

## **PENGARUH SUHU SINTER DAN ADITIF CoO TERHADAP KARAKTERISTIK KERAMIK SnO<sub>2</sub>-CoO**

**Dani Gustaman Syarif<sup>1)</sup>, Engkir Sukirman<sup>2)</sup>, Zumrotul M.<sup>2\*)</sup>**

<sup>1)</sup>Pusat Penelitian dan Pengembangan Teknik Nuklir, Badan Tenaga Nuklir Nasional

<sup>2\*)</sup>Jurusan Fisika UNPAD, Bandung, Indonesia.

### **ABSTRAK**

**PENGARUH SUHU SINTER DAN ADITIF CoO TERHADAP KARAKTERISTIK KERAMIK SnO<sub>2</sub>-CoO.** Pengaruh aditif CoO dan suhu sinter terhadap karakteristik keramik SnO<sub>2</sub>-CoO telah dipelajari melalui percobaan. Percobaan dilakukan dengan menambahkan CoO ke dalam SnO<sub>2</sub> dengan konsentrasi 1-5 persen mol dan menyinternya pada suhu 1300°C dan 1500°C selama 2 jam di dalam atmosfer udara. Hasil analisis memperlihatkan bahwa rapat masa SnO<sub>2</sub> naik secara drastis dengan penambahan CoO hingga 1 persen mol, namun penambahan selanjutnya tidak memberikan pengaruh yang signifikan terhadap rapat masa. Perbedaan rapat masa paduan SnO<sub>2</sub>-CoO karena perbedaan suhu sinter juga tidak terlihat. Tetapi pengaruh suhu penyinteran yang signifikan sangat nampak pada struktur mikro keramik SnO<sub>2</sub>-CoO. Butir-butir menjadi jauh lebih besar dengan peningkatan suhu dari 1300°C ke 1500°C. Data karakteristik E-J memperlihatkan bahwa penambahan CoO berpengaruh terhadap konduktifitas listrik. Konduktifitas listrik pelet keramik SnO<sub>2</sub>-CoO lebih besar dibanding dengan konduktifitas listrik SnO<sub>2</sub> murni, namun peningkatan suhu sinter menurunkan konduktifitas listrik.

**Kata Kunci:** aditif, keramik SnO<sub>2</sub>-CoO, sinterabilitas, struktur mikro, karakteristik E-J

### **ABSTRACT**

**EFFECT OF SINTERING TEMPERATURE AND CoO ADDITIVE ON CHARACTERISTIC OF SnO<sub>2</sub>-CoO CERAMIC.** Effect of sintering temperature and CoO additive on Characteristic of SnO<sub>2</sub>-CoO ceramic has been studied experimentally. The experiment was carried out by adding CoO into SnO<sub>2</sub> with concentration of 1-5 mole percent, forming pellets from the mixtures and sintering the pellets at 1300°C and 1500°C for 2 hour in air atmosphere. Analysis showed that density of SnO<sub>2</sub> pellets increased drastically with addition of CoO until 1 mole percent. However, the next addition of CoO did not have a significant effect on the increase of the density. Effect of sintering temperature on the density was also not shown. However, the significant effect of the temperature was clearly shown on the



microstructure of the SnO<sub>2</sub>-CoO ceramic. Grains of the ceramic became larger as the temperature increased from 1300°C to 1500°C. E-J characteristic showed that the addition of CoO affected electrical conductivity. The electrical conductivity of the SnO<sub>2</sub>-CoO ceramic pellets was larger than that of the pure SnO<sub>2</sub>, but the increase of the temperature decreased the electrical conductivity.

**Key words:** additive, SnO<sub>2</sub>-CoO ceramic, sinterability, microstructure.  
E-J characteristic

## PENDAHULUAN

Penelitian mengenai varistor yang berbasis ZnO telah banyak dilakukan [1-9], tetapi sebenarnya selain ZnO, SnO<sub>2</sub> juga dapat dijadikan bahan dasar varistor karena sifat listriknya yang mirip dengan ZnO. Penelitian mengenai varistor dengan bahan dasar SnO<sub>2</sub> telah dilakukan oleh beberapa peneliti menyusul penelitian varistor berbasis ZnO [10-15]. SnO<sub>2</sub> adalah bahan yang sukar disinter karena mempunyai sinterabilitas rendah. Oleh karena itu penambahan aditif mutlak diperlukan selain untuk menghasilkan kenon-linearitas yang tinggi juga untuk meningkatkan sinterabilitasnya. Secara teoritis diketahui terdapat keterkaitan antara sinterabilitas (yang diwakili oleh rapat masa sebagai indikator) dan sifat listrik SnO<sub>2</sub>. Beberapa oksida telah digunakan sebagai aditif di antaranya ZnO [10], Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> [10-14], CuO [11], Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [11], Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> [11,15], CoO [12-15] dan Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [14].

Meskipun penelitian mengenai SnO<sub>2</sub> yang didoping dengan CoO telah dilakukan [12-15], namun penyinterannya dilakukan pada suhu 1300°C ke bawah, padahal penyinteran pada suhu yang lebih tinggi diduga dapat menghasilkan unjuk kerja yang berbeda. Hal ini didasarkan atas teori bahwa sinterabilitas dan sifat listrik dipengaruhi oleh cacat-cacat yang terbentuk di dalam SnO<sub>2</sub>, sementara cacat-cacat tersebut akan lebih mudah terjadi pada suhu relatif lebih tinggi. Di samping itu data-data SnO<sub>2</sub> yang ditambah CoO yang disinter pada suhu lebih tinggi dari pada 1300°C perlu diketahui untuk mengoptimasi proses pembuatan varistor berbasis SnO<sub>2</sub>-CoO. Oleh karena itu secara khusus penelitian ini membahas pengaruh penambahan CoO



dan penyinteran pada suhu relatif tinggi (1500°C) terhadap sinterabilitas dan karakteristik listrik SnO<sub>2</sub>. Evaluasi yang sama dilakukan pula pada material SnO<sub>2</sub>-CoO yang disinter pada suhu 1300°C sebagai perbandingan.

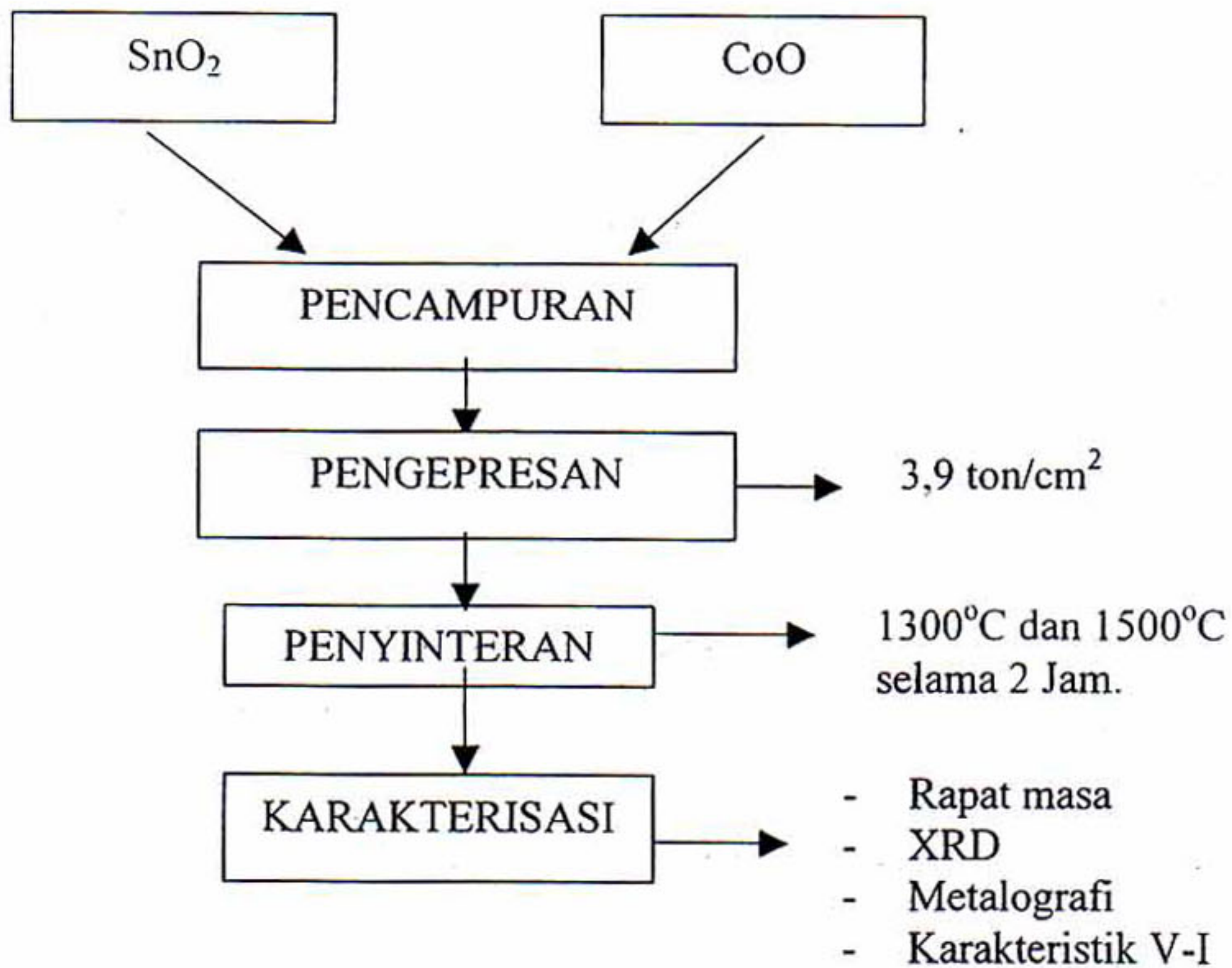
## TATA KERJA

Serbuk SnO<sub>2</sub> dan CoO dicampur dengan komposisi sesuai Tabel 1. Campuran kedua bahan seperti terlihat pada Tabel 1 diaduk di dalam media aseton selama 1 Jam. Setelah pengadukan serbuk campuran dikeringkan melalui pemanasan pada suhu 60°C selama 24 Jam. Serbuk campuran yang telah kering kemudian digerus dan diaduk di dalam mortar untuk menjamin homogenitas. Serbuk ini dipres dengan tekanan 3,9 ton/cm<sup>2</sup> untuk mendapatkan pelet mentah. Pelet mentah yang dihasilkan disinter pada suhu 1300°C dan 1500°C selama 2 Jam di dalam atmosfer udara. Pelet hasil sinter dianalisis menggunakan difraksi sinar-x. Sudut 2θ diambil dari 20-140° dan sinar-x yang digunakan berasal dari tabung tembaga yang menghasilkan spektrum karakteristik Cu Kα. Pelet sinter juga dianalisis secara metalografi menggunakan mikroskop optik dan elektron (SEM/EDAX). Penyiapan sampel untuk metalografi dilakukan dengan mengampelas pelet sinter secara berjenjang dengan ampelas no.400 hingga no. 1500, selanjutnya dilakukan pemolesan dengan bantuan pasta intan dan pengetsaan menggunakan metode etsa termal (*thermal etching*). Karakteristik E-J (Medan listrik-Rapat arus listrik) pelet ditentukan dengan melakukan pengukuran tegangan (V) pada berbagai arus (I). E diperoleh dengan membagi V dengan tebal pelet dan J diperoleh dengan membagi I dengan luas penampang pelet. Secara skematis langkah-langkah percobaan diperlihatkan pada Gambar 1.



