

Pengaruh Tekanan Pada Sintesis Senyawa $Ba_{0,7}Ca_{0,3}TiO_3$ Terhadap Konstanta Dielektriknya

Effect of Pressure on the Synthesis of Compound $Ba_{0,7}Ca_{0,3}TiO_3$ on the Dielectric Constant

Windarjoto^{1*}, S Poniman², Made Hendra Hadinata³

^{1, 2, 3}Jurusan Fisika, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Universitas Udayana, Kampus Bukit Jimbaran, Badung, Bali, Indonesia 80361

Email: *windaryoto@unud.ac.id, sponiman@unud.ac.id, hendrahadinata99@gmail.com

Abstrak – Material keramik piezoelektrik dan feroelektrik banyak digunakan untuk teknologi canggih. Barium Titanat adalah salah satu materil feroelektrik yang masih banyak diteliti sampai saat ini. Pada penelitian ini telah disintesis senyawa $Ba_{0,7}Ca_{0,3}TiO_3$. Senyawa disintesis dengan metode reaksi padatan dengan variasi tekanan saat proses kompaksi sampel yaitu 10, 20 dan 30 kN. Sampel dalam bentuk padatan (pelet) dikalsinasi pada suhu 800 °C dan disintering pada suhu 1000 °C masing masing selama 4 jam. Hasil sintesis dikarakterisasi dengan LCR meter. Hasil karakterisasi pada rentang frekuensi 100-200000 Hz memperlihatkan bahwa tekanan berpengaruh terhadap nilai parameter konstanta dielektriknya terutama pada frekuensi 100-10000 Hz. Pada rentang frekuensi tersebut konstanta dielektrik menurun secara sangat tajam, kemudian di atas 100 kHz konstanta dielektrik hampir tidak berubah dengan bertambahnya frekuensi.

Kata kunci: Senyawa $Ba_{0,7}Ca_{0,3}TiO_3$, metode reaksi padatan, tekanan, sintering, konstanta dielektrik, frekuensi

Abstract – Piezoelectric and ferroelectric ceramic materials are widely used for advanced technology. Barium Titanat is one of the ferroelectric materials that are still widely studied today. In this research, $Ba_{0,7}Ca_{0,3}TiO_3$ was synthesized. The compound was synthesized by the solid reaction method with variations in pressure during the sample compacting process include 10, 20, and 30 kN. Samples in the form of solids (pellets) were calcined at 800 °C and sintered at 1000 °C for 4 hours respectively. The synthesized product was characterized by an LCR meter. The characterization results in the frequency range of 100-200000 Hz show that the pressure affects of the parameters value of the dielectric constant, especially at frequencies 100-10000 Hz. In that frequency range the dielectric constant decreases very sharply, then above 100 kHz the dielectric constant is almost unchanged with increasing frequency.

Keywords: $Ba_{0,7}Ca_{0,3}TiO_3$ compound, solid reaction method, pressure, sintering, dielectric constant, frequency

1. Pendahuluan

Barium Titanat merupakan jenis perovskite feroelektrik pertama yang dikembangkan dan dipelajari sejak tahun 1940-an [1]. Selain itu, Barium Titanat (BT) merupakan material piezoelektrik dan feroelektrik yang dapat memiliki permitivitas dielektrik beberapa ribu pada suhu ruang [2]. Material feroelektrik berbasis perovskite ABO_3 banyak dipelajari dan diteliti sifat-sifat kimia dan fisika serta aplikasinya dalam teknologi fungsional seperti actuator, sensor, memori, opto-elektronik [3]. Material ini banyak digunakan dalam aplikasi di bidang elektronika karena lebih ramah lingkungan, memiliki temperatur Curie yang mendekati suhu ruang dan memiliki konstanta dielektrik yang tinggi [1, 4]. Saat ini peralatan elektronika yang berbasis feroelektrik telah dikembangkan oleh beberapa peneliti karena memiliki kemungkinan untuk menggantikan memori CMOS yang sekarang digunakan sebagai *Ferroelectric Random Access Memories* (FRAM) [4-7], dikembangkan untuk pendingin dan pemanasan secara dielektrik [8]. Hingga saat ini penelitian untuk meningkatkan kinerja $BaTiO_3$ masih terus berlanjut karena memberikan beberapa kelebihan diantaranya stabil secara kimia dan mekanik [9]. Upaya untuk

meningkatkan kualitas sifat elektrik dari material ferroelektrik dapat dilakukan dengan substitusi unsur-unsur atom. Salah satu kajian yang cukup mendapat banyak perhatian adalah substitusi (doping) material $BaTiO_3$ (BT) dengan atom Ca menjadi material $Ba_{1-x}Ca_xTiO_3$ (BCT), dimana atom Ca menggantikan posisi atom Ti pada struktur $BaTiO_3$ [3].

