

KARAKTERISASI PENGARUH DOPAN Mn PADA BAHAN KERAMIK PIEZOELEKTRIK *LEAD ZIRCONIUM TITANATE* ($Pb[Zr_xTi_{1-x}]O_3$)

Mardiyanto dan Syahfandi Ahda

¹Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN) - Badan Tenaga Nuklir Nasional
Kawasan Puspiptek, Serpong 15314, Tangerang Selatan
e-mail: mardiyanto_panitra@yahoo.co.id dan ahda@batan.go.id

Diterima: 4 Juni 2013

Diperbaiki: 17 September 2013

Disetujui: 21 November 2013

ABSTRAK

KARAKTERISASI PENGARUH DOPAN Mn PADA BAHAN KERAMIK PIEZOELEKTRIK *LEAD ZIRCONIUM TITANATE* ($Pb[Zr_xTi_{1-x}]O_3$). Telah dilakukan penelitian pembuatan bahan piezoelektrik *Lead Zirconium Titanate* (PZT) yang diberi bahan dopan Mn. Penambahan bahan dopan ini bertujuan untuk menaikkan sifat piezoelektrisitas dari PZT. Senyawa yang dianalisa pada penelitian ini adalah $Pb[Zr_{0,5}Ti_{0,5-x}Mn_x]O_3$, dengan harga x (nominal) bernilai 0,05; 0,125; 0,25; 0,35. Hasil analisis menunjukkan bahan dengan dopan Mn ini diperoleh peningkatan suhu *curie* berkisar antara 15 sampai 35 °C. Namun konstanta dielektrikum menjadi turun dibandingkan dengan PZT murni.

Kata kunci: Bahan Piezoelektrik, PZT, dopan, suhu *curie*, konstanta dielektrikum

ABSTRACT

CHARACTERIZATION OF MN DOPAN EFFECT ON LEAD ZIRCONIUM TITANATE ($Pb [Zr_xTi_{1-x}] O_3$) PIEZOELECTRIC CERAMIC MATERIAL. The aim of the research is to synthesis lead zirconium titanate (PZT) ceramic piezoelectric material that has been added by Mn as a dopant material. The addition of dopant material it is to raise piezoelectricity properties of PZT. Compound that will be analyzed in this study was $Pb[Zr_{0,5}Ti_{0,5-x}Mn_x]O_3$, with the x (nominal) values of 0.05, 0.125, 0.25, 0.35. The results showed that with this added Mn dopant the *curie* temperature increases ranging from 15 to 35 °C. However, the dielectric constant decreases compared with the pure PZT.

Keywords: Piezoelectric material, PZT, dopant, *curie* temperature, dielectric constant

PENDAHULUAN

Lead Zirconium Titanate ($Pb[Zr_xTi_{1-x}]O_3$) merupakan salah satu material yang bersifat piezoelektrik kuat yang dikembangkan terus sampai saat ini. Secara komersial $Pb[Zr_xTi_{1-x}]O_3$ dinamai dengan PZT. Bahan ini merupakan bahan dielektrik yang bersifat ferroelektrik pada suhu kamar hingga suhu *curie*, dan relatif getas. Proses sintesis pada bahan ini masih dilakukan agar mendapatkan sifat piezoelektrik cukup tinggi dengan sifat mekanis yang baik.

Simetri kristal dari material PZT adalah tetragonal dengan parameter kisi $a = 4,036 \text{ \AA}$ dan $c = 4,146 \text{ \AA}$ dengan rasio c/a sekitar 1,023. Hasil penelitian sebelumnya menunjukkan bahwa material PZT memiliki parameter kisi $a = (4,1220 \pm 0,0197) \text{ \AA}$ dan $c = (4,0792 \pm 0,2226) \text{ \AA}$ dengan sistem kristal tetragonal [1].

Pengembangan bahan PZT perlu dilakukan, salah satunya dengan penambahan bahan-bahan dopan. Penambahan bahan dopan tersebut berperan dalam pembentukan bahan piezoelektrik komposit yang dapat

meningkatkan sifat mekanisnya. Hal ini terjadi karena bahan dopan tersebut tidak akan bereaksi dengan matriksnya yang memiliki fasa ferroelektrik. Pengembangan bahan piezoelektrik baru yang paling sederhana didasarkan pada pendekatan secara empiris [2]. Ada beberapa teori yang agak rumit berdasarkan faktor toleransi seperti yang dikembangkan oleh Goldschmidt yang selanjutnya disebut *Goldschmidt Tolerance Factor*. Perhitungan faktor ini didasarkan pada ketiga jenis jari-jari atom yang menyusun struktur *perovskite* yakni ABO_3 .

