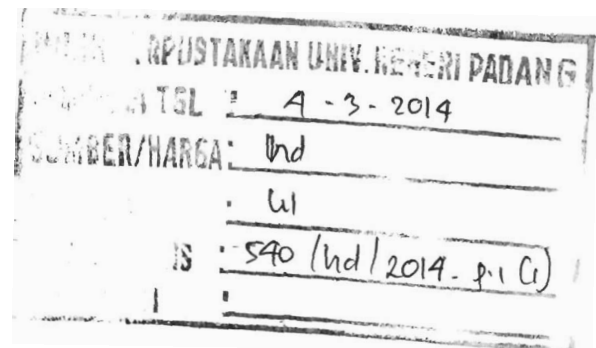


MAKALAH SEMINAR

PENGURANGAN MASSA SELAMA PROSES *ANNEALING* PADA SINTESA PREKURSOR BaSrTiO_3 (BST)

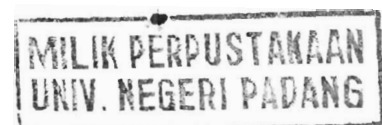


OLEH:

Yenni Darvina

Jurusan Fisika FMIPA Universitas Negeri Padang

**Disampaikan pada:
SEMIRATA BKS PTN Wilayah Barat
Ke 19 Tanggal 9 sd 11 Juli 2006 di Padang**





Panitia Pelaksana
SEMIRATA BKS-PTN MIPA WILAYAH BARAT
Padang, 9 - 11 Juli 2006



SURAT KETERANGAN
No. 64/Semirata/BKS/VII/2006

Panitia Pelaksana Semirata BKS-PTN MIPA Wilayah Barat Tahun 2006, menerangkan bahwa :

Nama : **Yenni Darvina**

Instansi : **Universitas Negeri Padang**

Telah menyajikan makalah dengan judul :

"Pengurangan Massa Selama Proses Annealing Pada Sintesis Prekursor BaSrTiO₃ (BST)"

pada seminar BKS-PTN MIPA Wilayah Barat pada tanggal 9 - 11 Juli 2006 di Padang.

Demikian surat keterangan dibuat untuk dapat dipergunakan sebagaimana mestinya.

Padang, 11 Juli 2006
Koordinator Seksi Ilmiah,



[Signature]
Drs. Hendra Syarifuddin, M.Si
NIP. 132051381

PENGURANGAN MASSA SELAMA PROSES ANNEALING PADA SINTESIS PREKURSOR BaSrTiO₃ (BST)

Yenni Darvina

Jurusan Fisika FMIPA Universitas Negeri Padang

Abstract

The mass loss of BaSrTiO₃ (BST) ceramic as a function of annealing temperature has been studied. The BST ceramic was synthesized by solgel method. The TGA/DTA characterization showed that the mass loss occurred at the annealing temperature in range of 100 - 200 °C, 300 - 500 °C, 600- 700 °C and 800 - 900 °C respectively. The mass loss at annealing temperature between 100-200 °C caused by the losses of acetic acid and 2-methoxyethanol, temperature between 100-200 °C mass loss was 34,002 % which correspond with exothermic effect tof 112,8687 μVs/mg and 54,5150 μVs/mg. At Annealing temperature between 600-900 °C, the mass loss was 4,393 % which correspond with exothermic effect tof 226,5882 μVs/mg. The mass losses in form CO₂ and 2H₂O.

Key Word: BST Precursor, Solgel, Mass Loss, Annealing Temperature.

PENDAHULUAN

Barium strontium titanat (BaSrTiO₃) selanjutnya disebut BST adalah suatu bahan yang bersifat ferroelektrik. Material ferroelektrik merupakan bagian dari bahan dielektrik yang molekulnya bersifat polar dan dapat mengalami polarisasi spontan. Polarisasi spontan adalah polarisasi yang terjadi meskipun tidak ada medan listrik. Jika suatu bahan dielektrik diberi medan listrik, kemudian arah medan listriknya dibalik, mengakibatkan arah polarisasi spontannya ikut terbalik maka bahan dielektrik yang demikian disebut bahan ferroelektrik (Uchino.K, 2000)

