

## ANALISIS KUALITATIF DAN KUANTITATIF FASA $(\text{Na}_{0,5}\text{Bi}_{0,5})\text{TiO}_3$ DENGAN TEKNIK DIFRAKSI SINAR-X MENGUNAKAN METODE RIETVELD

Engkir Sukirman dan Syahfandi Ahda

Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN) - BATAN,  
Kawasan Puspipstek, Serpong 15314, Tangerang Selatan  
e-mail: engkirs@gmail.com

### ABSTRAK

**ANALISIS KUALITATIF DAN KUANTITATIF FASA  $(\text{Na}_{0,5}\text{Bi}_{0,5})\text{TiO}_3$  DENGAN TEKNIK DIFRAKSI SINAR-X MENGGUNAKAN METODE RIETVELD.** Telah dilakukan analisis kualitatif dan kuantitatif fasa  $(\text{Na}_{0,5}\text{Bi}_{0,5})\text{TiO}_3$  (NBT) dengan teknik difraksi sinar-X, metode Rietveld. Cuplikan NBT disintesis dengan metode reaksi padatan. Struktur mikro cuplikan diteliti dengan bantuan mikroskop elektron. Dalam penelitian ini ada enam model masukan parameter *least square*, yakni model NBT1, NBT2, NBT3, NBT4, NBT5 dan NBT6. Hasil analisis menunjukkan bahwa model struktur yang paling cocok adalah model NBT3, yakni suatu model struktur dengan NBT terdiri dari dua fasa, yakni fasa tetragonal, grup ruang I4/mcm, No. 140, parameter kisi  $a = b = 5,485(1)\text{Å}$ ,  $c = 7,772(2)\text{Å}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ , fraksi berat 93,44 % dan fasa rombohedral, grup ruang R3c, No. 161-1, parameter kisi  $a = b = c = 3,908(1)\text{Å}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90,08(4)$ , fraksi berat 6,56 %. Indeks reliabilitas  $R_{wp} = 15,91$  dan  $R_p = 11,86$ . Regangan kisi ( $\eta_r$ ) dan ukuran kristalit ( $D_r$ ) untuk sistem kristal tetragonal, sebesar 0,015 dan 150,00 Å. Sedangkan regangan kisi ( $\eta_r$ ) dan ukuran kristalit ( $D_r$ ) untuk sistem kristal rombohedral, sebesar 0,016 dan 142,857 Å. Keberadaan unsur penyusun senyawa NBT di dalam cuplikan, yakni Bi, Na, Ti dan O, dibuktikan dari kurva cacahan hamburan sinar-X karakteristik terhadap energi dispersif. Secara dominan cuplikan NBT berfasa tetragonal (> 90 %). Terbentuknya fasa rombohedral (< 7 %) di dalam cuplikan NBT mungkin akibat ukuran butir dan distribusi tekanan di dalam prekursor pada saat pembuatan pelet tidak merata. Sehingga difusi atom-atom Bi, Na dan Ti pada saat proses sinter tidak merata di seluruh cuplikan.

**Kata kunci:**  $(\text{Na}_{0,5}\text{Bi}_{0,5})\text{TiO}_3$ , Analisis kualitatif dan kuantitatif, Metode Rietveld

### ABSTRACT

**QUALITATIVE AND QUANTITATIVE ANALYSIS OF  $(\text{Na}_{0,5}\text{Bi}_{0,5})\text{TiO}_3$  PHASE WITH THE X-RAY DIFFRACTION TECHNIQUE USING THE RIETVELD METHOD.** The qualitative and quantitative phase analysis for  $(\text{Na}_{0,5}\text{Bi}_{0,5})\text{TiO}_3$  (NBT) phase have been carried out by the X-ray diffraction technique using the Rietveld method. The NBT sample was synthesized by the solid reaction method. Micro structure of the sample was studied using the electron microscope. In this study it have been proposed six models of the least square input parameters, namely NBT1, NBT2, NBT3, NBT4, NBT5 and NBT6 model. The analysis results showed that the most suitable model is NBT3, i.e., a model in which the NBT consists of two phases, namely tetragonal phase, space group I4/mcm, No. 140, lattice parameters  $a = b = 5.485(1)\text{Å}$ ,  $c = 7.772(2)\text{Å}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ , weight fraction 93.44% and the rhombohedral phase, space group R3c, No. 161-1, lattice parameters  $a = b = c = 3.908(1)\text{Å}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90.08(4)^\circ$ , weight fraction 6.56%. Reliability indexes  $R_{wp} = 15.91$  and  $R_p = 11.86$ . Lattice strain ( $\eta_r$ ) and crystallite size ( $D_r$ ) for the tetragonal crystal system are respectively 0.015 and 150.00 Å. While the lattice strain ( $\eta_r$ ) and crystallite size ( $D_r$ ) for the rhombohedral crystal system are respectively 0.016 and 142.857 Å. The presence of constituent elements of the NBT compound, i.e., Bi, Na, Ti and O, are proven by the X-ray dispersive scattering curve. The phase of NBT sample is redominantly tetragonal (> 90%). The formation of rhombohedral phase (< 7%) in the NBT sample may be due to the grain size and pressure distribution in the precursors during the making of pellets are uneven. So that, the diffusion of the atoms Bi, Na, and Ti during sintering process is not evenly distributed throughout the sample.

