

KARAKTERISASI KERAMIK CuFe_2O_4 YANG DITAMBAH Al_2O_3 UNTUK TERMISTOR NTC DENGAN MENGGUNAKAN Fe_2O_3 DARI YAROSIT

Wiendartun¹⁾, Endi Suhendi¹⁾, Andhy Setiawan¹⁾, Dani Gustaman Syarif²⁾, Guntur D.S.²⁾

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

²⁾ PTNBR BATAN, Jl.Tamansari 71 Bandung, email: danigustas@batan-bdg.go.id

ABSTRAK

Karakterisasi Keramik CuFe_2O_4 Yang Ditambah Al_2O_3 Untuk Termistor NTC Dengan Menggunakan Fe_2O_3 Yang Diperoleh Dari Yarosit. Karakterisasi keramik CuFe_2O_4 yang ditambah Al_2O_3 untuk termistor NTC dengan menggunakan Fe_2O_3 dari yarosit telah dilakukan. Keramik ini dibuat dengan cara mengepres serbuk bahan campuran homogen dari CuO , Fe_2O_3 dan Al_2O_3 (0; 0,25 dan 0,5 % berat) dengan komposisi yang sesuai untuk menghasilkan keramik berbasis CuFe_2O_4 dan menyinter pelet hasil pengepresan pada suhu 1100°C selama 2 jam di dalam atmosfer udara. 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 optik dan difraktometer sinar-x (XRD). Data struktur mikro memperlihatkan bahwa keramik CuFe_2O_4 dengan Fe_2O_3 asal yarosit yang ditambah Al_2O_3 poros dan memiliki rongga yang besar. Analisis XRD menunjukkan bahwa CuFe_2O_4 tanpa dan dengan penambahan Al_2O_3 mempunyai struktur kristal tetragonal spinel. Dari data XRD juga terlihat adanya puncak tambahan (S) pada pola difraksi keramik dengan penambahan 0,5 % berat Al_2O_3 . Berdasarkan data listriknya terlihat bahwa penambahan Al_2O_3 memperbesar konstanta termistor (B) dan resistivitas listrik suhu ruang (ρ_{RT}). Harga B yaitu sebesar $3386\text{-}3625^{\text{K}}$ dan ρ_{RT} yaitu sebesar $11,8\text{-}25,1 \text{ k}\Omega\text{cm}$ dari keramik berbasis CuFe_2O_4 yang dibuat memenuhi kebutuhan pasar.

Kata Kunci : Termistor, NTC, CuFe_2O_4 , Al_2O_3 , yarosit

ABSTRACT

Characterization of CuFe_2O_4 Ceramics Added With Al_2O_3 for NTC Thermistor Using Fe_2O_3 Derived from Yarosite. Characterization of CuFe_2O_4 ceramics added with Al_2O_3 for NTC thermistors by using Fe_2O_3 derived from yarosite has been carried out. The ceramics were produced by pressing a homogenous mixture of CuO , Fe_2O_3 and Al_2O_3 (0, 0.25 and 0.5 w/o) powders in appropriate proportions to produce CuFe_2O_4 based ceramics and sintering the pressed powder at 1100°C for 2 hours in air. Electrical characterization was done by measuring electrical resistivity of the ceramics at various temperatures (25°C - 100°C). Microstructure and crystal structure analyses were carried out by using an optical microscope and x-ray diffractometer (XRD), respectively. According to the microstructure data, it was known that the CuFe_2O_4 ceramics with Fe_2O_3 from yarosite added with Al_2O_3 is porous, having many cavities. The XRD analyses showed that the CuFe_2O_4 with and without Al_2O_3 addition have crystal structure of tetragonal spinel. From the XRD data, the presence of addition peak (S) in the diffraction profile of the ceramic added with 0,5 w/o is seen. According to the electrical data, it was known that the Al_2O_3 addition increased the thermistor constant (B) and the room temperature electrical resistivity (ρ_{RT}). The value of B and (ρ_{RT}) of the produced CuFe_2O_4 ceramics namely $B = 3386\text{-}3625\text{K}$ and $\rho_{RT} 11,8\text{-}25,1 \text{ k}\Omega\text{cm}$, fitted market requirement.

