

KARAKTERISASI KERAMIK FILM TEBAL CuFe_2O_4 UNTUK TERMISTOR NTC YANG DIBUAT DENGAN MENGGUNAKAN Fe_2O_3 DARI MINERAL YAROSIT

Wiendartun¹, Dani Gustaman Syarif², Dadi Rusdiana¹

¹) Jurusan Fisika FMIPA UPI, Jl. Dr. Setiabudhi 229 Bandung, email: wien@upi.edu

²) PTNBR BATAN, Jl. Tamansari 71 Bandung, email: danigusta@yahoo.com

ABSTRAK

Telah dilakukan pembuatan keramik film tebal CuFe_2O_4 untuk termistor *Negative Thermal Coefficient* (NTC) dengan menggunakan Fe_2O_3 dari mineral yarosit asli (*ore*). Penelitian ini dalam rangka memberi nilai tambah kepada mineral yang melimpah di Indonesia. Keramik ini dibuat dengan cara menggerus dan mengayak serbuk bahan campuran homogen dari CuO dan Fe_2O_3 (dari mineral yarosit) dengan komposisi yang sesuai untuk menghasilkan keramik film tebal berbasis CuFe_2O_4 dengan menggunakan ayakan yang berukuran 38 micron. Serbuk campuran yang dihasilkan kemudian dicampur dengan 5 % berat dari frit gelas. Serbuk campuran yang mengandung frit gelas kemudian dicampur dengan 10 % berat dari senyawa organik sehingga membentuk sebuah pasta. Pasta kemudian dicetak dengan menggunakan teknik *screen printing* di atas substrat alumina. Film yang dihasilkan kemudian dibakar pada suhu 900-1100°C selama 1 jam dalam atmosfer udara. Film tebal hasil pembakaran dipotret untuk mengetahui penampilan visualnya. Karakterisasi listrik dilakukan dengan cara mengukur resistivitas listrik keramik tersebut pada suhu bervariasi (25°C-100°C). Analisis struktur mikro dan struktur kristal dilakukan masing-masing dengan menggunakan mikroskop elektron (SEM) dan difraktometer sinar-x (XRD). Dari penampilan visualnya, diketahui keramik film tebal CuFe_2O_4 dari bahan yarosit asli dapat dibuat dengan baik pada suhu pembakaran 900-1100°C. Data struktur mikro yang diambil dengan SEM memperlihatkan bahwa film tebal relatif poros dan dengan ukuran butir yang relatif kecil. Analisis XRD memperlihatkan bahwa semua film tebal keramik CuFe_2O_4 dengan Fe_2O_3 dari yarosit asli yang dibuat pada berbagai suhu pembakaran mempunyai struktur kristal spinel tetragonal. Suhu pemanasan optimum adalah 1000°C. Keramik yang dibakar pada suhu ini mempunyai harga konstanta termistor $B = 3508\text{K}$ dan resistivitas listrik suhu ruang $R_{\text{RT}} = 3,4 \text{ Mohm}$ yang memenuhi kebutuhan pasar.

Kata Kunci : *Termistor, NTC, Film tebal, CuFe_2O_4 , Yarosit*

ABSTRACT

A study on fabrication of CuFe_2O_4 thick film ceramics for NTC (Negative Thermal Coefficient) thermistor by utilizing yarosite mineral has been carried out. This study was to know if there is a possibility to step up the added value of the mineral abundant in Indonesia. Powder of yarosite (mainly composed of Fe_2O_3) and CuO with composition proportional to CuFe_2O_4 was crushed and sieved using a 38 μm sieve. The fine mixed powder was then mixed with 5 weight % glass frit. The powder containing glass frit was mixed with 10% weight % organic vehicle to form a paste. The paste was screen printed using screen printing technique on alumina substrates. The films were fired at 900-1100°C for 1 hour in air.

Electrical characterization was done by measuring electrical resistance of the thick film ceramics at various temperatures (25-100°C). Microstructure and crystal structure analyses were done by using a scanning electron microscope (SEM) and an x-ray diffractometer (XRD). From the visual appearance, it was known that the thick film CuFe_2O_4 ceramics could be well fired at 900-1100°C. The microstructure taken with SEM showed that the thick film ceramics were porous with relatively small grains. The XRD analyses showed that all the CuFe_2O_4 thick film ceramics with Fe_2O_3 from yarosite fired at various firing temperatures had tetragonal spinel structure. The optimum firing temperature was 1000°C. The thick film fired at 1000°C had characteristics namely $B = 3508\text{K}$ and $R_{\text{RT}} = 3,4 \text{ MOhm}$ which fitted the market requirement.