Salah satu sifat penting dari material dielektrik adalah permitivitas relatif atau konstanta dielektriknya. Konstanta dielektrik sangat bergantung pada frekuensi medan listrik AC. Juga tergantung pada struktur kimia dan ketidaksempurnaan (cacat) material, serta pada parameter fisik lainnya termasuk suhu dan tekanan. Pada dasarnya material dielektrik terdiri dari atom atau molekul yang memiliki satu atau lebih dari empat jenis polarisasi listrik, yaitu polarisasi elektronik, atom atau ion, dipolar atau orientasi, antarmuka atau polarisasi muatan ruang.

Elektron pada kulit terluar atom dapat berperilaku seperti muatan bebas, berinteraksi dengan gaya eksternal, seperti medan listrik, medan magnet dan gelombang elektromagnetik, tekanan mekanis maupun suhu yang mengakibatkan terjadinya semua fenomena dielektrik. Sifat-sifat material dielektrik dapat dipengaruhi oleh ketidakhomogenan struktural, ukuran butir dan non-stoikiometri lokal, kerapatan partikel material yang mana adalah berkaitan dengan teknologi pembuatannya [2, 3].

Dalam penelitian ini dilakukan modifikasi barium titanat dengan melakukan substitusi calcium untuk membuat senyawa dengan stoikiometri $Ba_{1-x}Ca_xTiO_3$. Dalam penelitian ini nilai molar $x=0,3$ dengan fokus pada efek tekanan pada proses sintesis terhadap konstanta dielektriknya. Ini relevan dengan efek kerapatan partikel pada material dengan sifat-sifat konstanta dielektrik. Untuk itu sampel dibuat dalam bentuk pelet dengan variasi tekanan 10, 20 dan 30 kN.

2. Tinjauan Pustaka

2.1 Permitivitas relatif

Pada saat ruang diantara dua keping konduktor pada kapasitor diisi dengan dielektrik, kapasitansi meningkat sebanding dengan faktor ϵ_r yang merupakan karakteristik dielektrik dan disebut konstanta dielektrik [2]. Kenaikan kapasitansi disebabkan oleh melemahnya medan listrik diantara keping sejajar kapasitor yang disisipi dielektrik. Dielektrik dapat memperlemah medan listrik antara kedua plat kapasitor karena adanya medan listrik tambahan yang arahnya berlawanan dengan medan listrik luar [5]. Kapasitansi merupakan ukuran dari "kapasitas" penyimpanan muatan untuk perbedaan potensial tertentu [4].

Permitivitas relatif dielektrik (disebut juga konstanta dielektrik) ϵ_r , didefinisikan sebagai perbandingan antara permitivitas dielektrik ϵ dengan permitivitas ruang hampa ϵ_0 , yaitu.

$$\epsilon_r = \frac{\epsilon}{\epsilon_0} \quad (1)$$

Kapasitansi (C_0) pelat parallel sebelum disisipi bahan dielektrik ,

$$C_0 = \epsilon_0 \frac{A}{d} \quad (2)$$

Jika material dielektrik yang memiliki permitivitas relatif ϵ_r disisipkan di antara elektroda kapasitor pelat paralel yang memiliki luas A dengan jarak d , (luas permukaan sampel adalah A dan tebal sampel adalah d) maka persamaan (2) dapat diungkapkan dalam ϵ_r , yaitu

$$C = \epsilon_r \epsilon_0 \frac{A}{d} \quad (3)$$

Dengan demikian, permitivitas dielektrik relatif dapat hitung dengan persamaan (4) [1].

$$\epsilon_r = \frac{d}{\epsilon_0 A} C \quad (4)$$

Dimana C adalah kapasitansi pelat paralel setelah disisipi dielektrik dan ϵ_0 adalah konstanta permitivitas dalam ruang hampa $8,85 \times 10^{-12} \text{ F.m}^{-1}$.