Key words : Thermistor, NTC, CuFe_2O_4 , Al_2O_3 , yarosite.

1. PENDAHULUAN

Termistor NTC sudah sangat luas digunakan di dunia, karena kemampuannya untuk digunakan di berbagai bidang elektronik seperti pengukur suhu, pembatas arus listrik, sensor aliran air dan sensor tekanan[1]. Telah dikenal bahwa sebagian besar termistor NTC dibuat dari keramik berstruktur spinel yang dibentuk oleh Ksida logam transisi dengan rumus umum AB_2O_4 dengan A adalah ion logam pada posisi tetrahedral dan B adalah ion logam pada posisi octahedral [2-10]. Banyak penelitian dilakukan untuk memperbaiki karakteristik termistor NTC berstruktur spinel [6,7,11]. Pada penelitian ini dipelajari pengaruh penambahan Al_2O_3 terhadap karakteristik spinel keramik $CuFe_2O_4$ yang bahan Fe_2O_3 nya berasal dari mineral yarosit. Sejauh ini studi seperti ini belum dipublikasikan sebelumnya. Penggunaan Fe_2O_3 dari yarosit dimaksudkan untuk mempelajari apakah mineral yang berlimpah di Indonesia seperti yarosit dapat dimanfaatkan sebagai bahan utama termistor.

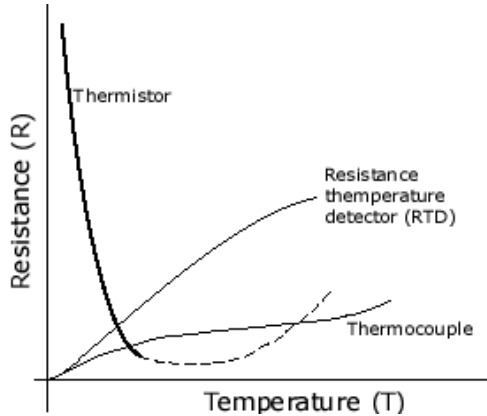
Pada umumnya, keramik $CuFe_2O_4$ digunakan sebagai magnet lunak[12-15], juga sebagai katalis [16-18], tetapi.sebenarnya keramik $CuFe_2O_4$ mempunyai kemampuan untuk menjadi thermistor NTC karena bersifat semi konduktif. Berdasarkan diagram fase $CuO-Fe_2O_3$ [19], ada suatu daerah dimana komposisi keramik CuO dan Fe_2O_3 bila dipanaskan pada suhu $1100^\circ C$ akan mempunyai sebuah struktur mikro yang berisi fase

cair. Pada suhu ruang, material yang meleleh ini mungkin akan berada di batas butir. Secara teori material batas butir akan berpengaruh pada karakteristik keramik, khususnya pada karakteristik listrik. Pada saat zat aditif seperti Al_2O_3 ditambahkan, karakteristik dari $CuFe_2O_4$ akan berubah sebab kemungkinan ada dua kondisi. Kondisi itu adalah, pertama, Al_2O_3 larut padat di dalam $CuFe_2O_4$ dengan cara mensubstitusikan ion-ion Cu ataupun ion-ion Fe , kedua, Al_2O_3 tidak larut tetapi meleleh pada batas butir dan pada keadaan tertentu bereaksi dengan fase cair.

Pada saat kondisi pertama terbentuk, ketika substitusi dari Fe^{3+} dan / atau Cu^{2+} menghasilkan elektron bebas pada pita konduksi, keramik $CuFe_2O_4$ akan mempunyai resistivitas listrik yang rendah. Sebaliknya pada saat kondisi kedua terjadi, resistivitas listriknya mungkin semakin tinggi sebab segregasi Al_2O_3 akan mengubah struktur mikronya. Penelitian ini dilakukan untuk mengetahui karakteristik keramik $CuFe_2O_4$ yang ditambah Al_2O_3 dengan Fe_2O_3 berasal dari yarosit sebagai termistor NTC, khususnya karakteristik listrik berdasarkan pada hipotesis yang disebutkan di atas.

