

BAB I

PENDAHULUAN

1.1 Latar Belakang

Penelitian dalam bidang material selalu berkembang dikarenakan para peneliti ingin menemukan ide baru dalam menjawab segala tantangan akibat perkembangan jaman yang sangat pesat. Piezoelektrik menjadi salah satu bahasan di bidang material yang akhir-akhir ini mendapat banyak perhatian dari kalangan ilmuwan material. Alasannya adalah karena banyak manfaatnya dalam bidang teknologi maupun dalam skala industri diantaranya dalam bidang teknologi sebagai vibrator ultrasonik, sensor suara, amplifikasi suara, resonator, Dynamic Random Access Memory (DRAM), transduser, detektor inframerah, kapasitor dan superkonduktor (Sebastian, 2000).

Salah satu bahan piezoelektrik yang banyak digunakan adalah timbal zirkonat titanat atau yang sering disebut dengan PZT. Timbal zirkonat titanat ($\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ atau PZT) dengan struktur perovskit sangat dibutuhkan dalam teknologi mikroelektrik karena keunggulan sifat ferroelektrik dan piezoelektriknya (Choy dan Han, 1997). Satu hal yang menarik dari material ini, berkaitan dengan strukturnya yang berupa perovskit adalah dengan sedikit penambahan atau pemindahan terhadap kation pusat akan menyebabkan sistem menghasilkan suatu momen dipol atau polarisasi di seluruh jaringan. Jika kristal diaplikasikan pada suatu tegangan atau regangan yang bersifat eksternal maka akan muncul suatu polarisasi secara spontan dan reversibel dengan momen dipol cukup besar sehingga dihasilkan tegangan listrik yang melintasi kristal, dan momen dipol ini tidak akan berakhir meskipun medan listrik eksternalnya dihentikan. (Rahmayeni, 2007).

Pembuatan bahan piezoelektrik yang dulunya dibuat dalam bentuk kristal tunggal ataupun *bulk*, sekarang sudah dibuat dalam bentuk lapisan tipis (Irzaman, 2001). Pembuatan bahan piezoelektrik dalam bentuk lapisan tipis dimaksudkan agar bahan yang dihasilkan mempunyai bentuk yang lebih kecil dan tipis namun dari segi manfaat tidak berkurang bahkan dapat bertambah dan mempunyai *performance* yang lebih menarik.

Penumbuhan lapisan tipis, hingga saat ini telah dilakukan dengan berbagai metode, diantaranya adalah CVD (*Chemical Vapor*

Deposition), *Pulsed Laser Ablation Deposition* (PLAD), *Solution gelation* (sol gel), *Metal Organic Chemical Vapor Deposition* (MOCVD) (Masruroh, 2011, 2012), dan *sputtering* (Azizahwati, 2001). Dalam penelitian ini digunakan metode sol gel *spin coating* dikarenakan memiliki beberapa kelebihan jika dibandingkan dengan metode lain yaitu biaya prosesnya yang cukup murah, kehomogenan komposisi, tidak butuh ruang dengan tingkat kevakuman tinggi, dan temperatur proses rendah.

Bahan utama dari metode sol gel meliputi: organik timbal(II) asetat trihidrat, $(\text{Pb}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O})$, zirkonium(IV) propoksida, $(\text{Zr}(\text{OC}_3\text{H}_7)_4)$, dan titanium(IV) propoksida, $(\text{Ti}(\text{OC}_3\text{H}_7)_4)$. Kemudian agar didapatkan lapisan tipis PZT, maka larutan prekursor PZT yang sudah selesai dibuat akan dilapiskan pada substrat silikon dengan metode *spin coating*. Struktur kristal dari lapisan tipis PZT akan dikarakterisasi dengan menggunakan XRD dan komposisinya akan diuji menggunakan XRF.

Keunikan dari struktur kristal PZT yang dapat dimanfaatkan untuk membentuk bahan piezoelektrik dan karena kelebihan yang dipunyai oleh metode pelapisan sol gel *spin coating*, maka pada penelitian ini akan dilakukan pembuatan lapisan tipis PZT dengan menggunakan proses sol gel pada tahap pembuatan larutan prekursor dan menggunakan proses *spin coating* pada tahap pelapisan. Selain itu, karena sifat listrik dan ukuran butir dari suatu material dapat dipengaruhi oleh temperatur *annealing* (Chaidir dan Kisworo, 2007), maka untuk mendapatkan lapisan tipis PZT dengan sifat listrik dan ukuran butir yang baik diperlukan karakterisasi berdasarkan variasi temperatur *annealing*.

1.2 Rumusan Masalah

Berdasarkan latar belakang tersebut, maka dapat dilakukan perumusan masalah sebagai acuan dalam pelaksanaan penelitian ini, yaitu:

1. Bagaimana cara membuat larutan prekursor kristal PZT metode *sol gel*?
2. Bagaimana parameter optimum pembuatan larutan prekursor PZT dengan metode *sol gel*?
3. Bagaimana kristalinitas PZT yang dihasilkan?
4. Bagaimana pengaruh temperatur *annealing* terhadap struktur kristal PZT yang dihasilkan?

1.3 Batasan Masalah

Batasan masalah dalam penelitian ini ditentukan sebagai berikut:

1. Metode penumbuhan lapisan tipis (*thin film*) PZT yang digunakan *spin coating*.
2. Lapisan tipis PZT ditumbuhkan di atas substrat Si (silikon).
3. Karakterisasi lapisan tipis (*thin film*) PZT hanya pada pengujian struktur kristal dengan instrumen difraktometer sinar-x (XRD) dan pengujian komposisi dengan instrumen *X Ray Fluoresence* (XRF).
4. Kondisi penumbuhan lapisan tipis PZT dengan metode *spin coating* sudah diatur parameternya sebagai berikut : $T_1 = 10 \text{ s}$; $S_1 = 500 \text{ rpm}$; $T_2 = 60 \text{ s}$; $S_2 = 3000 \text{ rpm}$.
5. Pelapisan dilakukan dua kali, dengan masing-masing pelapisan digunakan 100 μl larutan prekursor PZT.

1.4 Tujuan

Tujuan dari penelitian ini adalah sebagai berikut:

1. Membuat larutan prekursor PZT dengan metode *sol gel*.
2. Mengetahui dan memahami parameter optimum dalam pembuatan *sol gel*.
3. Mempelajari dan menganalisis karakterisasi lapisan tipis PZT melalui pengujian struktur kristal dengan menggunakan difraktometer sinar-x (XRD) dan pengujian komposisi unsur lapisan tipis PZT dengan menggunakan XRF (*X Ray Fluorescence*).
4. Mempelajari pengaruh temperatur *annealing* terhadap kristal PZT yang dihasilkan.

1.5 Manfaat

Dengan adanya penelitian ini, maka manfaat yang akan didapatkan adalah dapat diketahui proses terbentuknya kristal dalam suatu zat padat (lapisan tipis PZT) dengan teknik sol gel yang ditumbuhkan di atas substrat silikon melalui metode penumbuhan *spin coating*. Selain itu, penelitian ini juga sebagai solusi untuk pembuatan lapisan tipis dengan metode sederhana dan relatif murah.

UNIVERSITAS BRAWIJAYA

Halaman ini sengaja dikosongkan

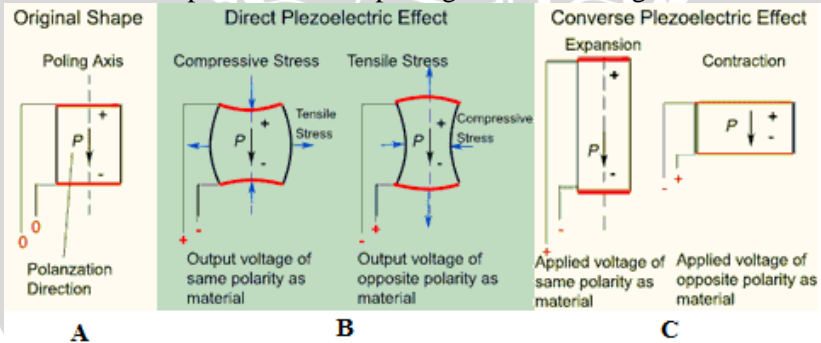


BAB II TINJAUAN PUSTAKA

2.1 Piezoelektrik

Piezoelektrik merupakan properti dari material dimana material dapat memunculkan polarisasi listrik ketika dikenai gaya mekanis (Heywang, 2008). Menurut Shen, 2009 dalam jurnalnya, "Polarisasi listrik terjadi dikarenakan adanya perubahan ukuran dari material tersebut yang menghasilkan variasi panjang ikatan antara kation dan anion. Penjelasananya, bahan piezoelektrik terbentuk oleh keramik yang terpolarisasi sehingga beberapa bagian molekul bermuatan positif (kation) dan sebagian yang lain bermuatan negatif (anion) membentuk elektroda-elektroda yang menempel pada dua sisi yang berlawanan dan menghasilkan medan listrik material yang dapat berubah akibat gaya mekanik. Sebaliknya, ukuran material piezoelektrik juga akan berubah ketika diberikan medan listrik dan mekanisme ini dinamakan dengan *electrostriction* (efek piezoelektrik). Pada saat medan listrik melewati material, molekul yang terpolarisasi akan menyesuaikan dengan medan listrik, dihasilkan *dipole* yang terinduksi dengan molekul atau struktur kristal materi. Penyesuaian molekul akan mengakibatkan material berubah ukuran.

Fenomena efek piezoelektrik dapat digambarkan sebagai berikut:



Gambar 2.1 Fenomena piezoelektrik (Anonimus¹, 2003)

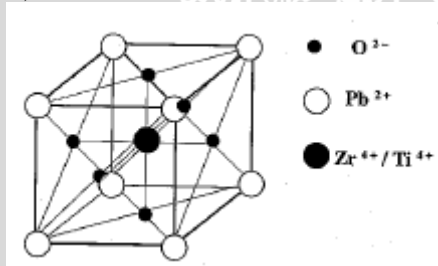
Keterangan:

- (A) *Original shape*, yaitu sebelum material piezoelektrik diberi gaya mekanis atau medan listrik
- (B) *Direct piezoelectric effect*, yaitu ketika gaya mekanis diberikan pada material piezoelektrik

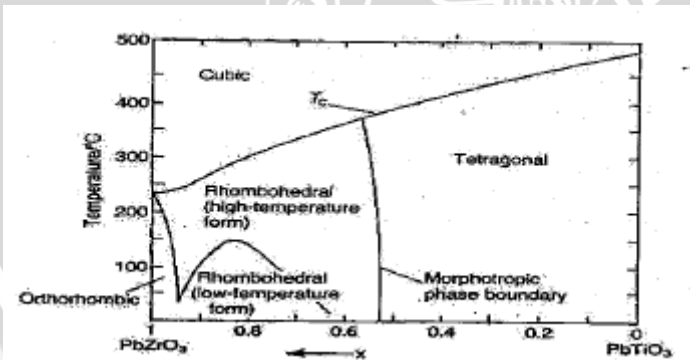
(C) *Converse piezoelectric effect*, yaitu ketika diberikan medan listrik pada material piezoelektrik

2.2 Timbal Zirkonat Titanat, $PbZr_xTi_{1-x}O_3$ (PZT)

Timbal zirkonat titanat, $PbZr_xTi_{1-x}O_3$ (PZT), sangat luas penggunaannya dalam bentuk keramik polikristalin. Dalam divais piezoelektrik PZT digunakan sebagai filter, resonator dan aktuator. PZT dengan struktur perovskit sangat dibutuhkan dalam teknologi mikroelektrik karena keunggulan sifat ferroelektrik dan piezoelektriknya (Choy dan Han, 1997). Formula dari struktur perovskit adalah ABO_3 . A dalam hal ini diisi oleh kation Pb^{2+} menempati salah satu sudut dari kubus, sedangkan B dalam hal ini diwakili oleh Zr^{4+} atau Ti^{4+} dan oksigen mengisi pusat muka dari kubus tersebut. Posisi Ti^{4+} dan Zr^{4+} dapat dipertukarkan (Sayer dan Chivukulas, 1995).



