

PEMBUATAN DAN KARAKTERISASI FILM $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ DOPING Ga_2O_3 (BGST)

T. Sumardi¹, P. W. K. Anggraini¹, M. Hikam¹ dan Irzaman²

¹Departemen Fisika FMIPA - UI
Kampus Baru UI, Depok 16424

²Departemen Fisika FMIPA - IPB
Kampus Darmaga, Bogor 16144

ABSTRAK

PEMBUATAN DAN KARAKTERISASI FILM $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ DOPING Ga_2O_3 (BGST).

Film $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ doping Ga_2O_3 (BGST) telah berhasil dibuat di atas substrat Si(111) dengan proses pembuatan larutan kimia 1 M larutan BGST [$(Ba_xSr_{1-x}Ti_{1-y}Ga_y)O_{3-y/2}$] dan dilanjutkan dengan *spin coating* pada kecepatan putar 3000 rpm selama 30 detik. Karakterisasi yang dilakukan berupa strukturmikro menggunakan XRF, XRD dan SEM serta uji sifat feroelektrik. Hasil XRF menunjukkan unsur-unsur pembentuk BST telah terdeposit. Sementara hasil XRD pada substrat Si(111) didapatkan nilai parameter kisi untuk BST, BGST (1%, 2% dan 4%) berturut-turut sebesar 3,9469 Å, 3,9354 Å, 3,8617 Å dan 3,7550 Å. Adapun bidang *hkl* yang muncul yaitu (100) untuk sampel BST dan BGST1M1%Si serta bidang (100) dan (110) untuk sampel BGST1M2%Si dan BGST1M4%Si. Hasil analisis SEM menunjukkan bahwa permukaan film BST maupun BGST dengan variasi *doping* masih heterogen. Hasil uji histerisis menunjukkan adanya hubungan yang linier antara nilai polarisasi dengan nilai medan listrik yang diberikan. Nilai polarisasi spontan memiliki hubungan yang berbanding terbalik dengan nilai parameter kisi suatu bahan. Polarisasi spontan hasil perhitungan berdasarkan posisi atom diperoleh untuk BGST1M1%Si, BGST1M2%Si dan BGST1M4%Si berturut-turut : 51,6550 $\mu C/cm^2$, 53,6454 $\mu C/cm^2$ dan 56,7375 $\mu C/cm^2$.

Kata kunci : Film, *chemical solution deposition*, parameter kisi, BGST, *doping* gallium

ABSTRACT

PREPARATION AND CHARACTERIZATION OF Ga_2O_3 DOPED $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ (BGST) FILM.

A film of Ga_2O_3 doped $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ (BGST) is successfully deposit on silicon substrate (111) using chemical solution deposition process of 1M BGST [$(Ba_xSr_{1-x}Ti_{1-y}Ga_y)O_{3-y/2}$] solution followed by spin coating process with spin velocity of 3000 rpm for 30 second. Characterizations conducted are micro structure characterization using XRF, XRD and SEM and ferroelectric property. The result of XRF shows that the BST forming elements are already deposited. Where as the result of XRD of film on silicon substrate (111) shows the lattice parameter for BST, BGST (1%, 2% and 4%) are respectively as follow: 3.9469 Å, 3.9354 Å, 3.8617 Å and 3.7550 Å. In addition, the XRD result also show that the *hkl* plane observed is (100) plane for BST sample and BGST1M1%Si, and (100) and (110) planes for BGST1M2%Si and BGST1M4%Si. The result of SEM shows that the films surface of BST as well as BGST with various doping concentration are still heterogeneous. The result of hysteresis test shows the linear correlation between the polarization value and electric field value. The spontaneous polarization value is conversely proportional to the lattice parameter value of material. The spontaneous polarization value obtained from calculation based on atomic position for BGST1M1%Si, BGST1M2%Si and BGST1M4%Si are respectively as follow : 51.6550, 53.6454 and 56.7375.

Key words : Film, *chemical solution deposition*, lattice parameter, BGST, gallium doped

PENDAHULUAN

Beberapa material film tipis feroelektrik yang penting diantaranya $BaSrTiO_3$, $PbTiO_3$, $Pb(Zr_xTi_{1-x})O_3$, $SrBiTaO_3$, $Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ dan $Bi_4Ti_3O_{12}$. Aplikasi-aplikasi film tipis feroelektrik menggunakan sifat dielektrik, pyroelektrik dan elektrooptik yang khas dari bahan feroelektrik. Sebagian dari aplikasi elektronik yang paling utama dari film tipis feroelektrik diantaranya : *non-volatile* memori yang menggunakan kemampuan polarisasi yang tinggi; kapasitor

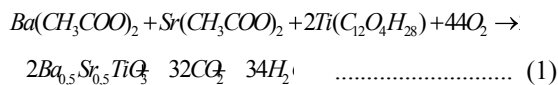
film tipis yang menggunakan sifat dielektrik; dan sensor pyroelektrik yang menggunakan perubahan konstanta dielektrik karena suhu; aktuator piezoelektrik yang menggunakan efek piezoelektrik. Dalam beberapa tahun terakhir, film tipis feroelektrik yang tersusun *perovskite* banyak mendapat perhatian karena memiliki kemungkinan untuk menggantikan memori CMOS yang sekarang digunakan sebagai FRAM [1].