2. TINJAUAN PUSTAKA

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



Grafik 1. Grafik hubungan antara suhu (T) dan resistivitas listrik (R) 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) [2-11].

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

dengan, R = Tahanan termistor (Ohm), R_0 = Tahanan termistor pada suhu awal (Ohm), B = Konstanta termistor ($^{\circ}\text{K}$) dan T = Suhu termistor ($^{\circ}\text{K}$).

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 ($^{\circ}\text{K}$), ΔE = Energi aktivasi (eV) dan K= Konstanta Boltzmann ($\frac{eV}{^{\circ}\text{K}}$)

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, R_1 = Tahanan pada suhu T_1 , R_2 = Tahanan pada suhu T_2 , $T_2 = 85^{\circ}\text{C} = 358,16^{\circ}\text{K}$ dan $T_1 = 25^{\circ}\text{C} = 298,16^{\circ}\text{K}$

Sensitivitas termistor dapat diketahui dengan memakai persamaan (4)[1,11],

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

dengan, α = Sensitivitas termistor, B = Koefisien termistor dalam $^{\circ}\text{K}$, T = suhu dalam $^{\circ}\text{K}$. Semakin besar harga α dan B, kualitas termistor semakin baik.

3. METODE PENELITIAN

Keramik termistor CuFe_2O_4 dibuat dari bahan utama Fe_2O_3 asal mineral yarosit yang diperoleh dengan proses pelarutan-pengendapan. Dari proses pelarutan-pengendapan diperoleh serbuk Fe_2O_3 hasil pengolahan (processed powder) yang kandungan pengotornya lebih sedikit. Proses pelarutan-pengendapan dilakukan sebagai berikut. Pertama-tama mineral serbuk yang diperoleh dari P.D. Kerta Pertambangan dilarutkan di dalam HCl dan disaring. Ke dalam larutan yang telah disaring ditambahkan NH_4OH untuk mendapatkan endapan $\text{Fe}(\text{OH})_3$. Endapan yang diperoleh dibersihkan, lalu dipanaskan pada suhu 80°C hingga kering. Serbuk yang telah kering kemudian dikalsinasi pada suhu 700°C selama 2 jam untuk mendapatkan serbuk Fe_2O_3 . Serbuk Fe_2O_3 yang diperoleh dianalisis kimia untuk memperoleh komposisi kimianya. Hasilnya diperlihatkan pada Tabel 1. Serbuk ini akan dicampur dengan CuO dan aditif Al_2O_3 .

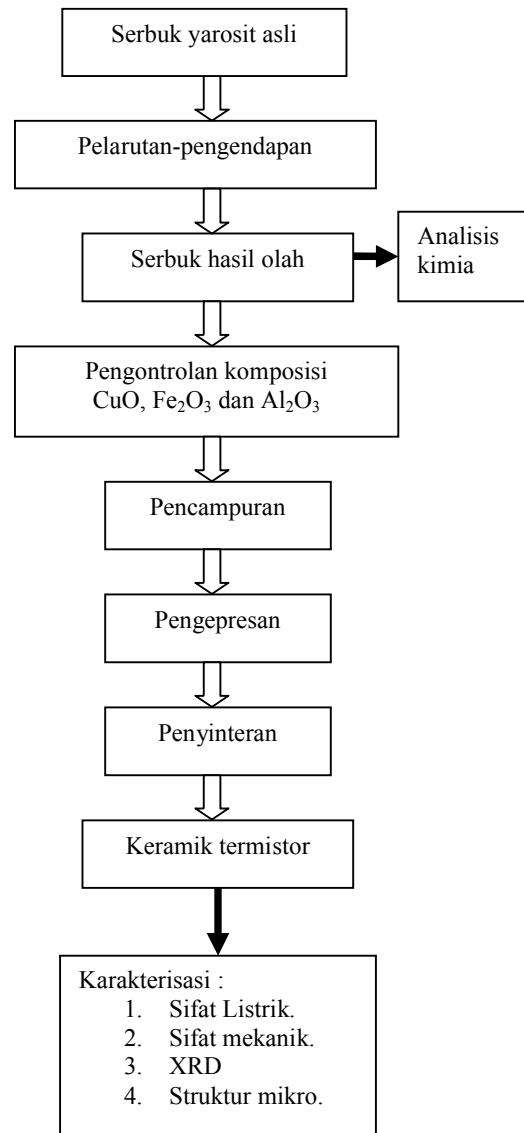
Serbuk Fe_2O_3 dari yarosit hasil olahan,