**Key words:**  $(\text{Na}_{0,5}\text{Bi}_{0,5})\text{TiO}_3$ , Qualitative and quantitative analysis, Rietveld method

## PENDAHULUAN

Bahan piezoelektrik bebas timbal baru-baru ini telah menarik banyak perhatian kalangan peneliti, karena bahan ini ramah lingkungan. *Sodium bismuth titanate* ( $\text{Na}_{0,5}\text{Bi}_{0,5}\text{TiO}_3$  (*NBT*)) adalah keramik piezoelektrik bebas timbal yang prospektif karena memiliki feroelektrisitas yang kuat pada suhu kamar dan transisi fasa dari feroelektrik ke paraelektrik terjadi pada  $320\text{ }^\circ\text{C}$  [1]. Disamping itu, *NBT* menampilkan sifat dielektrik anomali sebagai akibat dari transisi fasa suhu rendah dari fasa feroelektrik ke anti-feroelektrik pada  $200\text{ }^\circ\text{C}$ , dimana suhu transisi ini kemudian disebut suhu depolarisasi  $T_d$ . Dalam aplikasi, parameter  $T_d$  ini merupakan faktor penting untuk *NBT* dan keramik-keramik berbasis *NBT*, karena respon piezoelektrik hilang di atas  $T_d$  [2].

*NBT* pertama kali dilaporkan pada tahun 1960 [3], tetapi belum banyak mendapat perhatian dari kalangan peneliti. Baru dua dekade terakhir ini, *NBT* secara intensif diteliti dan dikembangkan orang. Beberapa pengukuran awal tentang sifat dielektrik dan sifat optik *NBT* [4]. Struktur kristal *NBT* pertama kali diteliti [5], namun tidak dihasilkan pemahaman struktural yang definitif. Pada tahun 2002 ditemukan *NBT* pada suhu kamar memiliki struktur rombohedral, berubah menjadi tetragonal dan kemudian berstruktur kubik pada saat dipanaskan [6].

Hasil penelitian terdahulu menunjukkan bahwa pada suhu ruang, *NBT* yang *didoping*  $\text{ZrO}_2$  berstruktur rombohedral, dengan parameter kisi:  $a = b = c = 3,890(6)\text{ \AA}$ ,  $\alpha = 89,71^\circ$  [7]. *NBT* yang *didoping*  $\text{ZrO}_2$  berstruktur tetragonal, parameter kisi:  $a = b = 5,4812\text{ \AA}$ , dan  $c = 13,4832\text{ \AA}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$  [2]. Peneliti lainnya [8] menemukan bahwa *NBT* yang *didoping*  $\text{WO}_3$  berstruktur ortorombik, parameter kisi:  $a = 3,808(8)\text{ \AA}$ ,  $b = 4,764(4)\text{ \AA}$ , dan  $c = 6,722(2)\text{ \AA}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ . Pada ketiga penelitian di atas masing-masing cuplikan disintesis dengan metode reaksi padat dan cuplikan yang diperoleh adalah fasa tunggal *NBT*. Oleh karena itu tidak terbentuk *Morphotropic Phase Boundary (MPB)*. *MPB* adalah batas pemisah daerah yang memiliki simetri, komposisi atau fasa berbeda; dimana pada *MPB* ini terjadi peningkatan sifat-sifat piezoelektrik bahan [9]. Oleh karena itu, terbentuknya *MPB* di dalam cuplikan bahan feroelektrik yang disintesis.

Tampak bahwa pada hasil-hasil penelitian terdahulu terdapat perbedaan identitas fasa *NBT* yang diperoleh. Tujuan penelitian adalah melakukan analisis kualitatif dan kuantitatif fasa *NBT* pada cuplikan bahan feroelektrik hasil proses sintesis dengan metode reaksi padat.