Key words: *Thermistor, NTC, Thick film, Yarosite, CuFe_2O_4 .*

PENDAHULUAN

Penggunaan termistor jenis NTC (Negative Temperature Coefficient) sangat luas digunakan di dunia, karena dapat diaplikasikan di berbagai bidang seperti kedokteran (termasuk kedokteran nuklir), ruang angkasa, instrumentasi, telekomunikasi, otomatis dan HVACR (Heating, Ventilation, Air Conditioning and Refrigeration) [Betatherm, 2007, Na et al., 2001]. Potensi termistor secara ekonomi sangat tinggi karena komponen ini dapat digunakan di berbagai peralatan elektronik baik sebagai pengukur suhu, sensor pembatas arus listrik, sensor aliran air maupun sensor tekanan [Park and Han, 2005]. Secara luas telah diketahui bahwa sebagian besar termistor NTC dibuat dari keramik berstruktur spinel yang dibentuk oleh oksida logam transisi dengan rumus umum AB_2O_4 dengan A adalah ion logam pada posisi tetrahedral dan B adalah ion logam pada posisi oktahedral [Na et al., 2001, Park and Han, 2005, Matsuo et al., 1982, Jung, et al., 1993, Hamada and Oda, 2001, Park, 2003, Park and Bang, 2003, Fritsch, 2004, Schmidt, 2004]. Salah satu keramik berstruktur spinel yang dapat dibuat untuk termistor NTC adalah CuFe_2O_4 .

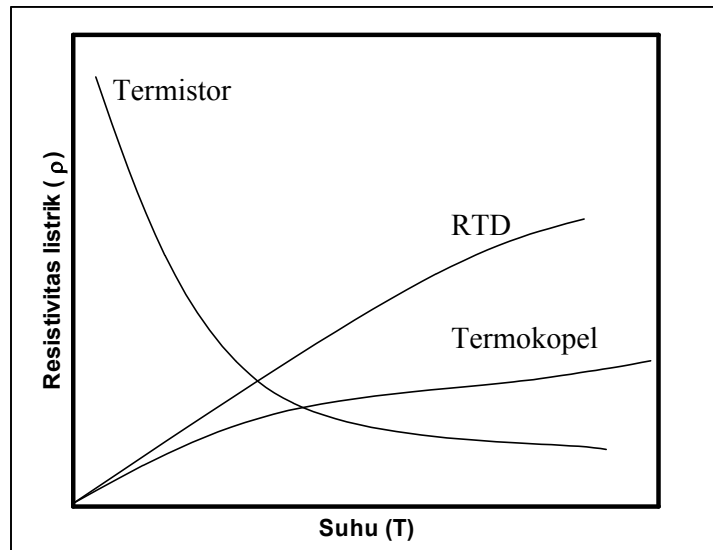
Umumnya di Indonesia komponen elektronik merupakan produk impor. Impor merupakan kegiatan yang mengurangi devisa negara. Untuk menurunkan ketergantungan Indonesia terhadap produk impor dan untuk mendapatkan kemampuan dalam pembuatan termistor NTC dengan menggunakan bahan yarosit yang berlimpah di Indonesia, maka telah dilakukan studi tentang pembuatan termistor NTC dari keramik CuFe_2O_4 bentuk pelet (disk) dengan menggunakan yarosit sebagai bahan dasar [Wiendartun, 2007, Wiendartun, 2008]. Namun keramik dengan bahan yang sama yang dibuat dalam bentuk pelet (disk) masih perlu dikembangkan menjadi keramik dalam bentuk film tebal agar lebih ekonomis dan aplikasinya lebih luas. Keramik film tebal memiliki keuntungan **dibandingkan bentuk pelet** yaitu hanya

memerlukan bahan sangat sedikit dan dapat diaplikasikan dalam bentuk rangkaian terintegrasi yang kompak dengan volume yang kecil (hibridisasi dan miniaturisasi).

Pada umumnya teknologi yang digunakan untuk pembuatan termistor film tebal adalah metoda screen printing. Beberapa parameter dalam screen printing yang berpengaruh pada produk film tebal yang dihasilkan adalah kekentalan pasta, ukuran screen, komposisi pasta dan parameter pembakaran seperti waktu dan suhu. Dalam penelitian ini studi tentang pembuatan termistor film tebal berbahan dasar CuFe_2O_4 dengan menggunakan yarosit asli (ore) sebagai bahan dasar telah dilakukan. Yang difokuskan pada penelitian ini adalah efek suhu pembakaran terhadap karakteristiknya, khususnya karakteristik listrik dari keramik film tebal CuFe_2O_4 untuk termistor NTC.