Diantara material film tipis feroelektrik yang disebutkan di atas, material *BST* mempunyai prospek yang baik untuk peralatan mikroelektronik (alat frekuensi gelombang pendek dan gelombang milimeter, *tunable phase shifters and filters*) karena memiliki sifat konstanta dielektrik tinggi, dan faktor disipasi rendah [2]. Selain itu $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ (*BST*) banyak digunakan sebagai *FRAM* (*Ferroelectric Random Access Memories*) karena memiliki konstanta dielektrik tinggi dan kapasitas penyimpanan muatan yang tinggi (*high charge storage capacity*) [3]. Untuk suatu feroelektrik *RAM*, jika bahan itu memiliki nilai polarisasi sekitar $10 \mu C \cdot cm^{-2}$ maka ia mampu menghasilkan muatan sebanyak 10^{14} elektron per cm^{-2} untuk proses pembacaan memori [5].

Film *BST* dapat dibuat dengan bermacam-macam metode, seperti *Chemical Solution Deposition (CSD)*, *Metal Organic Chemical Vapor Deposition (MOCVD)*, *RF Sputering* dan *Pulsed Laser Ablation Deposition (PLAD)*. Metode *CSD* merupakan salah satu metode yang menarik karena kontrol stokiometri yang baik, mudah dalam pembuatan dan suhu sintesis rendah [6].

Pada penelitian ini dilakukan pembuatan film *BST* yang didadah Galium (Ga_2O_3) dengan metode *Chemical Solution Deposition (CSD)*. Pemilihan bahan *BST* berdasarkan pada sifat-sifat unggul bahan tersebut, diantaranya bahan perovskite, konstanta dielektrik tinggi untuk kapasitor *DRAM* (*Dynamic Random Access Memory*), dan gerbang oksida untuk generasi masa depan karena memiliki kombinasi unik konstanta dielektrik tinggi, dielektrik hilang rendah, densitas arus bocor rendah, dan stabilitas suhu yang baik [7]. Sedangkan keuntungan menggunakan metode *CSD* diantaranya: murah, pembuatan sampel lebih cepat, homogenitas dan suhu proses rendah [4].

Bahan Barium Stronsium Titanat, $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ merupakan paduan dari material $Ba(CH_3COO)_2$, $Sr(CH_3COO)_2$, dan $Ti(C_{12}O_4H_{28})$ sesuai Persamaan (1),



Menurut *ICDD (International Centre for Diffraction Data)*, *BST* memiliki sistem kristal kubik dengan konstanta kisi $a = 3,947 \text{ \AA}$ untuk konsentrasi stronsium 50 % dan $a = 3,965 \text{ \AA}$ untuk konsentrasi stronsium 40 %. Didapatkan *BST* dengan konstanta kisi $a = 3,97 \text{ \AA}$ untuk konsentrasi stronsium 30 % [Giridharan et. al.]. Lapisan tipis *BST* 0,5M dengan konsentrasi stronsium 50%, diperoleh $a = 3,955 \text{ \AA}$ pada substrat penumbuhan Si [11]. Suhu *Currie* dari barium titanat murni adalah $30 \text{ }^\circ C$, dengan penambahan stronsium akan menurunkan suhu *Currie* menjadi suhu kamar yang akan sangat berguna untuk spesifikasi alat tertentu [1]. Bahan $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ *doping* Ga_2O_3 (*BGST*) dimaksudkan untuk meningkatkan kinerja dari bahan *BST*. Adanya *doping* galium akan mengakibatkan ketidakstabilan atom-atom dalam bahan *BST* sehingga

melepaskan oksigen dan menghasilkan arus dan disebut pembawa muatan positif [10]. Pada penelitian ini digunakan metode *Chemical Solution Deposition (CSD)*.

Metode ini menggunakan teknik pelapisan larutan bahan kimia dengan teknik *spin coating* pada kecepatan putar tertentu [9]. Fungsi *XRD* untuk menentukan sistem kristal, menentukan kualitas kristal, menentukan simetri kristal, menentukan cacat kristal, mencari parameter kristal, identifikasi campuran dan analisis kimia.

Karena panjang gelombang sinar-X hampir sama dengan jarak antar atom pada kristal, maka sinar-X dapat didifraksi oleh kristal. Secara umum untuk kisi kristal berlaku persamaan (2), sedangkan untuk sistem kristal kubus dan tetragonal berlaku persamaan (3) dan persamaan (4) :

$$\lambda = 2 d \sin \theta \quad \dots\dots\dots (2)$$

$$\frac{1}{d^2} = \frac{h^2 + k^2 + l^2}{a^2} \quad \dots\dots\dots (3)$$

$$\frac{1}{d^2} = \frac{h^2 + k^2}{a^2} + \frac{l^2}{c^2} \quad \dots\dots\dots (4)$$

Menganalisis parameter kisi dengan struktur tetragonal menggunakan Metode *Cohen* dirumuskan seperti dalam Persamaan (5) [12] :

$$\begin{aligned} \Sigma a \sin^2 \theta &= C \Sigma \alpha^2 + B \Sigma \alpha \gamma + A \Sigma \alpha \delta \\ \Sigma \gamma \sin^2 \theta &= C \Sigma \gamma \alpha + B \Sigma \gamma^2 + A \Sigma \gamma \delta \\ \Sigma \delta \sin^2 \theta &= C \Sigma \delta \alpha + B \Sigma \delta \gamma + A \Sigma \delta^2 \end{aligned} \quad \dots\dots\dots (5)$$

keterangan :

