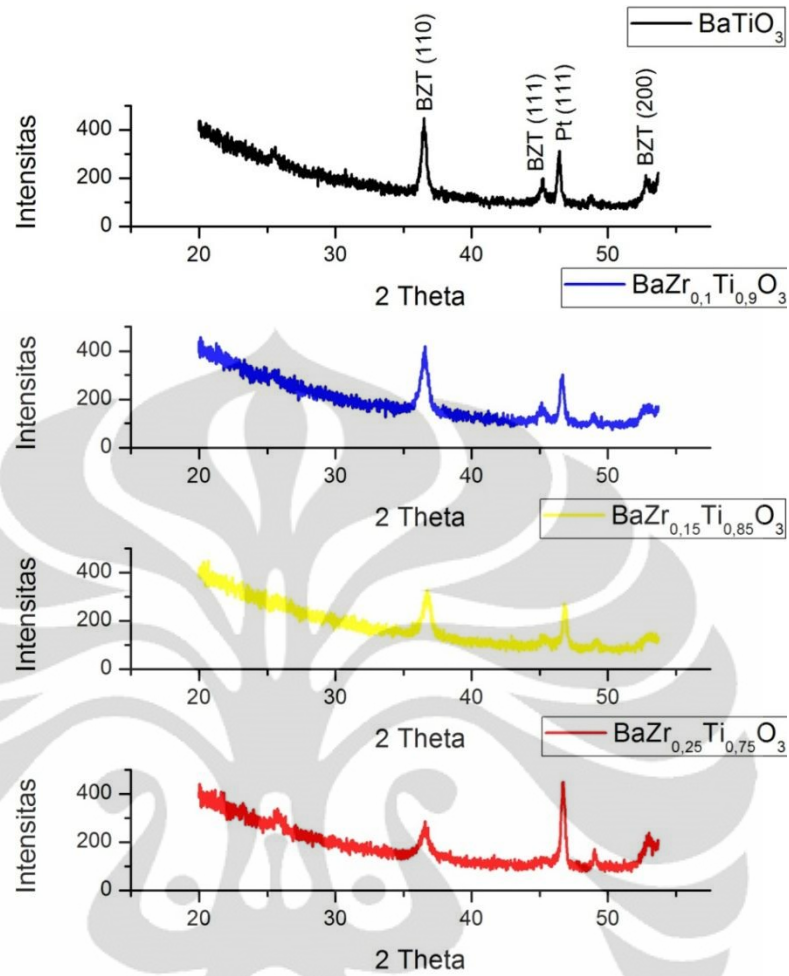
Tabel 4.2 : Ukuran butir BZT dengan variasi jumlah lapisan

Jumlah lapisan	D (nm)
3	12,68
4	18,29
5	41,28

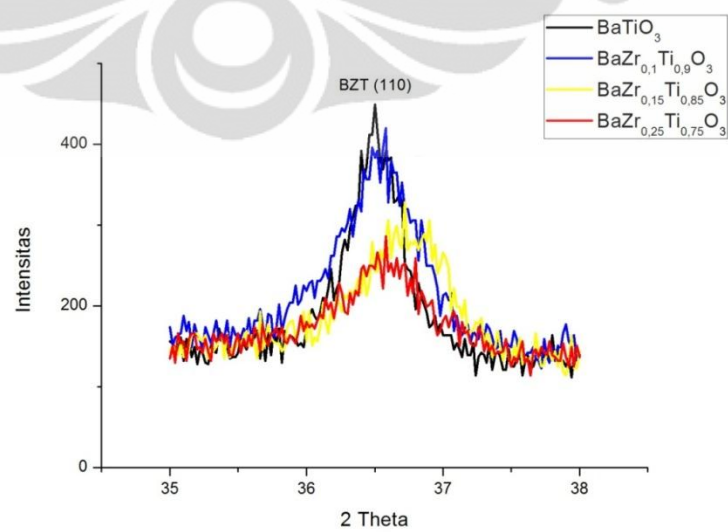
Dari hasil perhitungan ukuran butir rata-rata dari BZT dengan variasi jumlah lapisan terlihat bahwa ukuran butir meningkat ketika jumlah lapisan ditingkatkan. Hal ini mungkin disebabkan karena setiap terjadi penambahan jumlah lapisan pada film tipis menyebabkan butir-butir yang terdapat pada lapisan tumbuh dengan baik, sehingga tidak menyebabkan rusaknya struktur kristal sehingga ukuran butir rata-rata meningkat seiring dengan meningkatnya jumlah lapisan.

4.1.3 Variasi persen mol Zirkonium

Pola difraksi sinar-x dari sampel Barium Zirkonium Titanat yang dibuat dengan variasi komposisi persen mol Zirkonium sebesar 0%, 10%, 15%, 25%, 20% dan 30% yang mensubstitusi atom Titanium dengan masing-masing sampel diberi jumlah lapisan 5 lapis dan temperatur *annealing* 800°C .



Gambar 4.5 : Grafik perbandingan BZT dengan variasi mol Zirkonium



Grafik 4.6 : Grafik perbandingan BZT dengan variasi mol Zirkonium pada sudut 35°- 38°

Pada penelitian ini BZT dengan variasi mol Zirkonium 15% dan 30% menjadi gel sebelum dideposisi dengan menggunakan spin coating, sehingga hasil difraksi sinar-x untuk BZT dengan variasi mol Zirkonium 15% dan 30% tidak ditampilkan.

Modifikasi Barium Titanat dengan ditambahkan Zirkonium menghasilkan hasil difraksi sinar-x dengan puncak BZT menurun dari semenjak tidak modifikasi dengan Zirkonium hingga peningkatan mol Zirkonium. Hal ini dimungkinkan karena semenjak Barium Titanat dimodifikasi dengan Zirkonium, maka Zirkonium akan mensubstitusi atom Titanium pada struktur perovskite. Substitusi ini menyebabkan kerusakan struktur perovskite sehingga intensitas puncak BZT berkurang.

Dari hasil difraksi sinar-x terlihat bahwa film tipis Barium Zirkonium Titanat dengan nilai persen mol Zirkonium 10% memiliki intensitas tertinggi dibandingkan dengan persen mol Zirkonium lainnya, sehingga variabel mol Zirkonium sebanyak 10% dijadikan variabel terbaik untuk pendopingan dengan Indium.