## BAHAN DAN METODE

Bahan baku untuk pembuatan *NBT* adalah  $\text{Bi}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  dan  $\text{TiO}_2$  berupa serbuk dengan kemurnian masing-masing 99,99 %. Ketiga jenis bahan baku

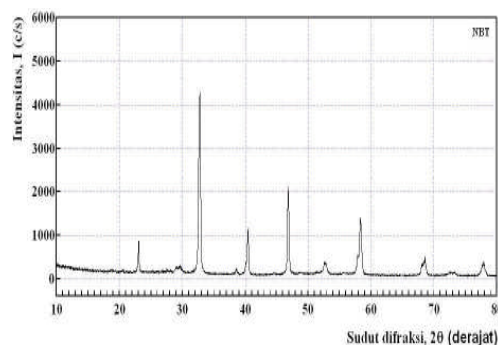
tersebut ditimbang dengan perbandingan mol yang tepat, yakni  $\text{Bi} : \text{Na} : \text{Ti} = 0,5 : 0,5 : 1,0$ , kemudian dicampurkan dengan media pelarut etanol menggunakan *magnetic stirrer* sebagai pengaduk di dalam gelas *beaker* 100 mL. Volume larutan 40 mL, laju putaran disetel pada skala 330 rpm hingga 340 rpm dengan suhu pelarutan pada suhu kamar dan pada saat dihentikan volume larutan 25 mL. Prekursor selanjutnya dikeringkan di dalam oven pada suhu  $80\text{ }^\circ\text{C}$  dan kemudian digerus dengan *mortar agate*. Serbuk prekursor dibuat pelet dengan cara ditekan menggunakan *hydraulic press* pada 3.000 psi. Pelet dikalsinasi pada  $300\text{ }^\circ\text{C}$  selama 1 jam dilanjutkan dengan *sinter* pada  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  selama 5 jam.

Pelet hasil *sinter* dikarakterisasi dengan teknik difraksi sinar-X. Karakterisasi ini bertujuan untuk menentukan kualitas dan kuantitas fasa *NBT* di dalam cuplikan. Dalam penelitian ini digunakan Difraktometer Sinar-X Philips, tipe PW1710, radiasi CuK, panjang gelombang,  $= 1,5406\text{ \AA}$ , *mode* = *continuous-scan*, *step size* =  $0,02^\circ$  dan *time per step* = 0,5 detik. Profil pola difraksi sinar-X dianalisis dengan menggunakan perangkat lunak *RIETAN (Rietveld Analysis)* [10]. Untuk mengetahui bentuk dan ukuran butir fasa *NBT*, maka dilakukan pengamatan struktur permukaan cuplikan dengan *Scanning Electron Microscope (SEM)*.

## HASIL DAN PEMBAHASAN

Pola difraksi sinar-X dari cuplikan *NBT* ditunjukkan pada Gambar 1. Tampak bahwa cuplikan *NBT* menampilkan puncak-puncak difraksi yang tajam, ini berarti bahwa pada cuplikan tersebut telah terjadi kristalisasi pembentukan fasa baru. Data difraksi ini kemudian dianalisis dengan metode *Rietveld*. Analisis dilakukan berdasarkan fakta bahwa *perovskite* barium titanat dapat mengkristal dalam empat bentuk struktur kristal, yakni kubik, tetragonal, ortorombik dan rombohedral [11]. Karena struktur kubik stabil pada suhu tinggi, maka pada suhu kamar, *NBT* kemungkinan berstruktur tetragonal, ortorombik dan rombohedral.

Struktur *perovskite* rombohedral dibatasi hanya untuk grup ruang R3m, R-3c, dan R3c [12]. Namun beberapa studi menunjukkan bahwa *NBT* dapat



Gambar 1. Pola difraksi sinar-X dari cuplikan *NBT*

mengkristal ke dalam simetri tetragonal dengan grup ruang I4/mcm, No. 140 [13] atau rombohedral dengan grup ruang R-3c, No. 167 [14]. Oleh karena itu model grup ruang R3m dalam penelitian ini dan pengujian struktur *NBT* dibatasi hanya untuk grup ruang R3c dan I4/mcm.

Langkah pertama, dibuat asumsi bahwa cuplikan *NBT* berfasa tunggal, struktur rombohedral, R3c, No.161-2, parameter kisi  $a = 5,3448 \text{ \AA}$ ,  $b = 5,3458 \text{ \AA}$ ,  $c = 13,4774 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = \beta = 90^\circ$ ,  $\gamma = 120^\circ$ . Selanjutnya cuplikan ini disebut *NBT1*. Langkah kedua, dibuat asumsi bahwa cuplikan *NBT* berfasa tunggal, struktur tetragonal, I4/mcm, No.140, parameter kisi  $a = b = 5,4769 \text{ \AA}$ ,  $c = 7,7539 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ . Selanjutnya cuplikan ini disebut *NBT2*. Langkah ketiga, diasumsikan bahwa cuplikan *NBT* terdiri dari dua fasa, yakni fasa tetragonal, I4/mcm, No.140, parameter kisi  $a = b = 5,4771 \text{ \AA}$ ,  $c = 7,7590 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$  dan fasa rombohedral, R3c, No.161-1, parameter kisi  $a = b = c = 3,8662 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ . Selanjutnya cuplikan ini disebut *NBT3*.