2.2 Barium Titanat ($BaTiO_3$)

Barium titanat merupakan material yang bersifat ferroelektrik dan mempunyai struktur kristal perovskite (ABO_3) yang jauh lebih sederhana bila dibandingkan dengan material ferroelektrik yang lain. Barium titanat ($BaTiO_3$) memiliki stuktur atom ABO_3 dengan A ditempati oleh atom Ba dan B ditempati atom Ti [4]. Dari segi penggunaannya, material ini sangat praktis karena sifat kimia dan mekaniknya sangat

stabil, mempunyai sifat ferroelektrik pada suhu ruang sampai dengan suhu yang cukup tinggi di atas suhu ruang karena mempunyai suhu Curie (T_c) pada $120\text{ }^\circ\text{C}$ [5].

Barium titanat (BaTiO_3) merupakan salah satu material ferroelektrik yang ramah lingkungan, memiliki temperatur curie yang mendekati suhu ruang [5] dan memiliki konstanta dielektrik yang tinggi serta tingkat kebocoran energi yang rendah, sehingga banyak diaplikasikan dalam bidang elektronika seperti *Dynamic Random Access Memories* (DRAM), *Ferroelectric Random Access Memories* (FRAM), *Controllers*, sensor PCTR, detektor piroelektrik, perangkat pembangkit sinyal, dan kapasitor [5-7].

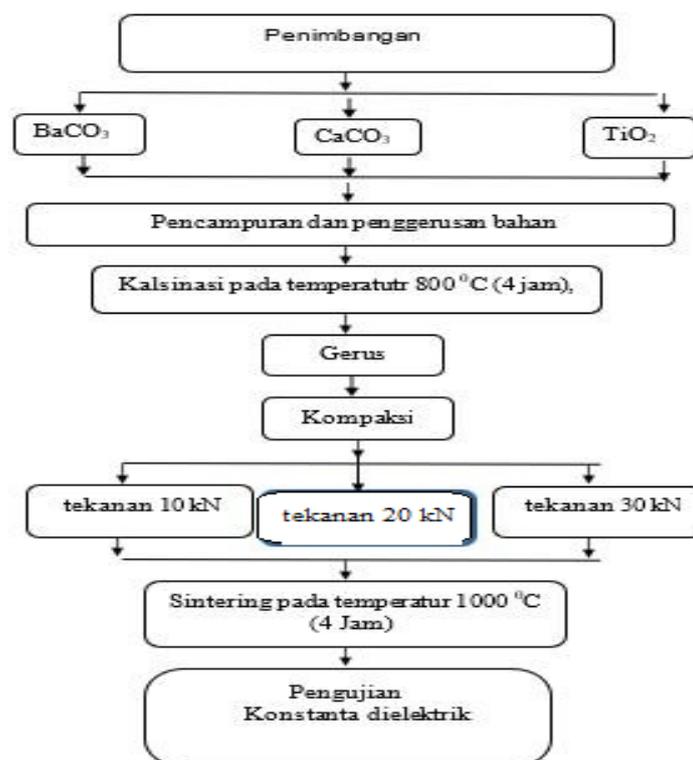
2.3 Metode fasa padat (*solid state reaction*)

Salah satu metode yang banyak digunakan dalam sintesis material adalah metode fasa padat (*Solid Stated*). Metode ini merupakan teknik yang digunakan dalam penyediaan padatan polikristalin. Polikristalin merupakan padatan kristal disintesis secara langsung dari pereaksi-pereaksinya yang berwujud padat. Teknik ini menggunakan suhu tinggi bahkan mencapai $1000\text{ }^\circ\text{C}$ hingga $1500\text{ }^\circ\text{C}$, hal ini dilakukan karena padatan tidak dapat bereaksi pada suhu ruang, tetapi pada suhu tinggi padatan juga bereaksi dengan laju reaksi yang tinggi [9].

