

PENGARUH PENAMBAHAN BAHAN DOPAN Ta₂O₅ PADA BAHAN PIEZOELEKTRIK RAMAH LINGKUNGAN (K_{0,5}Na_{0,5})_{0,96}Li_{0,04}NbO₃ DENGAN MENGGUNAKAN SINTESIS METODE MOLTEN SALT

Awaluddin¹⁾, Alimin Mahyudin¹⁾, Syahfandi Ahda²⁾

¹⁾Jurusan Fisika FMIPA Universitas Andalas
Kampus Unand, Limau Manis, Padang, 25163

e-mail: Awaluddin020@gmail.com

²⁾Badan Tenaga Nuklir Nasional

ABSTRAK

Telah dilakukan penelitian tentang pengaruh penambahan bahan dopan Ta₂O₅ pada bahan piezoelektrik ramah lingkungan (K_{0,5}Na_{0,5})_{0,96}Li_{0,04}NbO₃ (KNLN) dengan metode sintesis *molten salt*. Dalam penelitian ini dilakukan variasi persentase mol bahan dopan Ta₂O₅ sebesar 3%, 7%, 10% dan 12%. Sintesis dilakukan dengan parameter penggerusan selama 4 jam, kalsinasi pada suhu 250⁰C selama 1 jam, dan sintering pada suhu 920⁰C selama 4 jam. Berdasarkan analisis XRD dapat diidentifikasi bahwa struktur bahan piezoelektrik KNLNT (KNLN + dopan) pada penambahan 3% dan 7% cenderung ortorhombik, sedangkan pada penambahan 10% dan 12% cenderung tetragonal. Pada penambahan 7% mol Ta₂O₅ terjadinya penurunan nilai c/a yang tajam. Hal ini menunjukkan bahwa pada rentang komposisi inilah daerah *motphotropic phase boundary* berada. Hasil SEM menunjukkan pada penambahan dopan 3% ukuran partikel adalah 0,0884-0,7869 μm dan penambahan dopan 12% terjadi lonjakan tajam ukuran partikel yaitu sebesar 0,1563-1,5793 μm.

ABSTRACT

Research on the effect of the addition of dopant materials Ta₂O₅ on environmentally friendly piezoelectric materials (K_{0,5}Na_{0,5})_{0,96}Li_{0,04}NbO₃ (KNLN) with molten salt synthesis method has been conducted. In this study, the mole percentage dopant materials varied by 3%, 7%, 10% and 12%. Synthesis was conducted with parameters: grinding for 4 hours, temperature calcination at 250⁰C for 1 hour, and sintering at a temperature of 920⁰C for 4 hours. Based on XRD analysis, it can be identified that the structure of the piezoelectric material KNLNT (KNLN + dopant) on the addition of 3% and 7% tend orthorhombic, while the addition of 10% and 12% tend to tetragonal. In addition of 7 % mol of Ta₂O₅, the c/a value decrease sharply. This value indicates that motphotropic phase boundary is located in this composition range. The SEM results show that at addition of 3% dopants the particle size is from 0.0884 to 0.7869 μm and at addition of 12% dopant the particle size increase sharply that to 0.15623 until 1.5793 μm.

I. PENDAHULUAN

Bahan piezoelektrik adalah suatu bahan yang menarik untuk dikembangkan dan diteliti saat ini, karena memiliki fenomena yang dapat membangkitkan muatan listrik pada saat material dikenai tekanan mekanis dan begitu juga sebaliknya.

Dengan kemajuan teknologi industri bahan, para peneliti telah banyak mengembangkan bahan piezoelektrik dengan berbagai aplikasi diantaranya *cantilever* untuk menghasilkan listrik berdaya rendah, motor listrik mini, mikropon. Gelombang-gelombang tersebut dengan panjang gelombang yang sangat rendah dapat menembus jaringan tubuh, sehingga pantulan gelombang tersebut merepresentasikan hasil dari USG.

Dewasa ini bahan piezoelektrik yang sangat banyak digunakan, terutama pada industri eelektronik adalah bahan PbZr_xTi_{1-x}O₃, kualifikasi PZT ini memang cukup tinggi dengan nilai konstanta piezoelektrik d₃₃= 460 PC/N, faktor kopling K_p= 0.56, P_t= 39,2 μC/cm², medan koersif E_c= 14,9 kV/cm dan suhu curie yang tinggi yaitu 450⁰C (Donnelly, dkk., 2007).