Tabel 1. Komposisi campuran SnO<sub>2</sub> dan CoO dalam % mol

No.	SnO <sub>2</sub>	CoO
1.	100	0
2.	99	1
3.	98	2
4.	97	3
5.	96	4
6.	95	5



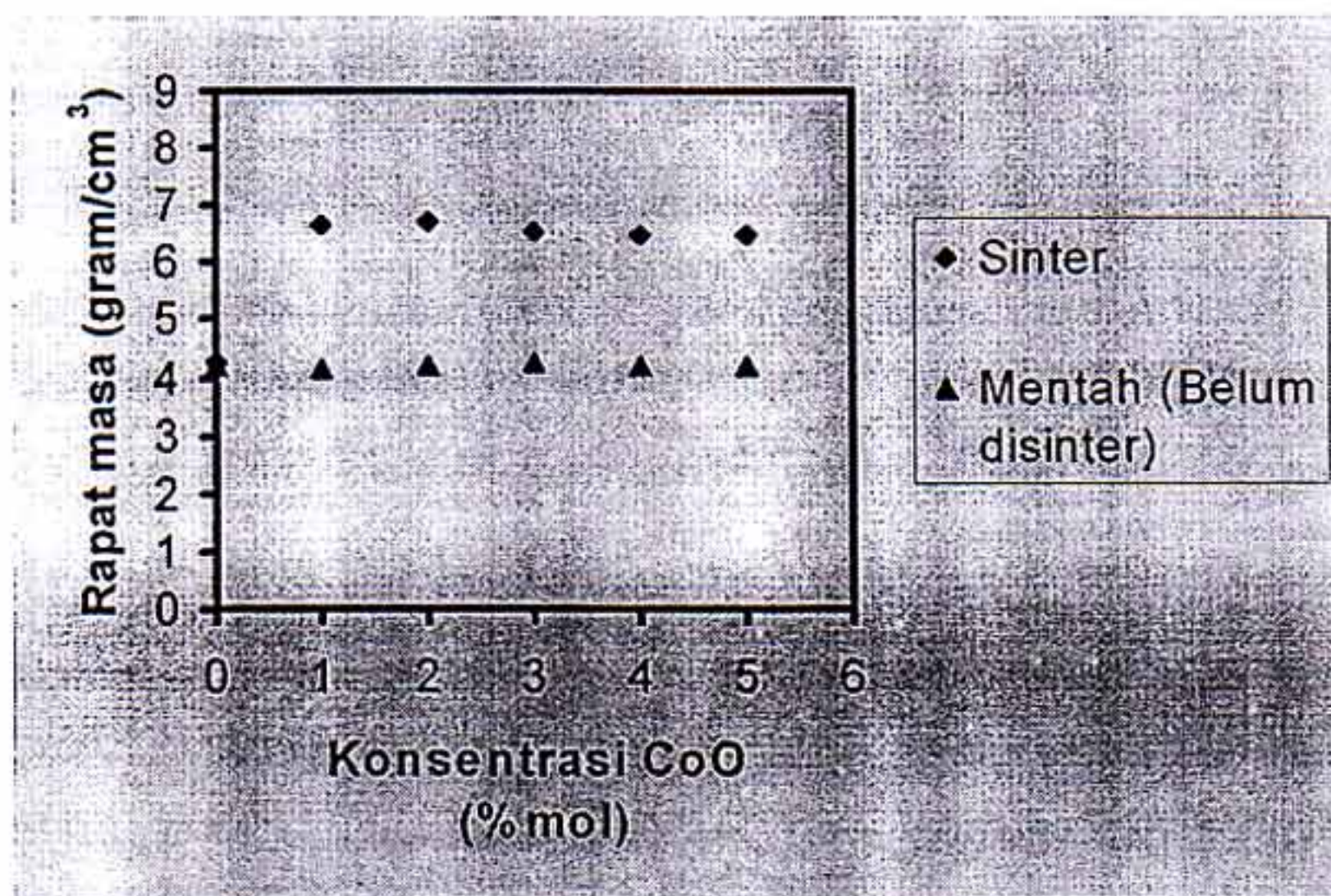
Gambar 1. Diagram alir langkah percobaan.



## PEMBAHASAN

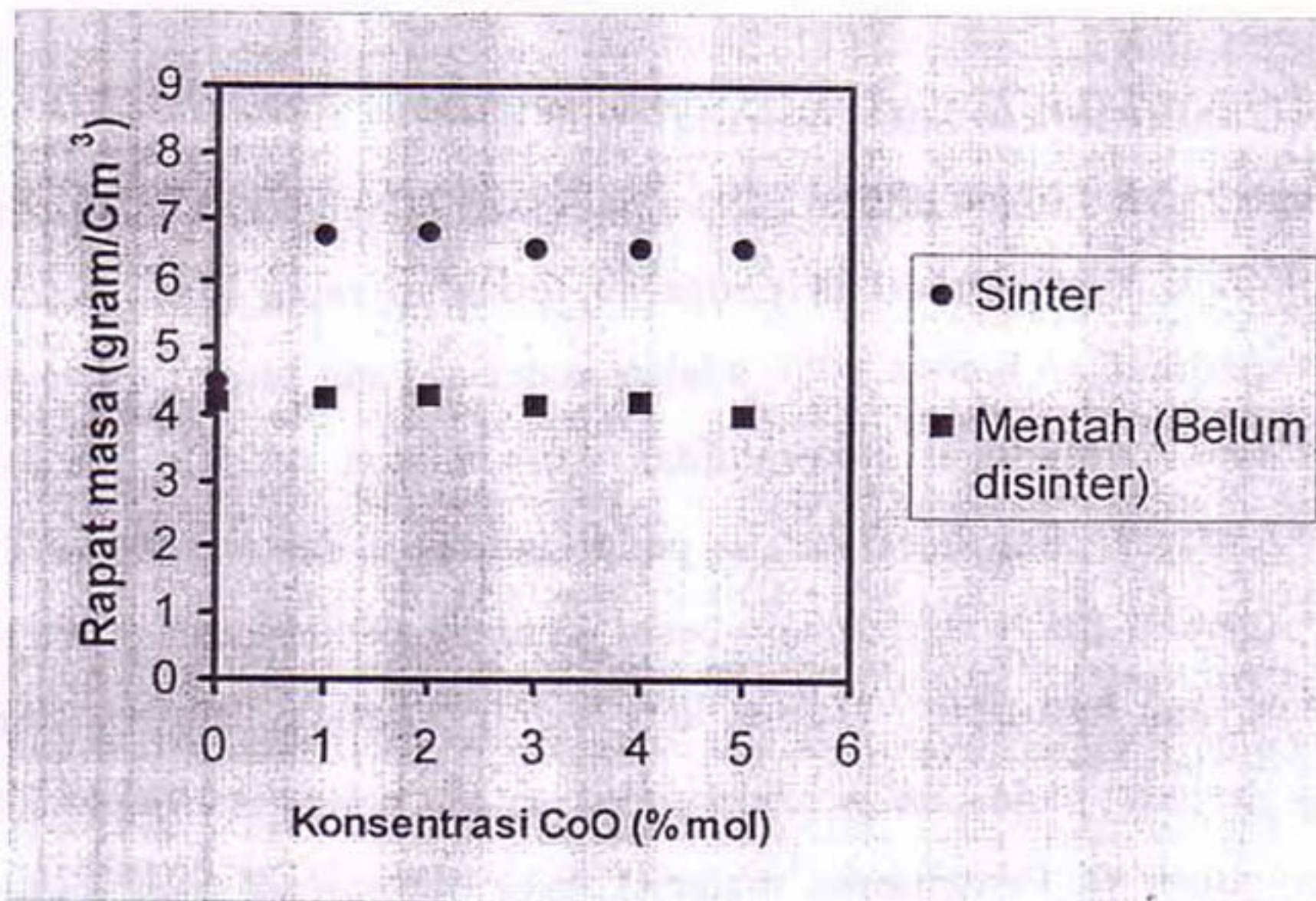
### Rapat masa dan struktur mikro SnO<sub>2</sub> murni (tanpa aditif)

Dari Gambar 2 dan 3 dapat dilihat bahwa pengaruh penyinteran baik pada suhu 1300°C maupun 1500°C tidak terlalu berpengaruh terhadap rapat masa pelet SnO<sub>2</sub> murni. Hal ini memperlihatkan bahwa SnO<sub>2</sub> adalah material yang sangat sukar disinter atau dengan kata lain mempunyai sinterabilitas yang sangat rendah. Akan tetapi struktur mikro SnO<sub>2</sub> murni yang diperlihatkan pada Gambar 3 dan 4 memperlihatkan bahwa butir-butir (*grain*) SnO<sub>2</sub> bertambah besar dengan peningkatan suhu sinter, dengan pertambahan yang signifikan. Data di atas memperlihatkan bahwa mekanisme penyinteran yang terjadi pada SnO<sub>2</sub> didominasi oleh penguapan-pengembunan (*Evaporation-Condensation*). Penyinteran material yang didominasi oleh mekanisme penguapan-pengembunan ditandai oleh pertumbuhan butir dan pori yang dominan disertai pemadatan (*densification*) yang sangat minim [10]. Fenomena ini dapat dilihat dengan jelas pada Gambar 4.

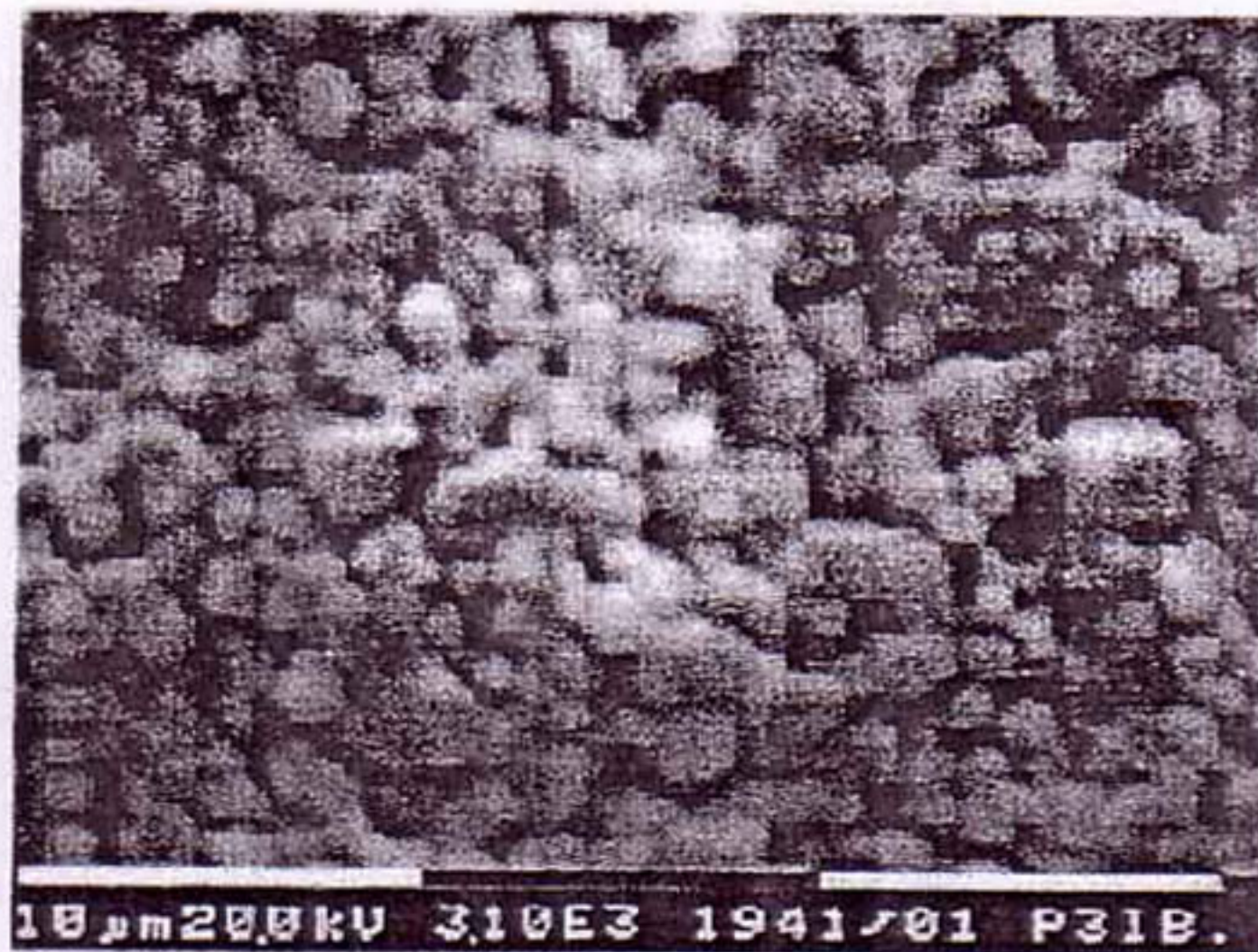


Gambar 2. Rapat masa pelet SnO<sub>2</sub>-CoO mentah dan sinter 1300°C/2Jam, pada berbagai konsentrasi CoO.