Sintesis material merupakan integrasi beberapa material untuk menghasilkan material baru. Material ini dapat berupa senyawa organik maupun anorganik. Salah satu contoh sintesis material menggunakan metode fasa padat adalah sintesis Barium Titanat (BT) dengan menambahkan Ca atau Sr. Pada metode reaksi padatan, tahapan yang harus dilakukan meliputi, persiapan sampel, penggerusan, kompaksi, kalsinasi, sintering dan pemberian perlakuan akhir (*annealing*) dalam gas tertentu jika diperlukan [11].

3. Metode Penelitian

Dalam penelitian ini dibuat senyawa dengan stoikiometri $\text{Ba}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{TiO}_3$ (BCT) dari material awal berupa serbuk BaCO_3 , CaCO_3 , TiO_2 dengan kemurnian 99,9% dengan metode reaksi padatan (*solid state reaction*). Pencampuran dilakukan dengan menggerus material di dalam mortar sehingga terbentuk campuran yang homogen dengan ukuran partikel yang lebih kecil. Campuran $\text{Ba}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{TiO}_3$ dicetak dalam bentuk padatan (pelet) pada tekanan 10, 20 dan 30 kN. Sampel padatan kemudian dikalsinasi pada suhu $800\text{ }^\circ\text{C}$ dan disintering pada suhu $1000\text{ }^\circ\text{C}$ masing masing selama 4 jam. Langkah-langkah sintesis secara skematis seperti ditunjukkan pada Gambar 1.



Gambar 1. Bagan alir sintesis $\text{Ba}_{(1-x)}\text{Ca}_{(x)}\text{TiO}_3$.

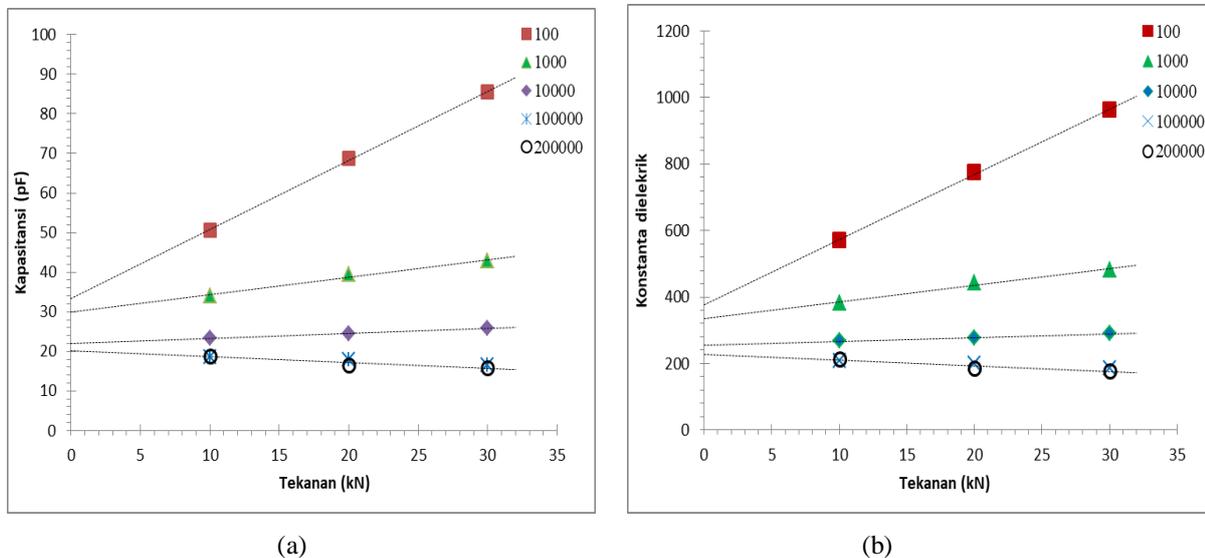
Sampel hasil sintesis dikarakterisasi menggunakan RCL meter dengan variasi frekuensi pada rentang 100-200000 Hz. Dari pengukuran diperoleh data kapasitansi untuk setiap variasi frekuensi. Dari data tersebut dilakukan perhitungan konstanta dielektrik sampel dengan menggunakan persamaan (4).