CuO dan aditif Al₂O₃ sebesar 0; 0,25 dan 0,5 % berat ditimbang dengan komposisi yang sesuai untuk membuat keramik berbasis CuFe₂O₄. Campuran serbuk tersebut dikalsinasi pada suhu 700°C selama 2 jam. Setelah dikalsinasi, serbuk campuran digerus dan diayak dengan ayakan yang berukuran < 38 μm. Serbuk hasil ayakan dipres dengan tekanan 4 ton/cm² sehingga membentuk pelet mentah. Pelet mentah kemudian disinter pada suhu 1100°C selama 2 jam di dalam atmosfer udara. Pelet hasil sinter dipotret untuk mengetahui penampilan visualnya.

Untuk mengetahui struktur kristal dan fase-fase yang terjadi, pelet hasil sinter dianalisis dengan difraksi sinar-x (XRD) dengan menggunakan radiasi K_α pada tegangan 40 kV dan arus 25 mA dan untuk mengetahui struktur mikronya pelet sinter dipotret menggunakan mikroskop optik setelah dilakukan pengampelasan secara berjenjang dan pemolesan serta pengetsaan secara termal. 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. Secara keseluruhan proses pembuatan keramik berbasis CuFe₂O₄ diperlihatkan pada Gambar 2.

Tabel.1. Komposisi serbuk yarosit hasil pemurnian dengan pelarutan pengendapan.

No.	Nama zat	Konsentrasi (% berat)
1.	Fe ₂ O ₃	98,40
2	TiO ₂	0,84
3.	SiO ₂	0,53
4.	Na ₂ O	0,12
5.	K ₂ O	0,08
6	Al ₂ O ₃	0,03

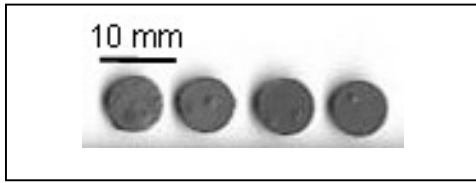


Gambar 2. Diagram alir proses penelitian.

4. HASIL DAN PEMBAHASAN

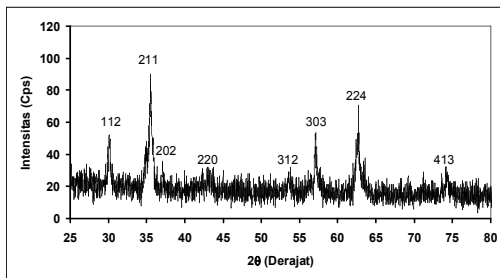
4.1 HASIL

Bentuk visual keramik yang dibuat dari yarosit ini dapat dilihat pada Gambar 3.

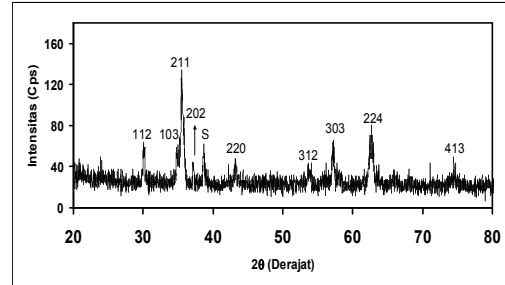


Gambar 3. Penampilan visual pelet keramik CuFe_2O_4 dengan Fe_2O_3 asal yarosit olahan yang ditambah Al_2O_3 . Terlihat adanya benjolan di permukaan pelet.

Hasil analisis XRD diperlihatkan pada Gambar 4 dan 5 serta struktur mikro diperlihatkan pada Gambar 6, 7 dan 8. Sementara itu hasil karakterisasi listrik diperlihatkan pada Gambar 9 dan Tabel 2.