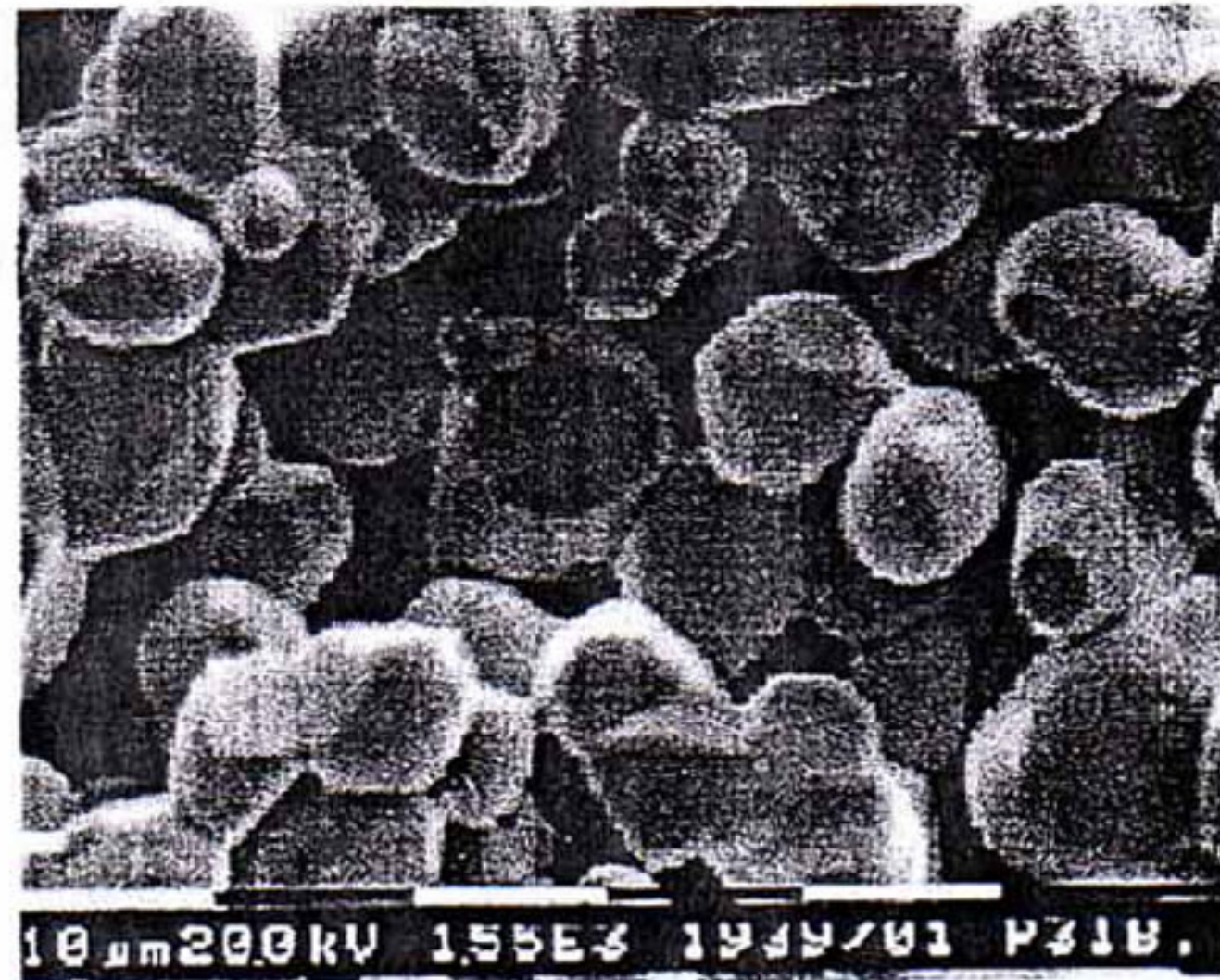


Gambar 3. Rapat masa pelet SnO<sub>2</sub>-CoO mentah dan sinter 1500°C/2Jam, pada berbagai konsentrasi CoO.



A





B

Gambar 4. Struktur mikro pelet SnO<sub>2</sub> murni (Dipotret dengan SEM mode SE ).  
Disinter pada suhu, A. 1300°C/2Jam dan B. 1500°C/2jam.

#### Rapat masa dan struktur mikro SnO<sub>2</sub>-CoO

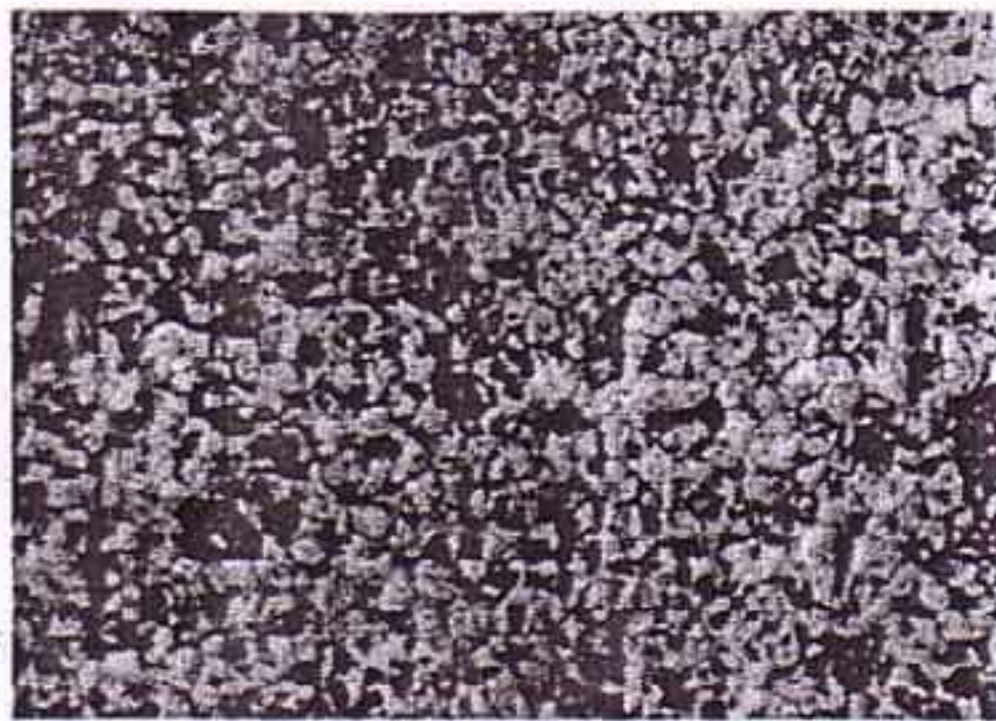
Secara teoritis rapat masa pelet mentah SnO<sub>2</sub>-CoO seharusnya meningkat dengan peningkatan konsentrasi CoO, namun data Gambar 2 dan 3 memperlihatkan bahwa kecenderungan tersebut tidak terjadi. Penambahan CoO kemungkinan diikuti dengan pembentukan pori di dalam pelet mentah sehingga rapat masa pelet mentah relatif tidak berubah dengan penambahan konsentrasi CoO.

Seperti terlihat pada Gambar 2 dan 3 pengaruh penyinteran terhadap rapat masa terlihat signifikan pada sampel SnO<sub>2</sub> yang ditambah CoO (SnO<sub>2</sub>-CoO). Di sini terlihat peran CoO sebagai aditif yang dapat mempertinggi sinterabilitas SnO<sub>2</sub>. Dari data ini tampak jelas bahwa SnO<sub>2</sub> murni mempunyai sinterabilitas yang rendah. Pengaruh penambahan CoO terlihat signifikan hingga konsentrasi CoO sekitar 2 % mol. Di atas konsentrasi ini rapat masa pelet sinter cenderung konstan. Tampak bahwa rapat masa pelet sinter dipengaruhi oleh rapat masa pelet mentahnya. Sementara itu pengaruh perubahan suhu dari 1300°C ke 1500°C terhadap perubahan rapat masa