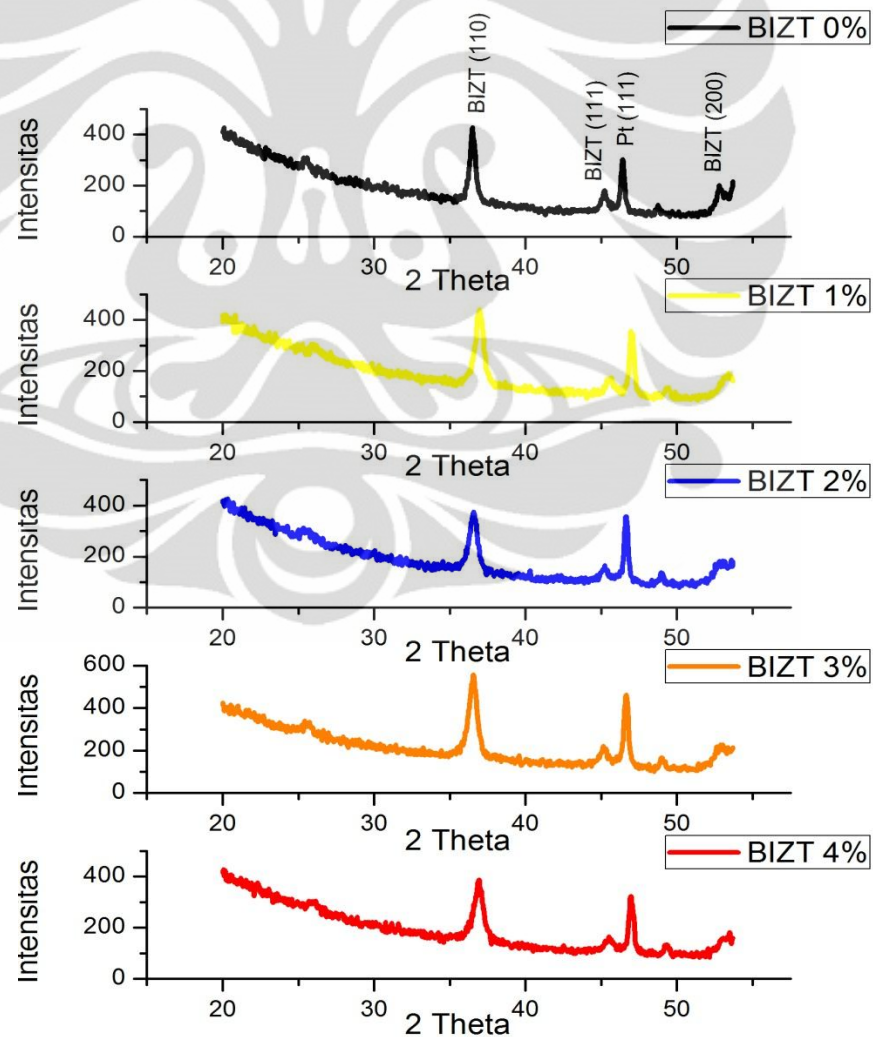
Tabel 4.3 : Ukuran butir BZT dengan variasi mol zirkonium

BZT	D (nm)
0 %	17,69
10 %	29,27
15 %	18,09
25 %	11,03

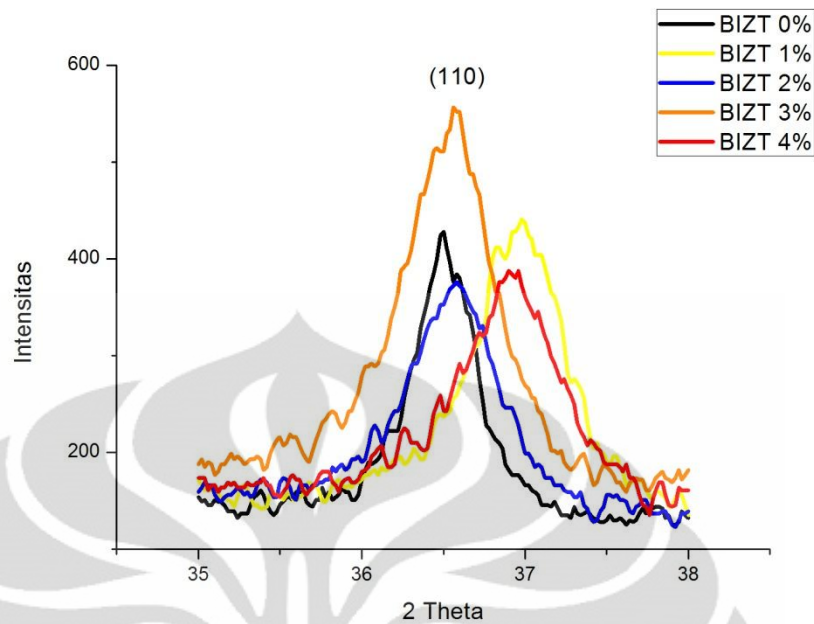
Hasil perhitungan ukuran butir rata-rata dari BZT dengan variasi mol Zirkonium menunjukkan semakin tinggi konsentrasi Zirkonium maka ukuran butir rata-rata dari BZT akan semakin berkurang. Hal ini bersesuaian dengan analisa sebelumnya dimana dengan adanya substitusi atom Zirkonium pada atom Titanium menyebabkan rusaknya struktur kristal, sehingga ukuran butir rata-rata juga berkurang.

4.2 Identifikasi fase Barium Zirkonium Titanat yang telah didoping dengan Indium

Setelah mendapatkan variabel terbaik pada pembahasan sebelumnya untuk pembedakan film tipis dengan temperatur *annealing* 800°C, 5 jumlah lapisan, dan persen mol Zirkonium 10% selanjutnya dilakukan pendopingan Indium dengan persen mol 0-4%. Pendopingan dengan Indium hanya sampai persen mol 4% karena jika lebih dari 4% maka tidak lagi disebut pendopingan melainkan modifikasi (Yakovlev, 2004). Hasil difraksi sinar-x dari Barium Zirkonium Titanat yang didoping dengan Indium dapat dilihat pada gambar 4.7.



Gambar 4.7 : Grafik perbandingan BZT dengan doping Indium 0-4%



Gambar 4.8 : Grafik perbandingan BZT dengan doping Indium 0-4% pada sudut 35°- 38°

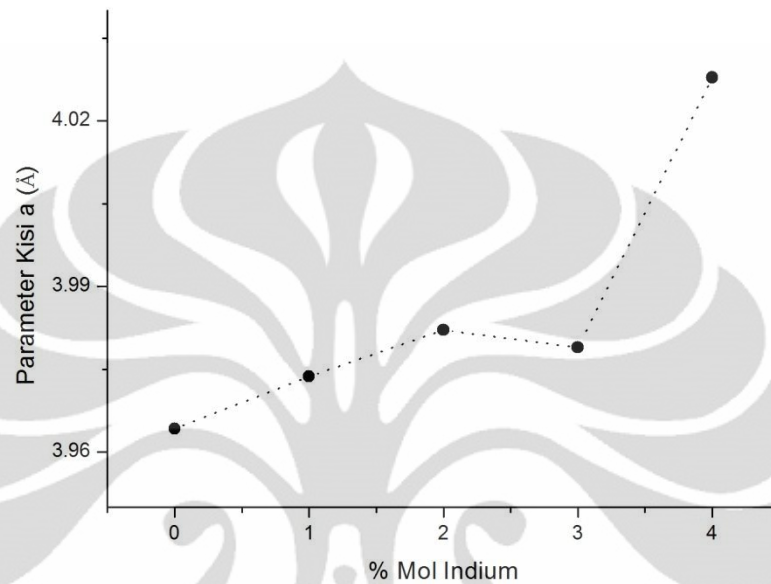
Pada material BZT, ion Indium yang mempunyai jari-jari $0,92\text{\AA}$ akan menggantikan ion Barium yang memiliki jari-jari $1,35\text{\AA}$ karena jari-jari ion Indium mendekati jari-jari ion Barium.

Dari hasil difraksi sinar-x terlihat bahwa BZT dengan doping mol Indium sebanyak 3% memiliki intensitas paling tinggi jika dibandingkan dengan variasi doping Indium lainnya. Hal ini dimungkinkan karena saat doping Indium sebesar 3% maka struktur kristal memiliki kekristalan terbaik, sehingga saat mol Indium ditambahkan maka struktur kristal akan rusak dan terlihat intensitas pada variasi mol Indium 4% berkurang.