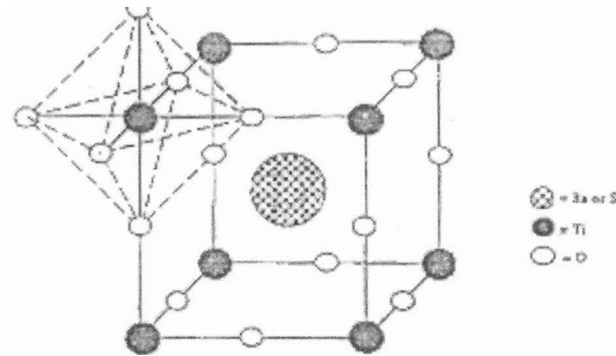
Material ferroelektrik dapat digunakan sebagai memori *non-volatile* yang dinamakan FRAM (Ferroelektrik Random Acces Memori). Susunan FRAM biasanya 1T1C (1transistor dan 1 kapasitor). Bahan dielektrik kapasitor pada FRAM terbuat dari film tipis ferroelektrik. Karena bahan ferroelektrik memiliki polarisasi remanent saat medan listriknya nol maka sifat ini dapat dimanfaatkan dalam penyimpanan data yang belum sempat disimpan sewaktu sumber arus mati.

Pembuatan film tipis ferroelektrik dapat dilakukan dengan berbagai metode penumbuhan seperti CSD (Chemical Solution Deposition) menggunakan spin coating, metode sputtering, PLAD (*Pulsed Laser Ablation Deposition*), MOCVD (*Metal Organic Chemical Vapour Deposition*) dan lain-lain. Untuk metode CSD yang menggunakan Spin Coating diperlukan precursor yang dibuat dengan metode sol-gel.

Dari beberapa penelitian didapatkan konstanta dielektrik film tipis BST yang dibuat dengan metode MOCVD antara 100-240 (Y. Gao, et al), dengan rf- magnetron sputtering antara 146 – 214 (Izuha et al), dengan teknik sol-gel untuk $Ba_{0,7}Sr_{0,3}TiO_3$ diperoleh 490 (Wang et al). Sedangkan harga polarisasi remanen (P_r) untuk BST dengan teknik CSD adalah $10 \mu C/cm^2$ (Jian-Gong Cheng, et al.).

Secara ideal bahan ferroelektik yang baik untuk dijadikan memori adalah yang memiliki sifat antara lain memiliki morfologi yang bagus, intensitas puncak XRD yang tinggi, konstanta dielektrik yang tinggi, kebocoran arus yang kecil dan polarisasi remanen yang besar. Dalam rangka mendapatkan film tipis BST yang berkualitas dengan teknik penumbuhan tertentu, terlebih dahulu perlu dianalisis bahan dasar yang digunakan. Untuk teknik CSD menggunakan Spin Coating, maka bahan dasar yang digunakan adalah dalam bentuk prekursor yang dibuat dengan metode sol-gel. Pada makalah ini digunakan bahan BST dengan komposisi $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$.

Pembuatan prekursor BST dilakukan dengan metode sol-gel menggunakan bahan dasar barium asetat, strontium asetat, titanium isopropoksida dengan pelarut asam asetat glasial dan 2- metoksiethanol. Struktur kristal dari BST berbentuk perovskite kubus di mana pada pusat kubus terdapat atom Ba atau Sr yang dapat saling bersubsitusi, pada sudut-sudutnya terdapat atom Ti dan pada rusuknya terdapat atom oksigen. Konstanta kisi dari BST adalah $3,947 \text{ \AA}$ ($a = b = c$). Struktur kristal BST dapat dilihat pada Gambar 1 berikut.



Gambar 2.1. Struktur kristal $(\text{BaSr})\text{TiO}_3$ atau (BST)

Untuk melihat sifat dari prekursor BST yang telah selesai dibuat, maka dilakukan pemanasan terhadap prekursor BST dan *diannealing* pada suhu tinggi, sehingga dihasilkan keramik BST. Keramik BST yang terbentuk selanjutnya dikarakterisasi dengan TGA/DTA. Karakterisasi TGA (*Thermo Gravimetry Analysis*) berfungsi untuk melihat pengaruh temperatur *annealing* terhadap perubahan massa prekursor BST dan DTA (*Differential Thermal Analysis*) berguna untuk mempelajari pengaruh panas terhadap material seperti terjadinya perubahan kimia atau fisika. Data TGA/DTA. nantinya akan digunakan dalam pengambilan keputusan untuk menentukan parameter penumbuhan film tipis BST dengan metode CSD.