TINJAUAN PUSTAKA

Termistor NTC mempunyai karakteristik yang khas seperti dapat dilihat pada Gambar 1 :



Gambar 1. Grafik hubungan antara resistivitas listrik (ρ) dan suhu (T) untuk termistor NTC dan sensor lainnya.

Tahanan termistor NTC akan berkurang secara eksponensial, jika suhunya bertambah. Hubungan antara tahanan dan suhu termistor diekspresikan pada persamaan (1) [Park,2003,Park and Han, 2005]:

$$R = R_0 \cdot \text{Eksp.}\left(\frac{B}{T}\right) \dots\dots\dots(1)$$

dengan, R = Tahanan termistor (Ohm), R₀ = Tahanan termistor pada suhu awal (Ohm), B = Konstanta termistor (K) dan T = Suhu termistor (K).

Konstanta termistor (B) dari persamaan (1) dapat ditulis menjadi persamaan (2)[6],

$$B = \frac{\Delta E}{k} \dots\dots\dots(2)$$

dengan, B = Konstanta termistor (K), ΔE = Energi aktivasi (eV) dan k_B = Konstanta Boltzmann ($\frac{eV}{^{\circ}K}$)

Secara empiris konstanta B sering pula dihitung menggunakan persamaan (3)[1,2]

$$B = \frac{\ln \frac{R_2}{R_1}}{\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1}} \dots\dots\dots(3)$$

dengan, R₁ = Tahanan pada suhu T₁, R₂ = Tahanan pada suhu T₂, T₂ = 85°C = 358,16 K dan T₁ = 25 °C = 298,16 K

Sensitivitas termistor dapat diketahui dengan memakai persamaan (4) [Moulson and Herbert,1990],

$$\alpha = \frac{-B}{T^2} \dots\dots\dots(4)$$

dengan, α = Sensitifitas termistor, B = Koefisien termistor dalam K, T = suhu dalam K. Semakin besar harga α dan B, kualitas termistor semakin baik.

METODE PENELITIAN

Pembuatan film tebal dengan memakai Fe₂O₃ dari yarosit asli (ore) dengan komposisi kimianya seperti ditunjukkan dalam tabel 1, dilakukan dengan langkah-langkah seperti

Gambar 3. Fe_2O_3 dari serbuk yarosit asli (50% mol) dicampur dengan CuO (50% mol), kemudian di gerus dan diayak dengan ayakan yang berukuran $38 \mu\text{m}$ (Serbuk yang lolos berukuran $< 38 \mu\text{m}$). Ukuran ini disesuaikan dengan *screen* yang akan dipakai pada saat *screen printing*. Serbuk yang dihasilkan sebanyak 85% mol selanjutnya dicampur dengan frit gelas yang terbuat dari bahan SiO_2 (30% berat), B_2O_3 (50% berat) and PbO (20% berat) sebanyak 5 % mol dengan komposisi sesuai tabel 1. (Proses pembuatannya diperlihatkan pada Gambar 2). Campuran antara kedua serbuk kemudian dicampur lagi dengan zat organic pembantu (*organic vehicle*) yang berisi *alpha terpineol* dan *ethyl cellulose* masing masing sebanyak 90% berat dan 10% berat sehingga membentuk pasta. Pasta kemudian dicetak diatas substrat alumina dengan menggunakan teknik screen printing sehingga membentuk film tebal. Film tebal tersebut kemudian dibakar pada suhu $900\text{-}1100^\circ\text{C}$ selama 1 jam dalam atmosfer udara. Pelet hasil sinter dipotret untuk mengetahui penampilan visualnya. Untuk mengetahui struktur kristal dan fase-fase yang terjadi, film tebal hasil pembakaran dianalisis dengan difraksi sinar-x (XRD) dengan menggunakan radiasi $\text{K}\alpha$ pada tegangan 40 kV dan arus 25 mA dan untuk mengetahui struktur mikronya film tebal dipotret menggunakan mikroskop elektron (SEM). Karakterisasi listrik dilakukan setelah kedua sisi pelet hasil sinter dilapisi dengan pasta konduktif perak atau larutan perak koloid dan dipanaskan pada suhu 600°C selama 10 menit. Karakterisasi listrik dilakukan melalui pengukuran resistivitas listrik pada berbagai suhu dari suhu ruang hingga 100°C dengan interval 5°C . dengan menggunakan sebuah multimeter digital dan diatur dengan *digital temperature controller*. Meski dapat dihitung memakai persamaan (3), dalam penelitian ini harga konstanta termistor (B) didapat dari grafik \ln (resistivitas listrik) versus $1/T$ (di mana T adalah suhu dalam derajat kelvin). Dalam hal ini B adalah gradien kurva. Harga sensitivitas (α) dihitung menggunakan persamaan (4). Sementara itu harga resistivitas listrik suhu ruang (ρ_{SR}) dihitung menggunakan kurva grafik \ln (resistivitas listrik) versus $1/T$ dengan memasukkan suhu ruang sebesar 300K. Secara keseluruhan proses pembuatan keramik film tebal berbasis CuFe_2O_4 diperlihatkan pada Gambar 3.