Akan tetapi bahan PZT memiliki komposisi PbZr_xTi_{1-x}O₃ dengan bahan dasar yang mengandung unsur Pb (timbal) yang bersifat racun. Produksi skala industri membutuhkan bahan Pb yang cukup banyak, sehingga tidak menguntungkan dikarenakan gas-gas buangan seperti timbal oksida (PbO) yang menguap dan begitu juga dengan sisa bahan oksida Pb pada proses sintesis dapat mencemari lingkungan dan berbahaya bagi kesehatan (Yugong, W, dkk., 2003).

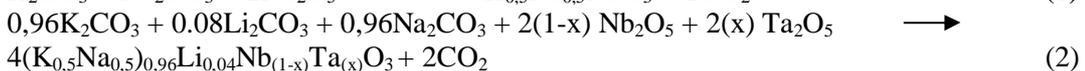
Untuk mengatasi kekhawatiran ini, telah dilakukan penelitian dan pengembangan bahan piezoelektrik bebas timbal. Salah satu bahan piezoelektrik ramah lingkungan yang menarik untuk diteliti adalah bahan berbasis $K_{0,5}Na_{0,5}Nb_3$ (KNN). Dalam pengembangan bahan KNN telah banyak dilakukan penambahan bahan-bahan dopan dengan kuantitas yang cukup baik dengan harapan terbentuk larutan-larutan padat yang memiliki sifat mekanik dan listrik yang sepadan dengan PZT. Oleh karena, KNN di doping dengan Li_2CO_3 menghasilkan KNLN (Robet, W. M., 2011).

Pada penelitian ini dilakukan modifikasi KNLN dengan menambah bahan Ta_2O_5 untuk melihat perubahan dari struktur Kristal yang dihasilkan. Ta_2O_5 memiliki konstanta dielektrik yang tinggi, sehingga dapat menyimpan muatan lebih banyak ketika diberikan suatu medan listrik (Zou, R, dkk., 2007). Selain itu, Ta^{+5} memiliki jari-jari atom sama besar dengan Nb^{5+} ($R_{Ta} = 0,68 \text{ \AA}$, $R_{Nb} = 0,69 \text{ \AA}$) yang akan berpengaruh terhadap kedudukan atom Nb^{5+} . Sifat dari Ta_2O_5 adalah logam mengkilat dan tahan terhadap asam. Ta_2O_5 memiliki indeks bias tinggi, penyerapannya rendah dan bahan sering digunakan untuk pelapisan. Massa molekul Ta_2O_5 adalah 441,893 g/mol dan memiliki berat jenis kristal $8,2 \text{ g/cm}^3$. Struktur kristal dari Ta_2O_5 adalah orthorhombik dimana panjang kisi $a \neq b \neq c$ dan sudut $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ (Lopez, J.R., dkk, 2011).

Berdasarkan uraian di atas, maka dalam penelitian ini akan dilakukan pengaruh penambahan bahan dopan Ta_2O_5 pada bahan piezoelektrik ramah lingkungan $(K_{0,5}Na_{0,5})_{0,96}Li_{0,04}NbO_3$ dengan menggunakan sintesis metode *molten salt*. Hasil sintesis dikarakterisasi dengan menggunakan XRD (*X-Ray Diffraction*), SEM (*Scanning Electron Microscope*), dan PSA (*Particle Size Analysis*). Penambahan bahan Ta_2O_5 pada material piezoelektrik ini diharapkan akan dapat meningkatkan sifat dielektrik dan piezoelektrik bahan.

II. METODE

Metode yang dipakai pada sintesis adalah metode cair (*molten salt*). Dimana metode ini menggunakan NaCl dan KCl sebagai katalisator. Prosesnya diawali dengan penimbangan dan pencampuran bahan dasar K_2CO_3 , Na_2CO_3 , Nb_2O_5 , Li_2CO_3 , dan Ta_2O_5 . Secara stokiometri, sebagaimana terlihat pada persamaan:



Setelah bahan di campur kemudian digerus dengan menggunakan mortar selama 4 jam, tujuannya agar tercampur lebih homogen dan ukuran partikel mengecil. Proses selanjutnya menimbang bahan katalisator yaitu NaCl dan KCl dengan perbandingan 1:1 mol, kemudian di campur dan digerus dengan menggunakan mortar selama 4 jam. Bahan-bahan dasar dan bahan katalisator dicampurkan menggunakan mortar selama lebih kurang 4 jam hingga semua bahan homogen.