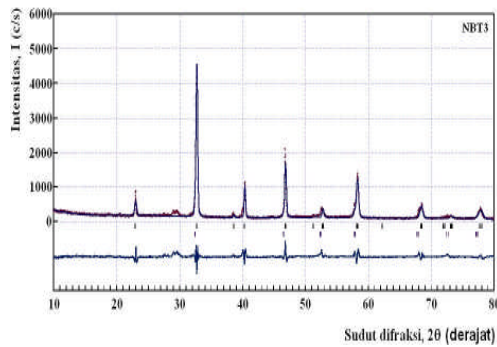
Langkah keempat, diduga bahwa cuplikan *NBT* terdiri dari dua fasa, yakni fasa tetragonal, I4/mcm, No.140, parameter kisi  $a = b = 5,4771 \text{ \AA}$ ,  $c = 7,7590 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$  dan fasa rombohedral, R3c, No.161-2, parameter kisi  $a = 5,3448 \text{ \AA}$ ,  $b = 5,3458 \text{ \AA}$ ,  $c = 13,4774 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = \beta = 90^\circ$ ,  $\gamma = 120^\circ$ . Selanjutnya cuplikan ini disebut *NBT4*. Langkah kelima, diduga bahwa cuplikan *NBT* terdiri dari dua fasa, yakni fasa tetragonal, I4/mcm, No.140, parameter kisi  $a = b = 5,4769 \text{ \AA}$ ,  $c = 7,7539 \text{ \AA}$ ,

$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$  dan fasa rombohedral, R-3c, No. 167-1, kisi  $a = b = c = 4,7549 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ . Selanjutnya cuplikan ini disebut *NBT5*. Langkah keenam, diasumsikan bahwa cuplikan *NBT* terdiri dari dua fasa, yakni fasa tetragonal, I4/mcm, No.140, parameter kisi  $a = b = 5,4769 \text{ \AA}$ ,  $c = 7,7539 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$  dan fasa rombohedral, R-3c, No. 167-2, kisi:  $a = b = 5,4905 \text{ \AA}$ ,  $c = 13,3077 \text{ \AA}$ ,  $\alpha = \beta = 90^\circ$ ,  $\gamma = 120^\circ$ . Selanjutnya cuplikan ini disebut *NBT6*. Iterasi pada kelima model struktur, yakni *NBT1*, *NBT2*, *NBT3*, *NBT5* dan *NBT6* berjalan normal. Namun ketika analisis *Rietveld* dilakukan pada *NBT4* didapat informasi bahwa koefisien matriks tidak definit positif (*NDP*). Ini berarti bahwa model struktur dan/atau data input tidak cocok.

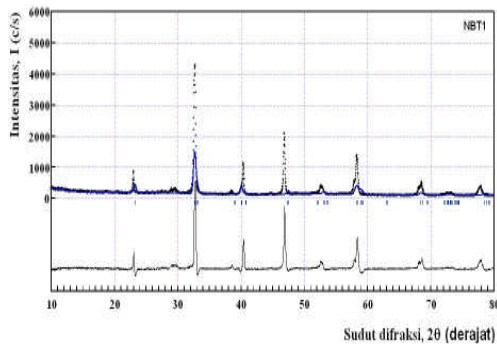
Hasil akhir *refinement* ditunjukkan pada Tabel 1. Tampak pada tabel tersebut bahwa model struktur *NBT3* dan *NBT6* memiliki harga faktor R terkecil. Dari dua model struktur itu, *NBT3* dipilih sebagai model paling cocok karena memiliki harga faktor R untuk fasa 2 sangat kecil. Pola difraksi hasil analisis untuk model struktur *NBT3* ditunjukkan pada Gambar 2. Profil hasil observasi ditunjukkan dengan data titik-titik dan profil hasil kalkulasi digambarkan dengan garis malar; garis-garis pendek vertikal menunjukkan posisi puncak-puncak *Bragg*. Di bawah garis-garis pendek vertikal adalah profil deviasi antara harga intensitas hasil observasi dan kalkulasi. Gambar 3 adalah pola difraksi sinar-X dari cuplikan *NBT* berdasarkan model struktur *NBT1*. Tampak pada Gambar 3 bahwa profil hasil observasi tidak berimpit dengan profil hasil kalkulasi, sehingga tampak begitu