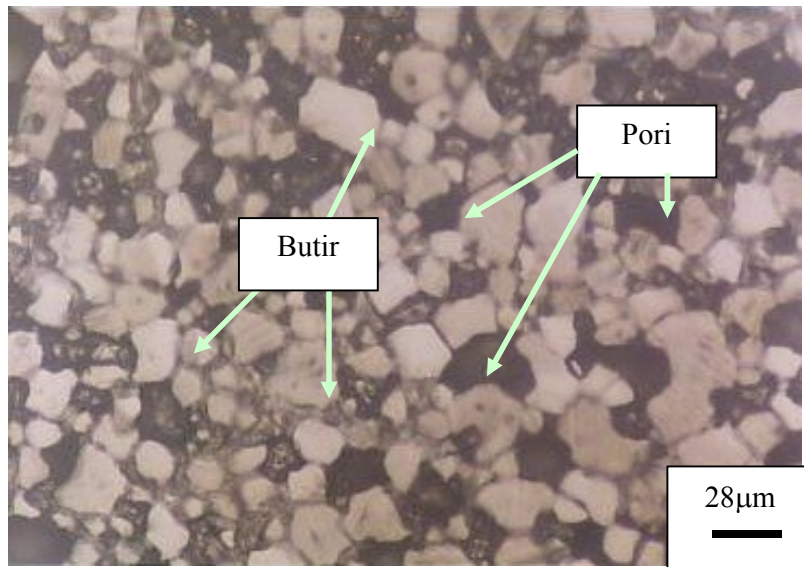


Gambar 4. Pola difraksi sinar-x keramik CuFe_2O_4 dengan Fe_2O_3 dari yarosit olahan tanpa aditif. Memperlihatkan struktur spinel tetragonal.

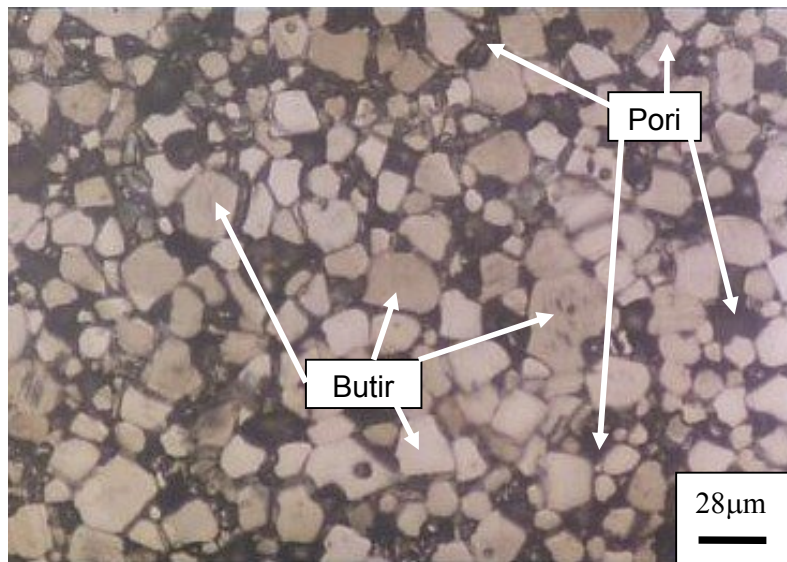


Gambar 5. Pola difraksi sinar-x keramik CuFe_2O_4 dengan Fe_2O_3 dari yarosit olahan ditambah 0,5 w/o Al_2O_3 . Memperlihatkan struktur spinel tetragonal.