Penelitian yang didasarkan pada teori ini menunjukkan bahwa untuk mendapatkan bahan piezoelektrik PZT yang terbaik maka harga faktor berkisar 0.75-1.00 [3]. Teori kedua yang disebut *Bond Valence Tolerance Factor* [4]. Namun teori ini kurang efektif untuk perbaikan kualitas bahan piezoelektrik. Cara ketiga disebut dengan *Weight Factor* [5], dimana dinyatakan bahwa semakin besar harga faktor ini maka sifat piezoelektrik suatu bahan akan menjadi semakin baik. Teori yang lain adalah didasarkan adanya *morphotropic*

phase boundary, MPB. Agar hal ini tercapai maka penambahan dopan dilakukan dalam orde 1-2 mol% [6].

Pada penelitian ini dilakukan berdasarkan pada teori adanya *morphotropic phase boundary*, MPB pada komposisi x sekitar 50 % untuk sintesis $PbZr_xTi_{(1-x)}O_3$ dengan metoda *solid state reaction* (reaksi padatan). Hal ini menjadi menarik dikarenakan komposisi sekitar x= 50% menunjukkan suatu anomali konstanta dielektrikum [2]. Karakterisasi ini secara fisik tergantung juga dengan bentuk morfologi, struktur kristal, distribusi partikel dan besaran butiran, disamping metodologi sintesis itu sendiri.

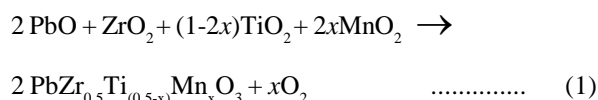
Pengembangan bahan PZT dewasa ini sangat perlu ditingkatkan, agar kinerja aktuator atau sensor lebih meningkat, disamping teknologi fabrikasinya juga ditingkatkan. Ada beberapa hal penting yang harus dimiliki oleh bahan piezoelektrik diantaranya adalah keuletan bahan dan sifat piezoelektrik yang tinggi. Dari beberapa literatur disimpulkan bahwa kedua sifat tersebut akan dipengaruhi oleh bahan-bahan dopan yang bersifat donor untuk peningkatan sifat piezoelektrik dan bahan logam-logam *noble* untuk peningkatan sifat mekanik. Doping adalah memberikan impuritas atau pengotor untuk memperbaiki kualitas dari suatu bahan. Secara umum bahan dopan bahan isovalen akan menyebabkan turunnya suhu *curie* namun menaikkan harga konstanta dielektrikum dan sifat piezoelektrik. Bahan dopan yang isovalen diantaranya adalah Sr atau Ba untuk Pb, dan Mn untuk Zr or Ti. Bahan dopan yang menurunkan tegangan poling atau medan koersif adalah La untuk Pb, dan Nb untuk Zr atau Ti [7]. Bahan PZT yang diberi donor bahan-bahan ini akan menaikkan nilai koefisien piezoelektriknya.

Dengan berdasarkan pada teori tersebut di atas maka untuk memperbaiki sifat piezoelektrik bahan PZT akan ditambahkan bahan dopan. Adapun bahan yang diharapkan akan meningkatkan konstanta dielektrik adalah Mn. Pengembangan bahan dilakukan dengan cara penambahan bahan dopan Mn dalam PZT yang diharapkan menggeser posisi atom Zr atau Ti dalam struktur kristal perovskite. Besar jari-jari ketiga jenis atom tersebut tidak terlalu jauh yaitu Ti = 0,145 nm, Zr = 0,160 nm dan Mn = 0,160 nm dan elektron valensi +4. Oleh karena unsur Mn memiliki elektron valensi yang sama dan jari-jari atom yang hampir sama dengan Zr dan Ti sehingga diharapkan penambahan unsur ini akan menggantikan posisi atom Zr dan Ti sehingga dapat meningkatkan performa bahan piezoelektrik. Bahan piezoelektrik dari $BaTiO_3$ sebagaimana dikembangkan oleh PTBIN pada RUT V tahun 1997 – 2000 telah berhasil didoping dengan bahan Mn dan Si [8]. Dengan penambahan bahan dopan di atas dapat dijadikan suatu alternatif untuk pengembangan bahan PZT.