Gambar 2.2 Struktur kristal PZT



Gambar 2.3 Diagram fasa PZT

Gambar 2.3 menunjukkan bahwa *Morphotropic Phase Boundary (MPB)* terjadi saat komposisi dari $PbZrO_3$ pada 0,53 dan $PbTiO_3$ pada 0,47, dimana pada kondisi inilah PZT mempunyai fasa

perovskite yang dominan dan stabil pada temperatur tinggi, sehingga dapat menimbulkan sifat ferroelektrik yang baik (Sebayang, 2005).

2.3 Sol Gel

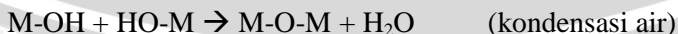
Sesuai dengan namanya, metode sol gel merupakan metode sintesis suatu larutan yang membuatnya mengalami perubahan fase menjadi sol, yaitu koloid yang mempunyai padatan tersuspensi dalam larutannya dan kemudian menjadi gel, yaitu koloid tetapi mempunyai fraksi padatan yang lebih besar daripada sol.

Berbagai senyawa alkoksida logam umumnya digunakan sebagai prekursor pada metode sol gel. Prekursor atau bahan awal dalam pembuatannya adalah alkoksida logam yang kemudian mengalami reaksi hidrolisis dan reaksi polikondensasi untuk membentuk koloid, yaitu suatu sistem yang terdiri dari partikel-partikel padat (ukuran partikel antara 1 nm sampai 1 μm) yang terdispersi dalam suatu pelarut (Widodo, 2010).

Proses sol gel secara umum dibangun dari dua tahapan penting. Tahapan pertama adalah proses hidrolisis dimana dalam proses ini alkoksida logam tersebut dihidrolisis pada kondisi terkontrol dan selanjutnya pada tahapan ke dua dilakukan reaksi kondensasi untuk membentuk unit-unit jembatan logam-oksigen-logam (Birnle, 2000). Hidrolisis adalah reaksi kimia yang memecah molekul air (H_2O) menjadi kation hidrogen (H^+) dan anion hidroksida (OH^-) melalui suatu proses kimia. Proses ini biasanya digunakan untuk memecah polimer tertentu. Pada tahap ini, proses hidrolisis menggantikan ligan (-OR) dengan gugus hidroksil (-OH) dengan reaksi sebagai berikut :



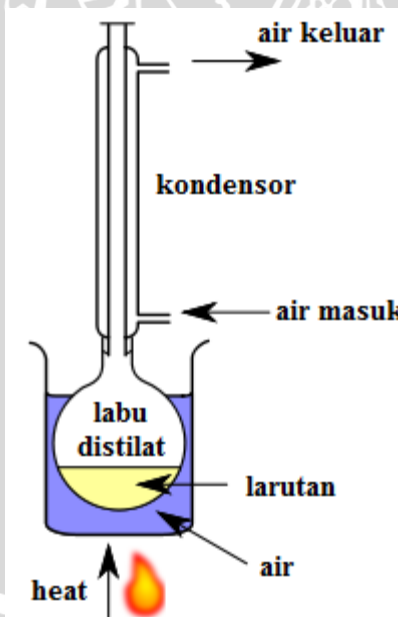
sehingga pada proses ini larutan prekursor akan berubah fase menjadi fase sol. Fase sol dari larutan prekursor hasil hidrolisis akan diubah ke dalam fase gel atau dalam pengertian lain yaitu membentuk unit-unit jembatan logam-oksigen-logam pada tahap ke dua yaitu reaksi kondensasi. Reaksi kondensasi melibatkan ligan hidroksil untuk menghasilkan polimer dengan ikatan M-O-M. Pada berbagai kasus, reaksi ini juga menghasilkan produk samping berupa air atau alkohol dengan persamaan reaksi secara umum adalah sebagai berikut:





2.3.1 Refluks

Refluks, salah satu metode dalam ilmu kimia untuk mensintesis suatu senyawa, baik organik maupun anorganik. Umumnya digunakan untuk mensintesis senyawa-senyawa yang mudah menguap atau volatile. Pada kondisi ini jika dilakukan pemanasan biasa maka pelarut akan menguap sebelum reaksi berjalan sampai selesai. Prinsip dari metode refluks adalah pelarut volatil yang digunakan akan menguap pada suhu tinggi, namun akan didinginkan dengan kondensor sehingga pelarut yang tadinya dalam bentuk uap akan mengembun pada kondensor dan turun lagi ke dalam wadah reaksi sehingga pelarut akan tetap ada selama reaksi berlangsung. Prosedur dari sintesis dengan metode refluks adalah semua reaktan atau bahannya dimasukkan dalam labu bundar leher tiga. Kemudian dimasukkan batang magnet stirer setelah kondensor pendingin air terpasang, campuran diaduk dan direfluks selama waktu tertentu sesuai dengan reaksinya. Pengaturan suhu dilakukan pada penangas air, minyak atau pasir sesuai dengan kebutuhan reaksi.

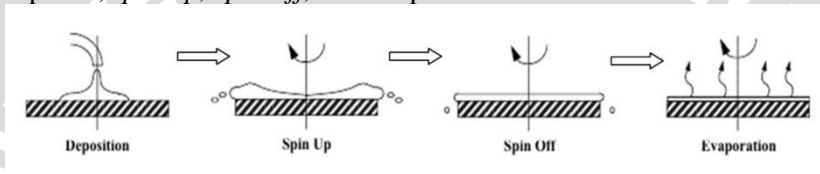


Gambar 2.4 Proses refluks (Anonimus², 2013)

2.4 Spin Coating

Spin coating adalah metode yang secara luas digunakan oleh suatu industri mikroelektronik untuk mendeposisi lapisan tipis di atas substrat silikon (Brodie dan Murray, 1992). Metode deposisi *spin coating* memanfaatkan perputaran dari substrat dengan adanya gaya sentrifugal saat cairan pelapis yang berupa gel ditetaskan di atasnya. Proses ini bertujuan agar cairan pelapis dapat tersebar merata di permukaan substrat sehingga akan didapatkan lapisan tipis yang homogen.

Proses *spin coating* dibagi menjadi empat tahap yaitu tahap deposisi, *spin-up*, *spin-off*, dan evaporasi.



Gambar 2.5 Proses *spin coating* (Luurtsema, 1997)

Tahap pertama yaitu deposisi, dimulai dari ditetaskan atau dialirkannya cairan pelapis berupa gel di atas substrat. Pada tahap deposisi substrat belum diputar. Kemudian pada tahap berikutnya yaitu *spin up*, substrat mulai diputar. Akibat gaya sentrifugal cairan menjadi tersebar secara radial keluar dari pusat putaran menuju tepi piringan. Pada tahap ini substrat mengalami percepatan. Sedangkan pada kedua tahap berikutnya yaitu *spin off* dan evaporasi, laju putaran mulai konstan, artinya tidak ada percepatan sudut pada substrat. Pada tahap *spin-off* sebagian cairan yang berlebih akan menuju ke tepi substrat dan akhirnya terlepas dari substrat membentuk tetesan-tetesan. Semakin menipis lapisan yang terbentuk semakin berkurang tetesan-tetesan yang terbuang. Hal ini dipengaruhi oleh adanya penambahan hambatan alir dan viskositas saat lapisan semakin tipis. Tahap terakhir, evaporasi, merupakan mekanisme utama dari proses penipisan lapisan (Rustami, 2008).

2.5 Struktur Kristal

Semua zat yang wujud secara umum dibangun dalam tiga keadaan fisis: padat, cair, dan gas. Susunan atom dalam bentuk zat padat dapat dikelompokkan berdasarkan keteraturan strukturnya menjadi dua:

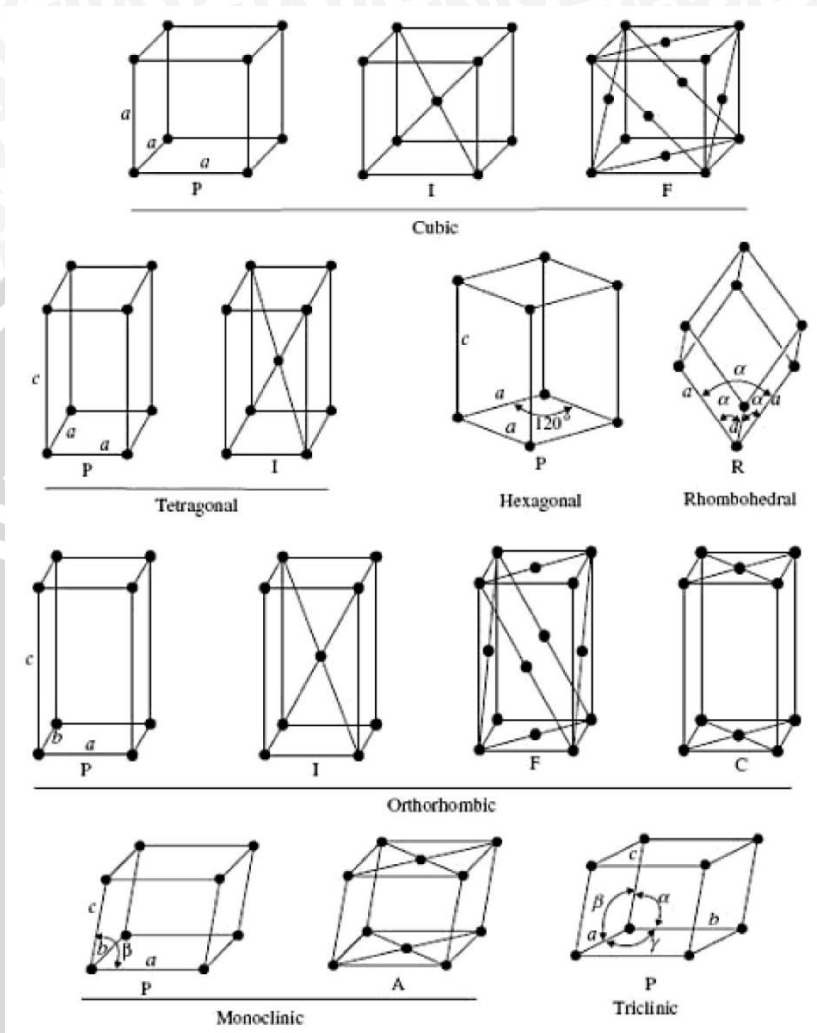
- Struktur amorf adalah struktur zat padat yang mempunyai sedikit keteraturan dan biasa ditemukan dalam polimer organik (karet).