**Tabel 1.** Data faktor R dari *NBT* untuk berbagai struktur kristal

No.	Cuplikan	Fasa 1			Fasa 2			
		R <sub>WP</sub>	R <sub>p</sub>	S	R <sub>I</sub>	R <sub>F</sub>	R <sub>I</sub>	R <sub>F</sub>
1.	<i>NBT1</i> , Grup ruang R3c, No.161-2, $a=b=5,41(2)\text{\AA}$ , $c=13,51(4)\text{\AA}$ , $\alpha=\beta=90^\circ$ , $\gamma=120^\circ$ .	40,70	30,19	5,589	-	-	60,13	36,40
2.	<i>NBT2</i> , Grup ruang I4/mcm, No. 140, $a=b=5,4995(9)\text{\AA}$ , $c=7,786(1)\text{\AA}$ , $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$ .	16,37	12,27	2,246	8,65	6,93	-	-
3.	<i>NBT3</i> , Fasa-1: Grup ruang I4/mcm, No. 140, $a=b=5,485(1)\text{\AA}$ , $c=7,772(2)\text{\AA}$ , $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$ , fraksi: 93,44 %. Fasa-2: Grup ruang R3c, No. 161-1, $a=b=c=3,908(1)\text{\AA}$ , $\alpha=\beta=\gamma=90,08(4)^\circ$ , fraksi: 6,56 %.	15,91	11,86	2,185	9,43	7,79	2,50	2,36
4.	<i>NBT4</i> , Fasa-1, Grup ruang I4/mcm, No. 140. Fasa-2, Grup ruang R3c, No. 161-2, $a=b=5,535\text{\AA}$ , $c=13,6330 \text{ \AA}$ , $\alpha=\beta=90^\circ$ , $\gamma=120^\circ$ .	NDP	NDP	NDP	NDP	NDP	NDP	NDP
5.	<i>NBT5</i> , Fasa-1, Grup ruang I4/mcm, No. 140, $a=b=5,482(1)\text{\AA}$ , $c=7,763(1)\text{\AA}$ , $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$ , fraksi: 99,96 %. Fasa-2, Grup ruang R-3c, No.167-1, $a=b=c=4,810(8)\text{\AA}$ , $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$ .	16,86	12,61	2,315	9,25	7,32	31,41	17,97
6.	<i>NBT6</i> , Fasa-1, Grup ruang I4/mcm, No. 140, $a=b=5,480(1)\text{\AA}$ , $c=7,756(1)\text{\AA}$ , $\alpha=\beta=\gamma=90^\circ$ , fraksi: 76,60 %. Fasa-2, Grup ruang R-3c, No. 167-2, $a=b=5,518(4)\text{\AA}$ , $c=13,400(2)\text{\AA}$ , $\alpha=\beta=90^\circ$ , $\gamma=120,00(6)^\circ$ , fraksi massa: 23,40 %.	15,35	11,62	2,107	8,82	7,53	8,07	6,04



Gambar 2. Pola difraksi sinar-X dari cuplikan NBT hasil analisis Rietveld berdasarkan model struktur NBT3



Gambar 3. Pola difraksi sinar-X dari cuplikan NBT berdasarkan model struktur NBT1 hasil analisis Rietveld

besar deviasi antara harga intensitas hasil observasi dan kalkulasi.

Pada Gambar 2, *fitting* antara profil observasi (data titik-titik) dan kalkulasi (garis malar) berimpit, sehingga profil deviasi intensitas observasi terhadap kalkulasi hampir menyerupai garis lurus. Ini berarti bahwa cuplikan NBT terdiri dari dua fasa, yakni fasa-1 adalah fasa tetragonal, I4/mcm, No.140, parameter kisi  $a = b = 5,485(1)\text{Å}$ ,  $c = 7,772(2)\text{Å}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ ,  $Q_T = 0,7(7)\text{Å}^2$  dengan fraksi masa 93,44%, dan volume sel satuan ( $V_T$ ) = 233,923  $\text{Å}^3$ ; sedangkan fasa 2 adalah fasa rombohedral, R3c, No. 161-1, parameter kisi  $a = b = c = 3,908(1)\text{Å}$ ,  $\alpha = \beta = \gamma = 90,08(4)^\circ$ , parameter suhu ( $Q_R$ ) = 1(5)  $\text{Å}^2$  dengan fraksi masa 6,56 % dan volume sel satuan ( $V_R$ ) = 59,696  $\text{Å}^3$ . Data koordinat fraksi atom ( $x_j, y_j, z_j$ ), faktor hunian ( $g_j$ ) dan parameter suhu ( $Q_j$ ) dalam sel satuan kristal NBT fasa tetragonal dan rombohedral berturut-turut ditunjukkan pada Tabel 2 dan Tabel 3.

Data-data pada Tabel 1 adalah hasil dari suatu proses iterasi langkah demi langkah sebagai berikut: Langkah pertama (iterasi-1), dilakukan penghalusan pada parameter cacahan latar belakang ( $b_0, b_1, \dots, b_n$ ) dan faktor skala (s). Langkah kedua (iterasi-2), dilakukan penghalusan pada parameter *FWHM* (U, V, W), dan faktor *Lorentzian* (X, Y). Langkah ketiga (iterasi-3), dilakukan penghalusan pada parameter kisi (a, b, c). Langkah keempat (iterasi-4), dihaluskan faktor skala (s) dan faktor orientasi *preferred* (p). Langkah kelima (iterasi-5), dihaluskan parameter faktor hunian ( $g_j$ ), fraksi koordinat

Tabel 2. Koordinat fraksi atom ( $x_j, y_j, z_j$ ) dan faktor hunian atom ( $g_j$ ) dalam sel satuan kristal NBT fasa tetragonal.