METODE PERCOBAAN

Bahan

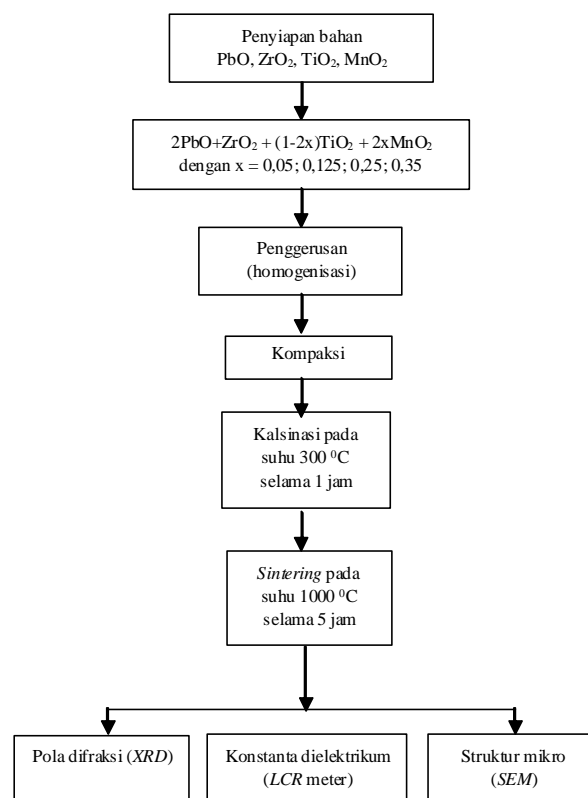
Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah: PbO , ZrO_2 , TiO_2 dan MnO_2 dalam bentuk serbuk. Senyawa yang akan dianalisa pada penelitian ini adalah $Pb[Zr_{0,5}Ti_{0,5-x}Mn_x]O_3$, dengan harga x (nominal) bernilai 0,05; 0,125; 0,25; 0,35. Untuk mendapatkan komposisi dari senyawa ini maka fraksi mol dari masing-masing unsur ditentukan berdasarkan reaksi kimia berikut ini.



dengan harga x sebesar 0,05; 0,125; 0,25; 0,35 maka berat masing-masing bahan dasar dapat ditentukan.

Prosedur Percobaan

Tahapan kegiatan yang dilakukan dalam penelitian ini ditunjukkan secara skematis pada Gambar 1 berikut ini:



Gambar 1. Prosedur percobaan

Sintesis Bahan

Sintesis bahan dibagi dalam 4 kelompok sampel yaitu PbO , ZrO_2 , TiO_2 dan MnO_2 yang disintesis dengan perbandingan mol sebagai berikut:

Bahan-bahan tersebut digerus selama lebih kurang 4 jam hingga diperkirakan sudah homogen, kemudian dikompaksi, dikalsinasi pada suhu 300 °C untuk menghilangkan kontaminan bahan organik selama 1 jam dan sintering pada suhu 1000 °C selama 5 jam [9].

Tabel 1. Perbandingan mol unsur dasar pembentuk sampel Mn-1, Mn-2, Mn-3 dan Mn-4.

Sampel	Mol			
	bO	iO ₂	rO ₂	MnO ₂
Mn-1	1	0,45	0,5	0,05
Mn-2	1	0,375	0,5	0,125
Mn-3	1	0,25	0,5	0,25
Mn-4	1	0,15	0,5	0,35

Karakterisasi

Pelet yang telah selesai kemudian dikarakterisasi untuk melihat dan menentukan pola difraksi, konstanta dielektrik serta struktur mikronya. Pengukuran pola difraksi dilakukan menggunakan difraktometer sinar-X dan struktur mikro diamati menggunakan SEM.

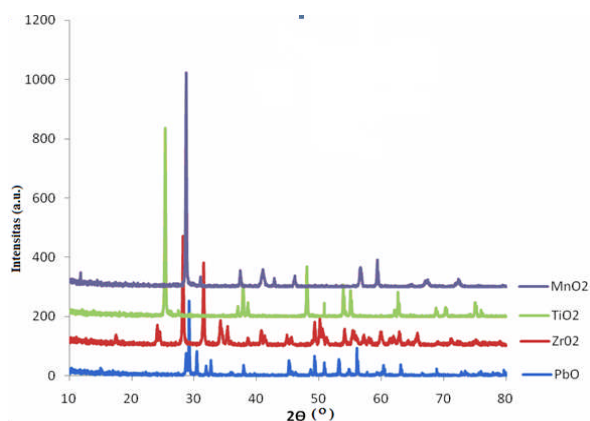
HASIL DAN PEMBAHASAN

Berdasarkan hasil percobaan yang telah dilakukan dapat dijelaskan hasil percobaan mengenai pengaruh penambahan Mn, terhadap struktur kristal dan konstanta dielektrik dari $Pb[Zr_{0,5}Ti_{0,5-x}Mn_x]O_3$. Hasil percobaan yang telah dilakukan tersebut akan dibandingkan dengan struktur kristal dan konstanta dielektrik dari PZT ($PbZr_{0,5}Ti_{0,5}O_3$).