Berdasarkan uraian di atas maka masalah yang akan dibahas pada makalah ini adalah: "***Bagaimana pengaruh kenaikan temperatur annealing terhadap pengurangan massa pada sintesis prekursor BST?***" Untuk itu makalah ini diberi judul **Pengurangan Massa Selama Proses Annealing Pada Sintesis Prekursor BaSrTiO_3 (BST)**

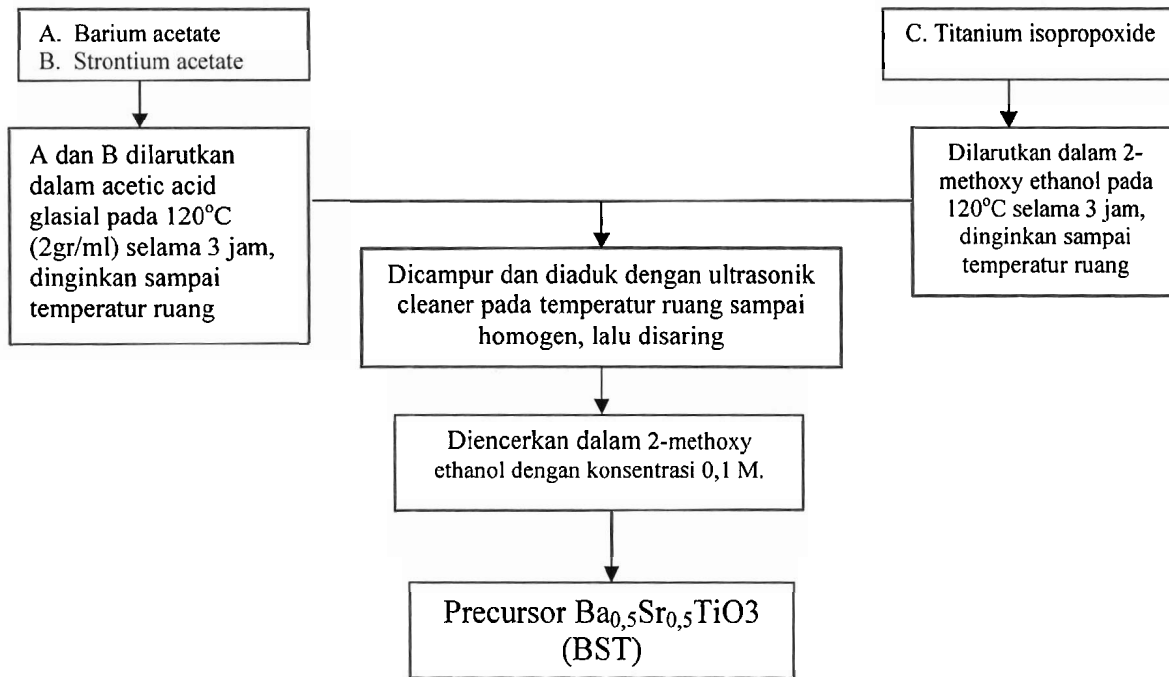
B. METODOLOGI

1. Sintesis prekursor BST

Prekursor BST disintesis dengan metode sol-gel dari bahan *Barium acetate* 99,9% $[\text{Ba}(\text{CH}_3\text{COO})_2]$, *Strontium acetate* 99,99% $[\text{Sr}(\text{CH}_3\text{COO})_2]$, dan *Titanium isopropoxide* 99,999% $[\text{Ti}(\text{OC}_2\text{H}_4\text{CH}_3)_4]$ dengan perbandingan $x = 0,5$ ($\text{Ba/Sr} = 50/50$). Pelarut yang digunakan adalah *2-methoxyethanol* 99,9% dan *acetic acid glacial* 100%.