4. Hasil Dan Pembahasan

Data hasil pengukuran kapasitansi dan hasil perhitungan konstanta dielektrik sampel $Ba_{0.7}Ca_{0.3}TiO_3$ hasil sintesis seperti ditunjukkan pada Tabel 1. Dari tabel tersebut dapat diperoleh grafik yang terkait dengan efek tekanan terhadap kapasitansi dan konstanta dielektrik sampel pada rentang frekuensi antara 100-200000 Hz, seperti ditunjukkan pada Gambar 2.

Tabel 1. Hasil pengukuran kapasitansi dan hasil perhitungan konstanta dielektrik sampel $Ba_{0.7}Ca_{0.3}TiO_3$. Tebal sampel 2 cm dan diameternya 1,6 cm.

Frekuensi (Hz)	Tekanan (kN)					
	$P_1 = 10$		$P_2 = 20$		$P_3 = 30$	
	Kapasitansi (pF)	Konstanta Dielektrik	Kapasitansi (pF)	Konstanta Dielektrik	Kapasitansi (pF)	Konstanta Dielektrik
100	50,62	569,24	68,75	773,12	85,53	961,82
1000	33,95	381,78	39,44	443,52	42,80	481,31
10000	23,31	268,87	24,53	275,86	25,92	291,48
100000	18,56	208,72	17,86	200,84	16,52	185,77
200000	18,90	212,54	16,65	187,24	15,90	178,80



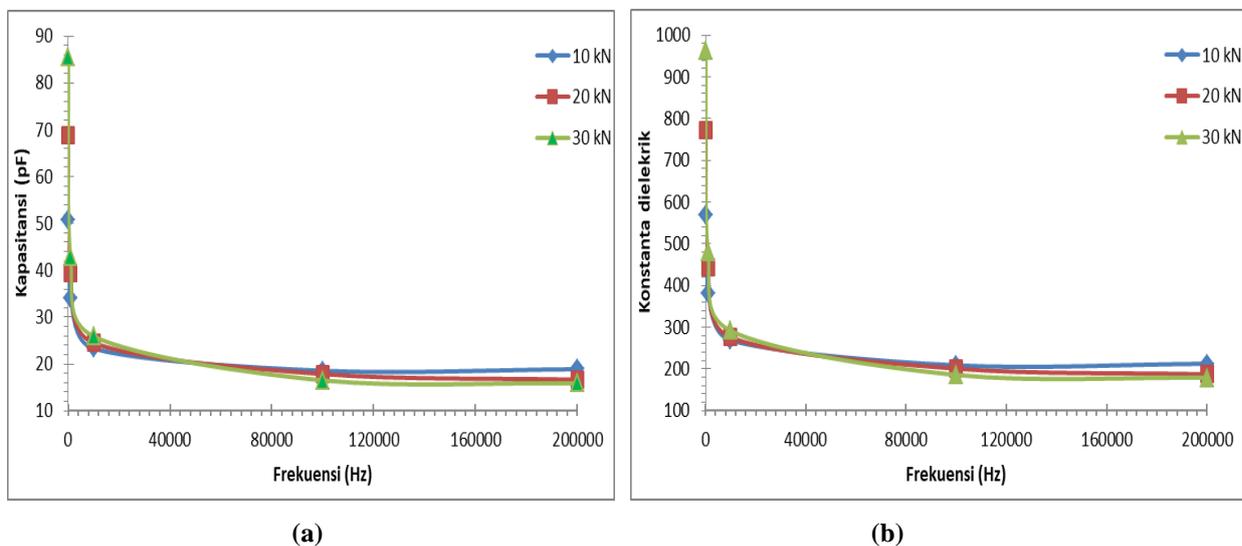
Gambar 2. Grafik pengaruh tekanan terhadap (a) kapasitansi dan (b) konstanta dielektrik.

Dari Gambar 2 dapat teramati bahwa tekanan pada kompaksi pada sampel berpengaruh terhadap kapasitansi atau konstanta dielektrik (keduanya memperlihatkan pola yang sama karena konstanta dielektrik dihitung dengan persamaan (4)). Pengaruhnya dengan jelas tampak pada pengukuran frekuensi rendah 100-10000 Hz. Pada pengukuran frekuensi tinggi 100 dan 200 kHz nilai kapasitansi dan konstanta dielektrik adalah sama pada semua tekanan.