Table 1. Komposisi kimia dari Yarosite asli.

No	Komponen	Konsentrasi (% Berat)
1	Fe_2O_3	55,9
2	SiO_2	24,4
3	LOI	5,31
4	TiO_2	3,59
5	Na_2O	3,22
6	Al_2O_3	2,50
7	MgO	2,48

8	K ₂ O	2,31
9	MnO	0,049

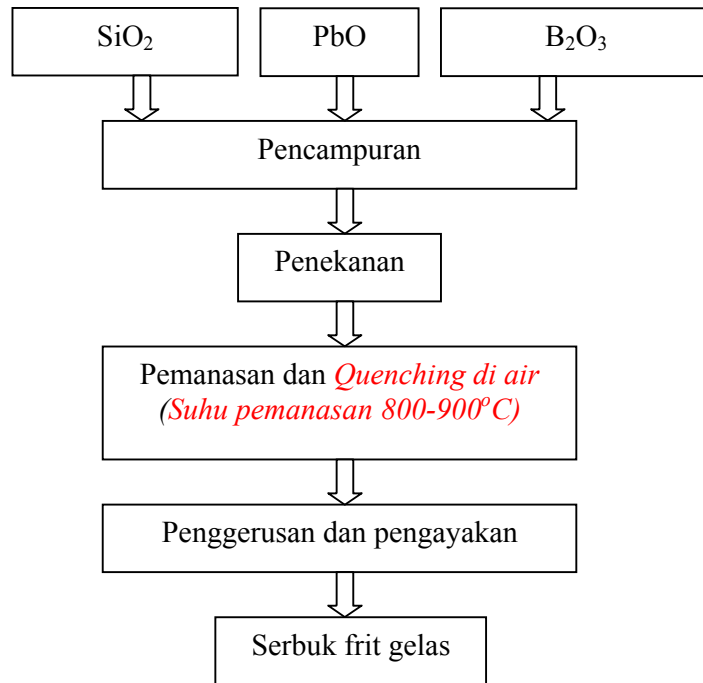
LO I = Lost of Ignition.

Pembuatan frit gelas

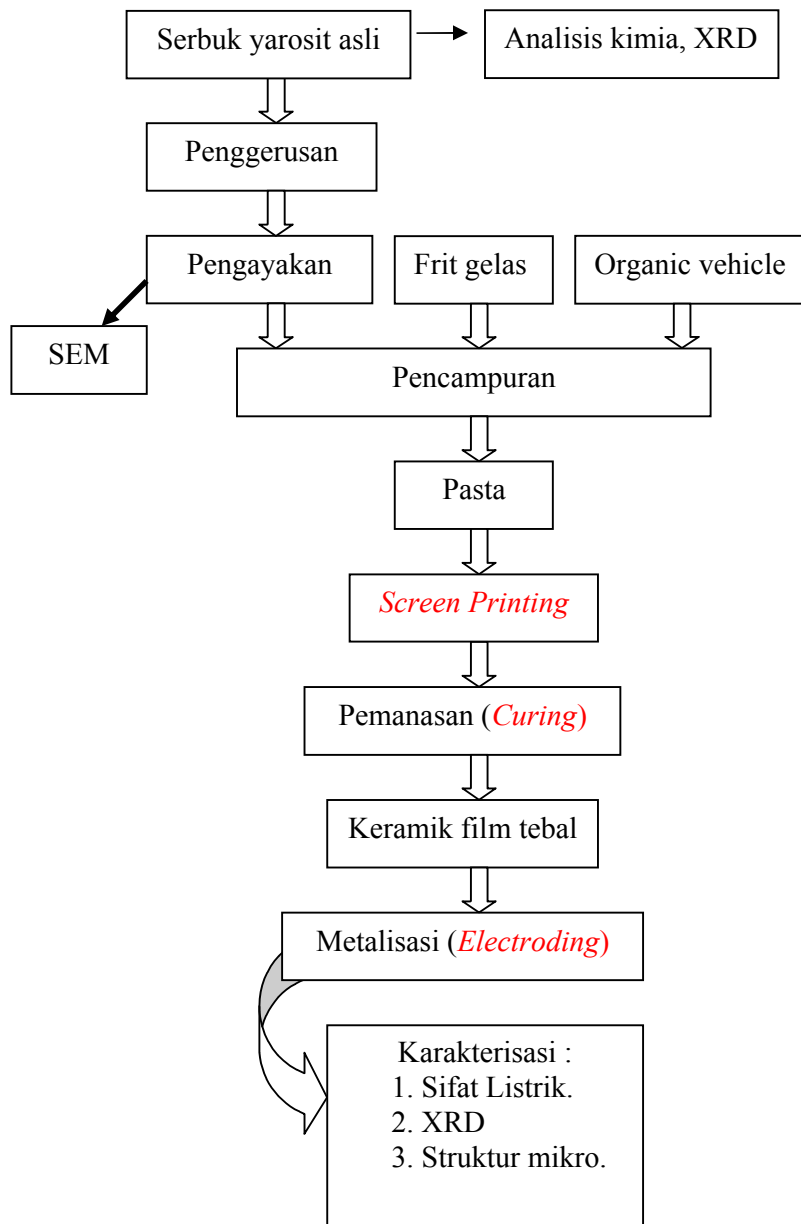
Pembuatan frit gelas dilakukan sesuai diagram alir Gambar 2