- $\alpha = h^2 + k^2$;
- $\gamma = l^2$;
- $\delta = 10 \sin^2 2\theta$;
- $A = D/10$;
- $B = \lambda^2/(4c^2)$;
- $C = \lambda^2/(4a^2)$;
- $h, k, l =$ bidang pantulan/ indeks *Miller*;
- $\theta =$ sudut difraksi sinar-X (derajat);
- $\lambda =$ panjang gelombang (μ)

METODE PERCOBAAN

Percobaan pada penelitian ini terdiri dari tiga tahap. Tahap I pembuatan larutan *BGST* (*BST* didadah galium) dengan memperhatikan faktor-faktor massa, molaritas, dan persentase *doping*; tahap II melakukan percobaan pembuatan film *BGST* di atas substrat Si(111) dengan menggunakan *spin coating*; tahap III karakterisasi strukturmikro (*XRD*, *XRF* dan *SEM*), dan uji histerisis. Film *BGST* disiapkan dengan proses *Chemical Solution Deposition (CSD)* 1 M, kemudian diproses lebih lanjut dengan teknik pelapisan pada kecepatan putar 3000 rpm selama 30 detik. Substrat yang telah digunakan adalah Si(111).

Untuk mengambil data difraksi sinar-X digunakan Phillips Analytical PW3710 yang ada di Laboratorium Program Studi Ilmu Material Universitas Indonesia, dengan sumber sinar-X dari target Co K α , $\lambda = 1,78896 \text{ \AA}$. Pengamatan dilakukan dari sudut 20° hingga 80° dengan *step size* 0,02 setiap 1 detik. Data-data SEM diambil dengan SERI JEOL yang juga dimiliki Program Studi Ilmu Material Universitas Indonesia. Pemeriksaan film dilakukan dengan perbesaran 150x dan 750x.

Tahapan pengolahan data yang dilakukan adalah sebagai berikut : pengolahan data XRF secara kualitatif, pengolahan data XRD, interpretasi data SEM dan analisis data histerisis. Perangkat lunak yang digunakan adalah excel untuk pengolahan data awal, APD, Bella V2_11, EXPGUI-GSAS dan data ICDD (*International Centre for Diffraction Data*) untuk komparasi data XRD.

HASIL DAN PEMBAHASAN

Karakterisasi XRF

Karakterisasi XRF bertujuan untuk mengetahui unsur-unsur yang terkandung dalam bahan (film). Hasil analisis yang dilakukan secara kuantitatif, seperti tertera pada Tabel 1.

Tabel 1. Data karakterisasi XRF BST doping galium di atas substrat Si (111).

BST1MSi		BGST1M1%Si		BGST1M2%Si		BGST1M4%Si	
Unsur	Wt %	Unsur	Wt %	Unsur	Wt %	Unsur	Wt %
Si	85,3469	Si	76,9391	Si	83,8638	Si	87,5099
Ti	9,2650	Ti	15,8298	Ti	10,3445	Ti	7,9825
Sr	0,3626	Sr	0,8208	Sr	0,4653	Sr	0,3612
Ba	5,0255	Ba	6,3990	Ba	4,1001	Ba	3,9536
		Ga	0,0113	Ga	0,0259	Ga	0,1929
				Fe	1,0824		
				As	0,1180		

Dari data tersebut menunjukkan bahwa pada film yang dibuat telah terdapat unsur barium, stronsium, titanium dan galium (*doping*) sebagai unsur-unsur penyusun BGST, sedangkan yang lain merupakan substrat dan pengotor (impuritas). Munculnya pengotor karena penggunaan bahan-bahan pembentuk BST/BGST yang memiliki kemurnian kurang dari 100% dan kurang sempurnanya kondisi alat pada saat percobaan. Jika dibandingkan antara keempat unsur tersebut, yang paling banyak terdeposit adalah titanium. Hal ini disebabkan karena titanium bentuknya cairan yang mempunyai ukuran butir yang lebih kecil jika dibandingkan dengan bentuk serbuk, sehingga mudah untuk bereaksi dengan unsur yang lain. Sedangkan untuk bentuk serbuk, atom barium terdeposit lebih banyak daripada atom stronsium. Hal ini disebabkan perbandingan massa saat pembuatan larutan BGST, serbuk barium lebih banyak dibandingkan serbuk stronsium. Untuk bahan *doping* (Ga_2O_3), hasil XRF menunjukkan bahwa semakin besar *doping* galium maka

nilai yang dihasilkan semakin besar. Hal ini menunjukkan bahwa unsur galium (*dopan*) telah masuk dalam campuran BST dengan benar sesuai prosentasi bahan *doping* (Ga_2O_3).

Karakterisasi XRD

Karakterisasi XRD bertujuan untuk mendapatkan hubungan antara sudut difraksi dengan intensitas. Data dari hasil XRD tersebut digunakan untuk mencari nilai parameter kisi film. Perhitungan yang digunakan dengan cara analitik dan menggunakan program GSAS. Dengan menggunakan persamaan 3 dan program GSAS, nilai parameter kisi-parameter kisi tertera pada Tabel 2.

Tabel 2. Hasil perhitungan nilai parameter kisi dan proses penghalusan dengan GSAS-EXPGUI film BGST.