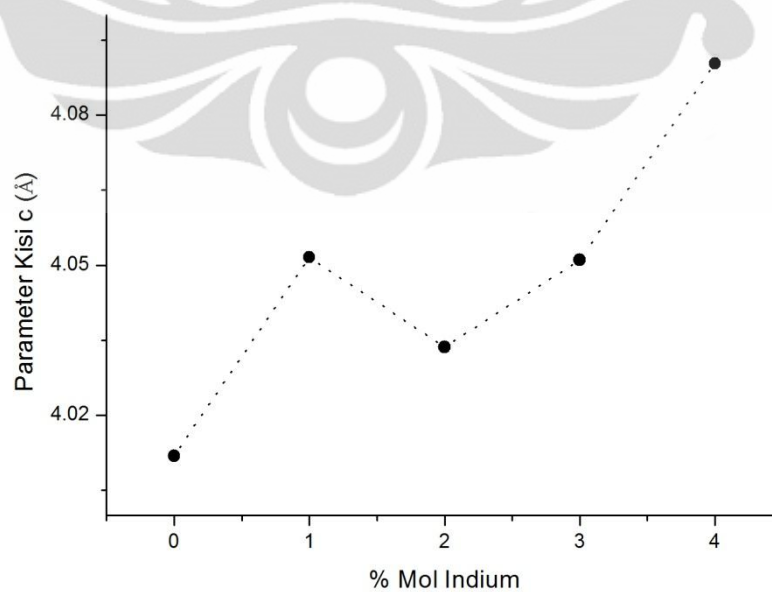
Tabel 4.4 : Parameter kisi BIZT 0-4%

BIZT	a (\AA)	c (\AA)	c/a
0%	3,964	4,012	1,012
1%	3,974	4,052	1,020
2%	3,982	4,034	1,013
3%	3,979	4,051	1,018
4%	4,028	4,090	1,016

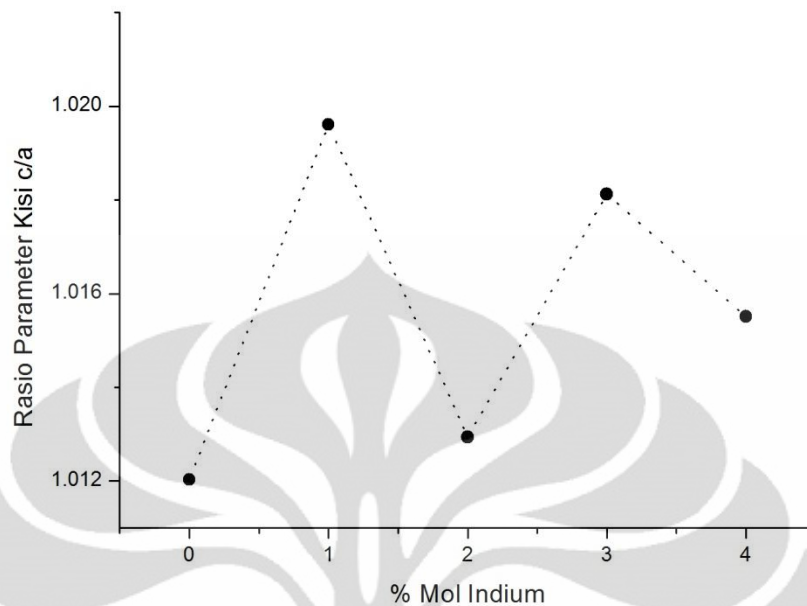
Setelah melakukan pengolahan data hasil XRD dengan software GSAS maka didapatkan parameter kisi Barium Zirkonium Titanat yang telah didoping dengan Indium (tabel 4.4).



Gambar 4.9 : Grafik parameter kisi a



Gambar 4.10 : Grafik parameter kisi c



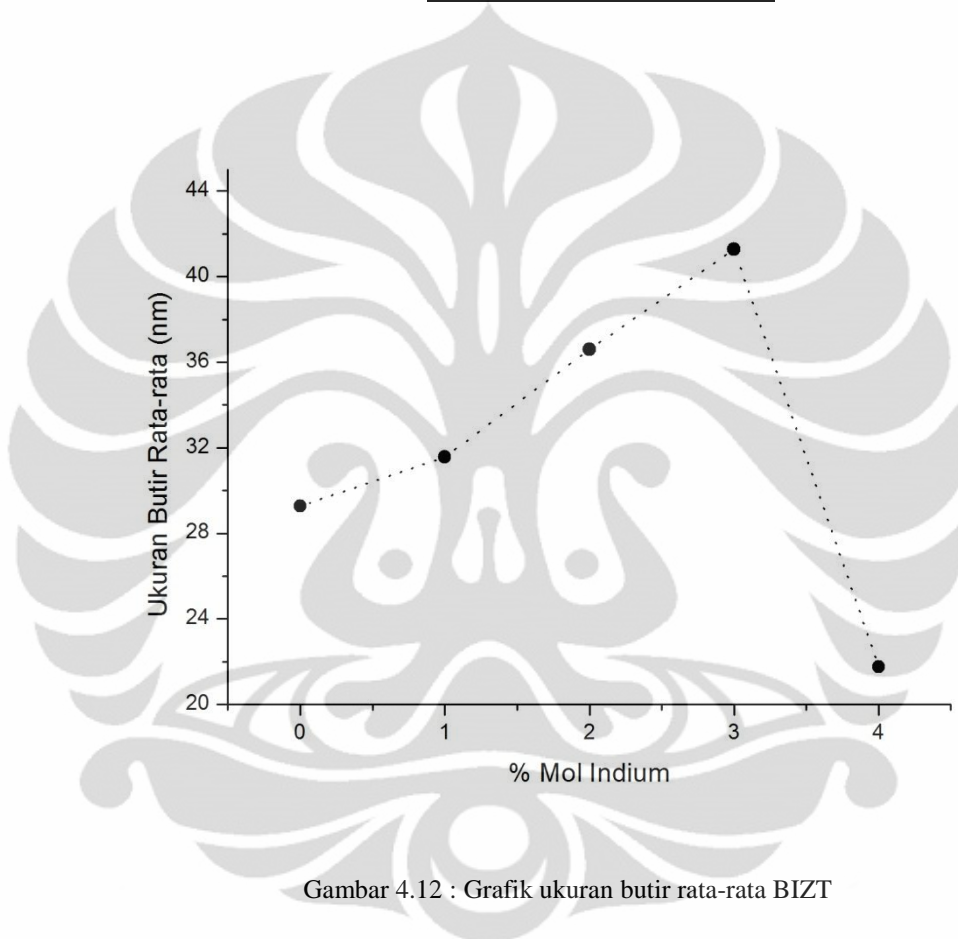
Gambar 4.11 : Rasio perbandingan parameter kisi c/a

Hasil perbandingan perhitungan parameter kisi BZT dengan doping Indium dapat dilihat pada gambar 4.9, 4.10, dan 4.11. Parameter kisi a pada BZT dengan doping Indium menunjukkan adanya peningkatan panjang parameter kisi secara keseluruhan, namun terjadi penurunan pada saat doping Indium 3%. Untuk parameter kisi c terlihat bahwa parameter kisi c meningkat saat doping Indium sebanyak 1%, kemudian menurun pada saat doping Indium sebanyak 2%, dan kembali meningkat saat doping 3% dan 4%. Rasio perbandingan parameter kisi c/a menunjukkan bahwa tingkat ketetragonalan dari BZT dengan doping Indium, dengan tingkat tetragonal terbaik dimiliki pada doping Indium sebanyak 1%.