Prosedur pembuatan prekursor yang dilakukan dapat dilihat pada bagan berikut ini:

*Disampaikan pada SEMIRATA BKS PTN Wilayah Barat ke 19
Tanggal 9 sd 11 Juli 2006 di Padang*



Gambar 1. Sintesis precursor BST

Jumlah zat yang dibutuhkan dalam 10 ml larutan BST 0,1 M dapat dilihat pada Tabel 1 dibawah ini:

Tabel 1. Jumlah zat yang dibutuhkan untuk 10 ml BST 0,1M

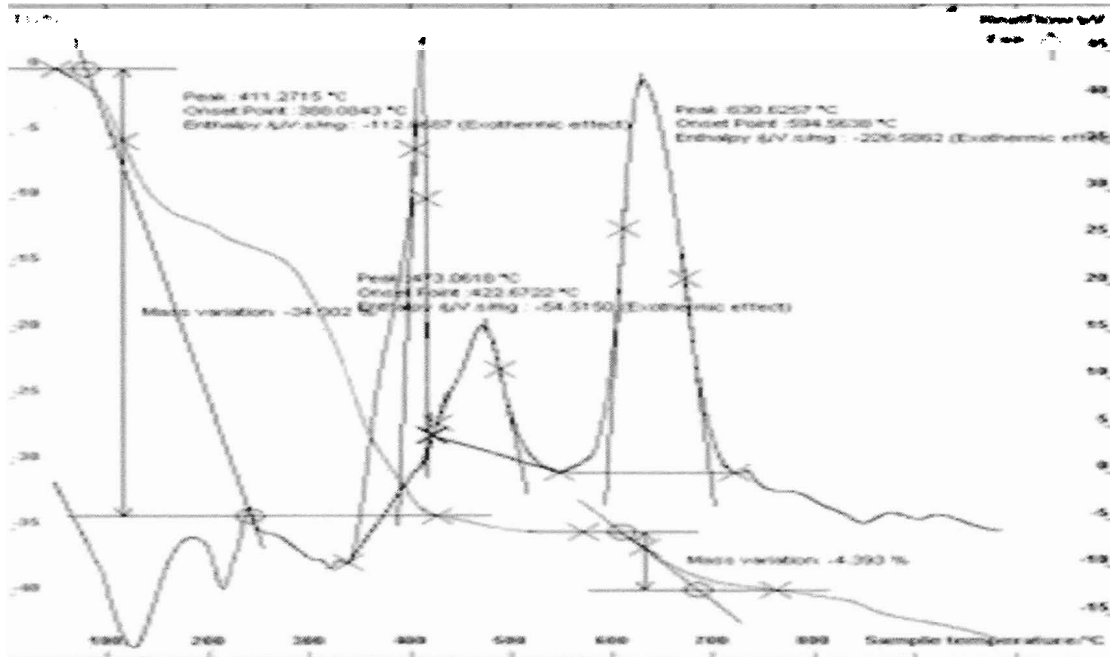
No	Nama zat	Konsentrasi 0.1 M
1	<i>Barium acetate</i>	0,1277 gr
2	<i>Strontium acetate</i>	0,1028 gr
3	<i>Titanium Isopropoxide</i>	0,2900 gr

2. Karakterisasi prekursor BST dengan TGA / DTA

Untuk melihat perubahan massa dari prekursor BST terhadap perubahan temperatur *annealing* dilakukan karakterisasi TGA. Sedangkan DTA berguna untuk mempelajari pengaruh panas terhadap material seperti terjadi perubahan kimia atau fisika. Perubahan temperatur pada karakterisasi TGA/DTA dilakukan dengan laju pemanasan 10°C permenit sampai temperatur 1000°C. Karakterisasi dilakukan di Balai Besar Keramik Bandung.

C. HASIL DAN PEMBAHASAN

Hasil karakterisasi TGA/DTA yang dilakukan terhadap prekursor dengan laju pemanasan 10°C permenit sampai temperatur 1000°C , dapat dilihat pada Gambar 2.