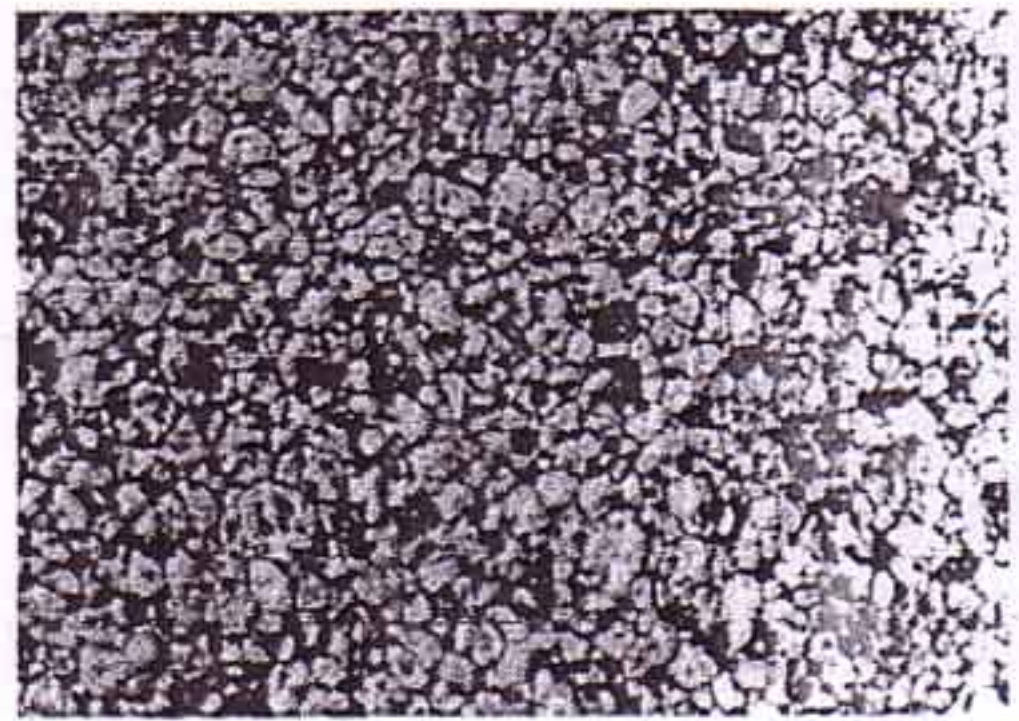


$\text{SnO}_2\text{-CoO}$  tidak terdeteksi (sangat kecil). Tetapi kenaikan suhu sinter telah mengubah struktur mikro pelet  $\text{SnO}_2\text{-CoO}$  secara signifikan. Seperti diperlihatkan oleh Gambar 5 dan 6, ukuran butir pelet  $\text{SnO}_2\text{-CoO}$  yang disinter pada suhu  $1500^\circ\text{C}$  jauh lebih besar dari pada ukuran butir pelet  $\text{SnO}_2\text{-CoO}$  yang disinter pada suhu  $1300^\circ\text{C}$ . Sebagai contoh, sampel dengan aditif  $\text{CoO}$  1 % mol memiliki ukuran butir rata-rata  $3\ \mu\text{m}$  ketika disinter pada suhu  $1300^\circ\text{C}$ , dan memiliki ukuran butir rata-rata  $16\ \mu\text{m}$  ketika disinter pada suhu  $1500^\circ\text{C}$ . Peningkatan sinterabilitas  $\text{SnO}_2$  dengan penambahan  $\text{CoO}$  terjadi karena kehadiran  $\text{CoO}$  telah meningkatkan difusi "bulk" dan batas butir (*bulk or grain boundary diffusion*). Seperti diketahui bahwa pemadatan terjadi melalui mekanisme difusi bulk dan batas butir, bukan mekanisme penguapan-pengembunan [10]. Pengaruh kenaikan suhu dari  $1300^\circ\text{C}$  ke  $1500^\circ\text{C}$  yang lebih signifikan terhadap perubahan ukuran butir dari pada terhadap rapat masa, memperlihatkan bahwa mekanisme penguapan-pengembunan masih dominan di dalam pelet  $\text{SnO}_2\text{-CoO}$ . Tidak membesarnya rapat masa pelet  $\text{SnO}_2\text{-CoO}$  sinter (suhu sinter  $1300^\circ\text{C}$  dan  $1500^\circ\text{C}$ ) kemungkinan berkaitan erat dengan batas kelarutan  $\text{CoO}$  di dalam  $\text{SnO}_2$ . Gejala yang sama dijumpai pula pada struktur mikro pelet  $\text{SnO}_2\text{-CoO}$  sinter. Seperti tampak pada Gambar 5 dan 6, ukuran butir relatif tidak berubah lagi ketika konsentrasi  $\text{CoO}$  melebihi 3 %. Mengenai batas kelarutan  $\text{CoO}$  di dalam  $\text{SnO}_2$  akan dibahas pada bagian difraksi sinar-x dan analisis SEM.

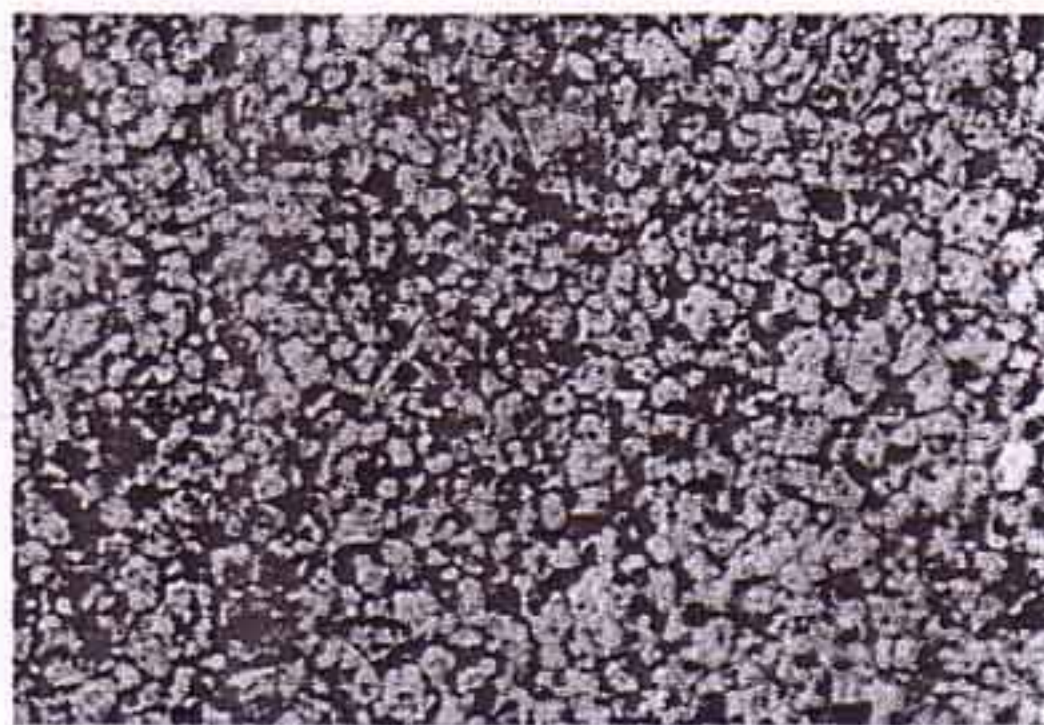




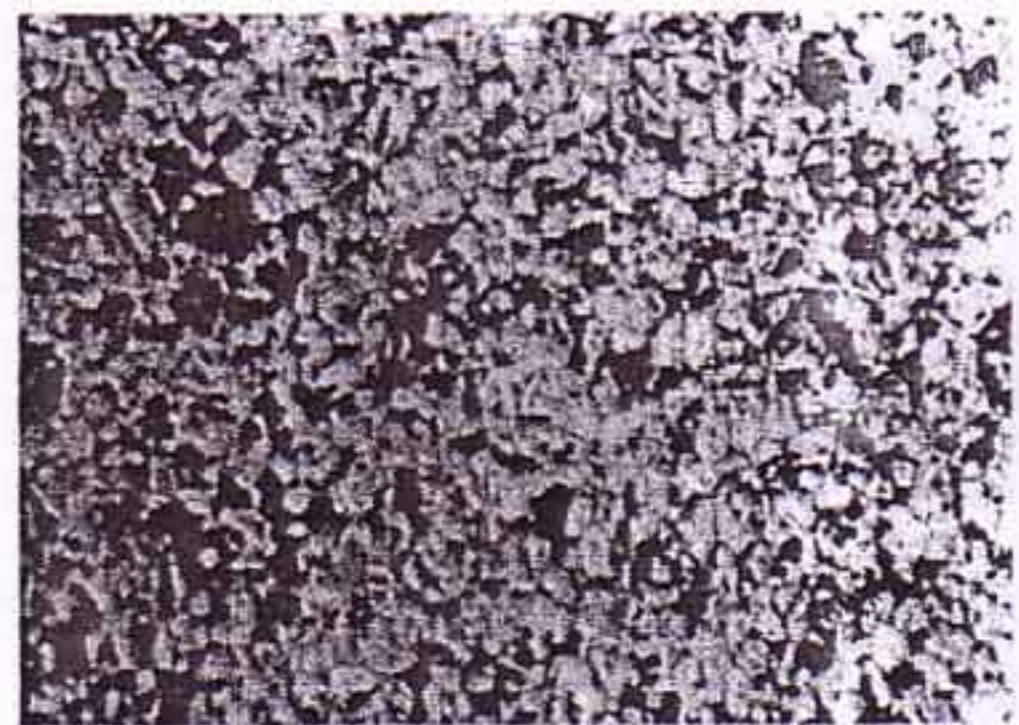
A ( 1 % mol CoO )



B ( 2 % mol CoO )



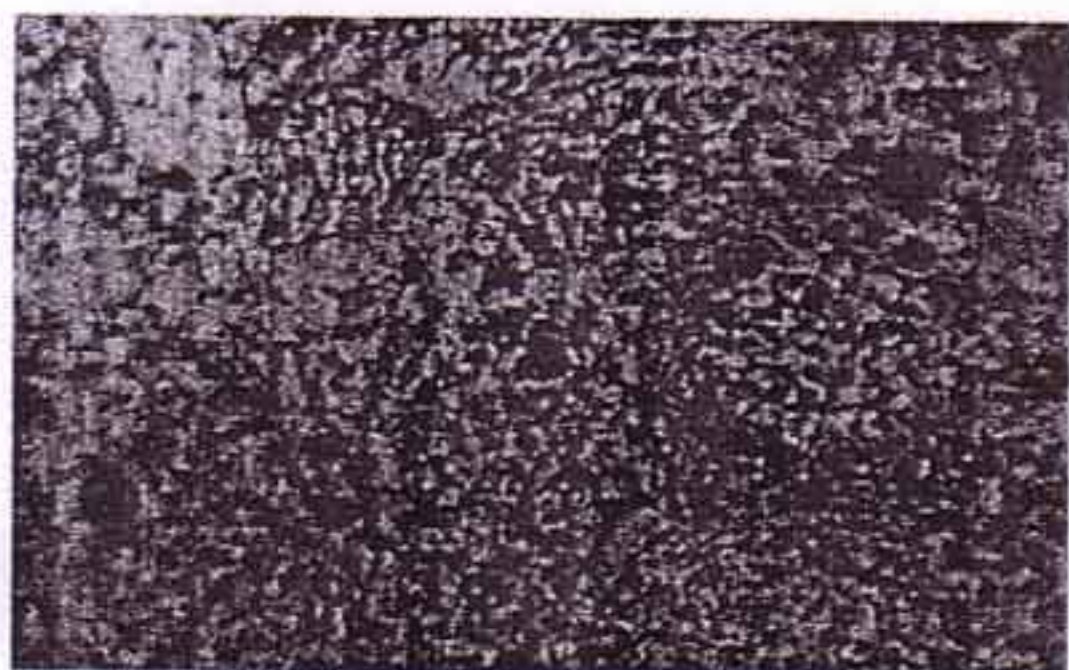
C ( 3 % mol CoO )



D ( 5 % mol CoO )

Gambar 5. Struktur mikro pelet SnO<sub>2</sub>-CoO disinter suhu 1300°C/2 Jam dipotret dengan mikroskop optik ( — 8 μm).