- Struktur kristal adalah struktur zat padat yang dicirikan dengan adanya banyak persebaran atom secara periodik dan biasa ditemukan dalam logam.

lebih jelasnya struktur kristal merupakan susunan atom-atom yang teratur dalam ruang tiga dimensi. Keteraturan susunan tersebut terjadi karena kondisi geometris yang harus memenuhi adanya ikatan atom yang berarah dan susunan yang rapat (Sudaryatno, 2010).

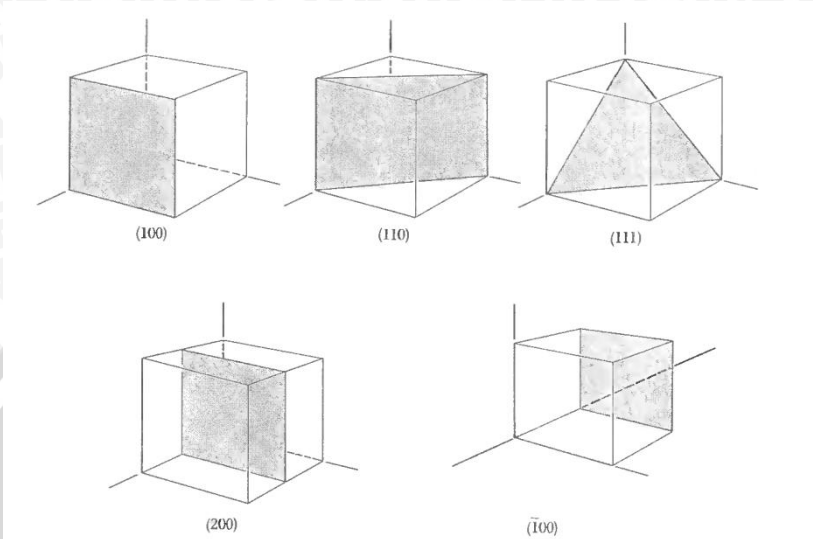
Struktur kristal yang dipunyai oleh suatu material akan sangat mempengaruhi properti dari material tersebut. Dalam pengetahuan tentang kristalografi, ada 14 kisi kristal yang dikenal dengan kisi kristal Bravais. Macam-macamnya adalah sebagai berikut:





Gambar 2.6 Kisi kristal Bravais (He, 2009).

Selain itu dalam kristalografi juga dikenal *indeks Miller*, yaitu indeks yang menunjukkan bidang kisi. Indeks ini dinyatakan dengan notasi (hkl) yang dalam koordinat kartesius sejajar dengan koordinat (x,y,z) . Dimana indeks h dalam arah x , indeks k dalam arah y , dan indeks l dalam arah z . Gambar berikut adalah contoh dari *indeks Miller* dalam kristalografi:



Gambar 2.7 Indeks Miller dalam kristalografi (Kittel, 1996).

2.6 Difraksi sinar X

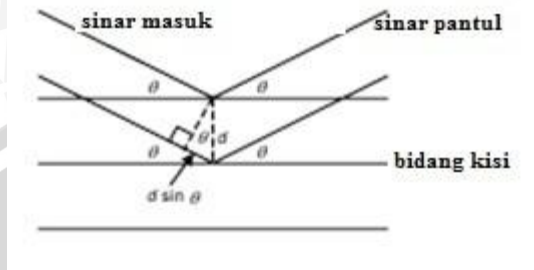
Difraksi sinar X adalah fenomena fisis dari suatu metode eksperimen untuk mengkarakterisasi suatu material (Cullity, 1959). Pada difraktometer sinar X, sampel diletakkan pada sampel holder dan diperoleh hasil difraksi berupa difraktogram yang menyatakan hubungan antara sudut difraksi 2θ dengan intensitas sinar X yang dipantulkan. Untuk difraktometer sinar X, sinar X terpancar dari tabung sinar X. Sinar X didifraksikan dari sampel yang diterima slit dalam posisi simetris dengan respon ke fokus sinar X. Sinar X ini ditangkap oleh detektor sintilator dan diubah menjadi sinyal listrik. Sinyal tersebut, setelah dieliminasi komponen noisenya, dihitung sebagai analisa pulsa tinggi yang dalam difraktogram adalah *peak*.

Prinsip kerja dari difraksi sinar X menggunakan hukum Bragg, yang menyatakan bahwa besarnya sudut simpangan pada sebuah sinar X yang terdifraksi akan sebanding dengan orde pada kristal dan akan berbanding terbalik dengan tebal kristal. Atau secara matematis dituliskan sebagai

$$2 d \sin \theta = n \lambda. \quad (2.1)$$

dimana d adalah jarak antar bidang Bragg, θ adalah sudut simpangan sinar X, λ adalah panjang gelombang sinar X, dan n adalah bilangan bulat, 1,2,3...

Gambar 2.8 menjelaskan bagaimana hukum Bragg berlaku:



Gambar 2.8 Difraksi Bragg (Patterson dan Bailey, 2007).

Pada penelitian ini, hukum Bragg akan sangat membantu, terutama dalam mengkarakterisasi data hasil pembacaan XRD, karena prinsip kerja dari XRD menggunakan hukum Bragg, dimana alat tersebut memanfaatkan difraksi yang diterima oleh detektor sebagai data ketika sinar X yang dihasilkan oleh sumber menumbuk sampel yang kemudian dipantulkan dengan sudut-sudut tertentu. Dari data hasil dari analisis dengan XRD didapatkan kurva hubungan antara 2θ dan intensitas. Untuk menentukan *peak* (puncak) yang terbentuk apakah kristal PZT atau tidak, maka digunakan standar data dari *Joint Committee on Powder Diffraction Standard (JCPDS) Data No. 33-784*.

Difraksi sinar X adalah metode yang mudah untuk menentukan ukuran rata-rata nano kristal dalam material bulk nano kristal. Ilmuwan pertama, yaitu Paul Scherrer mempublikasikan hasil penelitiannya yang dikenal sebagai persamaan Scherrer (Monshi, 2012).

$$L = \frac{K \lambda}{\beta \cos \theta} \quad (2.2)$$

dimana, L adalah ukuran butir, K adalah konstanta bentuk kristal (0,9), λ adalah panjang gelombang sinar x (\AA), β adalah FWHM (lebar penuh pada setengah maksimum) dalam satuan radian, dan θ adalah sudut Bragg.

2.7 Annealing

Annealing ialah suatu proses perlakuan panas (*heat treatment*) terhadap suatu material dalam proses pembuatan suatu produk yang mempunyai properti baru. Tahapan dari proses *annealing* ini dimulai dengan memanaskan material sampai

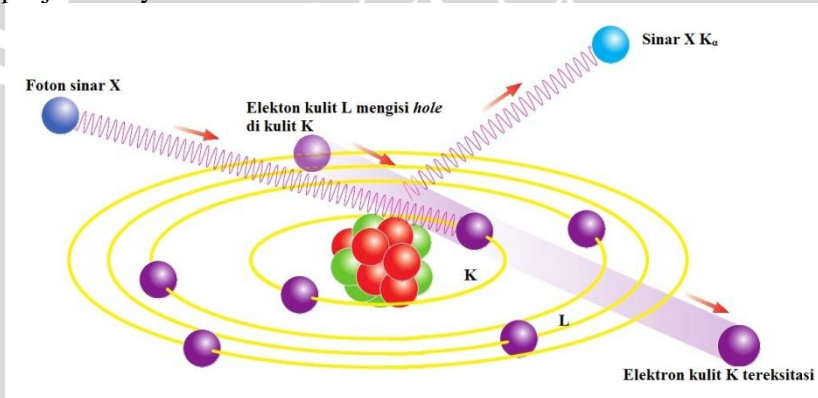
temperatur tertentu, menahan pada temperatur tertentu tersebut selama beberapa waktu tertentu agar tercapai perubahan yang diinginkan kemudian mendinginkan material tadi dengan laju pendinginan yang cukup lambat.

Proses *annealing* bertujuan untuk dapat menurunkan atau bahkan menghilangkan ketidakhomogenan struktur sehingga diharapkan tercipta sifat baru dari material yang di*annealing*, baik perubahan sifatnya secara keseluruhan ataupun sebagian. *Annealing* pada variasi temperatur dapat membentuk orientasi kristal yang bersesuaian dengan orientasi kristal substrat. Temperatur *annealing* dapat mempengaruhi struktur atom penyusun lapisan tipis dan sifat listrik lapisan tipis (Chaidir dan Kisworo, 2007). Peningkatan temperatur *annealing* akan membuat atom-atom dari material menjadi tidak stabil sehingga ketika temperatur *annealing* ditahan pada temperatur tertentu maka atom-atom tersebut akan mengatur diri. Selain itu, temperatur *annealing* juga mempengaruhi bentuk ukuran butir dari lapisan serta kerapatan lapisan. Ukuran butir pada temperatur tinggi tampak lebih beraturan dibandingkan dengan ukuran butir pada temperatur rendah. Kenaikan temperatur mempengaruhi bentuk ukuran butiran dari struktur film suatu material (Umiati, 2001). Dalam jurnal tersebut, Umiati menyatakan bahwa perbandingan morfologi lapisan tipis dari PZT yang ditumbuhkan dengan metode *DC unbalanced magnetron sputtering* dengan *annealing* pada temperatur 575 °C dan 625 °C didapatkan bahwa ukuran butir pada temperatur 625 °C lebih teratur dari ukuran butir yang di*annealing* pada temperatur 575 °C. Ukuran tinggi rendahnya temperatur *annealing* tergantung dari jenis material yang di*annealing* karena setiap material mempunyai respon yang berbeda-beda terhadap temperatur. Jadi dengan menaikkan temperatur *annealing* belum tentu membuat ukuran butir dari suatu material menjadi lebih teratur atau struktur kristalnya menjadi lebih baik. Sehingga ada yang dinamakan dengan temperatur optimal, yaitu dimana pada temperatur tersebut suatu material mempunyai ukuran butir yang teratur dan struktur kristal yang baik. Jangkauan temperatur *annealing* untuk mendapatkan kristalisasi yang baik pada lapisan tipis PZT adalah 550-700 °C (Zarycka, 2003).

2.8 X Ray Fluorescence (XRF)

XRF merupakan alat yang digunakan untuk menganalisis komposisi kimia beserta konsentrasi unsur-unsur yang terkandung dalam suatu sampel dengan menggunakan metode spektrometri. XRF umumnya digunakan untuk menganalisa unsur dalam mineral atau batuan. Analisis unsur dilakukan secara kualitatif maupun kuantitatif. Analisis kualitatif dilakukan untuk menganalisis jenis unsur yang terkandung dalam bahan dan analisis kuantitatif dilakukan untuk menentukan konsentrasi unsur dalam bahan.