Pola Difraksi

Analisis Pola Difraksi Bahan Dasar

Bahan dasar pada penelitian ini adalah PbO, ZrO₂, TiO₂, MnO₂ berupa serbuk telah dikarakterisasi dengan menggunakan XRD (X-ray diffraction). Pola difraksi dapat ditunjukkan pada Gambar 2 dengan rentang sudut difraksinya berkisar dari 10° – 80°.

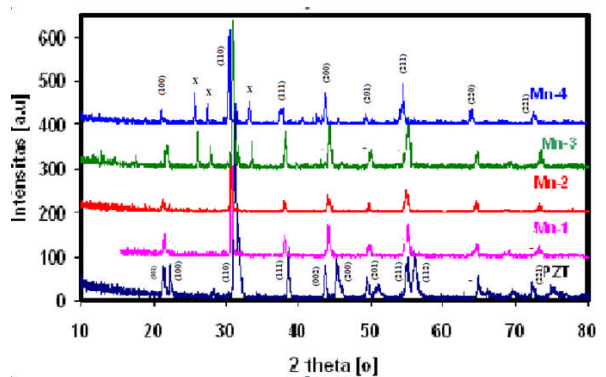


Gambar 2 Bahan dasar PZT dan gabungan bahan dasar

Analisis Pola Difraksi PZT Dengan Dopan Mn

Bahan dasar PZT ditambah dengan bahan dasar MnO₂ dan digerus lebih kurang selama 4 jam. Proses penggerusan menyebabkan adanya perubahan warna yang dapat dilihat secara kasat mata dari warna jingga menjadi warna abu-abu. Pelet yang telah disinter berubah warna dari abu-abu menjadi lebih pekat mendekati warna hitam.

Pelet yang telah selesai disintesis kemudian dikarakterisasi dengan XRD. Hasil yang didapatkan menunjukkan pola difraksi dengan puncak yang agak berbeda dengan puncak-puncak bahan dasar akan tetapi hampir sama dengan pola difraksi PZT (Gambar 3). Adapun pengidentifikasian PZT tanpa dopan pada telah dilakukan pada penelitian sebelumnya [9].



Gambar 3. Pola difraksi sinar-x dari hasil sintesis PZT penambahan dengan Mn pada suhu sintering 1000 °C

Pola difraksi dari gabungan bahan dasar memiliki puncak yang sangat banyak dimana puncak tertinggi berasal dari bahan dasar TiO₂ dan MnO₂. Pada PZT terdapat puncak-puncak kembar yaitu 21,54° dengan 22,54°; 30,16° dengan 30,18°; 43,5° dengan 45,38°; 49,64° dengan 51,37°; 55,14° dengan 55,96°, ini membuktikan bahwa bahan piezoelektrik tersebut berstruktur tetragonal [9]. Pada sudut 2θ yaitu 28,759° dan 25,400° terlihat puncak yang tidak diketahui dan tidak terdapat pada pola difraksi PZT. Hal ini kemungkinan disebabkan oleh kontaminan bahan lain (pengotor) baik yang datang pada saat sintesis maupun fasa setelah PZT. Sudut tersebut merupakan puncak maksimum bahan dasar dari TiO₂ dan MnO₂ karena adanya kemungkinan sebagian bahan-bahan dasar ada yang tidak bereaksi.

Berdasarkan pola difraksi yang terbentuk dapat dilihat antara PZT murni dan PZT dengan dopan Mn terjadi sedikit pergeseran puncak ke arah kiri. Puncak-puncak ganda hilang tetapi sudah menunjukkan puncak yang teratur jika dibandingkan dengan puncak-puncak bahan dasar. Hal ini membuktikan bahwa struktur kristal yang terbentuk adalah rhombohedral *perovskite* [10]. Pada sampel Mn-3 dan Mn-4 terdapat puncak asing di sudut 25,4°; 28,76° dan 33,1° (Gambar 3 puncak-puncak X) yang diakibatkan hanya sebagian yang bereaksi antara PZT dengan MnO₂ yang memiliki jumlah mol yang

besar dibandingkan dengan Mn-1 dan Mn-2 atau mungkin membentuk fase baru. Parameter kisi dari penambahan dopan Mn dapat dihitung untuk struktur kristal rhombohedral [11]. Parameter kisi yang didapatkan dengan menggunakan rumus tersebut diperoleh seperti pada Tabel 2.