Kemudian data hasil XRD diolah dengan software Bella untuk mendapatkan FWHM (Full Width at Half Maximum) yang digunakan untuk mencari ukuran partikel dengan menggunakan Scherrer Equation seperti yang ditunjukkan oleh tabel 4.5.

Tabel 4.5 : Ukuran butir rata-rata BIZT 0-4%

BIZT	D (nm)
0 %	29,27
1 %	31,57
2 %	36,59
3 %	41,28
4 %	21,76



Gambar 4.12 : Grafik ukuran butir rata-rata BIZT

Dari hasil perhitungan ukuran butir rata-rata BZT dengan doping Indium menunjukkan ukuran butir rata-rata terbesar pada saat doping Indium sebanyak 3%, dan ukuran butir rata-rata menurun ketika doping Indium ditingkatkan diatas 3%. Hal ini berkaitan dengan tingkat % mol Indium maksimum yang terdapat pada BZT, terlihat apabila konsentrasi Indium berada diatas 3% maka ukuran butir rata-rata dari BZT akan berkurang akibat rusaknya struktur kristal apabila terlalu banyak didoping oleh Indium.

4.3 Perhitungan polarisasi spontan film tipis BIZT

Setelah mendapatkan parameter kisi dari BZT yang didoping dengan Indium maka selanjutnya dapat diperhitungkan secara teoritik besarnya polarisasi spontan dari BZT yang didoping dengan Indium. Perhitungan secara kasar untuk mengetahui polarisasi spontan dari sebuah material secara teoritik seperti pada perumusan (4.1), (4.2), dan (4.3).

$$P = \hat{P}P_{el} \quad (4.1)$$

Dengan nilai P_{el} :

$$P_{el} = \Delta v \times r \quad (4.2)$$

Maka nilai polarisasi spontan (P_s) :

$$P = \frac{1}{V} \sum_{i=1}^N p_i (P_{el})_i \quad (4.3)$$

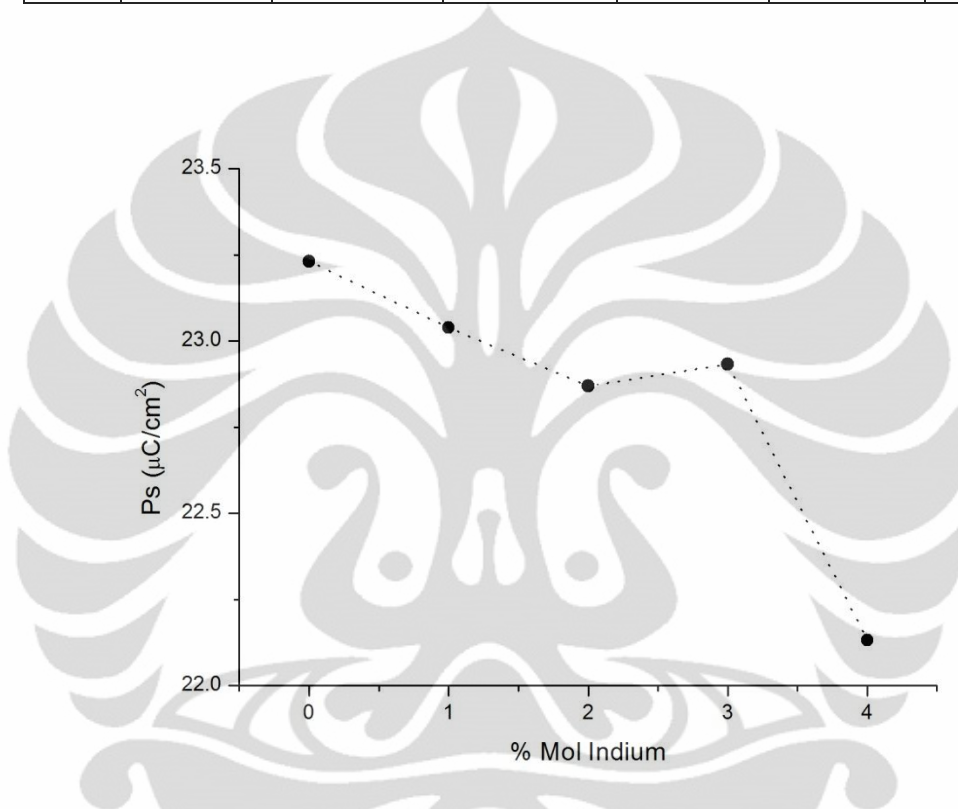
Pada perhitungan secara teoritik untuk mendapatkan nilai polarisasi spontan pada material ferroelektrik dapat menggunakan teori yang telah dikembangkan oleh beberapa peneliti. Pada penelitian ini perhitungan polarisasi spontan secara teoritik dilakukan seperti pada penelitian yang dilakukan oleh Tan et al (2009) tentang metode sederhana untuk memperhitungkan polarisasi spontan pada kristal dengan struktur perovskite.

Pada teori ini perhitungan polarisasi spontan akan dilakukan dengan memodelkan sistem dari sampel yang telah dibuat menjadi kubik, walaupun pada penelitian ini sampel yang didapatkan mempunyai sistem tetragonal. Dengan menghitung juga probabilitas dari polarisasi dasar (P_{el}) dan jarak antar ion (r) yang berada pada posisi A dan B pada struktur perovskite dari sampel maka nilai dari polarisasi spontan pada BZT yang didoping dengan Indium dapat diperhitungkan.

Hasil perhitungan polarisasi spontan secara teoritik untuk film tipis BZT yang didoping dengan Indium seperti pada tabel 4.6 sebagai berikut :

Tabel 4.6 : Nilai polarisasi spontan BIZT 0-4%

BIZT	a (Å)	Δv	r (Å)	ρ (eÅ)	ρ (Cm)	Ps ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)
0	3,964	0,4459	3,433	1,531	2,453E-29	23,23
1	3,974	0,4444	3,441	1,529	2,450E-29	23,04
2	3,982	0,4429	3,449	1,528	2,448E-29	22,87
3	3,979	0,4435	3,446	1,528	2,449E-29	22,93
4	4,028	0,4386	3,488	1,530	2,451E-29	22,13



Gambar 4.13 : Grafik nilai polarisasi spontan pada BIZT

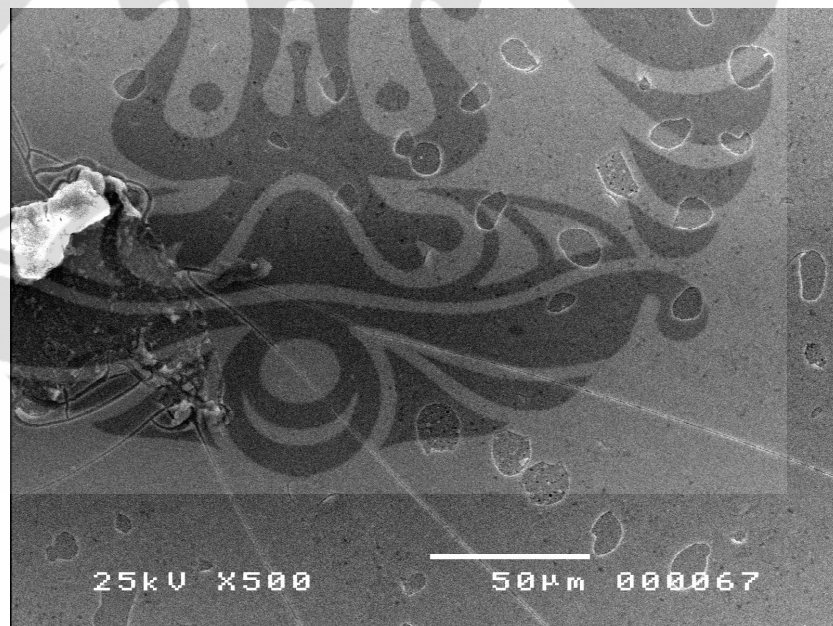
Dari hasil perhitungan secara teoritik terlihat bahwa nilai polarisasi spontan terbaik adalah BZT dengan doping Indium sebanyak 0%, hal ini menunjukkan bahwa BZT yang didoping dengan Indium akan berkurang nilai polarisasi spontannya secara teoritik.