Sampel	Fasa	χ^2	wRp (%)	Parameter Kisi (\AA)	Wt (%)
BGST1M0%	BST	1,11	8,09	3,9469	10,337
	TiO			4,2350	89,663
BGST1M1%	BGST	1,12	8,08	3,9354	0,011
	Si			5,4187	99,989
BGST1M2%	BGST	5,09	17,36	3,8617	72,586
	TiO			4,2349	25,518
	Si			5,4583	1,0346
BGST1M4%	BGST	3,01	12,90	3,7550	56,732
	TiO			4,2351	29,802
	Si			5,4166	13,465

Dalam proses penghalusan, telah dicobakan beberapa fasa yang mungkin terbentuk dan terdeteksi oleh XRD, antara lain : fasa BST, fasa BST + Substrat Si, fasa BGST, fasa BGST + Substrat Si, fasa BGST + Substrat Si + fasa TiO BGST + fasa TiO. Dari hasil GSAS ternyata fasa-fasa yang cocok adalah fasa BGST + fasa TiO, fasa BGST + Substrat Si dan fasa BGST + Substrat Si + fasa TiO.

Setelah menjalankan program GSAS dan melakukan penghalusan (*refinement*) beberapa parameter dari bahan, maka didapatkan hasil penghalusan berupa parameter-parameter dari bahan yang diperhalus. Indikator yang dipergunakan untuk menentukan tingkat keberhasilan percobaan adalah indikator Rp, WRp, dan χ^2 . Semakin kecil nilai Rp dan WRp (idealnya mendekati 0) menunjukkan semakin miripnya kurva intensitas eksperimen dengan kurva intensitas teoritis, dan nilai χ^2 menunjukkan nilai residu kumulatif kesalahan dari parameter-parameter yang diperhalus pada bahan (idealnya χ^2 mendekati 1). Tapi keadaan ini sulit dicapai, proses penghalusan dihentikan pada pengolahan data ini ketika kurva kalkulasi yang dihasilkan hampir menyerupai kurva percobaan, dan fasa-fasa yang diduga telah terdapat pada kalkulasi (ditandai dengan *tickmark* yang sesuai).

Pada hasil analisis *Rietveld* di atas, terlihat bahwa untuk film *terdoping*, fasa BST dan Ga_2O_3 tidak muncul

dalam campuran. Hal ini memberikan arti bahwa Ga_2O_3 (ion Ga^{3+}) telah mendoping bahan *BST* dengan menempati ion Ti^{4+} dalam struktur *perovskite*. Hal ini dimungkinkan karena elektronegatifitas ion Ga^{3+} mendekati Ti^{4+} dibandingkan ion Ba^{2+}/Sr^{2+} . Dari hasil penghalusan, diperoleh fasa *TiO*, adanya fasa ini mengakibatkan nilai *WRP* yang besar jika dibandingkan dengan tanpa adanya fasa *TiO* tetapi meningkatkan %wt dari *BGST*. Dengan adanya fasa *TiO*, menandakan bahwa pencampuran bahan *BST* dengan *Ga* telah terjadi dengan *TiO* sebagai residu (dengan kata lain kurang sempurna pembentukan larutan pembentuk bahan *BST* dengan *dopan*). Pada *BGST1* fasa substrat memiliki nilai %wt yang sangat besar, hal ini diakibatkan substrat tertembak oleh sinar-X pada saat karakterisasi *XRD*. Padahal secara ideal diharapkan akan terbentuk satu fasa, yaitu fasa *BGST*.

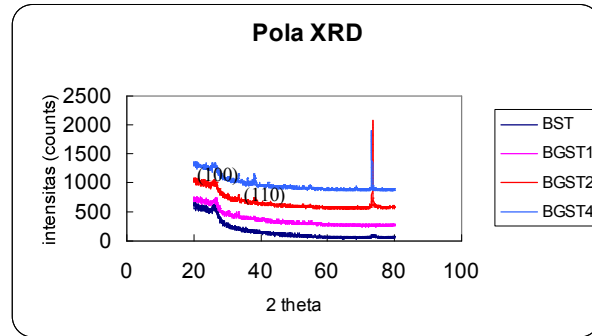
Secara umum pembentukan film *BGST* telah berhasil dilakukan dengan ditandainya fasa *BGST* yang muncul pada proses *GSAS* walaupun dengan adanya kehadiran fasa residu (*TiO*). Dari hasil *GSAS* memperlihatkan bahwa pendadahan yang baik terjadi pada persentase 2%, karena %wt *BGST* menunjukkan nilai yang paling besar. Sedangkan nilai parameter kisi memiliki nilai berbanding terbalik dengan penambahan *doping*. Nilai-nilai parameter kisi ini sangat penting untuk diperhatikan, karena akan menentukan nilai polarisasi spontan bahan pada perhitungan mencari nilai polarisasi spontan berdasarkan posisi atomnya. Pada penjelasan sebelumnya, dimana belum dilakukan proses penghalusan dengan *GSAS*, penulis memprediksi bahwa pada sudut $73,41^\circ$ merupakan substrat *Si(111)* yang tertembak. Ternyata setelah dilakukan penghalusan, dihasilkan fasa *TiO* dan bukan substrat *Si(111)*. Disini terlihat bagaimana program *GSAS* dapat mengetahui fasa-fasa yang muncul dengan terlebih dahulu memasukan data perkiraan yang dihasilkan dari *XRF* dan data dari *ICDD-PCPDF*.