Tabel 2 Parameter kisi sampel PZT dengan dopan Mn

No.	Penambahan Mn	Kode Sampel	a = b = c	$\alpha = \beta = \gamma$
1	0,050	Mn-1	4,0740	91,6847
2	0,125	Mn-2	4,1554	92,2344
3	0,250	Mn-3	4,0818	90,5954
4	0,350	Mn-4	4,1181	91,2776

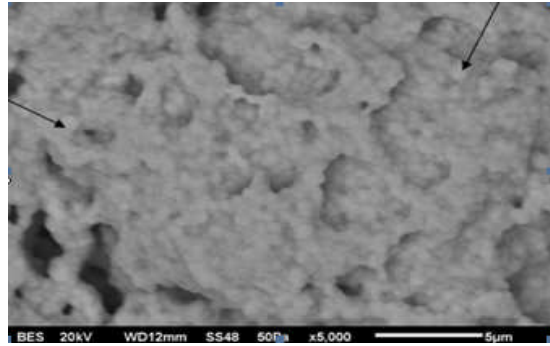
Berdasarkan hasil yang didapatkan terlihat bahwa adanya pergeseran sudut beberapa derajat dan parameter kisi keempat sampel tersebut, namun tidak terlalu besar dan masih berdekatan dengan data dari *International Center for Diffraction Data (ICDD)* material PZT yang memiliki sistem kristal tetragonal dengan parameter kisi $a = 4,036 \text{ \AA}$ dan $c = 4,146 \text{ \AA}$ [6], Telah dilaporkan oleh peneliti lain bahwa PZT bubuk memiliki kisi $a = 4,1220 \pm 0,0197 \text{ \AA}$ dan $c = 4,079 \pm 0,2226 \text{ \AA}$ [1]. Dari data parameter kisi maka PZT yang terbentuk setelah diberi bahan dopan Mn memiliki struktur kristal yang berbeda dari literatur dimana kristal yang terbentuk berstruktur rhombohedral, sedangkan PZT murni berstruktur tetragonal.

Penambahan dopan Mn pada sampel Mn-1 menunjukkan penggabungan dua puncak menjadi satu puncak (*overlapping*) yang mengindikasikan terjadinya perubahan struktur dari tetragonal ke rhombohedral. Namun pada sampel Mn-2 menunjukkan pola difraksi daerah transisi (yang ditunjukkan oleh dua puncak pada sudut $43,5^\circ - 45,38^\circ$). Hal ini menunjukkan bahwa pada proses ini terbentuk dua fasa yakni rhombohedral dan tetragonal. Maka dari itu komposisi PZT dengan penambahan MnO_2 untuk sampel Mn-1 dan Mn-2 menunjukkan adanya daerah MPB (daerah batas antar dua struktur). Daerah MPB ini sangat penting sekali dalam sintesis bahan piezoelektrik, karena pada daerah ini sifat piezoelektrik bahan dapat meningkat secara tajam, sebagaimana terlihat juga pada komposisi PZT yang berasal dari PbZrO_2 dengan PbTiO_3 [12].

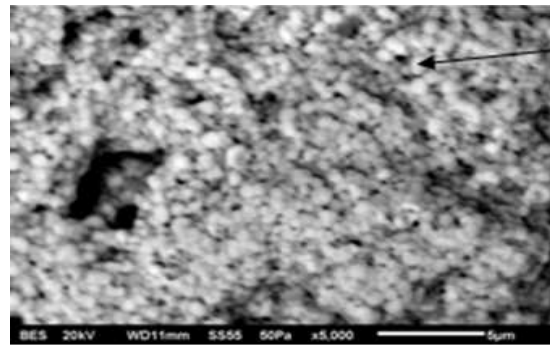
Perbedaan struktur ini tentu saja akan berpengaruh pada besarnya *dipole* listrik yang terbentuk. Perubahan ini diharapkan akan memperbaiki kualitas dari bahan piezoelektrik ini.