Prinsip kerja XRF berdasarkan identifikasi dan pencacahan karakteristik sinar-X yang terjadi akibat efek fotolistrik. Efek fotolistrik terjadi karena elektron dalam atom target pada sampel terkena sinar berenergi tinggi (radiasi gamma, sinar-X). Berikut penjelasannya:



Gambar 2.9 Prinsip kerja XRF (Brouwer, 2010)

Gambar 2.9 merupakan prinsip kerja XRF dimana saat foton sinar X ditembakkan pada suatu atom, maka elektron dari kulit K akan tereksitasi dan menimbulkan efek fotolistrik sehingga menimbulkan *hole* (kekosongan). Kekosongan ini akan diisi oleh elektron dari kulit di luarnya yaitu L atau M karena tingkat energi di kulit K lebih rendah sehingga sebagai reaksi dari penurunan tingkat energi maka akan terpancar sinar X K_{α} untuk elektron dari kulit L dan sinar X K_{β} untuk elektron dari kulit M. Pancaran sinar X inilah yang dimanfaatkan untuk mengetahui jenis-jenis unsur dari sampel uji XRF, karena setiap atom mempunyai pancaran sinar X dengan energi yang berbeda-beda sehingga akan menunjukkan puncak yang karakteristik sebagai hasil uji XRF.

UNIVERSITAS BRAWIJAYA



Halaman ini sengaja dikosongkan

BAB III METODE PENELITIAN

3.1 Waktu dan Tempat penelitian

Penelitian dilakukan di Laboratorium Kimia Organik Jurusan Kimia UB untuk pembuatan larutan prekursor PZT dengan metode sol gel, di Laboratorium Biofisika untuk pelapisan larutan prekursor PZT pada substrat Si dengan metode *spin coating*, dan di Laboratorium Fisika UM untuk annealing dan karakterisasi kualitas *thin film* PZT menggunakan XRD (*X Ray Diffraction*) dan uji komposisi menggunakan XRF (*X Ray Fluorescence*). Waktu penelitian mulai dari bulan Juli 2011 sampai Agustus 2012.

3.2 Alat dan Bahan

3.2.1 Alat

Alat yang digunakan dalam penelitian ini antara lain gelas arloji, gelas kimia, spatula, neraca ohaus, pipet ukur, mikropipet, cawan keramik, kaca preparat, pemotong kaca, *pipet tips*, *bar magnetic stirrer*, *hotplate stirrer*, *spin coater*, *destilator* (seperangkat alat destilasi), *sonicator* merk Branson 2510, *furnace* merk *thermolyne* 48000, *oven*, XRD (*X Ray Diffraction*) merk PANalytical Type e'xpert pro, XRF (*X Ray Fluorescence*) merk PANalytical Minipal 4, pinset, statif, dan klem.

3.2.2 Bahan

Bahan yang digunakan dalam penelitian ini antara lain timbal(II) asetat trihidrat, $(\text{Pb}(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O})$, zirkonium(IV) propoksida, $(\text{Zr}(\text{OC}_3\text{H}_7)_4)$, titanium(IV) propoksida, $(\text{Ti}(\text{OC}_3\text{H}_7)_4)$, n-propanol, PEG (*Poly Etylen Glycol*) 400, CH_3COOH , vaselin, metanol, akuades, dan substrat Si.

3.3 Tahapan Penelitian

Dalam penelitian ini, film tipis PZT dideposisikan di atas substrat Si dengan menggunakan teknik *spin coating*. Penelitian dibagi menjadi empat tahapan:

Tahap pertama: Pembuatan larutan prekursor PZT dengan metode sol-gel

Untuk membuat larutan prekursor PZT digunakan metode sol-gel dari prekursor logam organik yaitu timbal(II) asetat trihidrat, zirkonium(IV) propoksida dan titanium(IV) propoksida. Tahapannya adalah membuat dua larutan, yaitu larutan timbal asetat dan larutan zirkonium titanium. Larutan pertama dibuat dengan cara menuangkan timbal(II) asetat trihidrat pada gelas arloji sebanyak 1,14 g dan dimasukkan ke dalam labu destilasi. Kemudian ditambahkan 1 ml asam asetat dan direfluks pada suhu 80 °C selama lima menit. Sedangkan larutan ke dua dibuat dengan cara mencampurkan 0,389 ml titanium(IV) propoksida + 0,703 ml zirkonium(IV) propoksida + 5 ml n-propanol. Kemudian kedua larutan dicampurkan dan diaduk selama satu jam pada temperatur ruang. Setelah itu, ditambahkan PEG (*Poly Etylen Glycol*) 0,16 ml sebagai penstabil larutan dan diaduk menggunakan *bar magnetic stirrer* selama dua jam pada temperatur 60 °C.

Perhitungan untuk menentukan berapa jumlah massa dan volume masing-masing bahan yang diperlukan dalam pembuatan larutan prekursor PZT:

Perbandingan mol Pb:Zr:Ti = 1:0,53:0,47.

$$p = q \times r \quad (3.1)$$

dimana,

p = jumlah mol hasil perbandingan masing-masing bahan

q = jumlah mol senyawa yang ingin dibuat

r = perbandingan mol masing-masing senyawa bahan (Pb:Zr:Ti = 1:0,53:0,47)

setelah didapatkan p (jumlah mol hasil perbandingan masing-masing bahan), maka kemudian dihitung berapa jumlah massa atau volume masing-masing bahan yang akan digunakan untuk membuat larutan prekursor PZT dengan rumus:

$$\text{massa} = p \times \text{Mr} \quad (3.2)$$

dimana Mr adalah massa molekul relatif, sedangkan nilai p didapatkan dari persamaan (3.1).

Persamaan (3.2) hanya akan memberitahukan hasil berupa massa bahan, yang berarti hasil itu cukup jika bahan berupa serbuk

atau padatan, sedangkan jika bahan berupa zat cair maka volume bahan yang diperlukan dihitung dengan rumus:

$$m_{\text{bahan larutan}} = \text{massa} \times \frac{1}{\text{konsentrasi bahan}} \quad (3.3)$$

selanjutnya,

$$\text{volume bahan} = \frac{m_{\text{bahan larutan}}}{\text{berat jenis bahan}} \quad (3.4)$$

Tahap ke dua: Pelapisan substrat dengan metode *spin coating*

Persiapan sebelum tahap ke dua dilakukan adalah mencuci silikon dan menghidrolisis larutan prekursor PZT. Silikon sebagai substrat dicuci menggunakan metanol sebagai larutan pembersihnya dan alat yang digunakan untuk mencuci adalah *sonicator*. Hal ini bertujuan untuk membersihkan silikon dari debu yang menempel pada permukaannya sehingga pada saat dilapisi dengan larutan prekursor PZT dapat terbentuk lapisan tipis yang baik. Proses pencucian dilakukan dengan memasukkan silikon ke dalam gelas kimia yang sudah diisi dengan metanol. Setelah itu, gelas kimia diletakkan di dalam *sonicator* dengan posisi gelas kimia bagian bawah menyentuh air yang ada dalam *sonicator* sehingga ketika *sonicator* dinyalakan maka air di dalamnya akan bergetar karena adanya gelombang ultrasonik dan menjalar ke gelas kimia sehingga metanol di dalam gelas kimia akan ikut bergetar dan bergesekan dengan permukaan silikon. Proses pencucian dilakukan selama 10-15 menit, kemudian setelah selesai silikon dikeringkan dalam *oven* dengan temperatur 100 °C sampai kering.



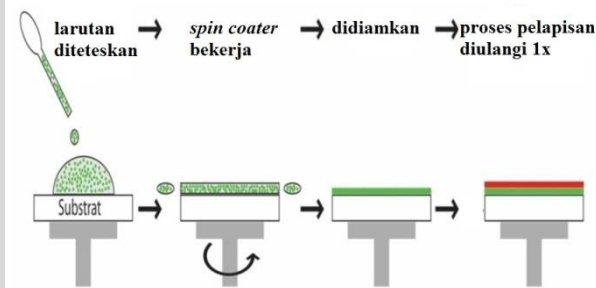
Gambar 3.1 Proses pencucian silikon

Proses hidrolisis larutan prekursor PZT dilakukan dengan mengambil 2 ml larutan prekursor PZT untuk dituangkan pada

cawan keramik kemudian dидiamkan di ruang terbuka selama lebih kurang lima jam. Perlakuan ini bertujuan untuk menghidrolisis larutan prekursor PZT agar fasenya berubah menjadi sol hingga menjadi fase gel yang siap untuk digunakan untuk melapisi substrat.

Setelah proses pencucian silikon dan hidrolisis larutan prekursor PZT selesai dilakukan maka dilanjutkan dengan proses pelapisan substrat. Metode yang digunakan untuk pelapisan substrat pada penelitian ini adalah metode *spin coating*. Prosesnya dimulai dengan mengambil gel PZT sebanyak 100 μl dengan mikropipet, kemudian ditetaskan pada substrat yang sudah diletakkan pada *spin coater* yang sudah diatur parameter waktu perputaran (T) dengan $T_1 = 10$ s dan $T_2 = 60$ s, sedangkan kecepatan putarnya (S) dengan $S_1 = 500$ rpm dan $S_2 = 3000$ rpm. Setelah itu, *spin coater* dijalankan dan ditunggu sampai proses selesai. Kemudian diambil 100 μl larutan prekursor PZT dengan mikropipet dan dilakukan pelapisan dengan cara yang sama.

Untuk lebih dapat dimengerti tentang proses ini dapat dilihat pada gambar 3.1.



Gambar 3.2 Proses pelapisan dengan metode *spin coating* (Anonimus³, 2012).

Tahap ke tiga: *Annealing*

Pada tahap yang ke tiga dilakukan *annealing* selama dua jam dengan variasi suhu yaitu 500°C, 600°C dan 700°C. Adapula yang tanpa *annealing* yang disebut *as deposited*. Tujuan perlakuan *annealing* adalah memberi perlakuan panas pada lapisan tipis PZT agar didapatkan lapisan tipis yang homogen dan berbentuk kristal.