Jika dibandingkan nilai parameter kisi antara hasil perhitungan manual dengan hasil *GSAS*, ternyata nilai yang paling mendekati literatur yaitu hasil yang diperoleh oleh *GSAS*. Ini menandakan analisis *Rietveld* dengan *GSAS* merupakan salah satu metode yang sangat baik untuk digunakan pada penelitian ini.

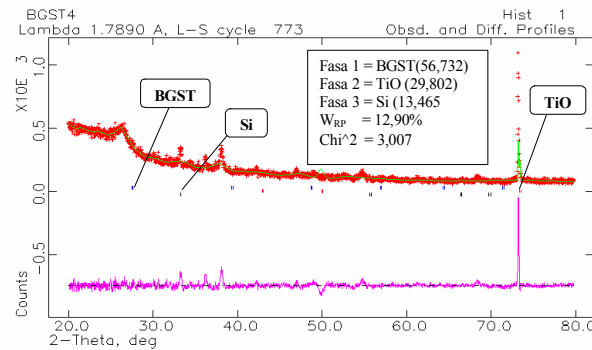
Dari hasil *XRD* yang telah diperhalus dapat dilihat pengaruh *doping* galium terhadap nilai parameter kisi pada sampel lapisan tipis seperti pada Gambar 3.

Dari gambar di atas terlihat adanya penurunan nilai parameter kisi dengan penambahan *doping* galium. Untuk penambahan 1%, 2% dan 4% *doping*, penurunan berturut-turut sebesar 1,15 %, 8,52 % dan 19,19 %.

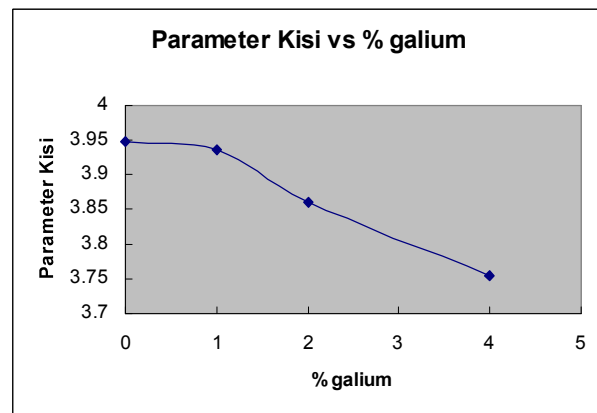
Bila galium yang memiliki valensi lebih rendah dari *Ti* digunakan sebagai *doping* pada struktur kristal *perovskite* (ABO_3) *BST*, akan menyebabkan kekurangan valensi positif dalam struktur kristal *perovskite*. Untuk memenuhi kenetralan (*electro neutrality*) maka dihasilkan ruang kosong (*vacancies site*) pada posisi O



Gambar 1. Pola difraksi sinar-x film *BST* dan *BST* doping Galium.



Gambar 2. Pola difraksi sinar-x film *BGST1M4%Si* hasil observasi dan kalkulasi *GSAS*.

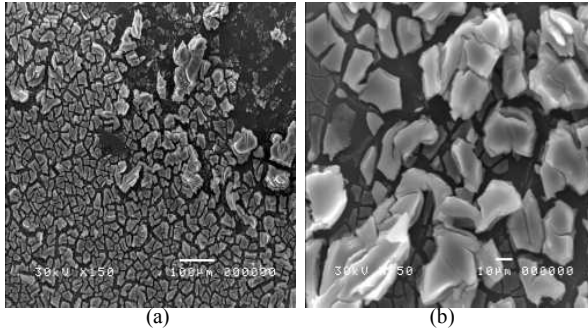


Gambar 3. Pengaruh *doping* Galium terhadap parameter kisi film *BGST*.

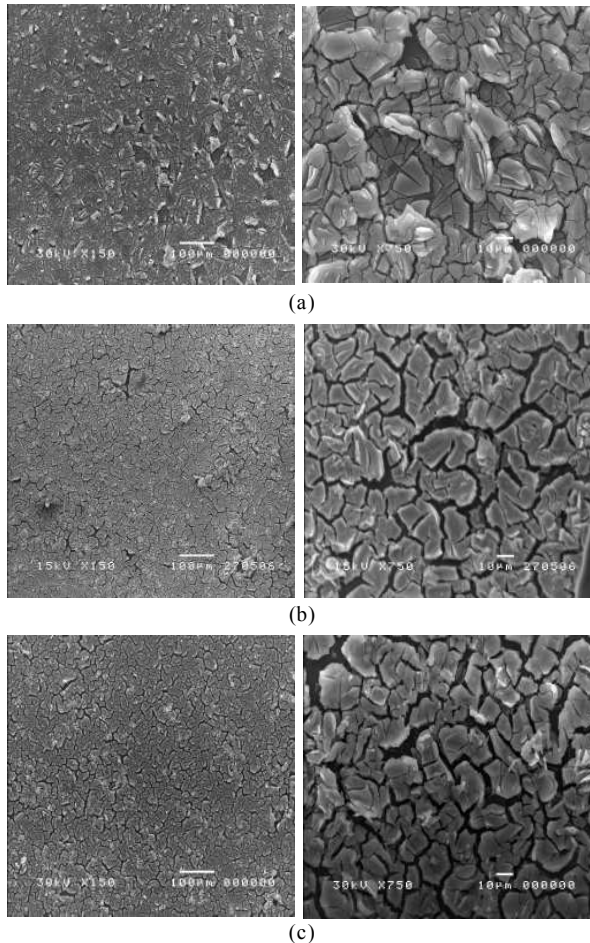
(oksigen). Hal ini mengakibatkan adanya kemudahan reorientasi dari dipol-dipol ion yang mengalami kekurangan tersebut. Dipol-dipol tersebut dibangkitkan oleh adanya ion Ga^{3+} (akan menarik muatan negatif) dan ruang ruang kosong (*vacancy*) oksigen (akan menarik muatan positif). Kekurangan sistem kristal ini dihasilkan pada suhu tinggi selama proses *sintering*. Namun demikian ion oksigen masih terus bergerak walaupun di bawah suhu Currie (misalnya pada suhu kamar). Hal ini bisa terjadi karena ion oksigen dan ruang kosong sangat berdekatan (hanya $2,8 \text{ \AA}$) dan loncatan ion dapat dengan mudah terjadi [8]. Adanya pergerakan ion-ion oksigen di dalam sistem kristal *BGST* ini akan mempengaruhi nilai konstanta kisi.