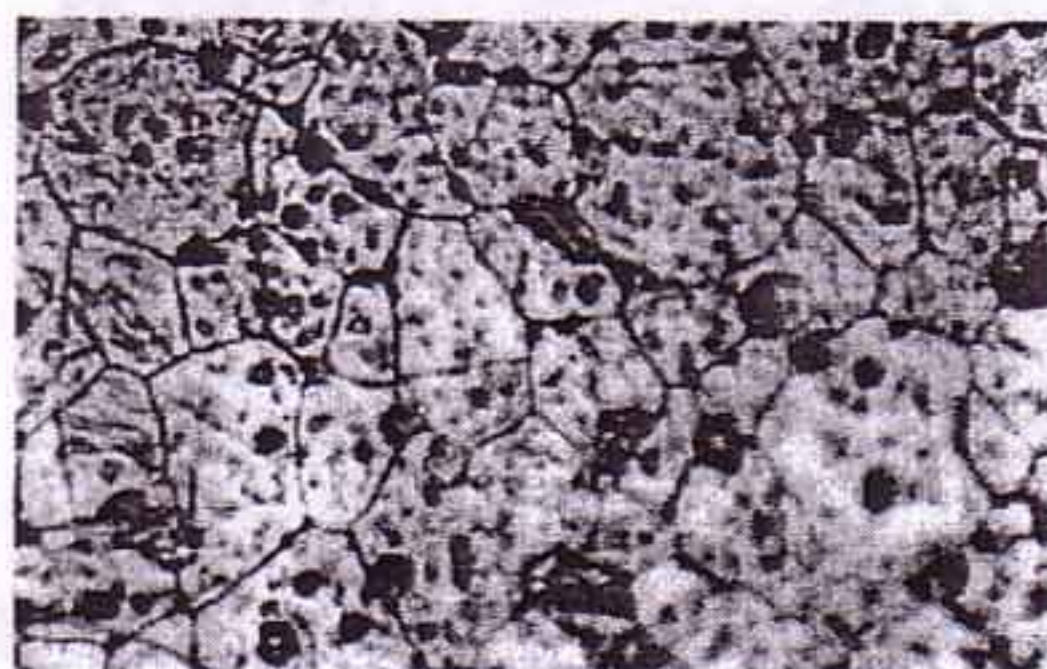
**A ( 1 % mol CoO )**



**B ( 2 % mol CoO )**



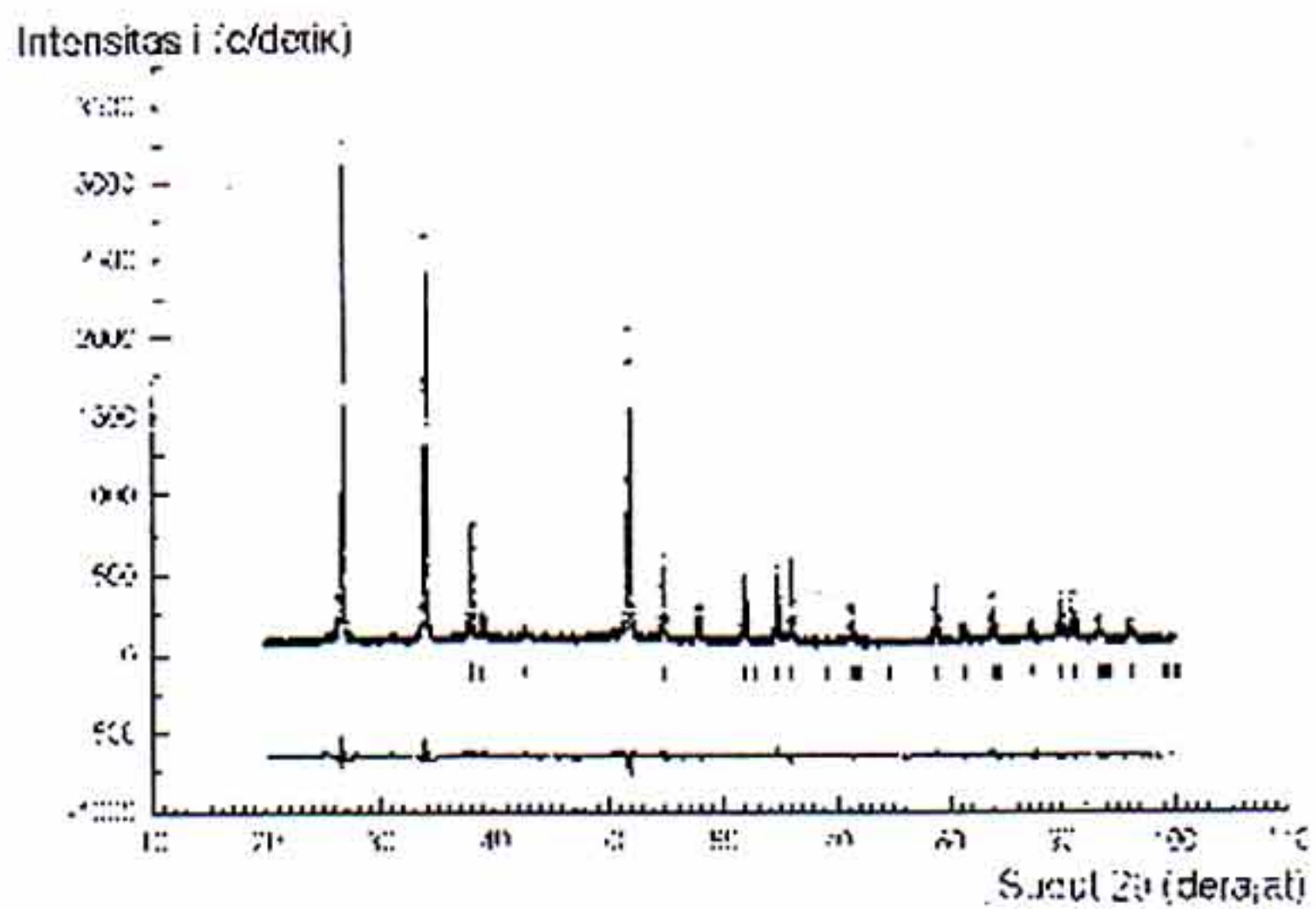
**C ( 3 % mol CoO )**



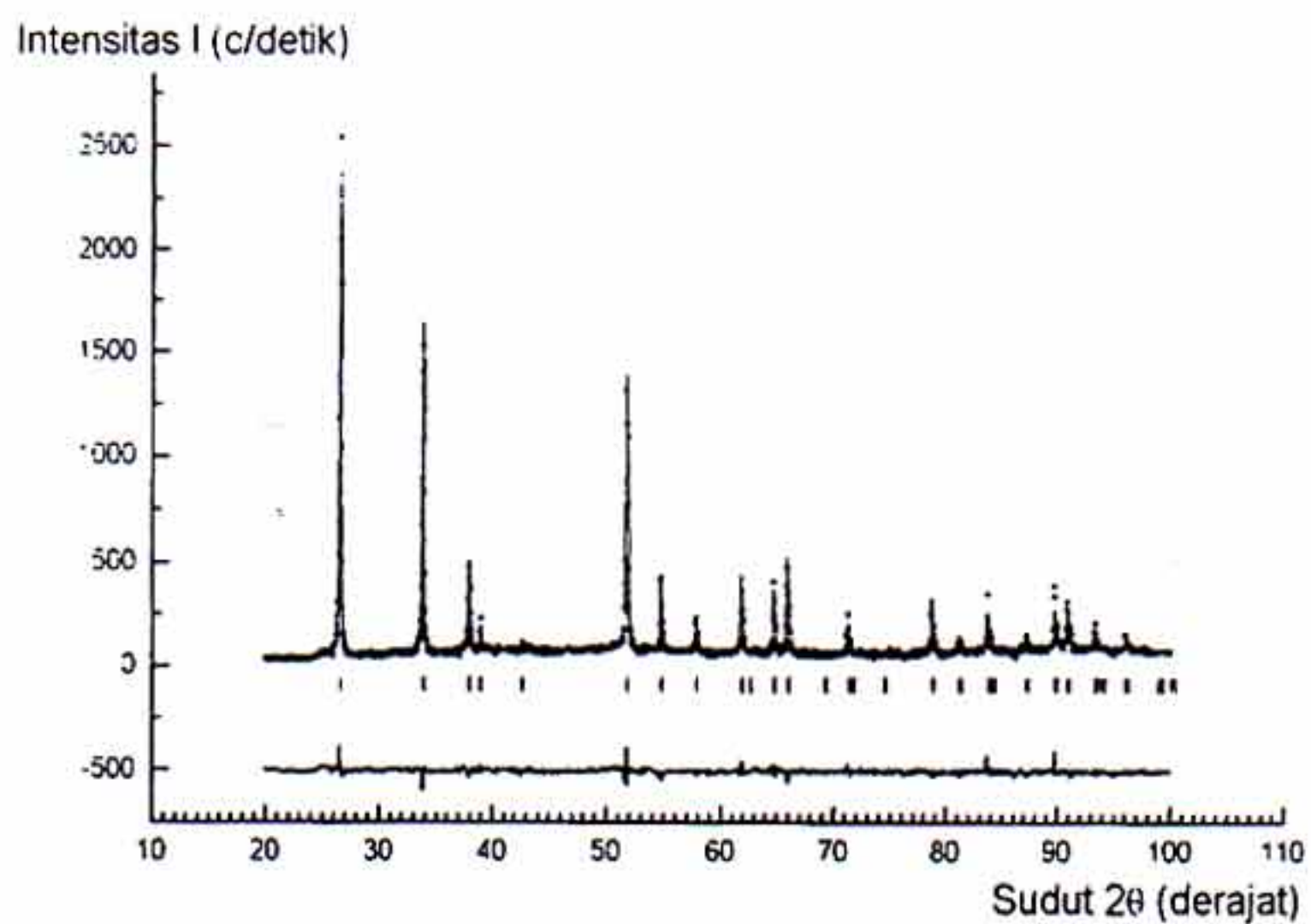
**D ( 5 % mol CoO )**

Gambar 6. Struktur mikro pelet  $\text{SnO}_2\text{-CoO}$  disinter suhu  $1500^\circ\text{C}/2$  Jam dipotret dengan mikroskop optik ( — 8  $\mu\text{m}$ ).





A



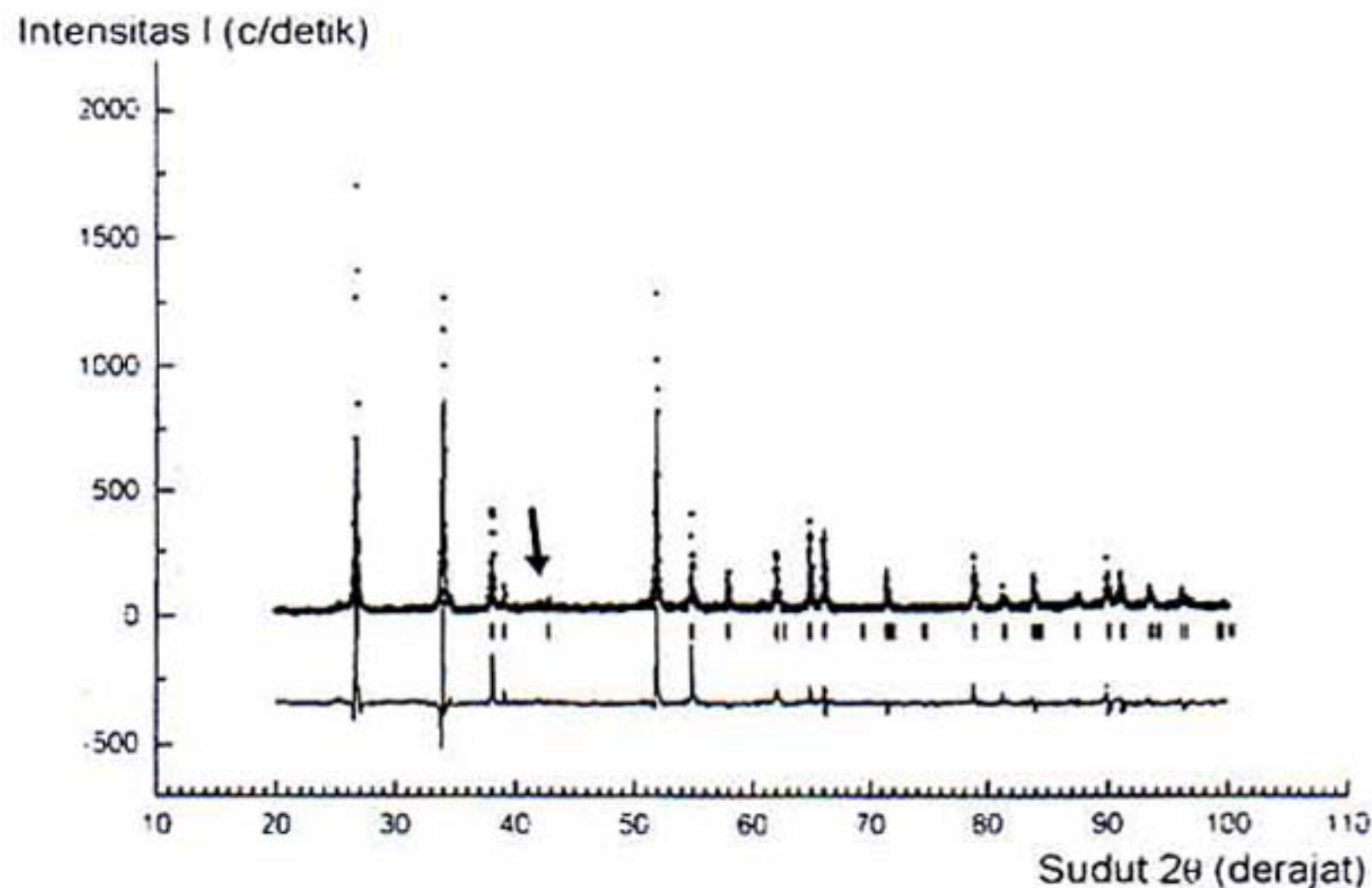
B

Gambar 7. Pola difraksi sinar-x SnO<sub>2</sub> disinter 1300°C/2J.  
A. Murni, B. Ditambah 1 % mol CoO.