Tabel 2. Komposisi frit gelas.

No.	PbO (% berat)	SiO ₂ (% berat)	B ₂ O ₃ (% berat)
1.	20	30	50



Gambar 2. Diagram alir pembuatan frit gelas.



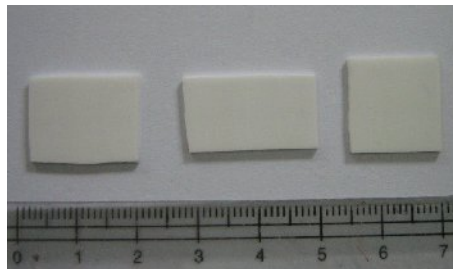
Gambar 3. Diagram alir pembuatan film tebal dari yarosit awal (ore)

HASIL DAN PEMBAHASAN

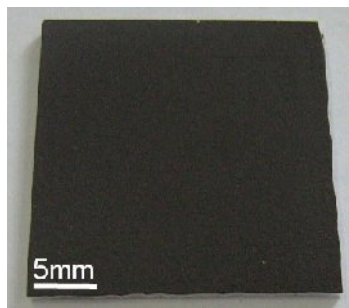
HASIL

Contoh substrat yang telah dipotong-potong sesuai kebutuhan diperlihatkan pada Gambar 4. Film tebal yang diperoleh sebelum disinter dapat dilihat pada Gambar 5. Film tebal dari yarosit asli dibakar pada tiga suhu berbeda yaitu 900°C, 1000°C dan 1100°C selama 1 Jam. **Film tebal yang diperoleh mempunyai ketebalan sekitar 20 µm.** Contoh film tebal hasil pembakaran diperlihatkan pada Gambar 6. Film tebal hasil pembakaran kemudian dianalisis dengan XRD untuk mengetahui struktur kristal dan fase-fase yang terjadi. Hasil analisisnya diperlihatkan pada Gambar 7-9. Struktur mikro keramik film tebal yang dibakar pada suhu 900-1100°C dapat dilihat pada Gambar 10-12. Film tebal hasil pembakaran kemudian diberi elektrode perak agar karakteristik listriknya dapat ditentukan. Karakteristik listrik dari ketiga keramik film tebal yang memakai Fe₂O₃ dari yarosit asli tersebut diperlihatkan pada Gambar 13 dan Tabel 3.

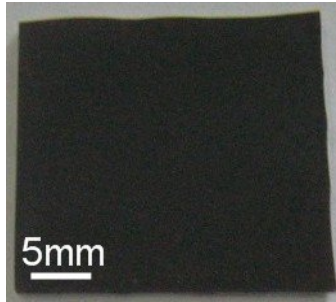
Penampilan Visual film tebal:



Gambar 4. Substrat alumina.

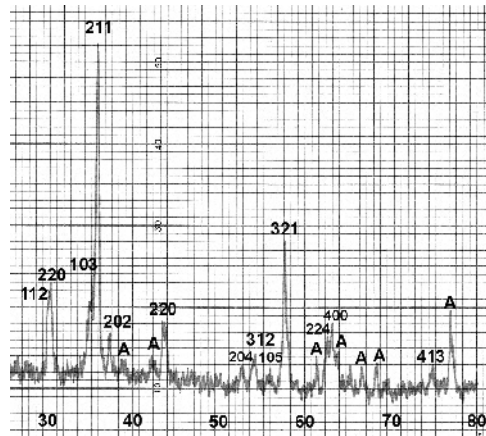


Gambar 5. Contoh film tebal yang belum dibakar (mentah).