Karakterisasi SEM

Dari hasil analisis dengan SEM/EDX JEOL seri JSM-5310LV maka morfologi permukaan bahan film BST dan BGST dapat dilihat seperti pada Gambar 4 dan Gambar 5.



Gambar 4. Morfologi permukaan film BST dengan teknik SEM, (a). BST1MSi pembesaran 150x (b). BST1MSi pembesaran 750x.



Gambar 5. Morfologi permukaan film BGST dengan teknik SEM (a). BGST1M1%Si pembesaran 150x dan 750x, (b). BGST1M2%Si pembesaran 150x dan 750x, (c). BGST1M4%Si pembesaran 150x dan 750x.

Gambar 4 memperlihatkan morfologi permukaan film BST dan Gambar 5 memperlihatkan morfologi permukaan film BGST doping galium (1%, 2% dan 4%)

di atas substrat Si(111) dengan perbesaran 150x dan 750x. Tampak dari gambar bahwa morfologi permukaan film BST masih heterogen dan memperlihatkan retakan-retakan yang sangat jelas. Sedangkan Gambar 5 menunjukkan morfologi permukaan film BGST dengan doping galium yang berbeda. Pada gambar ini dapat dilihat bahwa morfologi permukaan masih heterogen sama halnya dengan BST murni. Tetapi dari ketiga gambar terlihat, semakin banyak doping yang diberikan maka morfologi permukaan memperlihatkan semakin kecilnya retakan-retakan.

Retakan-retakan yang dihasilkan oleh film diduga akibat kurang meratanya larutan dalam pembuatan dengan 5 lapisan, serta adanya proses pemanasan yang kurang baik. Pada proses pemanasan dilakukan kenaikan suhu yang tidak konstan (untuk mencapai 850 °C dilakukan dalam waktu 1 jam) sehingga mengakibatkan sampel mengalami ketidakstabilan dalam menerima panas. Selain itu juga pada saat penurunan suhu yang drastis (mencapai suhu kamar). Ketidak homogenan dalam morfologi permukaan film ini menandakan adanya fasa yang lebih dari satu, hal ini sesuai dengan yang dijelaskan pada hasil penghalusan bahan dengan GSAS.