Fenomena bertambah tingginya konstanta dielektrik dengan bertambahnya tekanan khususnya pada frekuensi tinggi kemungkinan berkaitan dengan semakin rapatnya partikel sehingga bertambah tinggi polarisasi akibatnya meningkatnya konstanta dielektrik material. Peningkatan nilai konstanta dielektrik dengan kenaikan tekanan adalah karena hadirnya muatan ruang (*space charge*) atau polarisasi antarmuka (*interfacial*) di dalam sampel. Polarisasi muatan ruang disebabkan oleh akumulasi pembawa muatan pada antarmuka pada perbatasan antara butiran. Dengan meningkatnya tekanan pada kompaksi memungkinkan ukuran butiran bertambah besar. Bertambah besarnya ukuran butiran berarti peningkatan rintangan pada aliran pembawa muatan dan karena terjadi peningkatan konstanta dielektrik [10, 12].

Bila diperhatikan, terjadi penurunan kapasitansi (konstanta dielektrik) dengan bertambahnya frekuensi. Profil kapasitansi (konstanta dielektrik) sebagai fungsi frekuensi seperti ditunjukkan pada Gambar 3. Tampak terjadi penurunan yang sangat tajam pada nilai kapasitansi tentu saja konstanta dielektrik dengan bertambahnya frekuensi sampai pada 1000 Hz, kemudian landai dengan bertambahnya frekuensi. Penurunan yang sangat tajam konstanta dielektrik dengan bertambahnya frekuensi (pada frekuensi rendah) menunjukkan adanya dispersi dielektrik.

Sebagaimana dijelaskan oleh Vinila dkk. 2016 [10], bahwa konstanta dielektrik berkurang dengan meningkatnya frekuensi, karena frekuensi pembawa muatan tidak dapat mengikuti frekuensi medan listrik luar yang diberikan akibat respons dielektrik menjadi tidak efektif. Dengan meningkatnya frekuensi osilasi medan listrik yang diberikan meningkat dan waktu karakteristik polarisasi dipolar lebih besar dari pada konstanta waktu dari medan eksternal, akibatnya tingkat polarisasi dielektrik berkurang sesuai dengan konstantanya konstanta dielektrik. Ini menunjukkan bahwa polarisasi dielektrik adalah dominan pada daerah frekuensi rendah dan berkurang dengan meningkatnya frekuensi. Perilaku ini khas pada partikel berukuran yang kecil. Ini mengkonfirmasi keberadaan polarisasi muatan ruang yang dominan pada daerah frekuensi rendah. Dispersi dielektrik yang kuat atau polarisasi dielektrik yang kuat pada frekuensi rendah disebut LFDD (*low frequency dielectric dispersion*). Adanya perilaku tersebut di dalam sampel dapat dijelaskan dengan model Maxwell-Weigner dalam dielektrik: kisi-kisi keramik kristal terdiri dari butiran-butiran konduktif dipisahkan oleh batas-batas butiran. Jika diberikan medan listrik berfrekuensi sangat rendah pada batas butiran dan akibatnya terjadi lompatan pembawa muatan. Ini menghasilkan polarisasi dielektrik yang tinggi dan karenanya nilai konstanta dielektrik menjadi tinggi. Dengan meningkatnya frekuensi, respons dipol menurun, dipol-dipol tertinggal di belakang medan yang diberikan sehingga muncul sifat redaman dipol yang selanjutnya mengurangi konstanta dielektrik.



Gambar 3. Grafik ketergantungan terhadap frekuensi dari: (a) kapasitansi dan (b) konstanta dielektrik.

5. Kesimpulan

Dari hasil penelitian ini diperoleh bahwa untuk tekanan yang terbatas, yaitu 10, 20 dan 30 kN saat sampel dikompaksi dan pengaruhnya terhadap konstanta dielektrik pada sintesis senyawa $\text{Ba}_{0,7}\text{Ca}_{0,3}\text{TiO}_3$, terjadi peningkatan konstanta dielektrik pada frekuensi rendah antara 100-10000 Hz, dengan bertambahnya tekanan. Pada frekuensi yang lebih besar dari 100 KHz, tekanan kurang berpengaruh terhadap konstanta dielektrik, besar konstanta dielektriknya hampir sama pada semua tekanan. Terjadi dispersi dielektrik pada rentang frekuensi 100-10000 Hz diindikasikan konstanta dielektrik menurun dengan sangat tajam pada rentang frekuensi tersebut.