Pada tahap sintesis dilakukan dengan memvariasikan % mol dari Ta_2O_5 diantaranya adalah 3%, 7% ,10% dan 12% mol. Adapun suhu leleh dari kedua garam yang digunakan berkisar $770^\circ C$ dan $801^\circ C$. Dalam penelitian ini dicoba suhu sintering diatas sintesa tersebut menjadi $920^\circ C$. Pemilihan suhu sintering pada $920^\circ C$, dikarenakan menghindari terjadinya perbedaan suhu pada sampel dan di thermo couple furnace. Hasil proses sentering tersebut terjadi perubahan bentuk sampel dari bentuk kerucut berpori menjadi padat dan keras (balok). Hal ini mengindikasikan kuat telah terjadi peristiwa lelehan garam pada sampel. Titik leleh dalam bahan dasar dan katalisator dapat dilihat pada Tabel 1 dan 2.

Pada proses pengucian garam setelah sintering, dilakukan dengan air (demineralisasi) mendidih sebanyak lebih kurang 20 kali. Air mendidih yang dimaksudkan adalah air yang panas sehingga akan dapat menyaring dan memisahkan bahan dasar dengan garam (NaCl + KCl). Untuk memisahkan lelehan garam digunakan larutan $AgNO_3$ dengan cara meneteskan pada residu cucian garam (NaCl + KCl). Pada proses ke 20 kali tidak ada lagi perubahan warna. Dari hasil residu untuk menandakan garam (NaCl + KCl) pada sampel tidak ada lagi dengan kondisi

air hasil residu berwarna bening. Kemudian dilanjutkan pengeringan pada suhu 120°C selama 1-2 jam (tidak ada lagi pengurangan berat (air) setelah dipanaskan).

Tabel 1 Titik leleh pada bahan dasar

No.	Nama Bahan dasar	Titik leleh
1.	K ₂ CO ₃	890 ⁰ C
2.	Na ₂ CO ₃	851 ⁰ C
3.	Nb ₂ O ₅	1520 ⁰ C
4.	Li ₂ CO ₃	720 ⁰ C
5.	Ta ₂ O ₅	1750 ⁰ C-1910 ⁰ C

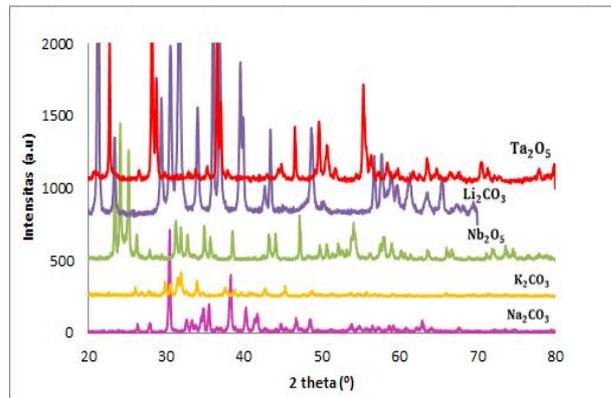
Tabel 2 Titik leleh pada bahan katalisator

No.	Bahan Katalisator	Titik leleh
1.	KCl	770 ⁰ C
2.	NaCl	801 ⁰ C

III. HASIL DAN DISKUSI

3.1 Sintesis KNLNT

Proses sintesis (K_{0,5}Na_{0,5})_{0,96}Li_{0,04}NbO₃ dopan Ta₂O₅ (KNLNT) ini diawali dengan mengidentifikasi bahan-bahan dasar yang digunakan pada proses sintesis. Identifikasi ini dilakukan dengan menggunakan XRD.