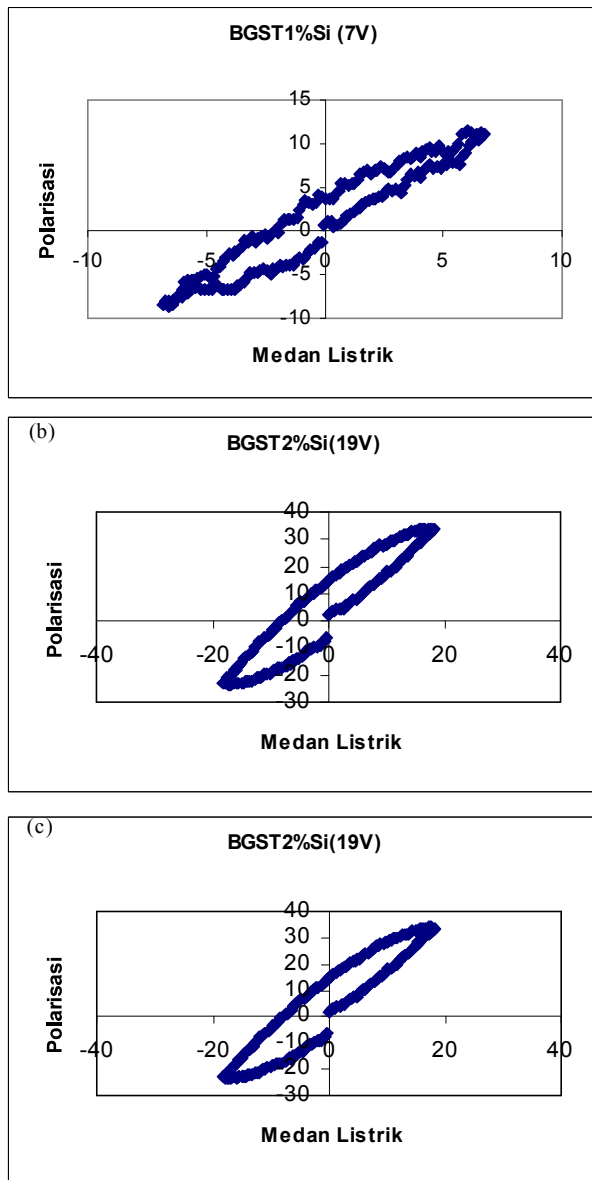
Uji Histerisis

Karakterisasi sifat feroelektrik berupa kurva histerisis bertujuan untuk mengetahui nilai polarisasi remanen, medan koersif dan polarisasi pada saat saturasi. Nilai polarisasi saturasi ini menandakan keadaan pada saat seluruh arah orientasi domain searah dengan medan listrik eksternal. Pada keadaan ini nilai polarisasinya akan tetap walaupun medan listrik eksternal bertambah besar. Polarisasi remanen menandakan nilai polarisasi yang tetap ada pada bahan feroelektrik walaupun sudah tidak lagi dipengaruhi oleh medan listrik. Sedangkan nilai medan koersif yang dihasilkan menandakan besarnya nilai medan listrik yang diperlukan untuk merubah polarisasinya, dari polarisasi remanen menjadi nol. Nilai medan koersif dari suatu bahan bergantung dari banyak parameter, diantaranya perlakuan suhu dan perlakuan listrik pada bahan.

Pengujian dilakukan dengan tegangan yang berbeda-beda untuk setiap bahan, dimulai pada tegangan 5 volt sampai kurva histerisis menunjukkan keadaan rusak. Hasil kurva BGST1% menunjukkan hasil yang kurang baik pada tegangan 8V dan 9V, sedangkan pada tegangan 5V sampai dengan 7V dianggap cukup baik. Pada tegangan 5V sampai dengan 7V secara umum kurva menunjukkan hubungan yang linear terhadap medan listrik yang diberikan. Keadaan ini sangat diharapkan untuk sampel BST, penambahan Sr 0,5% akan mengakibatkan perubahan dari suhu Curie ke suhu kamar, jadi material $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ merupakan keadaan

paraelektrik pada suhu kamar [4]. Untuk bahan *BGST2%*, hasil kurva yang dihasilkan dari tegangan 5V sampai dengan 19V memiliki bentuk yang mirip satu sama lainnya (linear terhadap medan listrik yang diberikan) kecuali pada tegangan 8V (bentuknya seperti *zig-zag*). Sedangkan untuk *BGST4%*, pengukuran dilakukan pada tegangan 5V sampai dengan 14V. Sama halnya dengan *BGST2%*, pola kurva semuanya memiliki kemiripan (linier terhadap medan listrik yang diberikan) kecuali pada tegangan 6V, 8V dan 9V yang memiliki kurva dengan bentuk kurang baik. Penggunaan tegangan yang berbeda-beda bertujuan untuk mengetahui sebesar apa kekuatan sampel terhadap pengaruh tegangan yang diberikan dan untuk mencari atau menghasilkan kurva histerisis yang baik.

Gambar 6. memperlihatkan contoh bentuk kurva *BGST1%*, *BGST2%* dan *BGST4%*.



Gambar 6. Bentuk kurva histerisis (a). *BGST1%* Si pada tegangan 7V, (b). *BGST2%* Si pada tegangan 19V, (c). *BGST4%* Si pada tegangan 19V.

Perhitungan nilai polarisasi spontan dilakukan dengan menggunakan dua data parameter kisi (hasil perhitungan manual dan hasil perhitungan *GSAS*) berdasarkan posisi atom dalam unit sel satuan. Hasil perhitungan tertera pada Tabel 3.

Tabel 3. Hasil perhitungan polarisasi spontan film *BGST*.

No	Sampel	Parameter kisi	Polarisasi Spontan ($\mu C / cm^2$)
2	<i>BGST1M1%Si</i>	Manual (3,8725 Å)	53,3466
		<i>GSAS</i> (3,9354 Å)	51,6550
3	<i>BGST1M2%Si</i>	Manual (3,7466 Å)	57,0531
		<i>GSAS</i> (3,8617 Å)	53,6454
4	<i>BGST1M4%Si</i>	Manual (3,9240 Å)	51,9555
		<i>GSAS</i> (3,7550 Å)	56,7375

Dari hasil perhitungan polarisasi spontan di atas, terlihat bahwa pada film, nilai polarisasi spontan berbanding terbalik dengan besarnya nilai parameter kisi *BGST*. Hal ini dikarenakan jika suatu bahan memiliki parameter kisi yang kecil maka jarak antar atom menjadi berdekatan yang mengakibatkan volume kristal menjadi kecil, sehingga nilai polarisasi spontan menjadi besar. Lain halnya jika bahan tersebut diberi perlakuan medan listrik dari luar, maka akan menghasilkan polarisasi spontan seperti yang diperlihatkan oleh Gambar 6. Sehingga dapat dikatakan secara keseluruhan, perlakuan *doping Ga₂O₃* pada bahan *BST* akan mempengaruhi nilai polarisasi spontan (P_s).