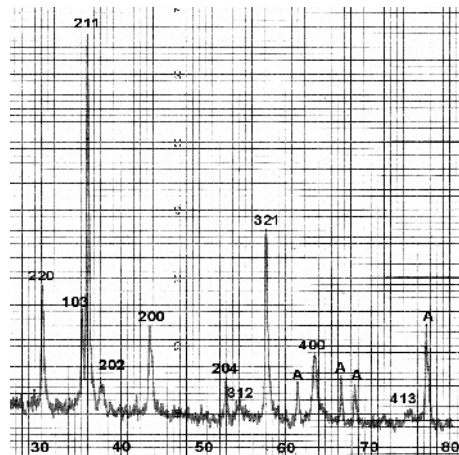


Gambar 6. Contoh film tebal yang telah dibakar pada suhu 1100°C selama 1 Jam.

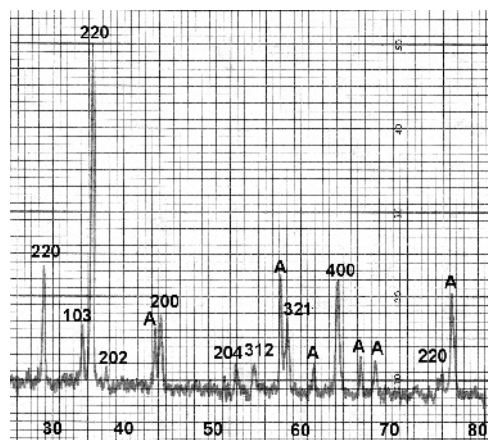
Data Analisis XRD



Gambar 7. Pola difraksi film tebal dengan bahan yarisit asli hasil pembakaran pada suhu 900°C.

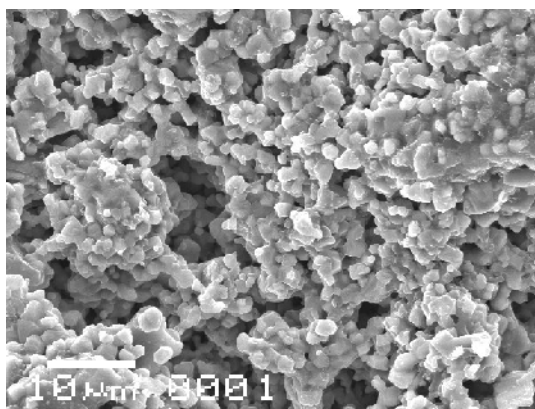


Gambar 8. Pola difraksi film tebal dengan bahan yarisit asli hasil pembakaran pada suhu 1000°C.

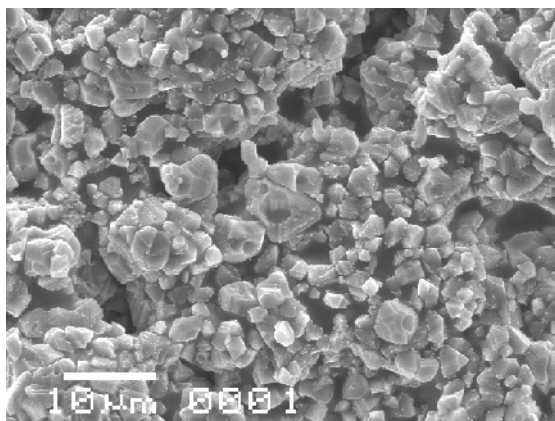


Gambar 9. Pola difraksi film tebal dengan bahan yarosit asli hasil pembakaran pada suhu 1100°C.

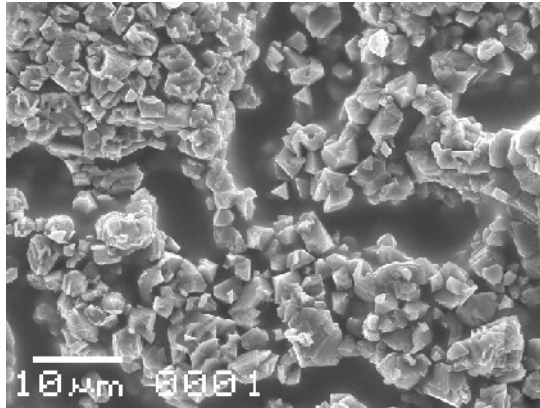
Data Struktur Mikro (SEM)



Gambar 10. Struktur mikro keramik film tebal $\text{Cu Fe}_2\text{O}_4$ dengan Fe_2O_3 dari yarosit asli dibakar pada suhu 900°C.