Gambar 2. Hasil TGA/DTA dari prekursor BST

Pengurangan masa akibat adanya pemanasan dilihat pada kurva TGA. Dari gambar 2 di atas terlihat bahwa prekursor BST mengalami 4 tahap pengurangan massa yaitu pada temperatur antara $100 - 200^{\circ}\text{C}$, $300 - 500^{\circ}\text{C}$, $600 - 700^{\circ}\text{C}$ dan antara $800 - 900^{\circ}\text{C}$. Pengurangan massa ini berkaitan dengan 1 puncak endoterm dan 3 puncak eksoterm yang terlihat pada kurva DTA.

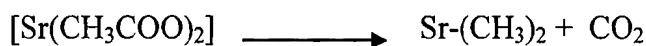
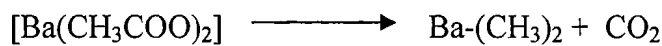
Pengurangan massa pertama pada kurva TGA muncul antara $100 - 200^{\circ}\text{C}$ yang berkaitan dengan puncak endoterm DTA sekitar 125°C . Penurunan ini berhubungan dengan penguapan pelarut asam asetat dengan titik didih 118°C dan penguapan 2-methoxiethanol dengan titik didih 125°C . Panas yang diberikan pada tahap ini digunakan untuk menguapkan pelarut yang terdapat dalam prekursor. Jumlah massa yang hilang pada tahap pertama ini adalah 34,002%.

Pengurangan massa kedua pada kurva TGA terjadi antara $300 - 500^{\circ}\text{C}$ yang bersesuaian dengan 2 buah puncak eksotermik pada kurva DTA yang terjadi pada

temperatur 411,2715 °C dan 473,0618 °C. Puncak eksotermik DTA pada temperatur 411,2715 °C dimulai pada temperatur 388,0843 °C dengan enthalpy -112,8687 μV-s/mg. Sedangkan puncak eksotermik DTA pada temperatur 473,0618 °C dimulai pada temperatur 422,3722 °C dengan enthalpy -54,5150 μV-s/mg. Pada tahap ini terjadi pelepasan panas dari hasil reaksi, namun pengurangan massa yang terjadi termasuk kecil. Diperkirakan hal ini terjadi karena adanya penguraian prekursor organik (Reed, 1986) dengan mekanisme reaksi:

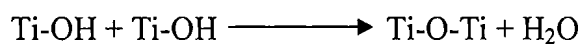


Untuk Barium dan Strontium diperkirakan terjadi reaksi sebagai berikut:



Reaksi pada Barium dan Strontium diperkirakan terjadi pada suhu yang sama karena unsur ini satu golongan, namun belum dapat ditentukan pada suhu yang mana dari 2 puncak eksotermik tersebut yang merupakan milik Titanium atau Barium dan Strontium.

Pengurangan massa ke 3 terjadi antara temperatur 600 – 700°C berkisar sekitar 4,393 % yang berkaitan dengan puncak eksotermik pada temperatur 630,6257 °C. Puncak eksotermik DTA pada temperatur 630,6257 °C mulai terjadi pada temperatur 594,5638 °C dengan enthalpy -226,5882 μV-s/mg. Diperkirakan pada saat ini pembentukan material BST mulai terjadi, dengan mekanisme reaksi:



Pengurangan massa ke 4 terjadi antara temperatur 800 – 900°C, namun jumlahnya sedikit sekali. Puncak eksotermiknya pada kurva DTA untuk proses ini terjadi pada temperatur sekitar 875 °C, namun harga enthalpynya sangat kecil sehingga tidak tercatat harganya.

Bila dihitung secara keseluruhan, pengurangan massa yang terjadi sekitar 38,395 %. Jumlah ini bersesuaian dengan perhitungan pengurangan massa secara keseluruhan yaitu :

$$\text{Kekurangan massa} = (\text{massa yang hilang} / \text{massa total}) \times 100 \%$$

Massa total adalah massa Ba_{0,5} Sr_{0,5} TiO₃ = 208,3782 g, sedangkan yang dilepaskan dalam bentuk CO₂ dan H₂O dengan massa = 80 g. Bila dimasukkan pada rumus di atas dihasilkan

massa yang hilang sebesar 38,392 %. Angka ini sangat dekat sekali dengan yang diperoleh pada kurva TGA yaitu 38,395 %.