Atom	Faktor hunian atom, $g_j$	Koordinat fraksi atom		
		$x_j$	$y_j$	$z_j$
Bi	0,5	0,0	0,5	0,25
Na	0,5	0,0	0,5	0,25
Ti	1,0	0,0	0,0	0,0
O(1)	1,0	0,0	0,0	0,25
O(2)	1,0	0,19(1)	0,73(4)	0,0

Tabel 3. Koordinat fraksi atom ( $x_j, y_j, z_j$ ) dan faktor hunian atom ( $g_j$ ) dalam sel satuan kristal NBT fasa rombohedral.

Atom	Faktor hunian atom, $g_j$	Koordinat fraksi atom		
		$x_j$	$y_j$	$z_j$
Bi	0,5	0,0	0,0	0,25
Na	0,5	0,0	0,0	0,25
Ti	1,0	0,0	0,0	0,3(1)
O(1)	1,0	0,16	0,30	0,083

atom ( $x_j, y_j, z_j$ ) dan parameter suhu ( $Q_j$ ). Penghalusan faktor hunian atom Ti menyebabkan harganya lebih besar 1,0 sedangkan penghalusan pada koordinat fraksi oksigen, menyebabkan harganya menjadi abnormal atau program berhenti karena *NDP*. Langkah ke enam (iterasi-6) dan langkah-langkah selanjutnya, dilakukan penghalusan secara serentak bagi seluruh parameter.

Regangan kisi ditentukan melalui Persamaan 1:

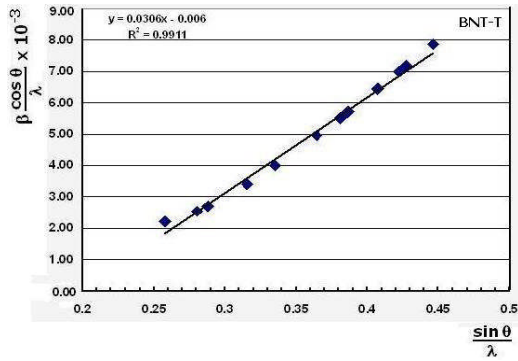
$$\beta \cdot \cos\theta/\lambda = 2\eta \cdot \sin\theta/\lambda + 0,9/D \quad \dots\dots\dots (1)$$

Dimana:

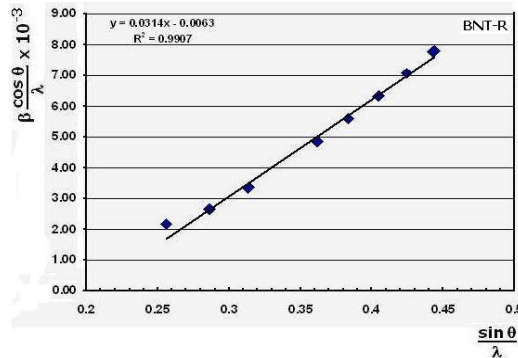
- $\beta$  = Lebar puncak difraksi pada setengah tinggi puncak maksimum
- D = Ukuran kristalit
- $\eta$  = Regangan kisi atau regangan mikro

Regangan mikro terjadi akibat adanya ketidaksempurnaan kisi kristal, antara lain berupa kekosongan dan dislokasi. Data sudut Bragg ( $2\theta$ ) dan lebar setengah tinggi puncak maksimum ( $\beta$ ) diperoleh dari hasil analisis *Rietveld*, masing-masing untuk fasa tetragonal dan rombohedral. Grafik hubungan antara  $\beta \cdot \cos\theta/\lambda$  (sumbu Y) terhadap  $\sin\theta/\lambda$  (sumbu X) adalah garis lurus, dimana kemiringan garis sama dengan 2 dan perpotongan garis dengan sumbu-y adalah 0,9/D.