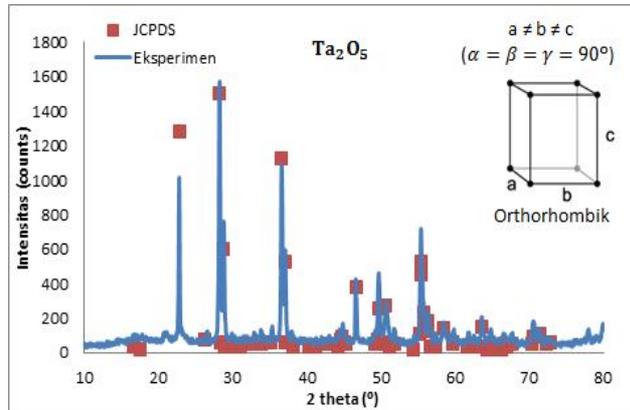
Gambar 1 Pola difraksi sinar-X untuk berbagai bahan dasar

Berdasarkan pola difraksi bahan dasar seperti terlihat pada Gambar 1 bahwa puncak tertinggi Na₂CO₃ berada pada sudut 30,48⁰, K₂CO₃ pada sudut 31,9⁰, Li₂CO₃ pada sudut 21,35⁰, Nb₂O₅ pada sudut 24,12⁰ dan Ta₂O₅ Pada sudut 28,25⁰. Puncak-puncak tertinggi dari bahan dasar ini menjadi penting pada proses sintesa KNLN-Ta₂O₅ nanti, dikarenakan keberhasilan reaksi sintesa tersebut tentunya dapat dibandingkan dengan keberadaan puncak-puncak ini.

Pada pola difraksi dopan Ta₂O₅ terdapat puncak asing yang sangat kecil (relatif dapat diabaikan) pada 2 theta 58.349⁰, 63.549⁰, dan 70.45⁰. Sedangkan struktur kristal yang dimiliki oleh Ta₂O₅ adalah ortorhombik dengan nilai a = 6198 Å, b = 40.29 Å, c = 3.888 dan α = β = γ = 90° sesuai dengan data *Joint Comite on Powder Diffraction Standars* (JCPDS) (Roth, dkk., 1970). Puncak asing ini memiliki intensitas relatif kecil sehingga tidak berpengaruh terhadap kemurnian bahan. Munculnya puncak asing ini kemungkinan berasal dari kontaminan pada saat proses identifikasi kemurnian bahan dengan XRD. Secara keseluruhan Ta₂O₅ yang digunakan pada penelitian ini memiliki kemurnian yang baik.

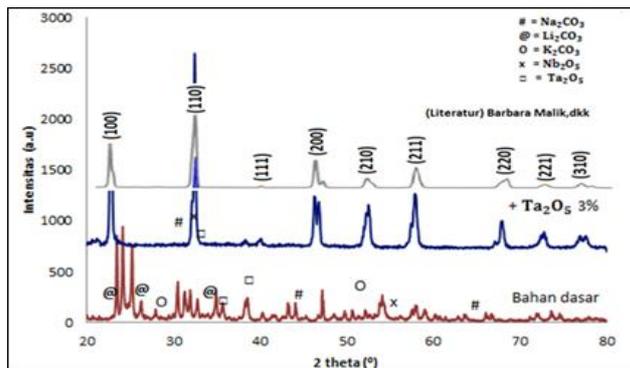
Pola difraksi bahan dopan yang digunakan sesuai dengan data JCPDS terlihat pada Gambar 2 sehingga dapat disimpulkan bahwa bahan dopan Ta₂O₅ yang digunakan memiliki kemurnian yang relatif baik. Pola difraksi Ta₂O₅ akan digunakan sebagai perbandingan hasil

produk sintesis untuk KNLNT. Bereaksinya produk tersebut mengindikasikan tidak adanya keberadaan puncak-puncak Ta₂O₅ sebagaimana bahan dasar lainnya.



Gambar 2 Pencocokan pola difraksi dengan data JCPDS bahan Ta₂O₅

Hasil sintesa KNLNT dengan metode *molten salt* ini dikarakterisasi dengan menggunakan XRD. Secara keseluruhan semua variasi penambahan Ta₂O₅ memiliki puncak-puncak XRD yang sama dengan puncak-puncak pada pola difraksi literatur (Malic, B., 2005). Pada Gambar 3 ditunjukkan pola difraksi XRD dari penambahan 3 (persen apa atau mol) Ta₂O₅, sedangkan penambahan variasi lainnya sangat identik polanya.