Tahap ke empat: Karakterisasi

Struktur lapisan tipis PZT dianalisa menggunakan XRD merk PANalytical Type e'xpert pro dengan kondisi sebagai berikut:

- *Scan Axis: Gonio*
- *Start Position [$^{\circ}$ Th.]: 10.0100*
- *End Position [$^{\circ}$ Th.]: 79.9900*
- *Step Size [$^{\circ}$ Th.]: 0.0200*
- *Scan Step Time [s]: 0.5000*
- *Scan Type: Continuous*
- *Offset [$^{\circ}$ Th.]: 0.0000*
- *Divergence Slit Type: Fixed*
- *Divergence Slit Size [$^{\circ}$]: 0.9570*
- *Specimen Length [mm]: 10.00*
- *Receiving Slit Size [mm]: 0.1000*
- *Measurement Temperature [$^{\circ}$ C]: 25.00*
- *Anode Material: Cu*
- *K-Alpha1 [\AA]: 1.54060*
- *K-Alpha2 [\AA]: 1.54443*
- *K-Beta [\AA]: 1.39225*
- *K-A2 / K-A1 Ratio: 0.50000*
- *Generator Settings: 30 mA, 40 kV*
- *Diffractometer Type: 0000000011063758*
- *Diffractometer Number: 0*
- *Goniometer Radius [mm]: 240.00*
- *Dist. Focus-Diverg. Slit [mm]: 91.00*
- *Incident Beam Monochromator: No*
- *Spinning: No*



Gambar 3.3 XRD merk PANalytical Type e'xpert pro

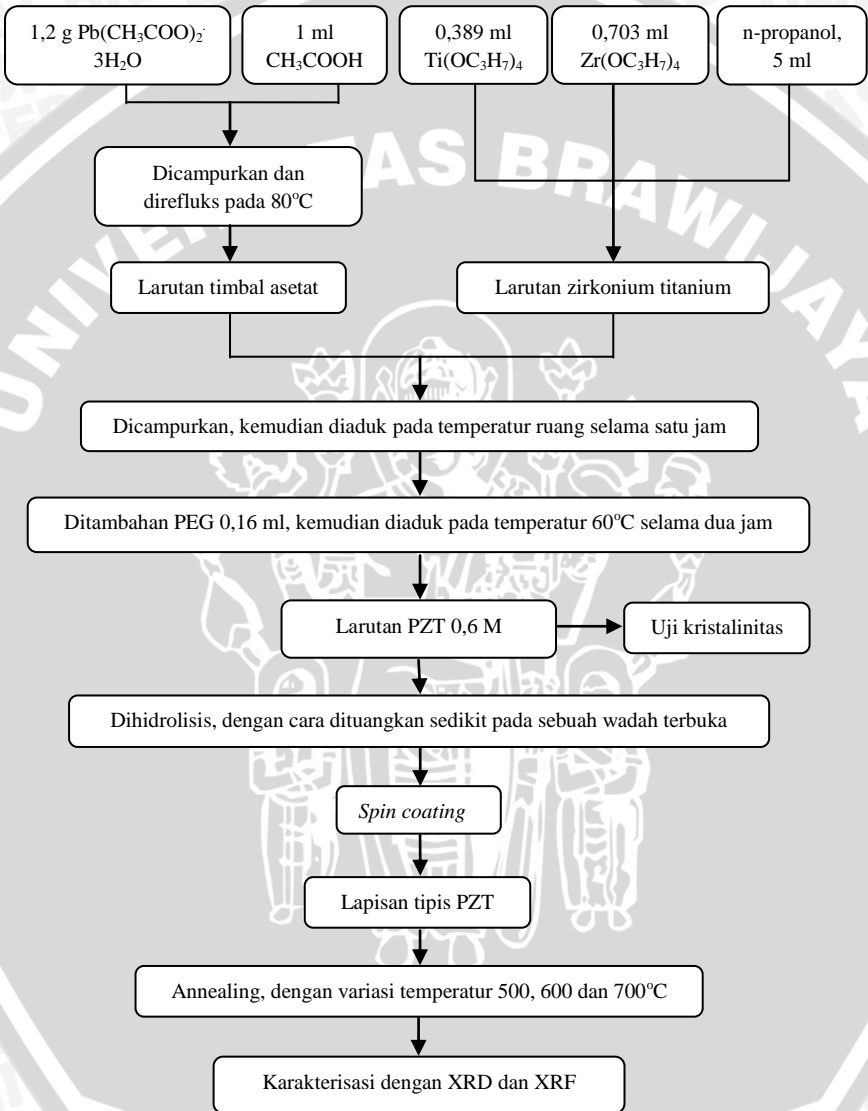
Komposisi dari lapisan tipis PZT dianalisa menggunakan XRF merk PANalytical Minipal 4.



Gambar 3.4 XRF merk PANalytical Minipal 4

3.4 Diagram Alir Penelitian

Diagram alir pembuatan larutan prekursor PZT metode sol gel dan karakterisasi lapisan tipis PZT ditunjukkan sebagai berikut:



Gambar 3.5 Diagram alir penelitian

3.5. Pengolahan Data

Pengolahan data untuk analisis pengaruh temperatur *annealing* terhadap struktur kristal lapisan tipis PZT dilakukan dengan membandingkan difaktogram dari semua variasi sampel, baik sampel tanpa *annealing* (*as deposited*) atau sampel dengan *annealing* pada temperatur 500, 600, dan 700 °C. Difaktogram dari hasil uji struktur kristal dengan menggunakan XRD merupakan grafik hubungan antara sudut Bragg dengan intensitas difraksi sinar x yang terjadi pada sudut-sudut tersebut.

Pengolahan data untuk analisis pengaruh temperatur *annealing* terhadap ukuran butir kristal lapisan tipis PZT dilakukan dengan menghitung ukuran butir dari kristal dengan menggunakan persamaan (2.2) sehingga dapat diketahui pola yang terjadi saat lapisan tipis PZT tanpa *annealing* ataupun saat *annealing* pada temperatur 500, 600, dan 700 °C. Perhitungan untuk mencari nilai ukuran butir dapat dilihat pada tabel 3.1.

Tabel 3.1 Perhitungan ukuran butir

β (<i>degree</i>)	β (<i>rad</i>)	2θ (<i>degree</i>)	θ (<i>degree</i>)	$\cos \theta$ (<i>degree</i>)	L (Å)

BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN

4.1. Hasil Pembuatan Larutan Prekursor PZT

Proses pembuatan larutan prekursor PZT dilakukan dengan metode sol gel. Bahan utama yang digunakan untuk membuat larutan prekursor PZT dalam penelitian ini ada tiga yaitu timbal(II) asetat trihidrat, zirkonium(IV) propoksida, dan titanium(IV) propoksida, Jumlah volume dan massa bahan-bahan yang dicampurkan telah dihitung dengan perbandingan molar antara Pb : Zr : Ti adalah 1 : 0,53 : 0,47. Ketiga bahan tersebut mempunyai sifat mudah menguap sehingga dilakukan refluks pada proses pencampurannya. Proses pencampuran bahan ditunjukkan pada gambar 4.1.



Gambar 4.1 Proses pencampuran bahan

Proses refluks dalam pembuatan larutan prekursor PZT dimaksudkan agar larutan tidak menguap oleh karena adanya kenaikan temperatur saat proses pencampuran karena sifat bahan utama dari penelitian ini adalah *volatile* (mudah menguap) dan agar larutan tidak terkontaminasi dengan unsur-unsur lain yang terbawa oleh udara bebas. Kemudian PEG (*Poly Etylen Glycol*) ditambahkan dan diaduk pada temperatur 60 °C selama satu jam dengan tujuan agar didapatkan larutan prekursor PZT yang stabil. Proses refluks ditunjukkan pada gambar 4.2.



Gambar 4.2 Proses refluks penelitian



Gambar 4.3 Larutan prekursor PZT

Larutan prekursor PZT yang dihasilkan dari metode sol gel dapat dilihat pada gambar 4.3 berupa cairan jernih. Hal ini menandakan bahwa sudah tidak terdapat endapan timbal asetat di dalamnya, karena karakter bahan timbal(II) asetat trihidrat dalam metode sol gel

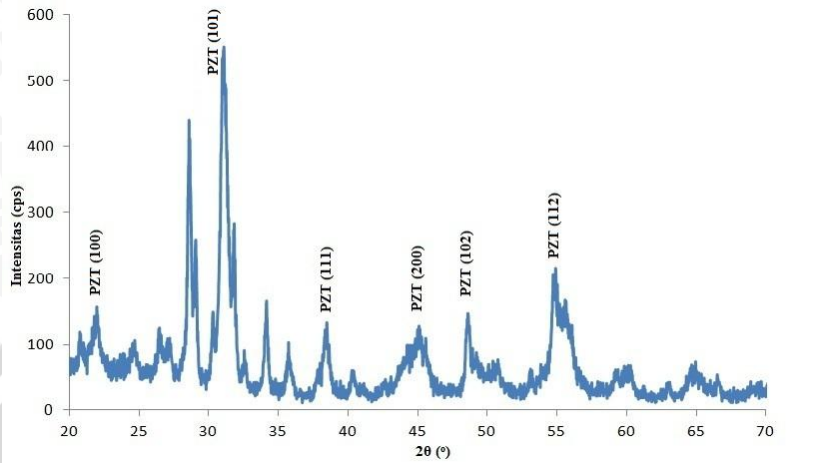
cenderung sulit larut dalam propanol. Untuk mengatasi kasus tersebut maka pada proses pencampuran, timbal(II) asetat trihidrat dilarutkan dalam asam asetat dan direfluks selama lebih kurang lima menit pada temperatur 80 °C.

Setelah itu, untuk mengetahui apakah larutan yang dihasilkan merupakan larutan prekursor PZT seperti yang diharapkan, maka sebagian larutan dikeringkan di dalam *oven* pada temperatur 100 °C sampai terlihat kering sebelum dimasukkan ke dalam *furnace*. Langkah ini dimaksudkan agar saat larutan dimasukkan ke dalam *furnace* tidak banyak larutan yang menguap dikarenakan pemanasan pada *furnace* mencapai 600 °C dan memakan waktu selama dua jam. Serbuk PZT hasil pengeringan ditunjukkan pada Gambar 4.4.



Gambar 4.4 Larutan prekursor PZT yang sudah dikeringkan (serbuk) dalam *furnace* pada temperatur 600 °C selama dua jam.

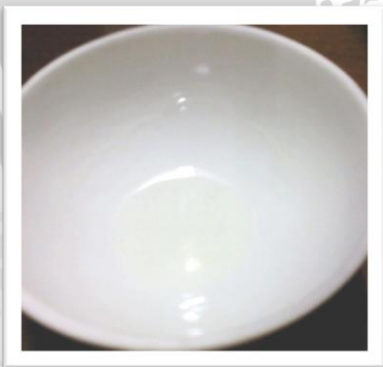
Kemudian, serbuk hasil pengeringan diuji dengan XRD agar dapat diketahui apakah serbuk tersebut sudah membentuk kristal. Data hasil uji XRD dari serbuk dicocokkan dengan standar data JCPDS No.33-784 agar dapat dianalisis apakah kristal tersebut adalah kristal PZT. Puncak-puncak yang muncul menunjukkan kristal PZT dengan orientasi (100); (110); (111); (200); (102); dan (112) seperti ditunjukkan pada Gambar 4.5.



Gambar 4.5 Difraktogram serbuk PZT hasil uji XRD

4.2 Hasil Pelapisan dengan Metode *Spin Coating*

Untuk membentuk lapisan tipis PZT, maka larutan prekursor didiamkan selama lima jam. Hal ini dilakukan dengan tujuan agar larutan prekursor PZT terhidrolisis hingga larutan menjadi kental. Kemudian dilakukan proses pelapisan dengan metode *spin coating* menggunakan *spin coater* yang telah diatur parameter waktu perputaran (T) dan kecepatan putarnya (S) sebagaimana telah dijelaskan pada metodologi penelitian. Larutan prekursor PZT kental ditunjukkan pada gambar 4.6.



Gambar 4.6 Larutan prekursor PZT kental untuk proses pelapisan *spin coating*.

Proses pelapisan dilakukan dua kali, dengan volume larutan prekursor PZT masing-masing pelapisan adalah 100 μl . Hal ini dilakukan karena dengan satu kali proses pelapisan belum didapatkan lapisan yang homogen. Proses pelapisan dengan metode spin coating dapat dilihat pada Gambar 4.7.