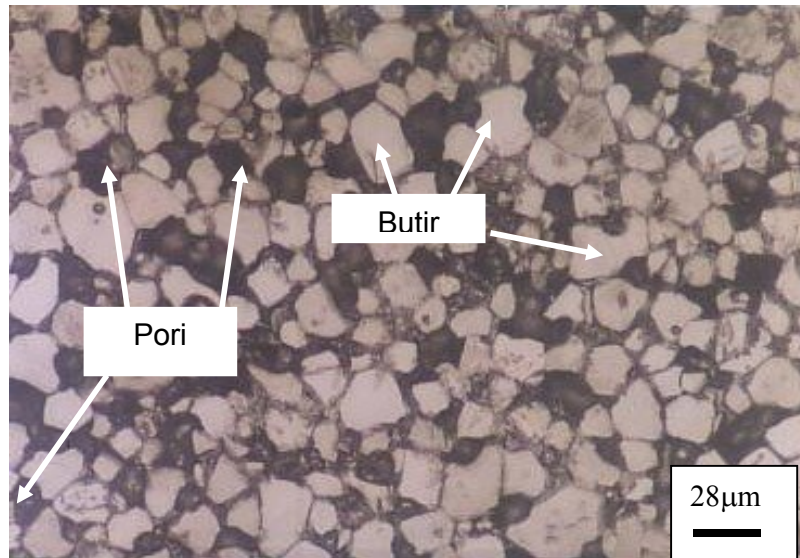
Data XRD pada Gambar 4 dan 5 memperlihatkan pola difraksi dari CuFe_2O_4 spinel tetragonal dan data struktur mikro, memperlihatkan bahwa keramik yang dibuat banyak mengandung pori/rongga.



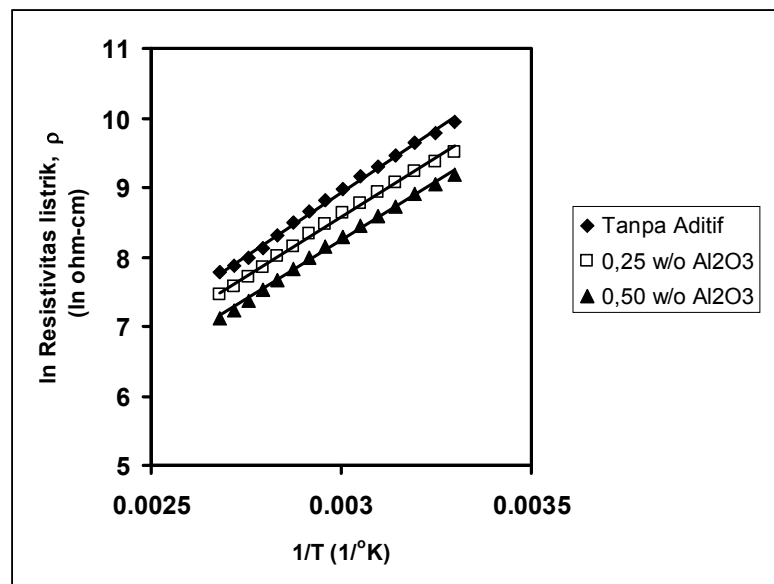
Gambar 6. Struktur mikro keramik CuFe_2O_4 dengan Fe_2O_3 asal yarisit olahan tanpa aditif.



Gambar 7. Struktur mikro keramik CuFe_2O_4 dengan Fe_2O_3 dari yarisit olahan yang ditambah 0,25 w/o Al_2O_3 .



Gambar 8. Struktur mikro keramik CuFe_2O_4 dengan Fe_2O_3 dari yarosit olahan yang ditambah 0,5 w/o Al_2O_3 .



Gambar 9. Hubungan antara \ln Resistivitas listrik dan $1/T$ keramik CuFe_2O_4 dengan Fe_2O_3 dari yarosit olahan, tanpa dan dengan aditif Al_2O_3 .

Tabel 2. Karakteristik listrik keramik CuFe_2O_4 dengan Fe_2O_3 dari yarosit olahan dengan dan tanpa penambahan Al_2O_3 .

No.	Al_2O_3 (w/o)	B ($^{\text{K}}$)	α (%/ $^{\text{K}}$)	ρ_{RT} (Kohm-cm)
1.	0	3625	4,03	25,1
2.	0,25	3386	3.76	16,3
3.	0,50	3403	3.78	11,8

4.2 PEMBAHASAN

Penampilan visual pelet keramik CuFe_2O_4 ditambah Al_2O_3 , ditunjukkan pada Gambar 1. Terdapat benjolan di permukaan keramik. Penyebab benjolan ini adalah senyawa berbentuk gas atau cairan yang terbentuk selama penyinteran..