Ucapan Terima Kasih

Terima kasih pada kepada LPPM unud sebagai pemberi dana PNPB hibah unggulan program studi tahun 2017.

Pustaka

- [1] H. D. Mahmudah dan Y. Iriani , A. H. Ramelan, Pengaruh Doping Zr pada Barium Titanat (BT) Terhadap Struktur Mikro Lapisan Tipis, *Prosiding Pertemuan Ilmiah XXX HFI Jateng & DIY*, 28 Mei 2016, ISSN: 0853-0823.
- [2] Edita Palaimiene, Jan Macutkevicius, Juras Banys, Antoni Winiarski, Irena Gruszka, Janusz Koperski and Andrzej Molak, Crossover from Ferroelectric to Relaxor Behavior in Ba_{1-x}Ca_xTiO₃ (x = 0.17) System, *Materials*, vol. 13, 2854, 2020, pp. 1-11.
- [3] Ch. Rayssi, S. El.Kossi, J. Dhahri, and K. Khirouni, Frequency and temperature-dependence of dielectric permittivity and electric modulus studies of the solid solution Ca_{0.85}Er_{0.1}Ti_{1-x}Co_{4x/3}O₃ (0 ≤ x ≤ 0.1), *RSC Adv.*, vol. 8, 2018, pp. 17139-17150.
- [4] F. K. Nisa, A. Jamaluddin, dan Y. Iriani, Pengaruh Doping Zirkonium (Zr) pada Konstanta Dielektrik dan Struktur Kristal BaZr x Ti1-x O3, *Jurnal Fisika dan Aplikasinya*, vol. 12, no. 1, 2016, pp. 24-26.
- [5] A. Zaidah, Suwarni, A. Supriyanto, A. Jamaluddin, dan Y. Iriani, Pengaruh Temperatur Sintering pada Konstanta Dielektrik Barium Stronsium Titanat (Ba_{0.2}Sr_{0.8}TiO₃) yang dibuat dengan Metode Reaksi Fasa Padat, *Jurnal Fisika dan Aplikasinya*, vol. 11, no. 2, 2015, pp. 82 -85.
- [6] N. Nurhadi, A. Jamaluddin dan Y. Iriani, Pengaruh Variasi doping Lantanum pada Barium Titanat (Ba1-x Lax TiO3) Terhadap Struktur Mikro dan Sifat Ferroelektrik, *Jurnal Teori dan Aplikasi Fisika*, vol. 01, no. 02, Juli 2013.
- [7] M. Istiqomah, A. Jamaluddin, dan Y. Iriani, Pembuatan Material Feroelektrik Barium Titanat (BaTiO₃) Menggunakan Metode Solid State Reaction, *Jurnal Fisika Indonesia*, XVIII (53), 2014.
- [8] Stuart O. Nelson and Andrzej W. Kraszewski, Dielectric Properties of Material and Measurement Techniques, *Drying Technology*, vol. 8, no. 5, 1990, pp. 1123-1143.
- [9] R. D. Safitri, Y. Subarwanti, A. Supriyanto, A. Jamaluddin, dan Y. Iriani, Pembuatan Material Ferroelektrik Barium Titanat (BaTiO₃) menggunakan Metode Kopersipitasi, *Jurnal Fisika dan Aplikasinya*, vol. 12, no. 3, 2015, pp. 112-115.
- [10] V. S. Vinila and Jayakumari Isac, Temperature and Frequency Dependence of Dielectric Properties of Superconducting Ceramic GdBa₂Ca₃Cu₄O_{10.5}, *International Journal of Science and Research (IJSR)*, vol. 7, Issue 8, 2018, pp. 696-703.
- [11] Sugiyono, Metode Penelitian Kuantitatif dan R&D, Alfabeta, Bandung, 2007.
- [12] V. R. Mudinepalli, L. Feng, Wen-Chin Lin, and B. S. Murty, Effect of grain size on dielectric and ferroelectric properties of nanostructured Ba_{0.8}Sr_{0.2}TiO₃ ceramics, *Journal of Advanced Ceramics*, vol. 4 (1), 2015, pp. 46-53.