Hasil perhitungan secara teoritik yang didapatkan pada perhitungan ini tidak menyimpang terlalu jauh dengan beberapa peneliti yang melakukan eksperimen perhitungan nilai polarisasi spontan, diantaranya untuk BaTiO_3 nilai polarisasi spontan pada literatur secara eksperimen adalah $26 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, dengan perhitungan secara teoritik menggunakan pendekatan yang sama seperti yang

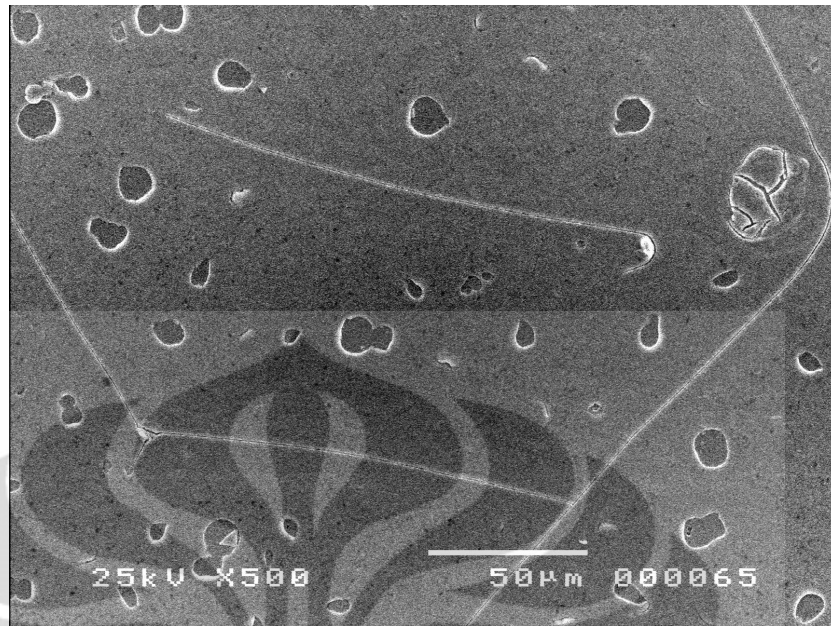
dilakukan oleh Tan et al (2009) didapatkan hasil $22 \mu\text{C}/\text{cm}^2$. Sedangkan untuk BST yang didoping dengan Indium memiliki polarisasi spontan secara eksperimen sebesar $25 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ seperti yang telah dilakukan oleh Iriani (2009).

4.4 Identifikasi hasil Scanning Electron Microscope (SEM) pada film tipis BIZT

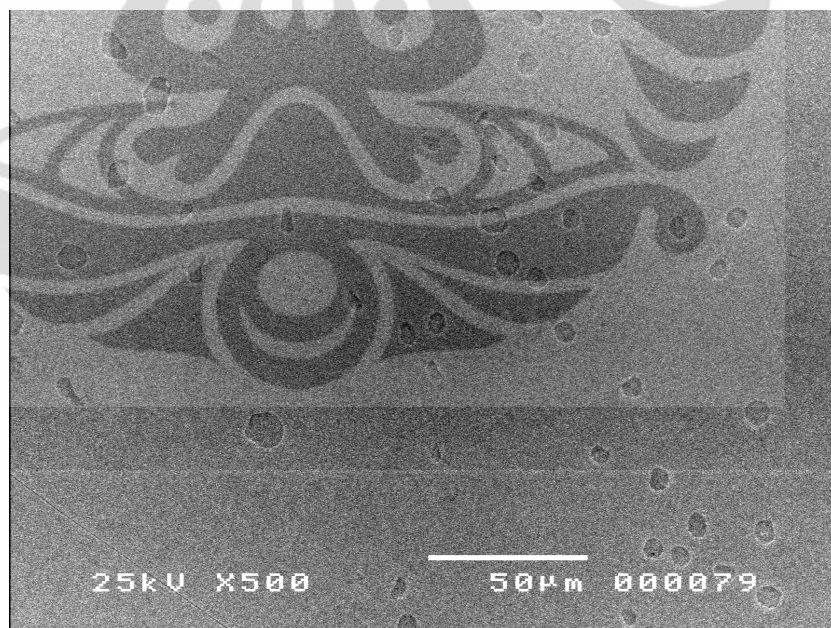
Setelah melakukan pengujian dengan XRD untuk mengidentifikasi fasa, perhitungan ukuran butir rata-rata, dan perhitungan polarisasi spontan secara teoritik, maka selanjutnya dilakukan pengujian SEM untuk mengetahui morfologi dari sampel yang sudah dibuat. Sampel yang diuji menggunakan SEM adalah film tipis BZT yang didoping dengan Indium dengan persen mol 1% - 4%.



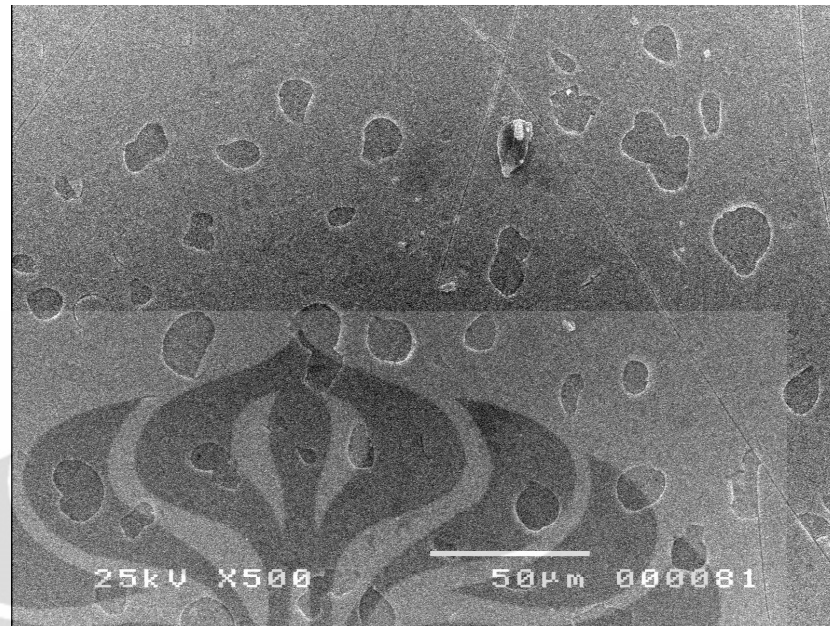
Gambar 4.14 : Hasil SEM BIZT 1% dengan perbesaran 500x



Gambar 4.15 : Hasil SEM BIZT 2% dengan perbesaran 500x



Gambar 4.16 : Hasil SEM BIZT 3% dengan perbesaran 500x



Gambar 4.17 : Hasil SEM BIZT 4% dengan perbesaran 500x

Hasil SEM pada film tipis BIZT dengan persen mol 1% - 4% menunjukkan bahwa pada setiap film tipis yang dibuat terdapat crack yang mungkin disebabkan oleh tegangan (stress) yang terdapat pada permukaan film tipis. Dari hasil SEM juga terlihat adanya bagian dari permukaan yang seperti berlubang yang berbentuk hampir menyerupai lingkaran, hal ini mungkin disebabkan oleh bagian dari gel yang menguap ketika dilakukan proses *annealing*, sehingga bagian yang menguap tersebut meninggalkan lubang pada permukaan film tipis.