Struktur Mikro

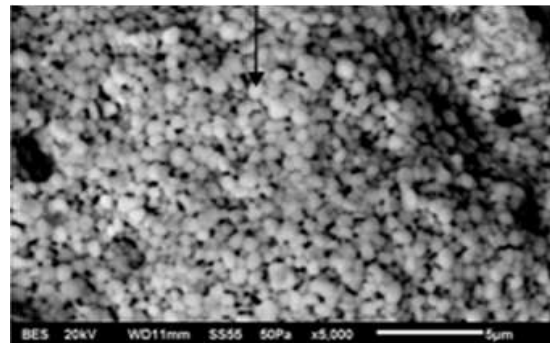
Hasil analisis yang ditunjukkan oleh *Scanning Electron Microscope (SEM)* memperlihatkan bentuk butiran PZT yang diberi dopan Mn. Pada SEM dapat dilihat bentuk butiran PZT dengan penambahan dopan



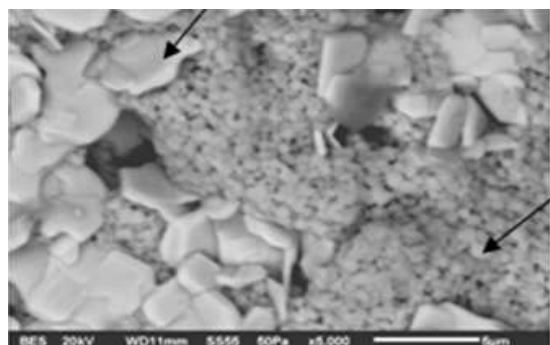
Gambar 4 . Mikrograf sampel Mn-1



Gambar 5 . Mikrograf sampel Mn-2



Gambar 6 . Mikrograf sampel Mn-3



Gambar 7 . Mikrograf sampel Mn-4

Mn seperti yang ditunjukkan oleh tanda anak panah (Gambar 4).

Hasil analisis menunjukkan bahwa pada tiap-tiap sampel (berbentuk pelet) terlihat butiran-butiran yang

kecil. Pada Gambar 4 terlihat bentuk butir yang tidak teratur dan menyatu antar butirannya. Pada Gambar 5 bentuk butirannya sudah mulai tampak seperti bola kecil, tetapi masih tampak perbedaan volume antara butiran yang satu dengan lainnya. Pada Gambar 6 butiran-butirannya sudah tampak berbentuk bola yang hampir sama besar seluruhnya serta terlihat ada jarak antara butirannya. Pada Gambar 7 dapat dilihat bahwa terbentuk dua jenis butiran, hal ini disebabkan dengan penambahan mol MnO_2 yang besar mungkin terbentuk fasa lain sehingga bentuk butiran yang lebih besar.

Tabel 3 Kandungan unsur dari sampel PZT dengan dopan Mn

Unsur atom	Massa (%)	Atom (%)
O	11,03	51,66
Ti	6,25	9,77
Mn	0,93	1,27
Zr	16,83	13,82
Pb	64,95	23,48

Kandungan berbagai unsur kimia dari keempat sampel dapat dilihat dengan menggunakan teknik *Electron Dispersive X-Ray Spectroscopy (EDS)*. Sampel-sampel tersebut hanya mengandung bahan dasar yang membentuknya dan tidak terkontaminasi oleh unsur lain (Tabel 3).

Konstanta Dielektrik

Konstanta dielektrik merupakan suatu faktor yang mana suatu zat tertentu dapat mengurangi gaya elektrostatis antara dua benda bermuatan yang terpisah dalam kondisi vakum. Gaya elektrostatis adalah gaya tarik atau gaya tolak yang disebabkan oleh antar aksi muatan listrik, dan ini juga terjadi pada bahan uji yang mengandung fasa utama $Pb[Zr_{0,5}Ti_{0,5-x}Mn_x]O_3$.