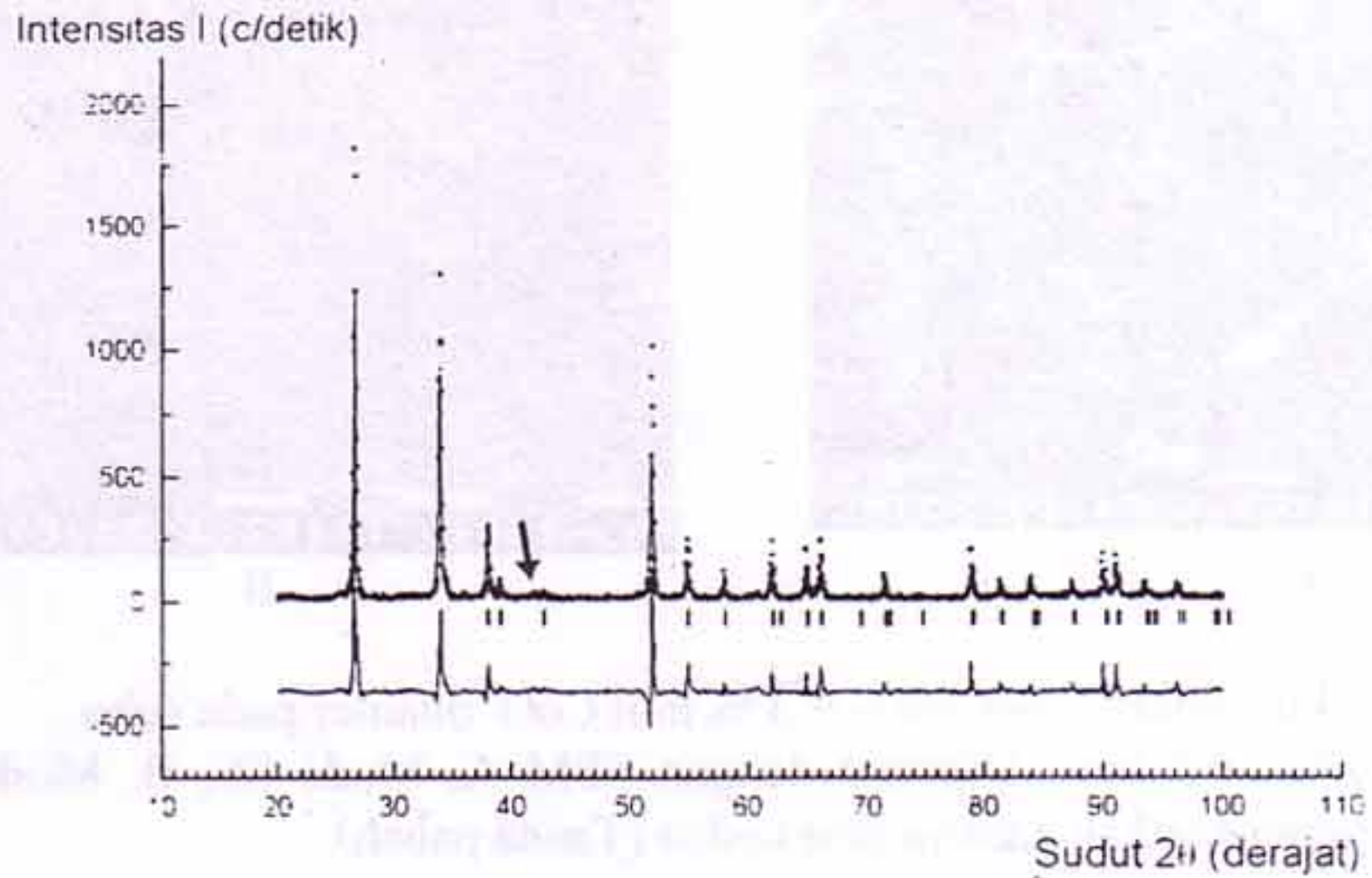
## Analisis difraksi sinar-x dan SEM

Pola difraksi sinar-x  $\text{SnO}_2$  murni dan ditambah 1 % mol  $\text{CoO}$  diperlihatkan pada Gambar 7. Sementara pola difraksi sinar-x pelet  $\text{SnO}_2$  yang ditambah 3 % mol  $\text{CoO}$  diperlihatkan pada Gambar 8. Gambar 7 mengindikasikan bahwa 1 % mol  $\text{CoO}$  larut padat di dalam  $\text{SnO}_2$ . Larut padatnya  $\text{CoO}$  di dalam  $\text{SnO}_2$  dimungkinkan mengingat besar jari-jari ion  $\text{Co}^{2+}$  (0,074nm) [14] mendekati besar jari-jari ion  $\text{Sn}^{4+}$  (0,071nm)[14]. Sementara Gambar 8 mengindikasikan bahwa sebagian dari 3 % mol  $\text{CoO}$  tidak larut padat di dalam  $\text{SnO}_2$  yang ditandai dengan munculnya puncak  $\text{CoO}$  pada harga  $2\theta$  sekitar  $42,5^\circ$  (Ditandai dengan tanda panah). Hal ini diperkuat oleh data struktur mikro pada Gambar 9 dan 10 yang memperlihatkan pula kehadiran fase kedua (Tanda panah). Berdasarkan data rapat masa, struktur mikro dan difraksi sinar-x diperkirakan batas kelarutan  $\text{CoO}$  di dalam  $\text{SnO}_2$  adalah di antara 1 dan 3 % mol. Dari data ini tampak bahwa penambahan  $\text{CoO}$  ke dalam  $\text{SnO}_2$  dapat dilakukan dengan efektif jika konsentrasi  $\text{CoO}$  kurang dari 3 % mol.



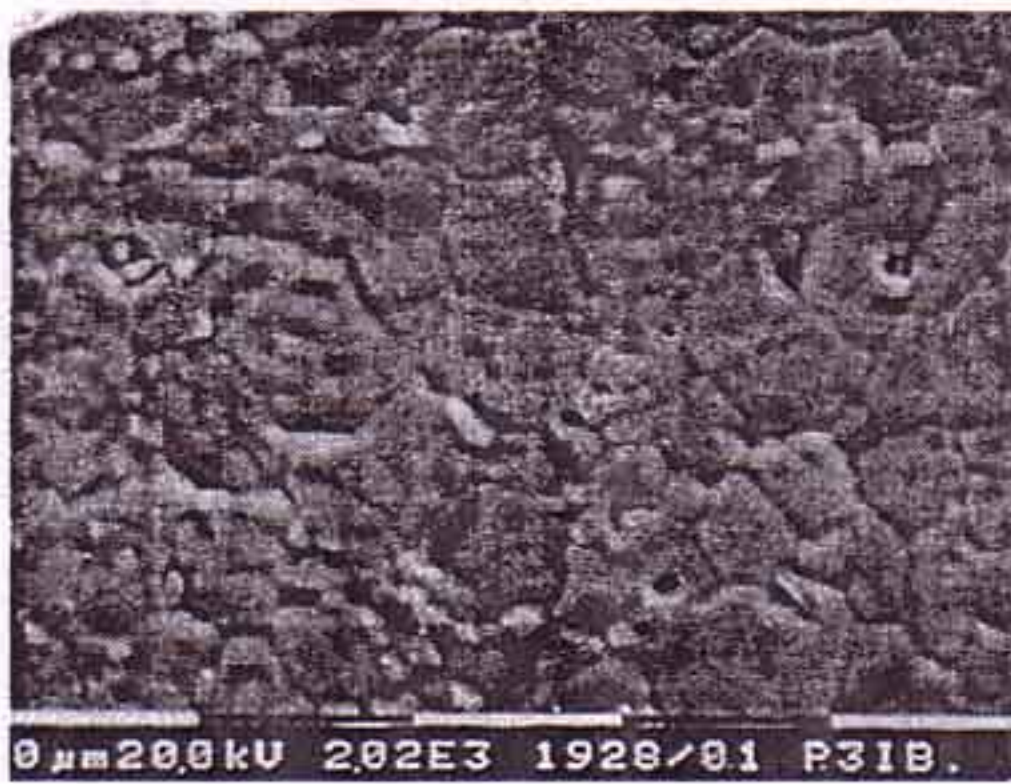
A



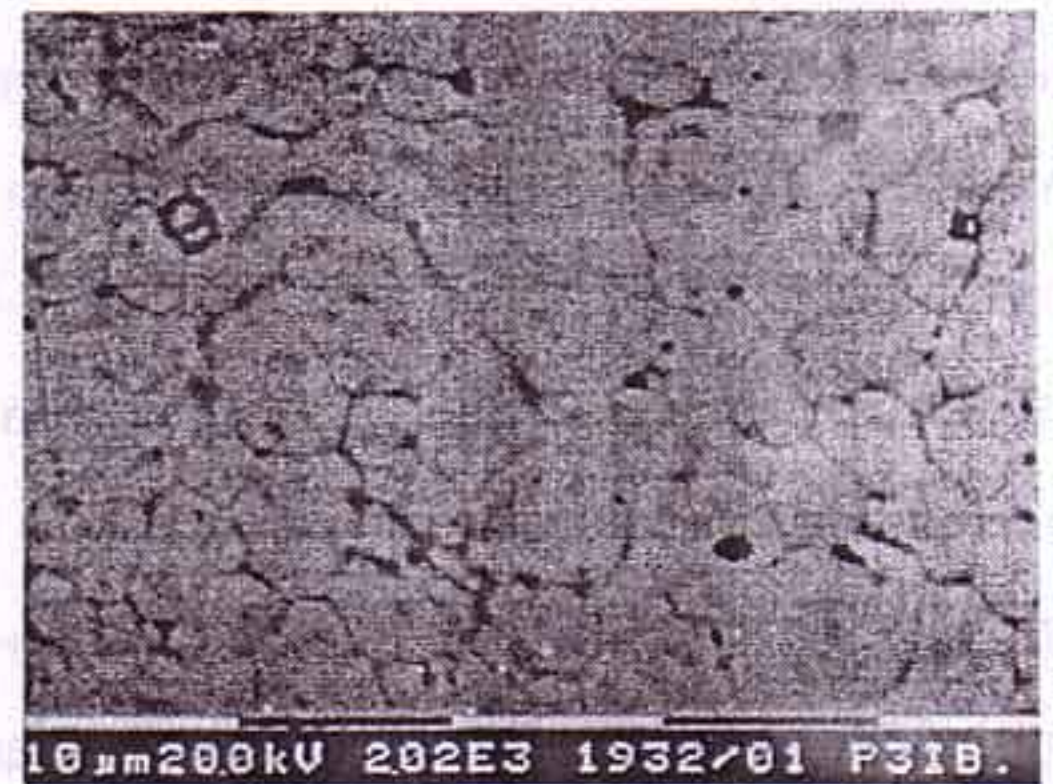


B

Gambar 8. Pola difraksi sinar-x SnO<sub>2</sub>+3 % mol CoO , tanda panah adalah puncak CoO. A. Disinter 1300°C/2Jam, B. Disinter 1500°C/2Jam.