Gambar 4.7 Proses *spin coating* penelitian. A. Sampel diletakkan di atas *holder spin coater*. B. Proses pelapisan.

Jumlah pelapisan yang dilakukan sebanyak empat kali pelapisan, dikarenakan menyesuaikan dengan jumlah variasi sampel. Variasi sampel dilakukan pada saat lapisan tipis (*thin film*) PZT *diannealing* dengan temperatur yang berbeda-beda selama dua jam meliputi: tanpa annealing (*as deposited*), *annealing* pada temperatur 500, 600, dan 700 $^{\circ}\text{C}$. Hasil pelapisan dengan metode *spin coating* dapat dilihat pada Gambar 4.8.

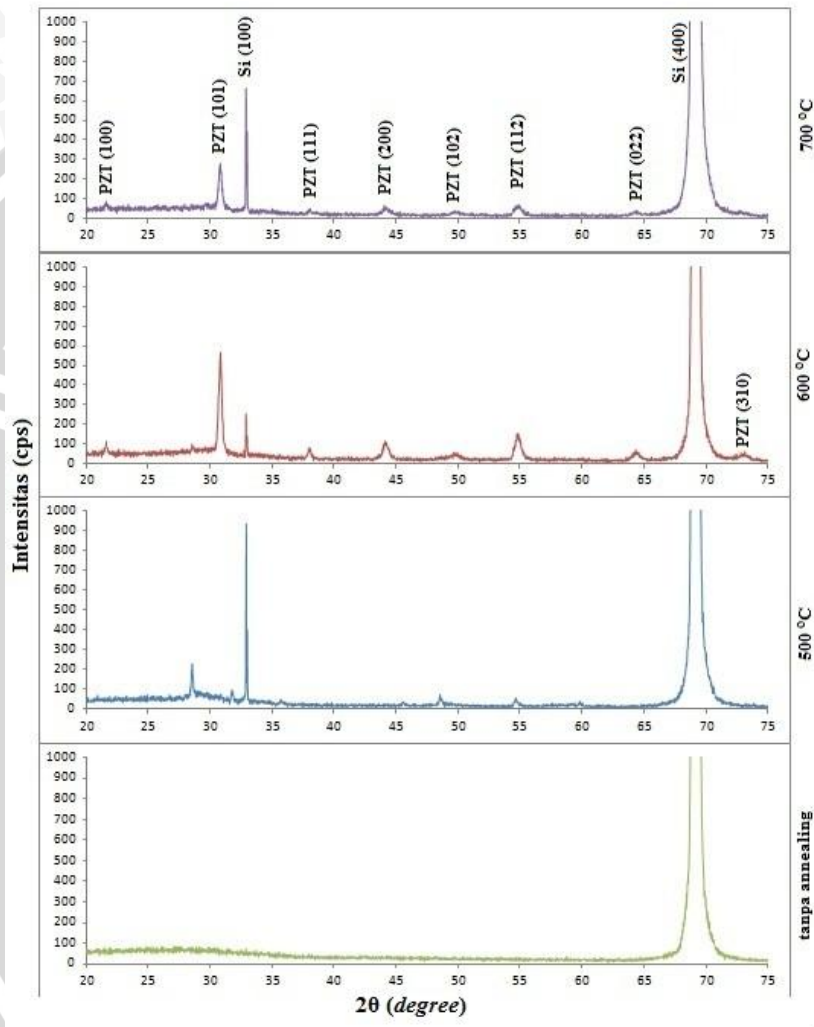


Gambar 4.8 Permukaan lapisan tipis PZT: a. Lapisan tipis PZT tanpa annealing (*as deposited*), b. Lapisan tipis PZT dengan temperatur *annealing* 500 °C, c. Lapisan tipis PZT dengan temperatur *annealing* 600 °C, dan d. Lapisan tipis PZT dengan temperatur *annealing* 700 °C.

4.3 Pengaruh Temperatur *Annealing* terhadap Struktur Kristal PZT

Temperatur *annealing* sangat berpengaruh terhadap lapisan tipis yang terbentuk, baik struktur kristal maupun ukuran butirnya (*grainsize*). Peningkatan temperatur *annealing* akan membuat atom-atom dari material PZT menjadi tidak stabil sehingga ketika temperatur *annealing* ditahan pada temperatur tertentu maka atom-atom tersebut akan mulai mengatur diri seiring dengan penurunan

temperatur secara perlahan-lahan. Gambar 4.9 merupakan hasil XRD untuk lapisan tipis PZT tanpa *annealing* (*as deposited*) dan *annealing* dengan variasi temperatur 500, 600, dan 700 °C.



Gambar 4.9 Difraktogram PZT berdasarkan variasi temperatur *annealing*

Dari hasil XRD pada Gambar 4.9 ditunjukkan bahwa lapisan tipis PZT tanpa *annealing* masih berbentuk amorf. Puncak yang

muncul hanyalah dari substrat, yaitu Si pada orientasi (100) dan (400). Pada temperatur *annealing* 500 °C mulai terbentuk kristal PZT dengan orientasi bidang kristal (102) dan (112), meskipun dengan intensitas yang rendah. Puncak yang muncul menjadi lebih banyak pada sampel yang *dannealing* dengan temperatur 600 °C, yaitu pada orientasi bidang kristal (100); (101); (111); (200); (102); (112); (022); dan (310). Orientasi bidang kristal yang sama dengan *peak-peak* kristal PZT pada sampel dengan temperatur *annealing* 600 °C juga muncul pada sampel dengan temperatur *annealing* 700 °C, hanya saja intensitasnya menjadi lebih rendah. Kasus ini menunjukkan bahwa lapisan tipis PZT yang optimal adalah lapisan tipis PZT pada temperatur *annealing* 600 °C.

Ukuran butir (*grainsize*) dapat dihitung dengan menggunakan persamaan (2.2) dengan nilai panjang gelombang, intensitas, 2θ , dan FWHM yang telah dihasilkan dari uji XRD. Persamaan (2.2) menunjukkan bahwa nilai ukuran butir yang dihasilkan akan berbanding terbalik dengan nilai FWHM, sedangkan nilai FWHM dipengaruhi oleh intensitas masing-masing bidang kristal, dimana semakin tinggi intensitas maka nilai FWHM akan semakin kecil. Nilai FWHM dan ukuran butir ditunjukkan pada Tabel 4.1.

Tabel 4.1 Nilai FWHM dan ukuran butir dari semua bidang kristal yang muncul sebagai hasil data uji XRD

2θ	<i>hkl</i>	FWHM (<i>degree</i>)				Ukuran Butir (Å)			
		tanpa <i>annealing</i>	500 °C	600 °C	700 °C	tanpa <i>annealing</i>	500 °C	600 °C	700 °C
22,01	(100)	-	-	0,12	0,32	-	-	684,91	256,88
30,93	(101)	-	-	0,14	0,24	-	-	598,10	348,92
38,27	(111)	-	-	0,32	0,29	-	-	266,87	291,80
43,64	(200)	-	-	0,32	0,48	-	-	272,30	178,62
49,41	(102)	-	0,16	0,55	0,77	-	553,74	158,96	114,06
54,71	(112)	-	0,32	0,24	0,67	-	284,11	379,02	133,25
64,41	(022)	-	-	0,47	0,58	-	-	198,79	162,96

dari tabel tersebut dapat dilihat bahwa secara umum nilai ukuran butir (*grainsize*) dengan nilai tertinggi pada masing-masing *peak* kristal PZT mulai dari orientasi (100) sampai pada (022) adalah pada saat temperatur *annealing* 600 °C. Hal ini menunjukkan bahwa temperatur *annealing* yang optimal untuk lapisan tipis PZT yang

dihasilkan adalah 600 °C, meskipun pada *peak* kristal PZT dengan orientasi (111) dan (102) tidak menunjukkan bahwa pada temperatur *annealing* 600 °C adalah temperatur *annealing* yang menghasilkan lapisan tipis PZT dengan nilai ukuran butir (*grainsize*) tertinggi dan *peak* dengan intensitas tertinggi namun dari hasil secara keseluruhan sudah dapat dinyatakan bahwa temperatur *annealing* yang optimal adalah pada temperatur 600 °C.

Hasil uji komposisi dari lapisan tipis PZT menggunakan XRF terutama komposisi dari Pb, Zr, dan Ti ditunjukkan pada tabel 4.2. Uji komposisi pada penelitian ini bertujuan agar dapat diketahui apakah komposisi lapisan tipis PZT yang dihasilkan sesuai dengan komposisi yang diharapkan yaitu mempunyai perbandingan molar antara Pb:Zr:Ti adalah 1:0,53 :0,47.

Tabel 4.2 Komposisi Pb, Zr, dan Ti berdasarkan uji XRF

Komposisi	Prosentase (%)
Pb	13,7 ± 2,5
Zr	4,5 ± 0,1
Ti	3,9 ± 0,2

Dari hasil uji XRF, prosentase komposisi semua unsur yang terkandung dalam lapisan tipis PZT berupa prosentase massa sehingga dapat dianggap massa totalnya adalah 100 gram, dengan massa Pb, Zr, dan Ti secara berurutan adalah 13,7 gram, 4,5 gram, dan 3,94 gram. Setelah itu, untuk dapat diketahui berapa perbandingan molar komposisi dari Pb, Zr, dan Ti, maka massanya dibagi dengan Ar (massa atom relatif) dari masing-masing unsur, dengan Ar dari Pb, Zr, dan Ti secara berurutan adalah 207; 91,2; dan 47,9. Hasilnya adalah 0,066; 0,049; dan 0,08, hasil ini sudah berupa mol sehingga jika hasil ini dibandingkan maka akan didapatkan perbandingan molarnya. Nilai perbandingan molar dari Pb : Zr : Ti dari hasil uji komposisi dengan XRF adalah 1:0,74:1,2. Nilai ini jauh dari nilai perbandingan molar yang diharapkan yaitu 1:0,53:0,47. Hal ini dikarenakan pada proses *annealing* banyak Pb yang terbuang karena sifatnya yang paling mudah menguap dibandingkan dengan Zr dan Ti sehingga jika Pb tidak banyak terbuang pada proses *annealing* maka nilai molar dari Pb akan lebih besar dan

menyebabkan nilai molar dari Zr dan Ti akan menurun. Selain itu, kemurnian dari bahan zirkonium(IV) propoksida yang hanya mempunyai konsentrasi 70 % dalam n-propanol menyebabkan unsur Zr yang dicampurkan pada proses pencampuran bahan menjadi berkurang sehingga nilai molar dari Zr lebih kecil dari nilai molar Ti.