BAB V

KESIMPULAN DAN SARAN

5.1 Kesimpulan

Berdasarkan hasil dan pembahasan pada bab sebelumnya, dapat disimpulkan bahwa,

1. Film tipis Barium Zirkonium Titanat dapat dibuat dengan metode Chemical Solution Deposition dengan parameter terbaik adalah jumlah lapisan sebanyak 5 lapis, suhu *annealing* 800°C, dan mol Zirkonium sebanyak 1%.
2. Hasil pengolahan data dari karakterisasi XRD menunjukkan bahwa sampel Barium Zirkonium Titanat yang didoping dengan Indium mengakibatkan perubahan parameter kisi dengan rasio perbandingan nilai parameter kisi *c/a* terbesar adalah 1.019611 pada BZT dengan persen mol Zirkonium sebanyak 1%.
3. Hasil perhitungan polarisasi spontan secara teoritik dengan menggunakan pendekatan *Bond-Valence Polarization* dari sampel BZT yang didoping dengan Indium mempunyai nilai sebesar 23,04 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ pada BZT dengan doping Indium sebanyak 1% yang nilainya tidak terlalu jauh dengan hasil eksperimen yang ada yaitu 26 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ untuk Barium Titanat seperti yang dilakukan oleh Tan et al (2009) dan 25 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ Uchino (2000), untuk Barium Zirkonium Titanat sebesar 22 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ F. Moura et al (2010).

5.2 Saran

Saran yang dapat dilakukan antara lain :

1. Pengkalibrasian alat-alat eksperimen seperti hot plate, spin coater, dan pipet agar mendapatkan sampel yang optimal sesuai dengan perhitungan stoikiometrik dan diagram alir penelitian yang dibuat sebelumnya.
2. Jam terbang dalam menggunakan software seperti GSAS, Bella, Match!, dan Origin perlu ditingkatkan agar mendapatkan hasil dan analisa terbaik.
3. Untuk verifikasi hasil perhitungan secara teoritik, hasil eksperimen menggunakan elektrometer dapat digunakan untuk membuktikan kebenaran perhitungan secara teoritik.

DAFTAR ACUAN

- Adem, U. (2003). *Preparation of BaSr_xTi_{1-x}O₃ Thin Films by Chemical Solution Deposition and Their Electrical Characterization*. The Department of Metallurgical & Materials Engineering, The Middle East Technical University. Thesis.
- Agrawal, D.C. *Ferroelectric Ceramic – A Unique Class of Smart Material*.
- AXS, Bruker. (2001). *Introduction to Powder X-Ray Diffraction*.
- Callister, D.W. (2007). *Material Science and Engineering – An Introduction*. 7th edition. United States of America : John Wiley & Sons, Inc.
- Cullity, R.D dan S.R. Stock. (2001). *Elements of X-Ray Diffraction*. New Jersey : Prentice Hall.
- Dixit, A., Majumder, S.B., Savvinov, A., Katiyar, R.S., Guo, D., Bhalla, A.S. (2002). *Investigation On The Sol-Gel-Derived Barium Zirconate Titanate Thin Films*. Material Letters 56, 933-940.
- Electron Microscopy, web.utk.edu/~prack/MSE%20300/SEM.pdf di unduh pada tanggal 4-Februari-2012 pukul 12:31 WIB.
- Haertling, G.(1999). *Ferroelectric Ceramic : History and Technology*. J. Am. Ceram. Soc, 82.
- Haiyan, He. (2008). *Processing Dependences of Microstructure of Ferroelectric Thin Films*. Current Opinion in Solid State and Material Science 12, 19-25
- Hikam, M. (2007). *Catatan Kuliah Kristalografi dan Teknik Difraksi*.
- Hikam, M., Adnan, S.R. dan Rizky, E. (2012) *Crystallographic and Electrical properties of Barium Zirconium Titanate doped by Indium and Lanthanum*, to be presented in International Conference on X-ray and Related Techniques in Research and Industry, Penang, Malaysia, July 2 – 4, 2012

Hikam, M., Soegiyono, B., Manaf, A., Mudzakir, I., Iriani, Y., Fasquelle, D. (2011). *Recent Development in Ferroelectric Smart Materials*. Proceedings of International Conference on X-ray Microscopy and Smart Materials (ICXSM), June 13, 2011, Solo, Indonesia.

Iriani, Y. (2009). *Penumbuhan Lapisan Tipis Barium strontinum Titanat ($Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$) Dengan Berbagai Doping Untuk Aplikasi Memori*. Program Studi Ilmu Material, FMIPA UI. Disertasi Pengesahan Doktor.

Le, S.H., Salmassi, B.R., Burghartz, J.N., Sarro, P.M. *Characterization of Ferroelectric Thin Films Materials for FeRAM*.

Luker, A. *A Short History of Ferroelectricity*. Departemen de Fisica. Portugal.

Mayergoyz and Bertotti, G. (2006). *The Science of Hysteresis – Volume 3*. Elsevier.

Moura, F., Simoes, A.Z., Paskocimas, C.A., Zaghete, M.A., Longo, E., Varela, J.A. (2010). *Temperature Dependence On The Electrical Properties of $Ba(Ti_{0.9}Zr_{0.1})O_3$: 2V Ceramics*. Journal of Materials Chemistry and Physics 123 (2010) 772-775.

Moura, F., Simoes, A.Z., Stojanovic, B.D., Zaghete, M.A., Longo, E., Varela, J.A. (2008). *Dielectric and Ferroelectric Characteristics of Barium Zirconate Titanate Ceramic Prepared From Mixed Oxide Method*. Journal of Alloys and Compound 462, 129-134.

Nakamura, Y., Nakashima, S., Okuyama, M. *$BiFeO_3$ Thin Films Prepared by Chemical Solution Deposition with Approaches for Improvement of Ferroelectricity*. Graduate School of Engineering Science, Osaka University. Japan.

Rout, S.K., Badapanda, T., Panigrahi, S. (2007). *Dielectric Study of Spin Coated Nano-Thick $BaZr_xTi_{1-x}O_3$ Film*. Indian Journal of Pure Physics Vol. 45, pp. 749-753.

Scott, J.F. (2007). *Application of Modern Ferroelectric*. Science 315. 954.

Seiko Instrument, Inc. <http://www.sii.co.jp/info/eg/nanotech3.html> di unduh pada tanggal 31-Januari-2012 pukul 20:29 WIB.

Sheng-Yuang, C., dan Cheng-Shong, H. (2007). *Effects of The MnO Additives On The Properties of Pb(Fe_{2/3}W_{1/3})-PbTiO₃ Relaxors : Comparison of Empirical Law and Experimental Results*. J. Appl. Phys., vol. 101, pp. 054117.