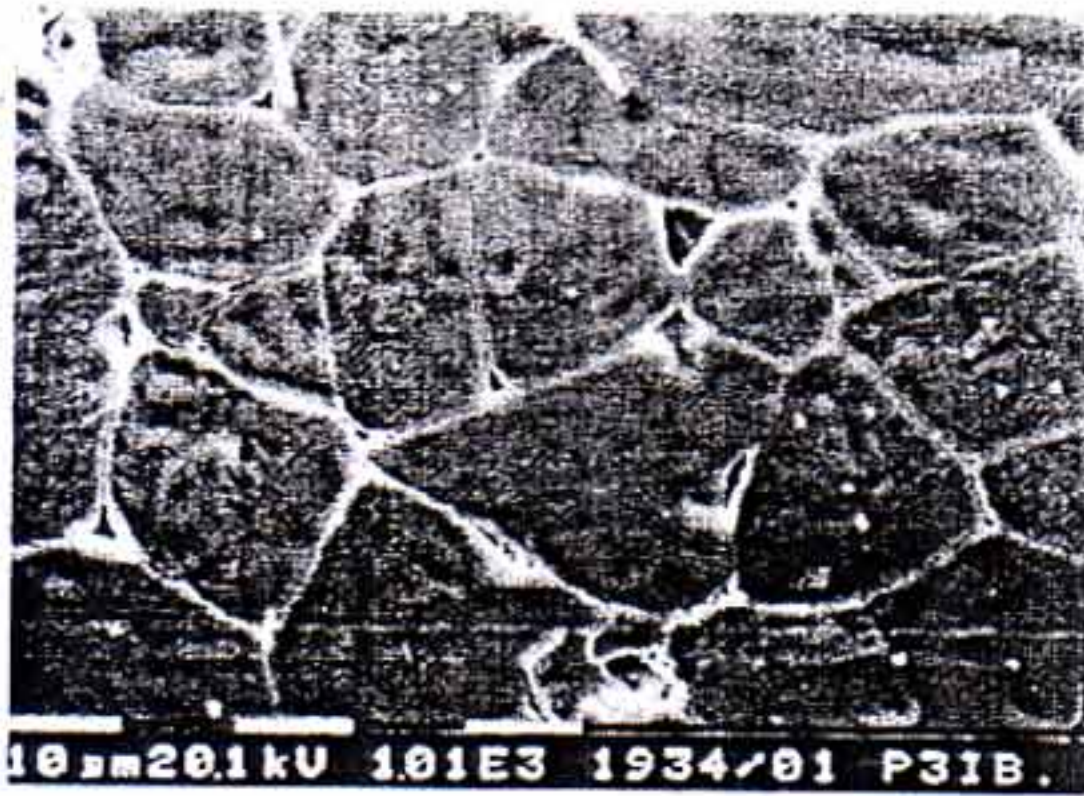
A



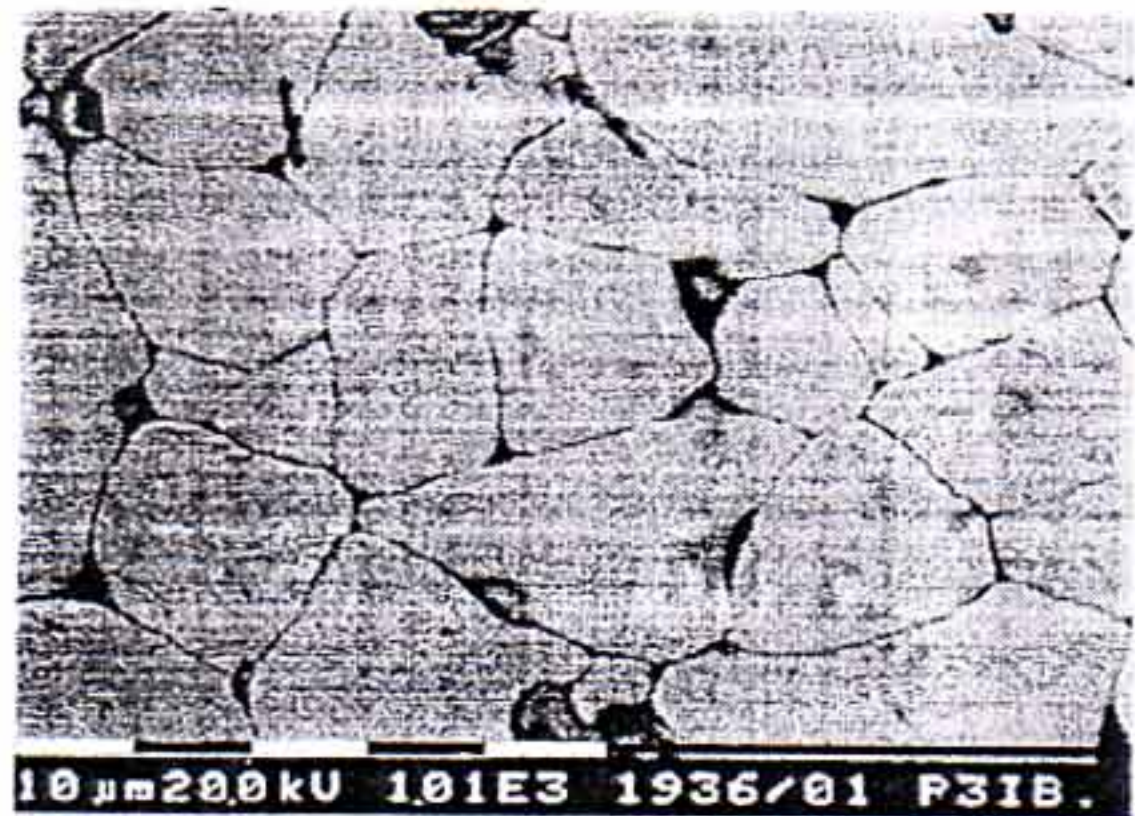
B

Gambar 9. Struktur mikro pelet SnO<sub>2</sub> + 3 % mol CoO disinter pada 1300°C/2 Jam (Dipotret dengan SEM A. Mode SE, B. Mode BSE ). Memperlihatkan adanya fase kedua (Tanda panah).





A



B

Gambar 10. Struktur mikro pelet  $\text{SnO}_2 + 3\% \text{ mol CoO}$  disinter pada suhu  $1500^\circ\text{C} / 2 \text{ Jam}$  (Dipotret dengan SEM A. Mode SE, B. Mode BSE ). Memperlihatkan adanya fase kedua (Tanda panah).

#### Karakteristik listrik pelet $\text{SnO}_2\text{-CoO}$ sinter

Gambar 11 dan 12 memperlihatkan karakteristik listrik (E-J)  $\text{SnO}_2\text{-CoO}$  yang disinter pada suhu  $1300^\circ\text{C}$  dan  $1500^\circ\text{C}$ . Kedua gambar tersebut memperlihatkan bahwa penambahan  $\text{CoO}$  meningkatkan konduktifitas listrik  $\text{SnO}_2$  ditandai dengan pergeseran letak kurva ke bawah, lebih rendah dari pada posisi kurva  $\text{SnO}_2$  murni. Gambar 11 dan 12 juga memperlihatkan bahwa suhu penyinteran  $1500^\circ\text{C}$  telah menurunkan konduktifitas listrik pelet  $\text{SnO}_2\text{-CoO}$ . Hal ini diperlihatkan oleh perbedaan posisi kurva-kurva Gambar 12 yang berada di daerah J kecil dan posisi kurva-kurva pada Gambar 11 yang berada di daerah J lebih besar. Secara lebih jelas perbedaan antara konduktifitas listrik untuk pelet  $\text{SnO}_2\text{-CoO}$  yang disinter pada suhu  $1300^\circ\text{C}$  dan yang disinter pada suhu  $1500^\circ\text{C}$  diperlihatkan pada Gambar 13. Kehadiran  $\text{CoO}$  secara teoritis dapat meningkatkan konduktifitas listrik karena kehadirannya dapat menghasilkan kekosongan oksigen yang kemudian meningkatkan pembawa muatan (elektron).

Untuk mengetahui unjuk kerja varistor biasanya digunakan persamaan (1) untuk menghitung faktor kenon-linearitas ( $\alpha$ ) pada J antara 0,1 dan  $10 \text{ mA/cm}^2$  [1-6].

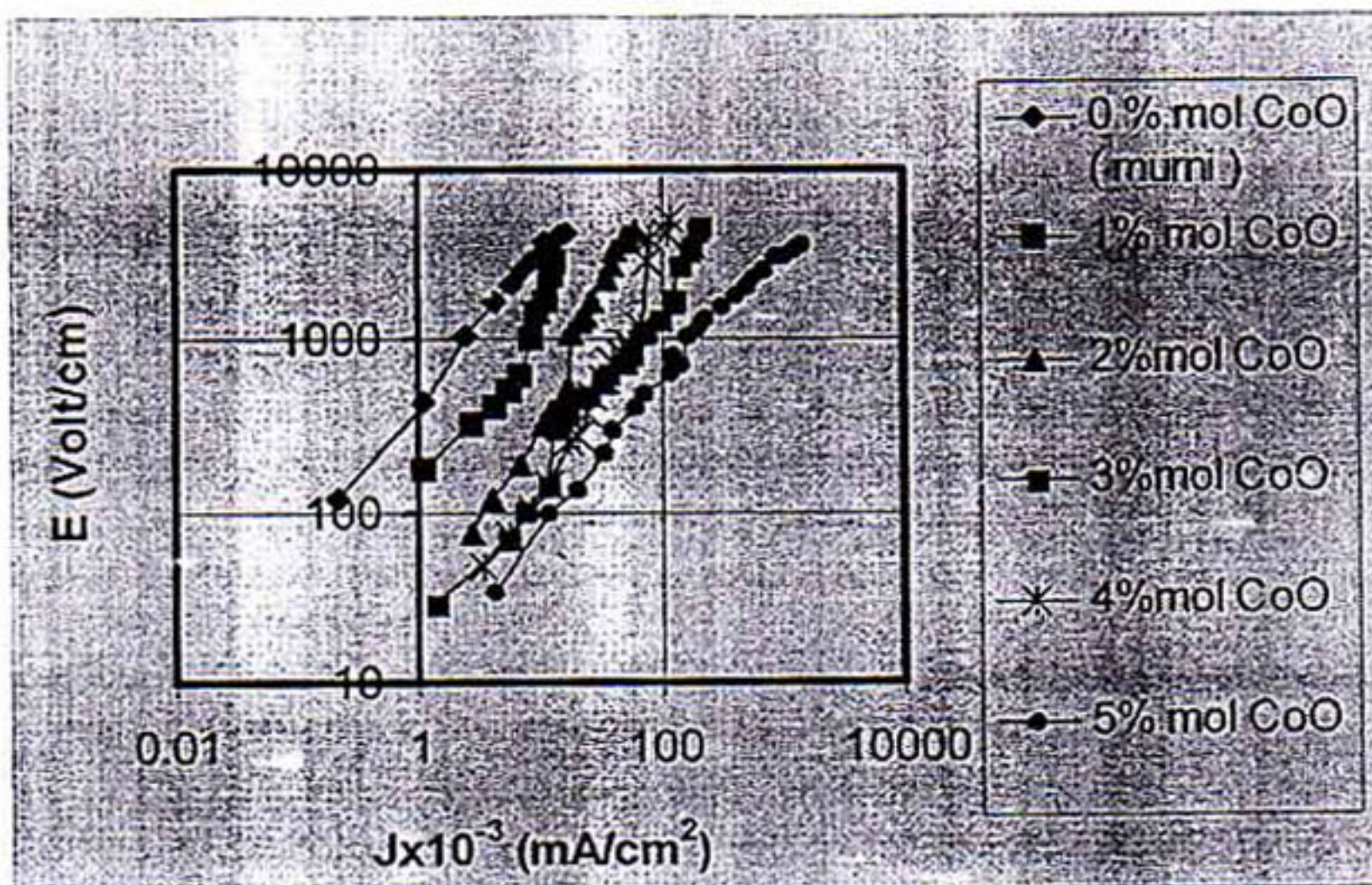


Namun pada penelitian ini perhitungan tersebut tidak dapat dilakukan karena J yang diperoleh jauh dari rentang tersebut. Meskipun begitu dari data karakteristik E-J yang diperoleh dapat diketahui bahwa keramik SnO<sub>2</sub>-CoO yang disinter pada suhu 1300°C dapat menjadi varistor yang tegangan kerjanya lebih rendah dari pada keramik yang sama yang disinter pada suhu 1500°C. Juga dari karakteristik E-J diketahui bahwa keramik SnO<sub>2</sub>-CoO yang disinter pada suhu 1500°C memiliki arus bocor yang lebih rendah dari pada keramik yang sama yang disinter pada suhu 1300°C.