Hasil analisis XRD memperlihatkan bahwa seluruh sampel tanpa dan dengan penambahan Al_2O_3 yang bervariasi, mempunyai struktur tetragonal spinel. Hal ini memperlihatkan bahwa pendinginan selama penyinteran relatif lambat dan penambahan Al_2O_3 tidak mengubah struktur kristal.. Untuk menghasilkan struktur kubik membutuhkan pendinginan yang cepat. Pola difraksi gambar 2 dan 3 didominasi puncak matriks tetragonal spinel. Terdapat puncak tambahan (S) pada pola difraksi keramik dengan penambahan 0,5% Al_2O_3 (Gambar 5)

Data struktur mikro Gambar 6-8 memperlihatkan bahwa keramik CuFe_2O_4 dengan Fe_2O_3 asal yarosit olahan yang ditambah Al_2O_3 , poros dan memiliki pori atau rongga yang relatif besar. Tendensi perubahan struktur mikro dengan pertambahan konsentrasi Al_2O_3 tidak jelas terlihat. Struktur mikro dengan rongga yang relatif besar kemungkinan disebabkan oleh adanya material yang menguap selama penyinteran dan meninggalkan rongga yang relatif besar.

Perubahan karakteristik listrik dipengaruhi oleh perubahan struktur mikro. Secara teoritis Al_2O_3 tidak mempengaruhi jumlah pembawa muatan jika larut padat di dalam keramik CuFe_2O_4 dengan mensubstitusi Fe. Jika Al_2O_3 yang ditambahkan larut di dalam keramik CuFe_2O_4 dengan mensubstitusi Fe, maka secara teoritis tidak akan menghasilkan tambahan elektron dan jika mensubstitusi Cu, maka secara teoritis akan menghasilkan elektron tambahan. Dengan kata lain resistivitas listrik akan turun. Data karakteristik listrik memperlihatkan bahwa resistivitas listrik cenderung menurun dengan pertambahan konsentrasi Al_2O_3 . Meski kecil, kemungkinan ion Al^{3+} (67,5pm[20]) mensubstitusi ion Cu^{2+} (87pm[20]) tetap ada. Kemungkinan yang kecil ini disebabkan oleh perbedaan ukuran ion di antara mereka yang demikian besar. Justru kemungkinan ion Al^{3+} mensubstitusi ion Fe^{3+} (69pm [20]) sangat besar karena perbedaan ukuran ion di antara mereka sangat kecil. Namun seharusnya jika ini terjadi, maka resistivitas listriknya membesar. Dengan melihat struktur mikro keramik yang relatif tetap (sama) meski ditambah dengan Al_2O_3 , kemungkinan penambahan Al_2O_3 telah menambah jumlah elektron di pita konduksi.

Seperti diperlihatkan oleh data Tabel 2, keramik CuFe_2O_4 dari Fe_2O_3 asal yarosit olahan

memiliki karakteristik termistor yang baik dan memenuhi kriteria pasar. Harga resistivitas listrik suhu ruang berada di tengah selang 10 ohm-cm-1Mohm-cm dan harga konstanta termistor (B) lebih besar dari pada 2000^{K} .

5. KESIMPULAN

.Keramik berbasis CuFe_2O_4 dengan bahan dasar Fe_2O_3 dari yarosit olahan yang ditambah Al_2O_3 poros dan memiliki pori atau rongga yang relatif besar. Tendensi perubahan struktur mikro dengan pertambahan konsentrasi Al_2O_3 tidak jelas terlihat. Struktur mikro dengan rongga yang relatif besar kemungkinan disebabkan oleh adanya material yang menguap selama penyinteran dan meninggalkan rongga yang relatif besar. Berdasarkan data listriknya terlihat bahwa keramik berbasis CuFe_2O_4 yang dibuat mempunyai karakteristik listrik yang baik dengan harga konstanta thermistor ($B = 3386-3625^{\text{K}}$) dan resistivitas listrik suhu ruang ($\rho_{\text{RT}} = 11,8-25,1 \text{ k}\Omega\text{cm}$). Harga-harga B dan ρ_{RT} ini memenuhi kebutuhan pasar.