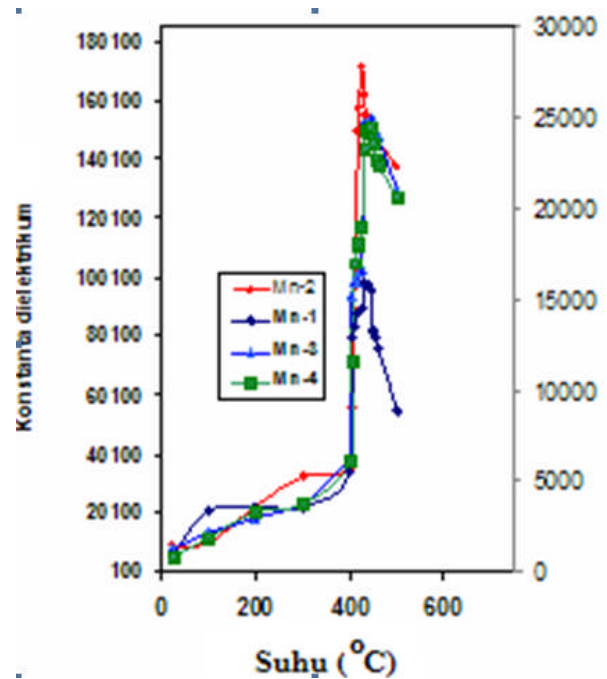
Pengukuran konstanta dielektrik dengan variasi temperatur dimulai dari suhu kamar sampai dengan 500 °C. Berdasarkan percobaan yang telah dilakukan maka nilai konstanta dielektrik bahan $Pb[Zr_{0,5}Ti_{0,5-x}]Mn_xO_3$ yang didapat adalah seperti yang terdapat pada Gambar 8.

Gambar 8 memperlihatkan grafik pengaruh suhu terhadap konstanta dielektrik untuk sampel Mn-1, Mn-2, Mn-3 dan Mn-4. Konstanta dielektrik maksimum sampel Mn-2 berada pada suhu 425 °C dengan nilai 1712,3. Nilai konstanta dielektrik maksimum sampel Mn-2 lebih besar dan bergeser mendekati suhu ruang daripada sampel Mn-1.

Konstanta dielektrik maksimum untuk sampel Mn-3 ini berada pada suhu 445 °C dengan nilai 1496,5. Nilai konstanta dielektrik maksimum sampel ini lebih besar daripada Mn-1 dan Mn-4. Namun suhu saat mencapai konstanta dielektrik maksimum lebih menjauhi dari suhu kamar dibandingkan dengan sampel Mn-1 dan sampel Mn-2.

Pada Gambar 8 terlihat bahwa sampel Mn-4 memperoleh nilai konstanta dielektrik maksimum pada suhu 445 °C yaitu nilai 1449,7. Nilai konstanta dielektrik

maksimum sampel ini lebih kecil daripada sampel Mn-3. Hasil analisis harga maksimum konstanta dielektrik dari PZT dan PZT-Mn menunjukkan bahwa penambahan unsur Mn pada PZT menurunkan konstanta dielektrik (PZT murni harga konstanta dielektriknya adalah 7.800, namun meningkatkan nilai suhu *curie* dari PZT murni dari 410 °C [7] menjadi 445 °C. Penurunan harga konstanta dielektrik dari bahan piezoelektrik berpengaruh pada besarnya kapasitansi dari suatu sensor atau aktuator yang terbuat dari bahan piezoelektrik sehingga kualitasnya akan menurun. Kualitas piezoelektrik bahan ini menurun namun karena suhu *curie* membesar maka suhu operasinya menjadi semakin tinggi sehingga lebih menguntungkan apabila sensor atau aktuator dioperasikan dalam lingkungan suhu yang lebih tinggi. Suatu sensor atau aktuator yang terbuat dari bahan piezoelektrik akan kehilangan sifat piezoelektrik apabila dioperasikan pada suhu di atas suhu *curie*.



Gambar 1. Konstanta dielektrik sampel Mn-1, Mn-2, Mn-3 dan Mn-4 sebagai fungsi suhu

Konstanta dielektrik tertinggi untuk berbagai perubahan suhu ditunjukkan pada sample Mn-2 yang berbeda jauh nilai-nilai puncak tertingginya dengan sample Mn-1, Mn-3 dan Mn-4. Pada daerah tertinggi ini (sample Mn-2) mengartikan adanya daerah MPB. Sehingga dalam analisa struktur kristal dari pola difraksinya adalah menindikasi daerah MPB pada sample Mn-2 dan bukan pada sample Mn-1.