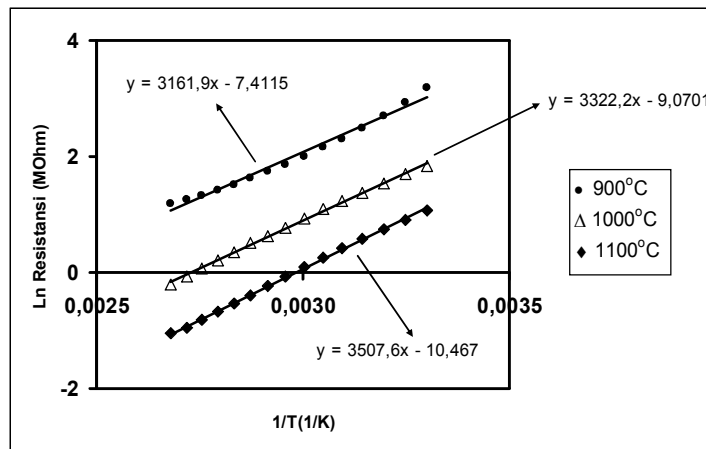


Gambar 11. Struktur mikro keramik film tebal $\text{Cu Fe}_2\text{O}_4$ dengan Fe_2O_3 dari yarosit asli dibakar pada suhu 1000°C.



Gambar 12. Struktur mikro keramik film tebal CuFe_2O_4 dengan Fe_2O_3 dari yarosit asli dibakar pada suhu 1100°C .

Data Karakteristik Listrik



Gambar 13. Ln Tahanan listrik (R) vs. $1/T$ dari keramik film tebal CuFe_2O_4 dengan Fe_2O_3 dari mineral yarosit awal (Asli).

Table 3. Karakteristik listrik keramik film tebal CuFe_2O_4 dengan Fe_2O_3 dari mineral yarosit awal (Asli).

No.	Suhu pembakaran ($^\circ\text{C}$)	B ($^\circ\text{K}$)	α ($\% / ^\circ\text{K}$)	R_{RT} (M.Ohm)	Ea (eV)
1.	900	3162	3,5	22,8	0,27
2.	1000	3508	3,9	3,4	0,30
3.	1100	3322	3,7	7,4	0,29

Persyaratan pasar untuk tahanan jenis listrik suhu ruang ($\rho_{\text{RT}} = 10 \text{ ohm.cm} - 41 \text{ Mohm.cm}$ [Matsuo et al., 1982, Jung et al., 1993].

PEMBAHASAN

Film tebal dari bahan yarosit asli telah dapat dibuat dengan baik. Film cukup kuat tertempel pada substrat. Secara visual film terlihat rata. Dari data XRD tampak bahwa semua film tebal dari yarosit asli (yang disinter pada berbagai suhu) setelah dibandingkan dengan profile standar XRD untuk CuFe_2O_4 pada JCPDS No. 34-0425 mempunyai struktur kristal spinel tetragonal dengan tingkat kekristalan yang cukup baik, diperlihatkan oleh puncak-puncaknya yang cukup tajam. **Ini menandakan bahwa CuFe_2O_4 telah terbentuk dengan baik.** Puncak-puncak dengan kode A adalah puncak dari substrat alumina.

Data struktur mikro yang diambil dengan SEM memperlihatkan bahwa film tebal relatif poros dan dengan ukuran butir yang relatif kecil. **Tingkat porositas seperti ini utamanya disebabkan oleh jumlah organic vehicle (OV) yang ditambahkan. Makin banyak OV makin poros film yang diperoleh.** Ukuran butir bertambah dengan pertambahan suhu pembakaran dari 900°C ke 1000°C . Pertambahan ukuran butir tidak terlihat pada keramik yang dibakar pada suhu 1100°C tetapi tampak jelas bahwa butir dengan butir pada keramik ini relatif kurang tersambung. **Hal ini disebabkan oleh mobilitas fase cair selama pembakaran. Pada kondisi ini fase cair relatif banyak dan bergerak ke batas-batas butir.**