Dari hasil yang diperlihatkan oleh kurva TGA/DTA di atas yaitu untuk *annealing* sampai temperatur 1000°C, terlihat bahwa perubahan massa prekursor belum berakhir secara tuntas, sebab masih terlihat penurunan pada kurva TGA di atas temperatur 1000 °C. Hal ini diperkirakan akibat terjadinya perubahan morfologi prekursor ke arah kristalisasi. Oleh sebab itu untuk pembuatan film tipis BST dengan metode CSD menggunakan Spin Coating, pemilihan temperatur *annealing* disesuaikan dengan data TGA/DTA tersebut.

Berdasarkan hasil dan pembahasan di atas dirasa perlu untuk melakukan *annealing* di atas suhu 1000°C agar betul-betul terlihat pada suhu berapa pengurangan massa benar-benar berakhir, sebab di atas 900°C kurva TGA masih mengalami sedikit penurunan. Hal ini memperlihatkan bahwa pengurangan massa masih terjadi. Sebagai perbandingan untuk keramik BaTiO₃ temperatur kalsinasi terendah adalah 900°C dan pembentukan keramik BaTiO₃ sempurna pada temperatur 1350°C (Yunasfi, 2001)

D. KESIMPULAN

Pengurangan masa akibat adanya pemanasan sampai suhu 1000°C yang terlihat pada kurva TGA terjadi pada 4 tahap yaitu antara 100 – 200°C, 300 – 500°C, 600 – 700°C dan antara 800 – 900°C. Pengurangan massa terbesar hanya 2 tahap yaitu pada temperatur 100 – 200°C sebesar 34,002% dan temperatur 600 – 700°C sebesar 4,393 % Bila dihitung secara keseluruhan, pengurangan massa yang terjadi 38,395 %, hasil ini cocok dengan perhitunganyaitu jumlah massa yang hilang sebesar 38,392 %. Pengurangan massa ini berkaitan dengan 1 puncak endoterm dan 3 puncak eksoterm yang terlihat pada kurva DTA.

Berdasarkan hasil dan pembahasan di atas dirasa perlu untuk melakukan *annealing* di atas suhu 1000°C agar betul-betul terlihat pada suhu berapa pengurangan massa benar-benar berakhir, sebab di atas 900°C kurva TGA masih mengalami sedikit penurunan. Hal ini memperlihatkan bahwa pengurangan massa masih terjadi.

Ucapan terimakasih

Kami sampaikan ucapan terima kasih pada Proyek Peningkatan Penelitian Pendidikan Tinggi Departemen Pendidikan Nasional yang telah mendanai penelitian HIBAH PEKERTI ANGKATAN II, TAHUN II, tahun anggaran 2005 dengan nomor kontrak 019/SPPP/PP/DP3M/IV/2005 Tanggal 11 April 2005.

DAFTAR PUSTAKA

- 1 Darvina, Yenni. dkk. 2005, *Deposisi Film Tipis Ferroelektrik BST dan SBT Dengan Teknik CSD Serta Karakterisasinya*. Laporan Penelitian HIBAH PEKERTI, Padang, UNP.
- 2 Izuha, M. at al, 1997, *Electrical Properties and Microstructure of Pt/Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO₃ Capacitors*, Jurnal of American Institute of Physics.
- 3 Jian-Gong Cheng, Jun Tang and Jun-Hao Chu, 2000, *Pyroelectric properties in sol-gel derived barium strontium titanate thin films using a highly diluted precursor solution*, Appl. Phys. Lett., Vol.77, No. 7, 14 August 2000, 1035 – 1037.
- 4 Reed, James S. 1986, *Introduction to The Principles of Ceramic Processing*, New York, John Wiley & Sons.
- 5 Uchino, K. 2000, "*Ferroelectric Devices*". Marcel Dekker, Inc. New York.
- 6 Wang, F, Uusimaki, A. and Leppavuori, S., 1998, *Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO₃ Ferroelectric Film Prepared With The Sol-Gel Process And Its Dielectric Performance In Planar Capacitor Structure*, J. Material Research, vol. 13 no. 5.
- 7 Yunasfi, 2001, *Pembuatan Keramik Barium Titanat Untuk Peralatan Elektronik*, Jurnal Elektro Indonesia, No. 35, Tahun VI, Februari 2001.