Berdasarkan data  $2\theta$  dan  $\beta$ , dibuat grafik hubungan antara parameter  $\beta \cdot \cos\theta/\lambda$  terhadap  $\sin\theta/\lambda$ , hasilnya ditunjukkan pada Gambar 3 dan Gambar 4, berturut-turut untuk fasa tetragonal dan rombohedral. Selanjutnya dengan bantuan program *EXCEL* diplot persamaan garis  $Y_T = 0,0306 X - 0,006$  dan  $Y_R = 0,0314 X - 0,0063$ , berturut-turut untuk fasa tetragonal dan rombohedral. Regangan kisi diperoleh dari harga kemiringan persamaan garis  $\beta \cdot \cos\theta/\lambda = 2\eta \cdot \sin\theta/\lambda + 0,9/D$ , dan ukuran kristalit diperoleh dari perpotongan garis tersebut dengan sumbu



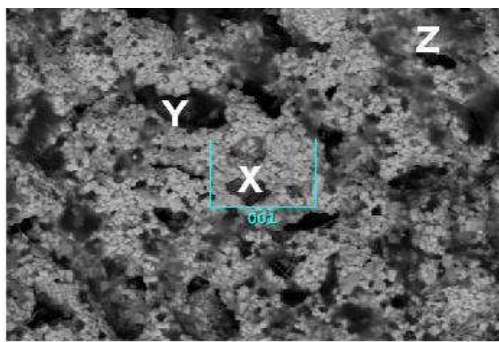
Gambar 3. Grafik hubungan antara parameter  $\beta \cdot \cos \theta / \lambda$  terhadap  $\sin \theta / \lambda$  dari NBT-T



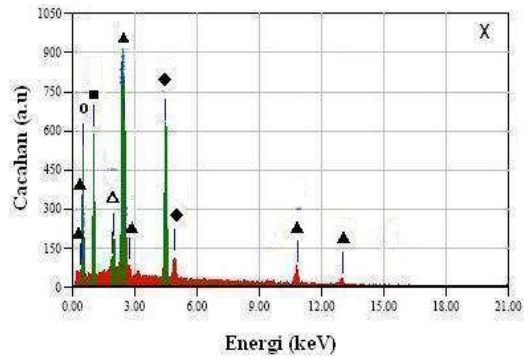
Gambar 4. Grafik hubungan antara parameter  $\beta \cdot \cos \theta / \lambda$  terhadap  $\sin \theta / \lambda$  dari NBT-R

Y. Jadi, regangan kisi fasa tetragonal ( $\eta_T$ ) = 0,015 dan regangan kisi fasa rombohedral ( $\eta_R$ ) = 0,016. Koefisien arah kedua persamaan garis bertanda positif. Ini berarti bahwa baik kristal tetragonal maupun rombohedral, keduanya mengalami regangan tarik. Ukuran kristalit fasa tetragonal ( $D_T$ ) = 150,00 Å dan ukuran kristalit fasa rombohedral ( $D_R$ ) = 142,86 Å. Jadi,  $D_T$  lebih besar dari  $D_R$  berarti laju penumbuhan kristalit fasa tetragonal lebih cepat dari laju penumbuhan kristalit fasa rombohedral. Oleh karena itu, fasa rombohedral mengalami regangan tarik sedikit lebih besar dari regangan tarik fasa tetragonal.

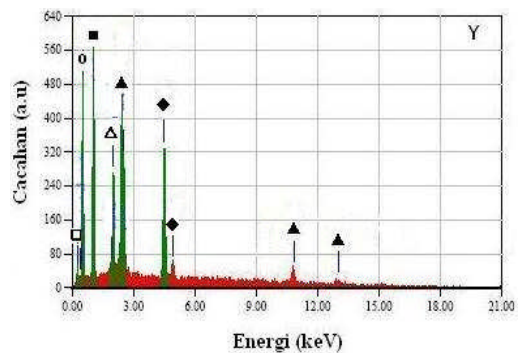
Foto SEM dari permukaan cuplikan NBT dengan perbesaran 1500 kali ditunjukkan pada Gambar 5, dimana lokasi dengan tanda X, Y, dan Z adalah titik tempat dilakukan analisis kuantitatif. Tampak pada Gambar 5 bahwa ukuran butir belum merata. Data intensitas hamburan sinar-X karakteristik terhadap



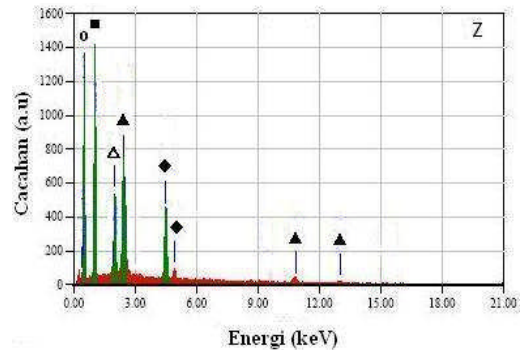
Gambar 5. Foto SEM dari permukaan cuplikan NBT dengan perbesaran 1500x



Gambar 6. Kurva EDS dari titik tempat X pada Gambar 5, o = O, ■ = Na, ◆ = Ti, Δ = P dan ▲ = Bi.



Gambar 7. Kurva EDS dari titik tempat Y pada Gambar 5, o = O, ■ = Na, ◆ = Ti, Δ = P, □ = C dan ▲ = Bi.