Tan, P.T., Cuong, N.K., Valach, F., Nhat, H.N. (2009). *A Simple Method For Estimating of Spontaneous Polarization in Perovskite-like Nanocrystallites*. J. of Physics : Conference Series 187 012080.

Uchino, K. (2000). *Ferroelectric Devices*. New York : Marcel Dekker, Inc.

X-Ray Analysis, the Robert Gordon University Aberdeen. http://www2.rgu.ac.uk/life_semweb/xray.html di unduh pada tanggal 31-Januari-2012 pukul 20:29 WIB.

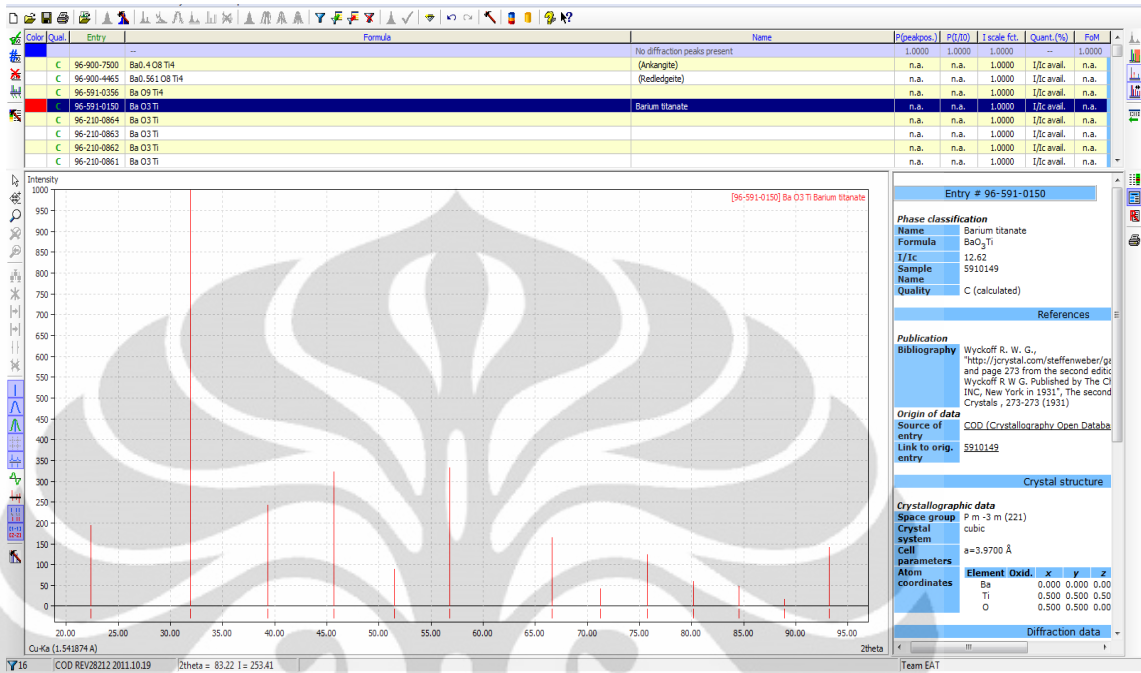
Yakovlev, S. (2004). *Lanthanide Ions Doping Effects on Structural, Electrophysical and Functional Properties of Sol-gel Fabricated PbTiO₃ Thin Films*. der Technischen Fakultät der Christian-Albrechts-Universität zu Kiel. Dissertation.

Zhai, J., Hu, Dan., Yao, Xi., Xu, Z., Chen, H. (2006). *Preparation and Tunability Properties of Ba(Zr_xTi_{1-x}) Thin Films Grown by A Sol-Gel Process*. Journal of European Ceramic Society 26, 1917-1920.

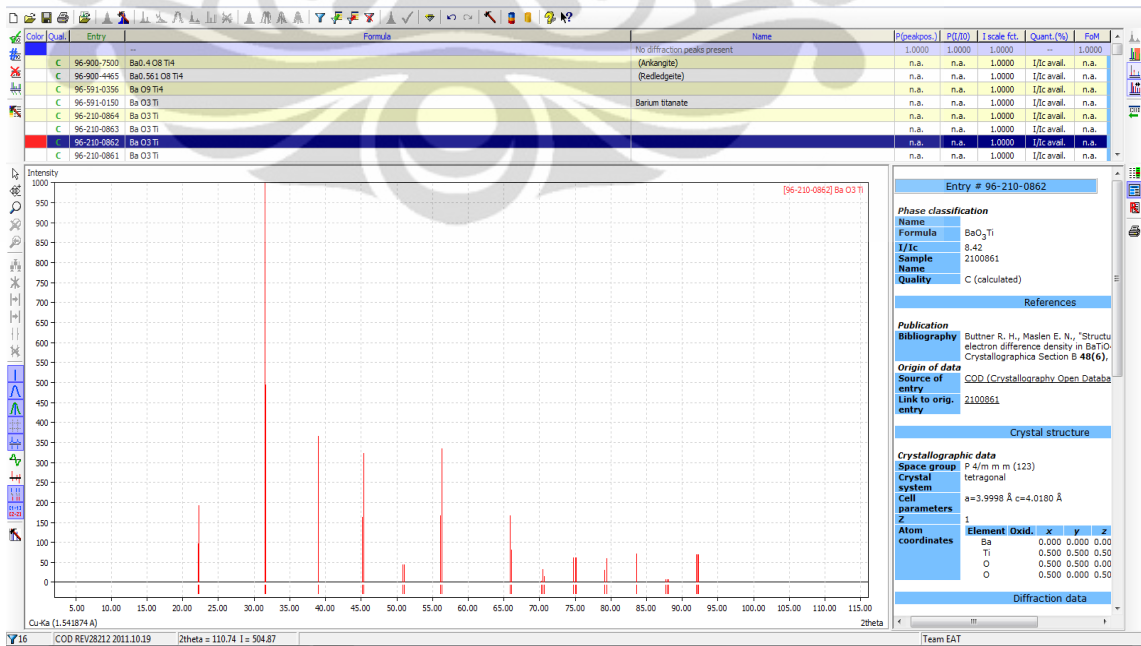
Zhai, J., Yao, X., dan Chen, H. (2004). *Structural and Dielectric Properties of Ba_{0,85}Sr_{0,15}(Zr_{0,18}Ti_{0,85})O₃ Thin Films Grown by A Sol-Gel Process*. Ceramic International 30, 1237-1240.