UNIVERSITAS BRAWIJAYA



BAB V PENUTUP

5.1 Kesimpulan

Berdasarkan hasil sintesis dengan metode sol gel didapatkan larutan prekursor PZT dengan menggunakan penambahan PEG (*Poly Etylen Glycol*) sebagai zat penstabil dan struktur kristal yang terbentuk dari hasil pengeringan larutan prekursor PZT adalah kristal PZT dengan orientasi (100); (110); (111); (200); (102); dan (112). Sedangkan hasil penumbuhan lapisan tipis PZT dengan metode *spin coating* didapatkan bahwa temperatur *annealing* berpengaruh terhadap penumbuhan lapisan tipis PZT. Hal ini dapat dilihat dari variasi pengaturan temperatur *annealing* bahwa temperatur yang menghasilkan struktur kristal PZT dengan intensitas tinggi dan juga memiliki ukuran butir yang besar adalah 600 °C. Perbandingan molar dari komposisi Pb:Zr:Ti dari lapisan tipis PZT hasil uji XRF adalah 1:0,74:1,20.

5.2 Saran

Untuk penelitian selanjutnya, sebaiknya dilakukan penambahan komposisi Pb dari hitungan semula sehingga komposisi lapisan tipis PZT yang dihasilkan sesuai dengan perbandingan molar antara Pb:Zr:Ti adalah 1:0,53:0,47. Kondisi lingkungan yang memadai pada saat mencampurkan bahan, baik kebersihan ataupun temperatur ruangnya. Hal ini dikarenakan bahan-bahan yang digunakan pada penelitian ini merupakan bahan-bahan yang mudah menguap. Selain itu, sebaiknya juga dilakukan penelitian dengan penambahan parameter-parameter yang berbeda dari penelitian ini, sehingga karakteristik lapisan tipis PZT semakin dapat diketahui.

UNIVERSITAS BRAWIJAYA

Halaman ini sengaja dikosongkan



DAFTAR PUSTAKA

- Anonimus¹. 2003. *Piezoelectric Smart Materials*. Dalam http://resources.edb.gov.hk/physics/articleIE/smartmaterials/SmartMaterials_e.htm, diakses tanggal 9 Maret 2013
- Anonimus². **Refluks**. Dalam <http://en.wikipedia.org/wiki/Reflux>, diakses tanggal 9 Maret 2013
- Anonimus³. http://materials.web.psi.ch/Research/Thin_Films/Methods/Spin.htm?forprint, diakses tanggal 4 Juni 2012
- Azizahwati. 2001. **Studi Morfologi Permukaan Film Tipis $\text{PbZr}_{0,525}\text{Ti}_{0,475}\text{O}_3$ yang Ditumbuhkan dengan Metode DC Unbalanced Magnetron Sputtering**, Jurnal Natur Indonesia 5(1): 50-56
- Birnie III D. P. 2000. *Esterification Kinetics In Titanium Isopropoxide-acetic acid solutions*. Journals of Material Science, Vol. 35, pp.367-374.
- Brodie, I dan J. J. Muray.1992. *The Physics of Micro/Nano-Fabrication*. Plenum: New York
- Brouwer, Peter. 2010. *Theory of XRF*. PANalytical B.V: Netherlands.
- Chaidir A dan Kisworo D. 2007. **Pengaruh Pemanasan terhadap Struktur Mikro, Sifat Mekanik dan Korosi Paduan Zr- Nb-Sn-Fe [Hasil-hasil Penelitian EBN]**. ISSN 0854- 5561.
- Choy, J.H., dan Han, Y.S. 1997. *Citrate Route to The Piezoelectric $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ Oxide*, *Journal Materials Chemistry*, vol. 7, no. 9, pp. 1815 - 1820.
- Cullity, B.D. 1959. *Elements of X-Ray Diffraction*. Massachusetts: Addison Wesley.
- He, Bob Baoping. 2009. *Two-Dimensional X-Ray Diffraction*. John Wiley and Sons: New Jersey
- Heywang, Walter. 2008. *Piezoelectricity. "Evolution and Future of a Technology"*. Springer: Berlin.
- Irzaman, 2001. **Efek Annealing Pada Penumbuhan Film Tipis Ferroelektrik $\text{PbZr}_{0,625}\text{Ti}_{0,375}\text{O}_3$ (PZT)**. ITB: Bandung.
- Kittel, Carles. 1996. *Introductions to Solids State Physics. Seventh Edition*. John Wiley and Sons: USA

- Luurtsema, Gregory A. 1997. *Spin Coating For Rectangular Substrates*. The Department Of Electrical Engineering And Computer Sciences University Of California, Berkeley.
- Masruroh dan M. Toda. 2011. *Asymmetric Hysteresis Loops, Leakage Current and Capacitance Voltage Behaviors in Ferroelectric PZT Films Deposited on a Pt/Al₂O₃/SiO₂/Si Substrate by MOCVD method with a vapor-deposited Gold Top Electrode*. *International Journal of Applied Physics and Mathematics*, Vol. 1, No. 2.
- Masruroh. 2012. *Influence of Temperature Annealing on the Crystallization, Hysteresis Loops and Leakage Current in Au/PZT/Pt/TiO₂/Si(100) Films Grown by Low Temperature MOCVD Method*. *International Journal of Applied Physics and Mathematics*, Vol. 2, No. 6.
- Monshi, Ahmad, Moh. Reza Foroughi, dan Moh. Reza Monshi. 2012. *Modified Scherrer Equation to Estimate More Accurately Nano-Crystallite Size Using XRD*. *World Journal of Nano Science and Engineering*, 154-160
- Patterson, James D dan Bernard C. Bailey. 2007. *Solid-State Physics. Introductions to the Theory*. Springer Berlin Heidelberg: New York.
- Rahmayeni. 2007. **Pembuatan Lapis Dan Serbuk Timbal Titanat dengan Metoda Sol Gel**. FMIPA Univ. Andalas Padang: Padang.
- Rustami, Erus. 2008. **Sistem Kontrol Kecepatan Putar Spin Coating Berbasis Mikrokontroler Atmega853**. FMIPA ITB: Bandung.
- Sayer, M. dan Chivukulas, V. 1995. *Hand Book of Thin Film Process Technology*. IOP Publishing Ltd.
- Sebastian, M.T., Radhakrishnan, V.P.,(2000), "*Photoacoustic Investigation of The Effect of Excess Lead Oxide on Thermal Diffusivity of PZT Ceramic*", *Journal of Materials Science Letters*, vol. 19, pp. 499 - 501.
- Sebayang, Perdamean. 2005. **Optimasi Proses Sinter dari Keramik Timbal Zirkonat Titanat (PZT) dan Kajian Sifat Fisisnya**. Pusat Penelitian Fisika-LIPI, Puspitek: Serpong.

- Shen, Dongna. 2009. *Piezoelectric Energy Harvesting Devices For Low Frequency Vibration Applications*. UMI Microform 334293 ProQuest LLC.
- Sudaryatno S, Ning Utari. 2010. *Mengenal Sifat-Sifat Material*. ITB: Bandung.
- Umiati N.A.K, Irzaman, Budiman, M, Barmawi, M. 2001. **Efek Annealing pada Penumbuhan Film Tipis Ferroelektrik $\text{PbZr}_{0,625}\text{Ti}_{0,375}\text{O}_3$ (PZT)**: Kont Fis Indo 12, 94-98.
- Widodo, Slamet. 2010. **Teknologi Sol Gel pada Pembuatan Nano Kristalin Metal Oksida Untuk Aplikasi Sensor Gas**. PPET- LIPI: Bandung.
- Zarycka, Aldona, Jan Ilczuk, dan Dionizy Czekaj. 2003. *Application of The Sol-gel Method to Deposition of Thin Films*. University of Silesia, Faculty of Engineering, Department of Material Science : Poland.



UNIVERSITAS BRAWIJAYA

Halaman ini sengaja dikosongkan



LAMPIRAN

Perhitungan jumlah bahan yang ingin dicampurkan

Konsentrasi larutan PZT yang ingin dibuat dalam penelitian ini adalah $\frac{3 \text{ mmol}}{5 \text{ ml}} = 0.6 \text{ M}$, maka dengan menggunakan persamaan (3.1) akan dapat diketahui nilai dari jumlah mol hasil perbandingan masing-masing bahan.

$$p = q \times r \quad (3.1)$$

dimana,

p = jumlah mol hasil perbandingan masing-masing bahan

q = jumlah mol senyawa yang ingin dibuat

r = perbandingan mol masing-masing senyawa bahan (Pb:Zr:Ti = 1:0,53:0,47)

Untuk Pb:

$$p = q \times r = 0,3 \text{ mmol} \times 1 = 0,3 \text{ mmol}$$

Untuk Zr:

$$p = q \times r = 0,3 \text{ mmol} \times 0,53 = 1,59 \text{ mmol}$$

Untuk Ti:

$$p = q \times r = 0,3 \text{ mmol} \times 0,47 = 1,41 \text{ mmol}$$

kemudian setelah didapatkan nilai p maka dapat dihitung nilai massa dari bahan yang ingin dicampurkan dengan menggunakan pers. (3.2)

$$\text{massa} = p \times Mr \quad (3.2)$$

sehingga

Untuk Pb propoksida:

$$\text{Massa} = p \times Mr = 0,3 \text{ mmol} \times 379,34 = 1138 \text{ mg} = 1,138 \text{ g} = 1,14 \text{ g}$$

Untuk Zr propoksida:

$$\text{Massa} = p \times Mr = 1,59 \text{ mmol} \times 327,58 = 520,85 \text{ mg} = 0,52 \text{ g}$$

Untuk Ti propoksida:

$$\text{Massa} = p \times Mr = 1,41 \text{ mmol} \times 284,23 = 400,76 \text{ mg} = 0,4 \text{ g}$$

Dari persamaan (3.2) didapatkan massa Pb propoksida yang ingin dicampurkan sebesar 1,14 g, massa Zr propoksida sebesar 0,52 g, dan massa Ti propoksida sebesar 0,4 g. Karena dalam penelitian ini bahan Zr propoksida dan Ti propoksida berupa larutan maka massa (g) tersebut harus diubah ke dalam volum (liter) dengan menggunakan persamaan (3.3) dan (3.4)

$$m_{\text{bahan larutan}} = \text{massa} \times \frac{1}{\text{konsentrasi bahan}} \quad (3.3)$$

$$\text{volume bahan} = \frac{m_{\text{bahan larutan}}}{\text{berat jenis bahan}} \quad (3.4)$$

Sehingga volum Zr propoksida yang ingin dicampurkan (konsentrasi larutan = 70 %) adalah

$$\begin{aligned} m_{\text{Zr propoksida}} &= \text{massa} \times \frac{1}{\text{konsentrasi bahan}} \\ &= 520,85 \text{ mg} \times \frac{100}{70} = 744,07 \text{ mg} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{volume Zr propoksida} &= \frac{m_{\text{Zr propoksida}}}{\text{berat jenis bahan}} = \frac{744,07}{1,058} \\ &= 703,28 \mu\text{l} \end{aligned}$$

Sedangkan volum Ti propoksida yang ingin dicampurkan (konsentrasi larutan = 98 %) adalah

$$\begin{aligned} m_{\text{Ti propoksida}} &= \text{massa} \times \frac{1}{\text{konsentrasi bahan}} \\ &= 400,76 \text{ mg} \times \frac{100}{98} = 408,93 \text{ mg} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{volume Ti propoksida} &= \frac{m_{\text{Ti propoksida}}}{\text{berat jenis bahan}} = \frac{408,93}{1,05} \\ &= 389,47 \mu\text{l} \end{aligned}$$