Gambar 3 Pola difraksi bahan dasar dan penambahan Ta₂O₅ dengan literatur

Dari data XRD hasil sintesis tidak menunjukkan adanya terlihat puncak-puncak tertinggi bahan dasar tersebut. Hal ini membuktikan bahwa proses sintesis dengan metode *molten salt* untuk sampel-sampel diatas telah berhasil dilakukan. Dengan kata lain bahan-bahan dasar telah bereaksi secara baik dan mendapatkan produk sintesa yang sesuai dengan keinginan.

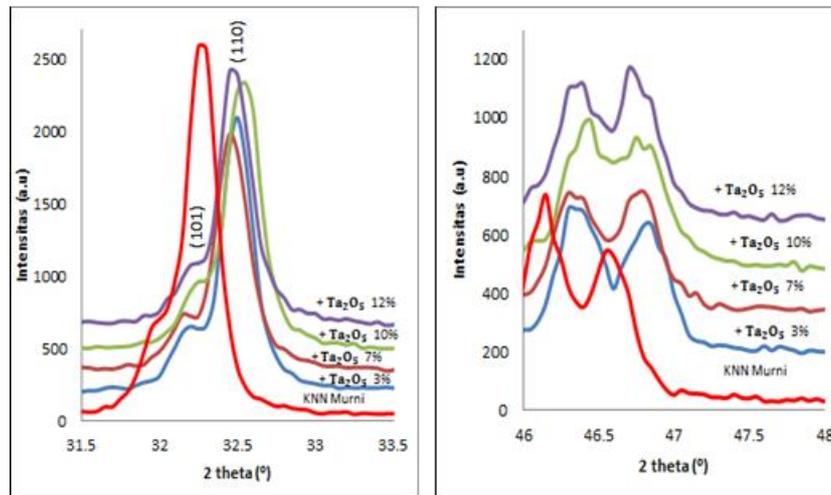
Hal ini menunjukkan bahwa masing-masing partikel telah bereaksi dengan baik dan mendapatkan hasil sintesa yang baru. Dari pola difraksi XRD ini menunjukkan struktur kristal hasil sintesa ini berbentuk sistem kristal perovskite.

3.2 Analisis Struktur KNLNT

Pola difraksi penambahan % mol dari Ta₂O₅ diantaranya adalah 3%, 7%, 10% dan 12%, tampak jelas terjadi perubahan struktur (Gambar 4). Hal tersebut dapat dilihat dari pergeseran sudut (2 theta) kearah kanan yang mengakibatkan jarak antar bidang (d) menjadi bertambah kecil. Sesuai dengan rumus bragg, dimana semakin kecil sudut (theta), maka jarak antara bidang (d) menjadi bertambah besar. Secara keseluruhan terjadi pergeseran sudut sebagaimana terlihat pada dua buah puncak KNN murni (Gambar 4 a), puncak pertama pada sudut 31,95⁰ menjadi 32,25⁰, 32,15⁰, 32,25⁰ dan 32,2⁰ sedangkan pada puncak kedua sudut 32,25⁰ menjadi 32,55⁰, 32,4⁰, 32,55⁰ dan 32,45⁰ secara berurutan dengan penambahan Ta₂O₅,

sehingga dimungkinkan KNLN yang ditambahkan Ta₂O₅ menjadi berubah, baik bentuk, jarak antar bidang dan parameter kisi.

Pada rentang sudut 2 theta di 31^o sampai 33^o menunjukkan puncak (101) dan pada rentang sudut 46^o sampai 48^o (002). Kedua bentuk tersebut merepresentasikan adanya sudut yang berdekatan (overlapping) puncak-puncak. Sehingga struktur kristalnya Bahan ini dibandingkan dengan beberapa literatur menunjukkan secara umum berstruktur ortorhombik. Berdasarkan Gambar 4 (b). Diantara puncak (002) terdapat pergeseran puncak utama kearah kanan itu menandakan bahwa struktur kristalnya terjadi perubahan (perubahan parameter kisi) dan juga saling berdekatan (overlapping) tampak terpisah, pergeseran kearah kanan 3%, 10% dan 12% kearah kiri, adanya perubahan struktur yang ekstrim antara 3% dan 7%. Untuk lebih jelasnya dapat dilihat Gambar 4.