Lampiran A

Data Match! BaTiO₃ Fase Kubik

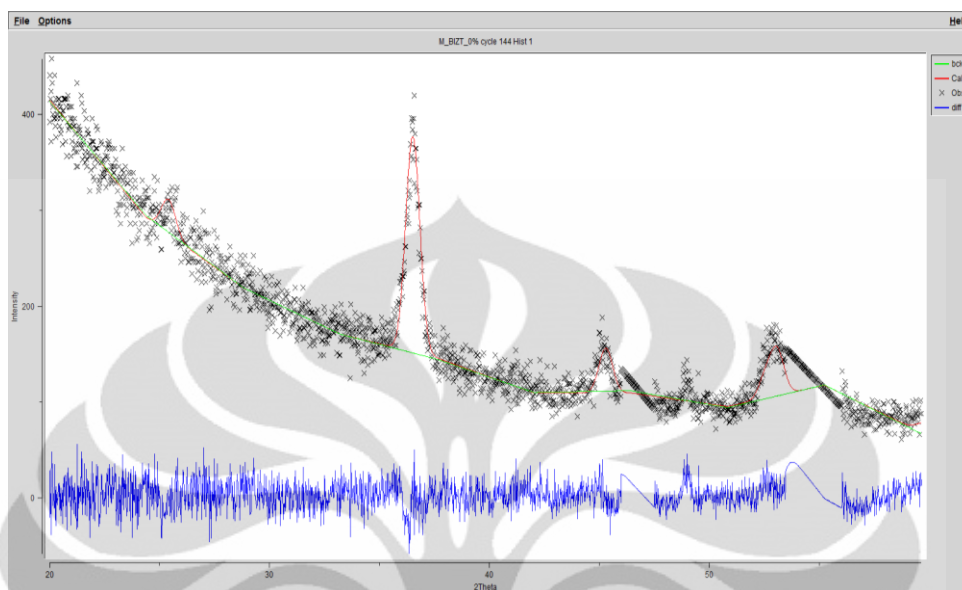


Data Match! BaTiO₃ Fase Tetragonal

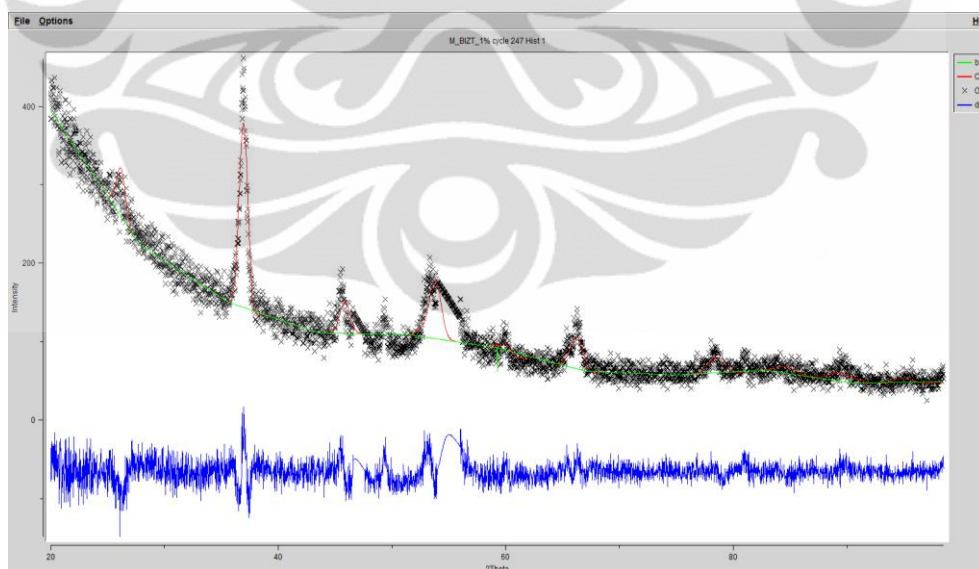


Lampiran B

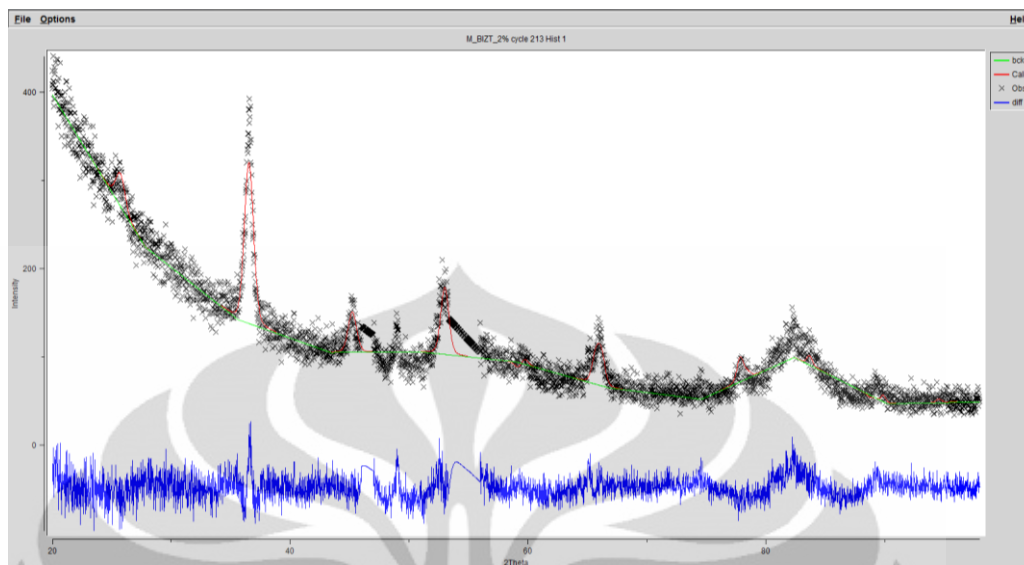
Penghalusan GSAS untuk BZT dengan doping Indium 0%



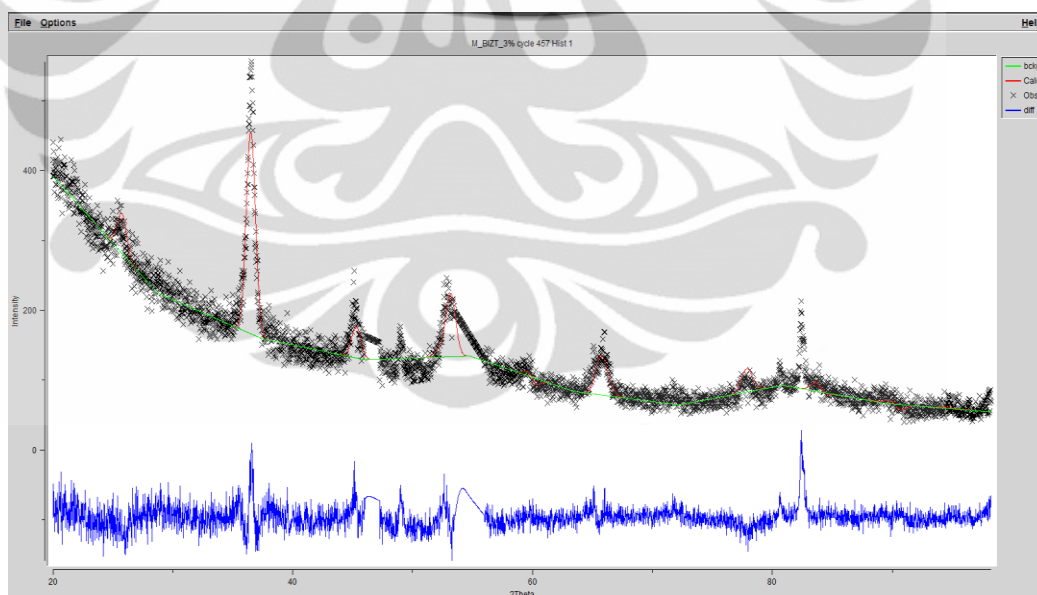
Penghalusan GSAS untuk BZT dengan doping Indium 1%



Penghalusan GSAS untuk BZT dengan doping Indium 2%



Penghalusan GSAS untuk BZT dengan doping Indium 3%



Penghalusan GSAS untuk BZT dengan doping Indium 4%