Gambar 8. Kurva EDS dari titik tempat Z pada Gambar 5, o = O, ■ = Na, ◆ = Ti, Δ = P, dan ▲ = Bi.

energi dispersif (EDS) di titik X, Y dan Z ditunjukkan berturut-turut pada Gambar 6, Gambar 7 dan Gambar 8. Dari ketiga gambar tersebut dapat disimpulkan bahwa pada titik tempat X terdapat unsur Bi, Na, Ti, O dan ada unsur pengotor P. Di titik tempat Y terdapat unsur Bi, Na, Ti, O dan unsur pengotor C dan P. Sedangkan di titik tempat Z Bi, Na, Ti, O dan ada unsur pengotor P. Dimana unsur Bi, Na, Ti, dan O adalah unsur penyusun senyawa NBT. Unsur pengotor dimungkinkan berasal dari prekursor pada proses pembuatan pelet.

## KESIMPULAN

Model struktur yang paling cocok bagi fasa  $(\text{Na}_{0,5}\text{Bi}_{0,5})\text{TiO}_3$  (NBT) hasil proses sintesis dengan

metode reaksi padat adalah model struktur berfasa tetragonal, grup ruang I4/mcm, No. 140, dan memungkinkan terbentuk fasa rombohedral, grup ruang R3c, No. 161-1 sebagai fasa kedua. Secara dominan cuplikan NBT berfasa tetragonal (> 90 %) dan fasa rombohedral (< 7 %). Keberadaan unsur penyusun senyawa NBT di dalam cuplikan dibuktikan dari kurva cacahan hamburan sinar-X karakteristik terhadap energi dispersif (EDS).

## UACAPAN TERIMAKASIH

Ucapan terimakasih disampaikan kepada Bapak Ir. Iman Kuntoro (Kepala PTBIN), Bapak Drs. Saeful Yusuf, MT. (Kepala BKAN), dan Bapak Drs. Aloma Karo Karo, M.Sc. (Ka Bag TU) yang telah membantu kelancaran jalannya kegiatan litbang ini. Litbang ini dibiayai oleh proyek Riset Insentif 2011.

## DAFTAR ACUAN

- [1]. E. AKSEL and J. L. JONES, *Sensors*, **10** (2010) 1935-1954
- [2]. K. KUMARI, K. PRASAD, K.L. YADAV and S. SEN, *Brazilian Journal of Physics*, **39**(2) (2009) 297-300
- [3]. G. A. SMOLENSKII, V.A. ISUPOV, A.I. AGRANOVSKAYA, N.N. Krainik, *Sov. Phys.-Solid State*, **2**(1961) 2651-2654
- [4]. C. S. TU, I. G. SINY and V. H. SCHMIDT, *Phys. Rev.*, **B 49** (1994)11550-11559
- [5]. J. SUCHANICZ and J. KWAPULINSKI, *Ferroelectrics*, **165** (1995) 249-253
- [6]. G. O. JONES and P. A. THOMAS, *Acta Crystallogr. B-Struc. Sci.*, **58** (2002) 168-178
- [7]. K. PRASAD, K. KUMARI, LILY, K. P. CHANDRA, K. L. YADAV and S. SEN, *Adv. Appl. Ceram.*, **106** (2007)241
- [8]. K. PRASAD, K. KUMARI, K. P. CHANDRA, K. L. YADAV and S. SEN, *Materials Science Poland*, **27**(2) (2009) 373-384
- [9]. M. AHART, M. SOMAYAZULU, R. E. COHEN, P. GANESH, P. DERA, H.K. MAO, R. J. HEMLEY, Y. REN, P. LIERMANN and Z. G. WU, *Nature*, **451** (2008)545-U542
- [10]. F. IZUMI, *A Rietveld-Refinement Program RIETAN-94 for Angle-Dispersive X-Ray and Neutron Powder Diffraction*, National Institute for Research in Inorganic Materials, Ibaraki, Japan, (1994) 1- 21
- [11]. Z. X. CHEN, Y. CHEN, Y. S. JIANG, *J. Phys. Chem.*, **B 106** (2002)9986
- [12]. H. D. MEGAW and C. N. W. DARLINGTON, *Acta Cryst.*, **A31** (1975) 161
- [13]. YUAN LI, SHAN QIN and FRIEDRICH SEIFERT, *J. Solid State Chem.*, **180** (2007) 824-833
- [14]. R. H. MITCHELL, A. R. CHAKHMOURADIAN, P.M. WOODWARD, *Phys. Chem. Miner.*, **27** (2000) 583-589
- [15]. BHARATI R. REHANI, P. B. JOSHI, KIRIT N. LAD and ARUN PRATAP, *Indian Journal of Pure & Applied Phys.*, **44** (2006) 157-161