Gambar 4 Pola difraksi KNLNT. (a) $2\theta = 31.5^{\circ} - 33.5^{\circ}$ (101). (b) $2\theta = 46^{\circ} - 48^{\circ}$ (002)

Penambahan hasil Ta₂O₅ dari 3%, 10% dan 12% puncak (110) bergerak kearah kanan sedangkan untuk Ta₂O₅ 7% puncaknya bergerak kembali kekiri. Penambahan ini berdampak pada bentuk struktur kristal KNLNT. Overlapping puncak pada sudut 31,5^o sampai 33,5^o berasal dari bidang (101) dan (110). Pada penambahan Ta₂O₅ yang semakin besar maka puncak (101) semakin jelas dan tampak mulai splin (memisah). Sehingga seakan-akan terlihat 2 puncak sudut 31,5^o sampai 33,5^o. Hal ini mengindikasikan perubahan struktur kristal.

Penambahan Ta₂O₅ 3% overlapping puncak sudut 46^o sampai 48^o terlihat seakan-akan tiga puncak yaitu pada sudut 46,30^o, 46,35^o dan 46,90^o. Sedangkan pada penambahan Ta₂O₅ 7% sampai 12% juga terlihat tiga puncak. Sehingga puncak sudut 46^o sampai 48^o mengindikasikan perubahan struktur dari ortorhombik ke tetragonal.

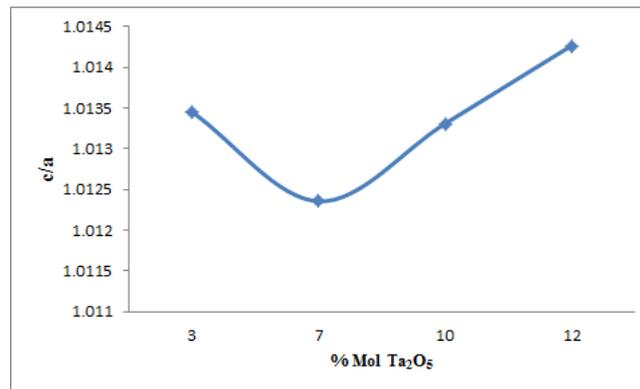
Tabel 3 Harga parameter kisi ortorhombik dan tetragonal

Penambahan Ta ₂ O ₅ (% mol)	Parameter kisi KNLNT (Å)			
	Ortorhombik		Tetragonal	
	A	C	a	C
3	3,89003	3,94235	3,91593	3,94236
7	3,88625	3,93427	3,91003	3,93427
10	3,87861	3,93023	3,90416	3,93023
12	3,87099	3,92621	3,89831	3,92621

Harga parameter kisi (c/a) dari ortorhombik dan tetragonal mengalami kenaikan seiring dengan penambahan komposisi Ta₂O₅ (7%, 10%, 12%). Hal ini disebabkan karena jarak antar bidang (d) dari KNLNT meningkat seiring dengan penambahan Ta₂O₅. Semakin besar nilai c/a yang ditemukan maka akan semakin besar pergeseran struktur yang terjadi (Gronotte,

2009). Pada penambahan 3% Ta₂O₅, harga parameter kisinya menurun dibandingkan dengan harga parameter kisi pada penambahan 7% Ta₂O₅. Hal ini disebabkan oleh penambahan Ta₂O₅ yang cukup sedikit sehingga puncak pola difraksinya bergeser ke kanan (2 theta) semakin kecil dan jarak antar bidang semakin besar.

Gambar 5 mempresentasikan perbandingan harga parameter kisi (c) dengan (a) dari hasil kalkulasi parameter kisi dengan menggunakan persamaan tetragonal. Teknik perbandingan harga parameter kisi ini sebelumnya telah dipakai oleh Maida T, dkk (2012) untuk menentukan daerah *motphotropic phase boundary* (MPB) dari bahan piezoelektrik.