KESIMPULAN

Berdasarkan hasil penelitian yang telah dilakukan dengan melihat pengaruh penambahan dopan Mn terhadap struktur kristal, pola difraksi dan konstanta

dielektrik dari keramik PZT maka dapat disimpulkan bahwa dari hasil sintesis PZT yang mengandung Mn dari bahan dasar PbO, ZrO₂, TiO₂, dan MnO₂ dengan perbandingan mol 1 : 0,5 : 0,25 : 0,25 menunjukkan hasil yang paling bagus dibandingkan ketiga sampel lainnya. Struktur kristal yang terbentuk pada sampel terbaik (Mn-2) adalah rhombohedral dengan parameter kisinya a=b=c=4,1554 Å dan α=β=γ=92,2344° dan namun mengindikasikan adanya daerah MPB serta diperoleh harga konstanta dielektrikum tertinggi yakni 1712,3. Hasil SEM menunjukkan bahwa sampel Mn-2 telah membentuk struktur mikro yang homogen serta tidak ada fasa lain yang ikut bercampur. Membandingkan dengan PZT murni, konstanta dielektrikum PZT yang diberi bahan dopan harganya menurun namun suhu curie naik 35 °C sehingga suhu operasi sensor atau aktuator yang dibuat dari bahan ini menjadi lebih baik.

DAFTARACUAN

- [1]. T. Y. Raksa. "Pengujian Maerial dengan Difraksi Sinar-X (XRD) untuk Menentukan Standar Mikroskopis Material Ferroelektrik PbZr_{0,375}Ti_{0,325}O₃ (PZT)," dipresentasikan di Badan Standardisasi Nasional (BSN) Jakarta, 2002.
- [2]. A. Dantziger, L. Reznitchenko, O. Rasumovskaya, V. Sakhnenko, and Naumov. "A. Fifty years of investigations and developments to create ferro-piezoceramic materials", in *Dielectric Ceramic Materials: Ceramic Transactions*, vol. 100, K. Nair and A.S. Bhalla. New York:Wiley
- [3]. S. Yamanaka, K. Kurosaki, T. Oyama, H. Muta, M. Uno, T. Matsuda, and S. I. Kobayashi. "Thermophysical properties of perovskite-type strontium cerate and zirconate." *Journal of the American Ceramic Society*, vol.88 (6), pp.1496-1499, Jun. 2005.
- [4]. C. Walsh and W. Schulze. "Bond valence structure analysis of doped bismuth sodium titanate," in *14th IEEE International Symposium on Applications of Ferroelectrics, ISAF-04*, 2004, pp. 328-331.
- [5]. H. Yan, D. Xiao, P. Yu, J. Zhu, D. Lin, and G. Li. "The dependence of the piezoelectric properties on the differences of the A-site and B-site ions for (Bi_{1-x}Na_x)TiO₃-based ceramics." *Materials & Design*, vol.26 (5), pp. 474- 478, August. 2005.
- [6]. Z. Yu, V. D. Krstic, and B. K. Mukherjee. "Microstructure and properties of lead-free (Bi_{1/2}Na_{1/2})TiO₃ based piezoelectric ceramics doped with different cations." *Journal of Material Science*, 42 (10), pp. 3544-3551, Feb. 2007.
- [7]. S. R. McLaughlin. "Fabrication and Properties of Bi_{1/2}Na_{1/2}TiO₃ Based Ferroelectric Ceramics with Low Levels of B-site Additives." Doctoral Dissertation, Queen's University Kingston, Ontario, Canada, 2008.
- [8]. N. Zulkarnain, A. Purwanto, J. Sarwanto dan Yatno. "Pengaruh Penambahan 0,5 Mol Berat Mn Terhadap Fasa dan Struktur Kristal Barium Titanat (BaTiO₃)." *Jurnal Ilmu dan Rekayasa Material*, I(3), hal. 46-57, des. 1999.
- [9]. S. Ahda dan Mardiyanto. "Pola Difraksi Sinar-X Produk Sintesis Bahan Piezoelektrik PbZr_xTi_{1-x}O₃ dengan metoda Solid State Reaction." *Jurnal Sains Materi Indonesia*, hal.127-130, des. 2009.
- [10]. S. H. Kim, J. S. Yang, C. Y. Koo, J. H. Yeom, D. S. Lee, C. S. Hwang, K. H. Hwang, and Jowoong Ha. "Electromechanical Properties of Pb(Zr,Ti)O₃ Films for MEMS Applications." *J. Kor. Phys. Soc.*, vol. 42, pp. S1101, April. 2003.
- [11]. B. D. Cullity, *Elements of X-Ray Diffraction, 2nd Edition*. Sidney: Addison-Wesley Publishing Company, Inc., 1978.
- [12]. J. Chen, X. Tan, W. Jo, and J. Rodel. "Temperature dependence of piezoelectric properties of high-Tc Bi(Mg_{1/2}Ti_{1/2})O₃-PbTiO₃." *J.Appl. Phys.*, vol. 106, 034109. 2009.