Hal ini disebabkan karena adanya pergantian penempatan posisi atom Ti oleh atom Ga secara acak yang memiliki muatan ionik berbeda. Nilai polarisasi spontan yang dihasilkan menggambarkan peningkatan bila penambahan *doping galium* diperbesar. Penambahan nilai polarisasi spontan ini diakibatkan oleh adanya atom Ga dalam campuran yang membangkitkan kekosongan (*vacancy*) dalam bahan. Pada kasus ini disebut sifat *hard doping* dengan menggunakan ion Ga^{3+} sebagai pengganti Ti^{4+} menyebabkan efek kenaikan sifat kekerasan dari bahan *BST*. Tetapi *bulk* resistivitas lebih rendah, sifat medan koersif lebih tinggi, faktor kualitas mekanik lebih tinggi dan faktor kualitas listrik lebih tinggi [13].

KESIMPULAN

Dari hasil penelitian yang telah dilakukan, dapat disimpulkan sebagai berikut:

1. Film *BST* dan *BGST* telah berhasil dibuat di atas substrat Si(111) dengan menggunakan metode *Chemical Solution Deposition (CSD)* berbantuan *spin coating*.
2. Hasil *XRF* menunjukkan bahwa unsur-unsur pembentuk *BST* dan *BGST* telah terdeteksi.

3. Dengan program *GSAS* dihasilkan bahwa *BST* dan *BGST* memiliki sistem kristal kubik dengan grup ruang $Pm\ 3\ m$ dan adanya fasa TiO . Adapun nilai parameter kisi untuk *BST*, *BGST*1M1%Si, *BGST*1M2%Si, *BGST*1M4%Si berturut-turut : 3,9469 Å; 3,9354 Å; 3,8617 Å dan 3,7550 Å.
4. Hasil *SEM* menunjukkan bahwa semua sampel masih bersifat heterogen.
5. Nilai polarisasi spontan untuk sampel *BGST* (1%, 2% dan 4%) dengan nilai parameter kisi hasil *GSAS* berturut-turut: 51,6550, 53,6454 dan 56,7375 .
6. Secara umum penambahan *doping* galium akan menurunkan nilai parameter kisi dan meningkatkan nilai polarisasi spontan bahan $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ 1M.

UCAPAN TERIMAKASIH

Para penulis mengucapkan banyak terimakasih kepada Ketua Departemen Fisika FMIPA UI yang telah menyediakan fasilitas penelitian. Sebagian dana riset ini berasal dari Proyek Hibah Pasca Sarjana Dikti Departemen Pendidikan Nasional tahun anggaran 2006.

DAFTARACUAN

- [1]. APARNA, BHIMASANKARAN, S. V. SURYANARAYANA, G.S. KUMAR, *Bull Mater Sci.*, **24**, (5) (2001) 497-504
- [2]. M. HIKAM, B. SOEGIONO, T. SUMARDI, P.W.K. ANGGRAINI, C. SUNANDAR dan T. YOGARAKSA, Development of Barium Strontium Titanate Thin Film Doped by Fe, *One Day Workshop on Materials and Metallurgy*, UI-UKM, Depok (2006)
- [3]. SEO, JIN-YONG, SUNG-WOO PARK., *Journal of Korean Physics Society*, **45** (3) (2004) 769-772
- [4]. UMUT ADEM, Preparation of $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$ Thin Films By Chemical Solution Deposition and Their Electrical Characterization, *Thesis* (2003)
- [5]. LINES, M. E., A.M. GLASS, *Principles and Application of Ferroelectrics and Related Materials*. Clarendon Press. Great Britain (1997)
- [6]. IRZAMAN, H. DARMASETIAWAN, M. N. INDRO, S. G. SUKARYO, M. HIKAM, NAPENG BO and M. BARMAWI, *Electrical Properties of Crystalline $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ Thin Film* (2001)
- [7]. Y. GAO, S. HE, P. ALLURI, M. ENGELHARD, A. S. LEA, J. FINDER, B. MELNICK and R. L. HANCE, *Effects of Precursors and Substrat Materials on Microstructure, Dielectric Properties, and Step Coverage of (Ba, Sr) TiO_3 Films Grown by Metallurgical Vapor Deposition* (2000)
- [8]. SALOMO, Pengaruh Variasi Tekanan Terhadap Konstanta Dielektrikum dan Parameter Kisi Material Piezoelektrik (Studi Kasus Barium Titanat dan Kuarsa). *Tesis*. Program Studi Ilmu Fisika Program Pasca Sarjana UI, Jakarta (1994)
- [9]. IRZAMAN, Studi Lapisan Tipis Pyroelektrik $PbZr_{0,52}Ti_{0,48}O_3$ (PZT) Yang Didadah Tantalum dan Penerapannya Sebagai Detektor Infra Merah. *Disertasi*, Jurusan Fisika FMIPA, ITB (2005)
- [10]. K. Uchino, *Ferroelectric Devices*, Macel Dekker, New York (2000)
- [11]. Y. IRIANI, M. HIKAM dan IRZAMAN, Analisa Struktur Kristal dan Komposisi Lapisan Tipis $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ yang Disiapkan dengan *Spin Coating*, *Seminar Fisika*, UNS, Solo (2005)
- [12]. CULLITY, *Element of X-Ray Diffraction*, Third Edition, Massachusetts: Addison Wesley Publishing Company Inc., London, (2001) 385-402
- [13]. YUHUAN XU, *Ferroelectric Materials and Their Application*, University of Calofornia Los Angeles, CA, USA (1991)
- [14]. IRZAMAN, Y. DARVINA, A. FUAD, P. ARIFIN, M. BUDIMAN, M. BARMAWI, *Physica Status Solidi (a)*, Germany, **199** (3) (2003) 416-424