6. UCAPAN TERIMA KASIH

Kami mengucapkan terimakasih kepada semua pihak yang telah memberi bantuan dalam kegiatan penelitian dan penulisan artikel ini. Penelitian ini didanai oleh Hibah Penelitian Kerjasama Antar Perguruan Tinggi (Pekerti) dengan Kontrak Nomor: 014/SPPP/PP/DP2M/II/2006 tanggal 24 April 2006.

7. 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",

- Journal of Ceramic Processing Research, Vol.2, No. 1, pp 31-34, 2001.
3. MATSUO YOSHIHIRO, HATA TAKUKI, KURODA TAKAYUKI, US Patent 4,324,702, 1982.
4. JUNG HYUNG J., YOON SANG O., HONG KI Y., LEE JEON K., US Patent 5,246,628, 1993.
5. HAMADA KAZUYUKI, ODA HIROSHI, US Patent 6,270,693, 2001.
6. PARK K., "Microstructure and electrical properties of $\text{Ni}_{1,0}\text{Mn}_{2-x}\text{Zr}_x\text{O}_4$ ($0 \leq x \leq 1.0$) negative temperature coefficient thermistors", Mater. Sci. Eng., B104 (2003)9-14.
7. PARK K., BANG D.Y., "Electrical properties of Ni-Mn-Co-(Fe) oxide thick film NTC thermistors", J. of Mater. Sci.: Mater. in Elec., Vol.14, (2003)81-87.
8. FRITSCH SHOPIE GULEMET, SALMI JAOUAD, SARRIAS JOSEPH, ROUSSET ABEL, SCHURMAN SHOPIE, LANNOO ANDRE, "Mechanical properties of nickel manganites-based cermics used as negative temperature coefficient thermistors", Mater. Res. Bull., Vol. 39 (2004)1957-1965.
9. R. SCHMIDT, A. BASU, A.W. BRINKMAN, , "Production of NTCR thermistor devices based on $\text{NiMn}_2\text{O}_{4+\delta}$ ", Journal of The European Ceramic Society, Vol. 24, pp. 1233-1236, 2004.
10. K. PARK, I.H. HAN, "Effect of Al_2O_3 addition on the microstructure and electrical properties of $(\text{Mn}_{0,37}\text{Ni}_{0,3}\text{Co}_{0,33-x}\text{Al}_x)\text{O}_4$ ($0 \leq x \leq 0.03$) NTC thermistors", Materials Science and Engineering, B119, pp. 55-60, 2005.
11. WIENDARTUN , DANI GUSTAMAN SYARIF, The Effect of TiO_2 Addition on the Characteristics of CuFe_2O_4 Ceramics for NTC Thermistors, International Conference on

Mathematics and Natural Sciences (ICMNS)
2006, ITB, Bandung, October 2006.

12. J.Z. JIANG, G.F. GOYA, H.R. RECHENBERG, *J. Phys.: Condens. Mater* 11, 4063 (1999).
 13. G.F. GOYA, H.R. RECHENBERG, J.Z. JIANG, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 218, 221 (2000).
 14. G.F. GOYA, H.R. RECHENBERG, *journal of Applied Physics*, 84 (2), 1101 (1998).
 15. C.R. ALVES, R. AQUINO, M.H. SOUSA, H.R. RECHENBERG, G.F. GOYA, F.A. TOURINHO, J. DEPEYROT, *Journal of Metastable and Nanocrystalline Materials* 20-21, 694 (2004).
 16. KAMEKA SATOSHI, TANABE TOYKAZU, TSAI AN, *Catalyst Letters*, Vol. 100, No. 1-2, pp. 89-93, 2005.
 17. W.F. SHANGGUAN, Y. TERNAKA, S. KAGAWA, *Applied Catalysis , Part B*, Vol. 16, N0.2, pp. 149-154, 1998.
 18. R.C. WU, H.H. QU, H. HE. Y.B. YU, *Applied Catalysis , Part B* 48 (1), 49 (2004).
- [19]. ANONYMOUS, *Phase diagram for Ceramics*, ASTM.
- [20] BARSOUM M., *Fundamental of Ceramics*, McGraw-Hill, 1997.