Tabel standar data silikon dari JCPDS

data 41-1111		
Silikon		
$d(\text{\AA})$	2θ (degree)	Intensitas (%)
4,16	21,35	60
3,52	25,32	100
2,94	30,42	10
2,82	31,76	20
2,58	34,73	60
2,40	37,51	30
2,25	40,00	100
2,20	41,07	70
2,08	43,54	20
1,94	46,84	100
1,89	48,10	100
1,81	50,31	10
1,62	56,81	100
1,53	60,62	10
1,51	61,38	20
1,42	65,84	10
1,28	74,17	30
1,20	79,75	30
1,16	83,52	20
1,14	85,34	10
1,06	93,49	50

Tabel standar data PZT dari JCPDS

data 33-784			
Timbal Zirkonat Titanat Pb(Zr _{0.52} Ti _{0.48})O ₃			
d(Å)	2θ (degree)	hkl	Intensitas (%)
4,15	21,42	001	9
4,04	22,02	100	12
2,89	30,93	101	100
2,85	31,38	110	100
2,35	38,27	111	15
2,07	43,65	002	9
2,02	44,90	200	16
1,84	49,41	102	5
1,81	50,40	201	6
1,72	53,37	210	5
1,68	54,71	112	12
1,66	55,50	211	24
1,45	64,41	022	9
1,43	65,37	220	5
1,38	67,78	003	2
1,36	68,97	212	6
1,35	69,62	221	6
		300	
1,31	72,19	103	6
1,28	74,03	301	9
		310	
1,24	76,55	113	2
1,22	78,34	311	2
1,14	85,06	203	4

data 33-784			
Timbal Zirkonat Titanat Pb(Zr_{0.52}Ti_{0.48})O₃			
d(Å)	2θ (degree)	hkl	Intensitas (%)
1,13	85,99	302	4
1,12	86,95	320	4
1,10	88,94	123	15
1,09	89,98	312	15
1,08	91,04	321	15
10,37	96,04	004	<1
10,09	99,57	400	<1
1,00	10,03	104	<1
0,99	10,18	223	<1
0,98	10,29	322	2
0,97	10,45	114	2
0,96	10,61	303	4
0,95	10,79	411	4
0,94	11,05	330	1
0,93	11,24	133	<1
0,92	11,34	331	2
0,91	11,63	204	6
0,90	11,71	402	6
0,90	11,80	420	6
0,88	12,11	124	1
0,88	12,18	412	1
0,87	12,47	233	3
0,86	12,60	332	2
0,84	13,35	224	1
0,83	13,67	005	5
0,83	13,70	422	5

Tabel daftar *peak* hasil uji XRD

DAFTAR <i>PEAK</i> SERBUK PZT				
2θ (degree)	Intensitas (cps)	FWHM (degree)	d (Å)	Intensitas (%)
20,82	80,36	0,32	426,66	16,09
22,01	118,05	0,39	403,85	23,64
24,64	68,05	0,47	361,27	13,62
26,48	91,34	0,24	336,56	18,29
27,14	70,26	0,32	328,53	14,07
28,59	376,54	0,24	312,28	75,39
29,06	234,39	0,10	307,31	46,93
30,31	124,02	0,16	294,90	24,83
31,00	499,48	0,32	288,48	100,00
31,82	244,55	0,12	281,22	48,96
32,62	46,70	0,24	274,55	9,35
34,14	131,06	0,20	262,67	26,24
35,72	58,41	0,39	251,34	11,69
38,45	93,40	0,32	234,13	18,70
40,35	31,30	0,32	223,54	6,27
45,04	68,20	0,94	201,29	13,65
48,67	96,99	0,32	187,09	19,42
50,71	36,95	0,47	180,04	7,40
53,10	24,23	0,24	172,46	4,85
54,78	163,17	0,32	167,58	32,67
55,82	100,79	0,47	164,70	20,18
60,13	29,75	0,63	153,89	5,96
63,03	21,04	0,24	147,50	4,21
64,70	38,47	0,94	144,08	7,70
66,57	23,45	0,24	140,47	4,70
69,26	10,27	0,94	135,67	2,06
75,77	13,44	0,47	125,54	2,69
78,43	19,37	0,96	121,84	3,88

DAFTAR PEAK LAPISAN TIPIS PZT tanpa annealing				
2θ (degree)	Intensitas (cps)	FWHM (degree)	d (Å)	Intensitas (%)
69	225050,20	0,10	1	100
69	94958,05	0,07	1	42,19

DAFTAR PEAK LAPISAN TIPIS PZT 500 °C				
2θ (degree)	Intensitas (cps)	FWHM (degree)	d (Å)	Intensitas (%)
28,57	163,27	0,10	3,12	0,09
31,78	39,92	0,16	2,82	0,02
32,90	899,89	0,06	2,72	0,47
45,62	11,68	0,47	1,20	0,01
48,55	50,95	0,16	1,88	0,03
54,74	35,02	0,32	1,68	0,02
59,88	14,89	0,24	1,54	0,01
69,08	189464,6	0,07	1,36	100
69,27	89758,63	0,10	1,36	47,37

DAFTAR PEAK LAPISAN TIPIS PZT 600 °C				
2θ (degree)	Intensitas (cps)	FWHM (degree)	d (Å)	Intensitas (%)
21,62	66,11	0,12	4,11	0,04
30,84	483,59	0,14	2,90	0,33
32,89	202,37	0,06	2,72	0,14
38,02	48,91	0,32	2,37	0,03
44,18	79,00	0,32	2,05	0,05
49,77	19,45	0,55	1,83	0,01
54,88	122,67	0,24	1,67	0,08
64,39	36,60	0,47	1,45	0,02
69,07	146946,70	0,07	1,36	100
69,27	64676,98	0,10	1,36	44,01
73,09	20,38	0,96	1,29	0,01

DAFTAR PEAK LAPISAN TIPIS PZT 700 °C				
2θ (degree)	Intensitas (cps)	FWHM (degree)	d (Å)	Intensitas (%)
21,64	28,01	0,32	4,11	0,01
30,82	216,52	0,24	2,90	0,08
32,89	626,18	0,05	2,72	0,24
32,99	275,13	0,05	2,72	0,11
38,03	22,56	0,29	2,36	0,01
44,16	29,94	0,48	2,05	0,01
49,81	14,85	0,77	1,83	0,01
54,93	45,48	0,67	1,67	0,02
64,34	14,74	0,58	1,45	0,01
68,72	1901,78	0,07	1,37	0,73
69,07	258816,10	0,07	1,36	100
69,27	143907,30	0,07	1,36	55,6

Tabel Perhitungan Ukuran Butir (*Grainsize*) dengan Pers. Scherrer:

$$L = \frac{K\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (2.2)$$

dimana, L adalah ukuran butir, K adalah konstanta bentuk kristal (0,9), λ adalah panjang gelombang sinar x (nm), β adalah FWHM (lebar penuh pada setengah maksimum) dalam satuan radian, dan θ adalah sudut Bragg

Tanpa annealing

B (degree)	2θ (degree)	θ (degree)	cos θ (degree)	L (Å)
0,10	69,09	34,54	0,82	1004,80
0,07	69,29	34,65	0,82	1341,37

Temperatur annealing 500 °C

B (degree)	2θ (degree)	θ (degree)	cos θ (degree)	L (Å)
0,10	28,57	14,29	0,97	833,21
0,16	31,78	15,89	0,96	524,83
0,06	32,90	16,45	0,96	1404,13
0,47	45,62	22,81	0,92	182,50
0,16	48,55	24,27	0,91	553,74
0,32	54,74	27,37	0,89	284,11
0,24	59,88	29,94	0,87	388,17
0,07	66,08	33,04	0,84	1316,34
0,10	69,27	34,64	0,82	1005,88

Temperatur annealing 600 °C

B (degree)	2θ (degree)	θ (degree)	cos θ (degree)	L (Å)
0,12	21,62	10,81	0,98	684,91
0,14	30,84	15,42	0,96	598,10
0,06	32,90	16,45	0,96	1404,10
0,32	38,02	19,01	0,94	266,87
0,32	44,18	22,09	0,93	272,30
0,55	49,77	24,89	0,91	158,96
0,24	54,88	27,44	0,89	379,02
0,47	64,39	32,19	0,85	198,79
0,07	69,07	34,54	0,82	1339,59
0,10	69,27	34,63	0,82	1005,87
0,96	73,09	36,54	0,80	103,02

Temperatur annealing 700 °C

B (degree)	2θ (degree)	θ (degree)	cos θ (degree)	L (Å)
0,32	21,64	10,82	0,98	256,88
0,24	30,82	15,41	0,96	348,92
0,05	32,89	16,44	0,96	1725,86
0,05	32,99	16,50	0,96	1726,30
0,29	38,03	19,02	0,94	291,80
0,48	44,16	22,08	0,93	178,62
0,77	49,81	24,90	0,91	114,06
0,67	54,93	27,46	0,89	133,25
0,58	64,34	32,17	0,85	162,96
0,07	68,72	34,36	0,82	1336,79
0,07	69,07	34,54	0,82	1339,59
0,07	69,27	34,63	0,82	1341,15

Hasil Uji XRF

10-Aug-2012 11:13:50

Sample results - Averages

Page 1

Sample ident
PZT

Application	<Standardless>
Sequence	Average of 3
Measurement period - start	10-Aug-2012 11:05:08
Measurement period - end	10-Aug-2012 11:09:59
Position	1

Compound	Si	Ca	Ti	V	Cr	Ni
Conc	69.4 +/- 2.4	3.35 +/- 0.18	3.94 +/- 0.24	0.12 +/- 0.04	0.12 +/- 0.01	0.091 +/- 0.008
Unit	%	%	%	%	%	%

Compound	Cu	Zn	Ga	As	Zr	Dy
Conc	0.12 +/- 0.02	0.24 +/- 0.01	0.03 +/- 0.0100	1.32 +/- 0.61	4.5 +/- 0.1	1.8 +/- 0.07
Unit	%	%	%	%	%	%

Compound	Ir	Pb	Th
Conc	0.2 +/- 0.1	13.7 +/- 2.5	1.10 +/- 0.597
Unit	%	%	%

Foto Penelitian



Timbal(II) asetat trihidrat



Zirkonium(IV) propoksida



Titanium(IV) propoksida



Neraca ohaus



Proses refluks



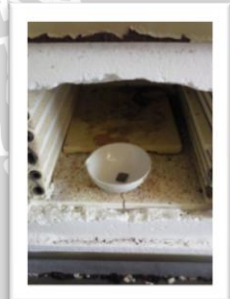
Sonicator merk Branson 2510



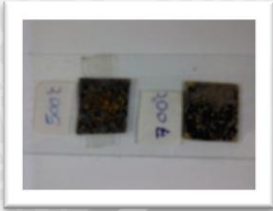
Proses pencucian silikon



furnace merk thermolyne 48000



Lapisan tipis PZT dimasukkan ke dalam furnace



Lapisan tipis PZT annealing pada temperatur 500 dan 700 °C



Lapisan tipis PZT annealing pada temperatur 600 °C dengan proses pelapisan 1x dan 2x



XRD merk PANalytical Type e'xpert pro