Karakteristik listrik film tebal dengan Fe_2O_3 dari yarosit asli memperlihatkan bahwa peningkatan suhu pembakaran dari 900°C ke 1000°C menurunkan tahanan listrik suhu ruang dan peningkatan selanjutnya ke 1100°C menaikkan kembali harga tahanan listrik suhu ruangnya. Data ini memperlihatkan bahwa suhu 1000°C merupakan suhu optimal. Keramik yang dibakar pada suhu ini juga mempunyai konstanta termistor (B) yang besar, yang memenuhi persyaratan pasar. Meskipun keramik yang dibakar pada suhu 1000°C merupakan keramik dengan karakteristik paling optimal, namun keramik film tebal lainnya (dibakar pada suhu 900°C dan 1100°C) juga memenuhi persyaratan pasar. **Persyaratan pasar untuk konstanta termistor (B) adalah $\geq 2000\text{K}$ [Jung et al., 1993]**

KESIMPULAN

Pembuatan keramik film tebal CuFe_2O_4 untuk termistor NTC dengan menggunakan Fe_2O_3 dari mineral yarosit asli (ore), telah dapat dibuat dengan baik pada substrat alumina. Dari tiga suhu pembakaran yang digunakan yaitu 900°C , 1000°C dan 1100°C , diketahui bahwa suhu pembakaran optimal adalah 1000°C . Semua keramik film tebal yang dibuat mempunyai

struktur spinel tetragonal. Karakteristik listrik dari keramik film tebal yang dibuat sebagian besar memenuhi persyaratan pasar.

UCAPAN TERIMA KASIH

Tim peneliti mengucapkan terimakasih kepada semua pihak yang telah memberi bantuan dalam kegiatan penelitian dan penulisan artikel ini. Penelitian ini didanai oleh Hibah Bersaing DIKTI dengan Kontrak Nomor: No. 014/SP2H/DP2M/III/2008/Tanggal 6 Maret 2008.

DAFTAR PUSTAKA

1. **BetaTHERM** Sensors [on line]. Available: <http://www.betatherm.com>.
2. **Na, E. S., Paik, U.G., Choi, S.C.** “The effect of a sintered microstructure on the electrical properties of a Mn-Co-Ni-O thermistor”, 2001. *Journal of Ceramic Processing Research*, Vol.2, No. 1, pp 31-34.
3. **Park, K., Han, I.H.**, 2005. “Effect of Al₂O₃ addition on the microstructure and electrical properties of (Mn_{0,37}Ni_{0,3}Co_{0,33-x}Al_x)O₄ (0 ≤ x ≤ 0.03) NTC thermistors”, *Materials Science and Engineering*, B119, pp. 55-60.
4. **Matsuo Y., Hata, T., Kuroda, T.** 1982. “Oxide thermistor composition”, US Patent 4,324,702, April 13.
5. **Jung, H.J., Yoon, S. O., Hong, K.Y., Lee, J. K.** 1993. “Metal oxide group thermistor material”, US Patent 5,246,628, September 21.
6. **Hamada, K., Oda, H.**, 2001. “Thermistor composition”, US Patent 6,270,693, August 7,
7. **Park K.**, 2003. “Microstructure and electrical properties of Ni_{1,0}Mn_{2-x}Zr_xO₄ (0 ≤ x ≤ 1.0) negative temperature coefficient thermistors”, *Materials Science and Engineering*, B104, pp. 9-14.
8. **Park, K., Bang, D.Y.**, 2003. “Electrical properties of Ni-Mn-Co-(Fe) oxide thick film NTC thermistors”, *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, Vol.14, pp. 81-87.
9. **Fritsch S. G., Salmi J. Sarrias, J., Rousset, A., Schuurman, S., Lannoo, A.**, 2004. “Mechanical properties of nickel manganites-based ceramics used as negative temperature coefficient thermistors”, *Materials Research Bulletin*, Vol. 39, pp. 1957-1965.
10. **Schmidt R., Basu, A., Brinkman A.W.**, 2004. “Production of NTCR thermistor devices based on NiMn₂O_{4+δ}”, *Journal of The European Ceramic Society*, Vol. 24, pp. 1233-1236, 2004.

- 11. Moulson, A.J, Herbert, J.M.,** 1990. Electroceramics, Chapman & Hall, N.Y., p.140.
- 12. Wiendartun, Syarif, D.G.,** 2007. Characterization of CuFe_2O_4 ceramics added with Al_2O_3 for NTC Thermistor using Fe_2O_3 derived from yarosite (In Bahasa Indonesia), p.80, In Proceedings of the National Seminar of Nuclear Science and Technology, Bandung, Indonesia.
- 13. Wiendartun, Syarif, D.G., Suhendi E., Sambodo, G. D., Setiawan, A.,** 2008. Synthesis and characterization of CuFe_2O_4 ceramics for NTC thermistor by utilizing Fe_2O_3 derived from yarosite mineral (In Bahasa Indonesia), p.110, In Proceedings of The National Seminar of Ceramics 2008, Bandung,, Indonesia.