$$\alpha = 1 / \log [ E(10 \text{ mA/cm}^2) / E(0,1 \text{ mA/cm}^2) ] \dots\dots\dots(1)$$

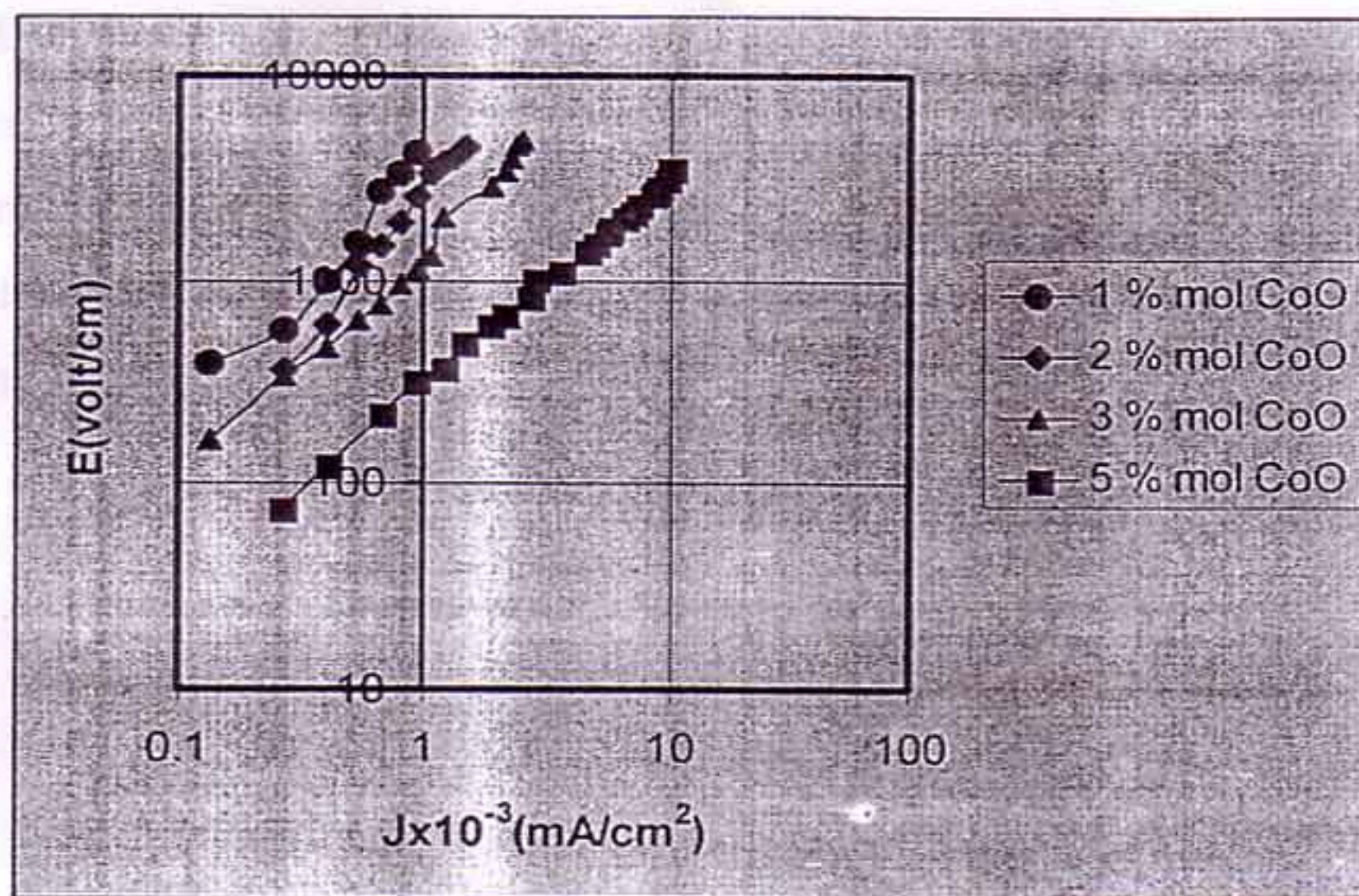
dengan  $E(0,1 \text{ mA/cm}^2) =$  Medan listrik pada rapat arus (J)=0,1 mA/cm<sup>2</sup>

$E(10 \text{ mA/cm}^2) =$  Medan listrik pada rapat arus (J) = 10 mA/cm<sup>2</sup>.

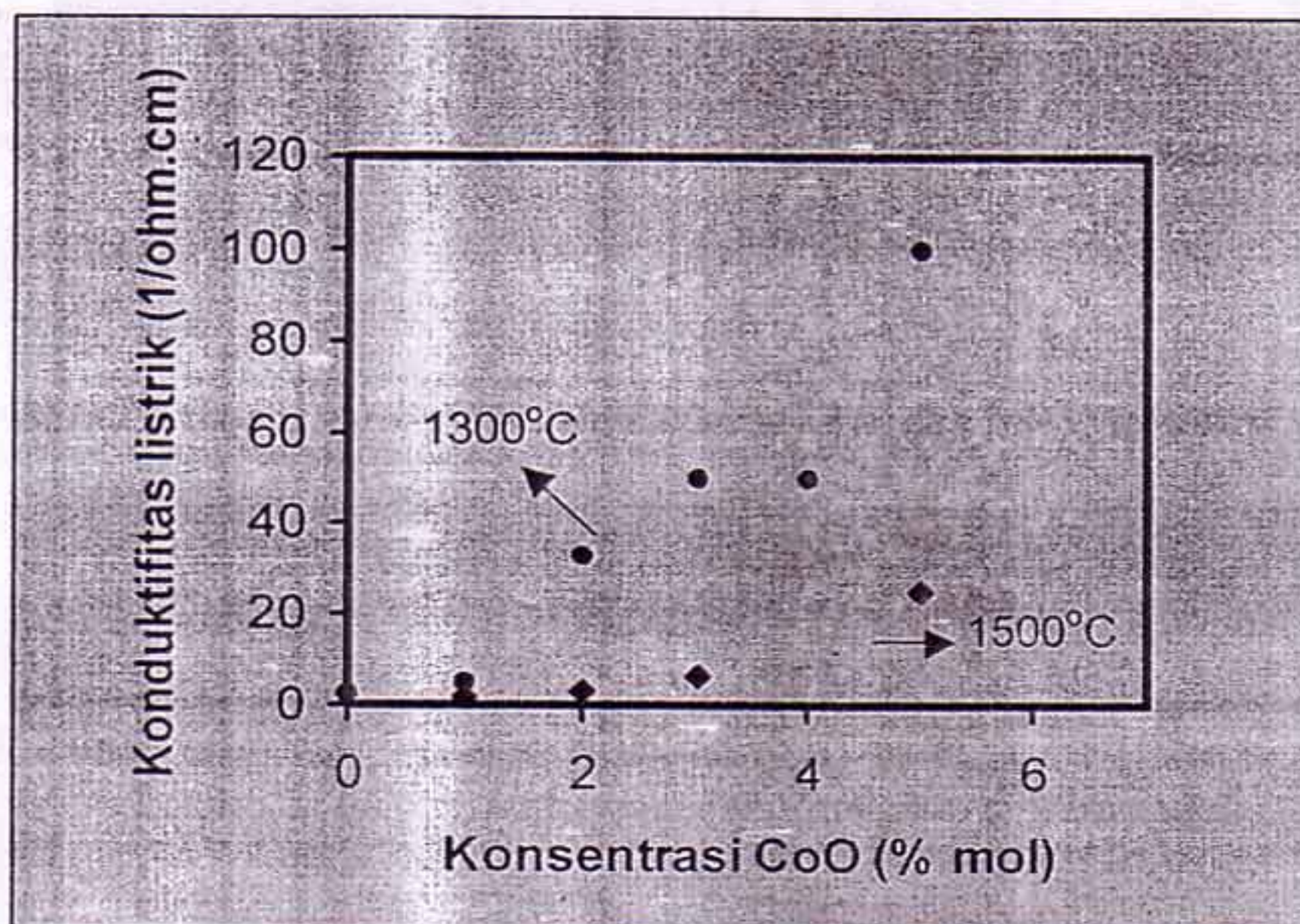


Gambar 11. Karakteristik E-J pelet sinter SnO<sub>2</sub>-CoO disinter suhu 1300°C.





Gambar 12. Karakteristik E-J pelet sinter  $\text{SnO}_2\text{-CoO}$  disinter suhu  $1500^\circ\text{C}$ .



Gambar 13. Konduktifitas listrik (pada  $J=10^{-3}\text{mA/cm}^2$ ) pelet sinter  $\text{SnO}_2\text{-CoO}$  disinter pada suhu  $1300^\circ\text{C}$  (bulatan) dan  $1500^\circ\text{C}$  (belah ketupat).



## **KESIMPULAN**

1. Sinterabilitas SnO<sub>2</sub> dapat ditingkatkan dengan penambahan CoO hingga konsentrasi lebih kecil dari pada 3 % mol baik pada suhu sinter 1300°C maupun pada suhu sinter 1500°C.
2. Peningkatan suhu sinter dari 1300°C ke 1500°C tidak efektif untuk meningkatkan rapat masa pelet SnO<sub>2</sub> tetapi sangat efektif untuk mengubah struktur mikro khususnya untuk meningkatkan ukuran butir. Untuk pelet SnO<sub>2</sub>-CoO dengan aditif CoO 1 % mol, ukuran butir meningkat dari 3 um ketika disinter pada suhu 1300°C menjadi 16 um ketika disinter pada suhu 1500°C.
3. Pada selang harga J dan E pada penelitian ini diketahui bahwa penambahan CoO meningkatkan, sementara peningkatan suhu sinter menurunkan konduktifitas listrik keramik SnO<sub>2</sub>-CoO.

## **Ucapan Terima Kasih**

Terima kasih kepada Dewan Riset Nasional yang telah membiayai riset ini melalui LIPI di bawah kontrak perjanjian no. 21-03/SP/RUT/2000.

## **DAFTAR PUSTAKA**

1. DANI GUSTAMAN SYARIF, BAMBANG A., ENKIR S., Studi pengaruh parameter penyinteran terhadap struktur mikro varistor ZnO-Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> menggunakan SEM, "Prosiding Seminar Nasional Mikroskopi dan Mikroanalisis-II", Serpong, 1998.
2. DANI GUSTAMAN SYARIF, SAEFUL, H., ENKIR, S., ARI, H., Pengaruh parameter penyinteran terhadap karakteristik E-J ZnO dan varistor ZnO- Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, "Prosiding Presentasi Ilmiah Sains Materi", Serpong 20-21 Oktober, 1998