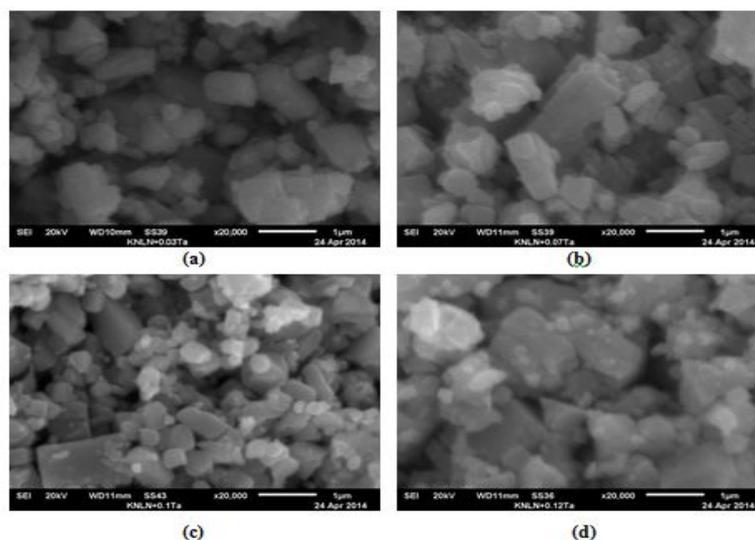


Gambar 5 Perbandingan harga parameter kisi (c/a) dari data struktur kristal ortorhombik

Pada penambahan 3% Ta₂O₅ terlihat grafik mengalami penurunan nilai c/a yang tajam. Sedangkan pada penambahan 3% Ta₂O₅, 10% Ta₂O₅ dan 12% Ta₂O₅, grafik yang dihasil naik. Adanya penurunan nilai c/a yang tajam pada penambahan 7% Ta₂O₅ menunjukkan bahwa pada rentang komposisi inilah daerah MPB berada.

3.3 Analisis Morfologi KNLNT

Proses sintering menyebabkan terjadinya aglomerasi pada produk. Aglomerasi pada permukaan bahan dapat dikarakterisasi dengan mempergunakan SEM. Gambar 6 merupakan hasil karakterisasi produk dengan menggunakan SEM. Karakterisasi menggunakan SEM dilakukan untuk melihat struktur makro dari Morfologi dari produk KNLNT yang terbentuk adalah granula dengan ukuran butiran yang tidak seragam. Hasil SEM menunjukkan pada penambahan dopan 3% mol ukuran partikel adalah 0.0884-07869 μm, 7% mol adalah 0.2517-1.5746 μm, 10% mol adalah 0.2001-0.5870 μm, dan 12% mol adalah 0.1563-1.5793 μm.



Gambar 6 Hasil SEM dengan perbesaran 20.000 kali untuk semua variasi

Pengaruh penambahan tantalum oksida (Ta_2O_5) dapat dilihat pada Gambar a, Gambar b, Gambar c, dan Gambar d. Tabel 4 menunjukkan persentase atom-atom penyusun produk KNLNT yang terbentuk. Dari Tabel data EDX dapat dilihat pada produk dengan penambahan 3%, 7%, 10% dan 12% hanya mengandung bahan dasar yang membentuknya, sehingga dapat dinyatakan bahwa produk tidak terkontaminasi oleh unsur lain.

Tabel 4 Persentase atom-atom penyusun produk KNLNT dengan variasi 3%, 7%, 10%, 12%

Atom	% Atom			
	KNLN-3%T	KNLN-7%T	KNLN-10%T	KNLN-12%T
	3	7	10	10
O	53,95	49,12	53,33	58,24
Na	15,26	15,60	15,15	15,77
K	0,80	0,83	0,81	0,60
Nb	29,54	32,99	28,56	23,19
Ta	0,44	1,47	2,16	2,19
Li	0	0	0	0

3.4 Analisis KNLNT dengan Spektroskopi PSA

Pengaruh penambahan tantalum oksida (Ta_2O_5) dapat dilihat pada Tabel 5. Pada Tabel 5 terlihat ukuran partikel dari produk KNLNT dengan penambahan 3% tantalum oksida adalah 2819 nm.

Tabel 5 Pengaruh penambahan Ta_2O_5 terhadap KNLN

No.	Dopan (% mol)	Diameter partikel [nm]
1.	Ta_2O_5 [0,03]	2819
2.	Ta_2O_5 [0,07]	1708
3.	Ta_2O_5 [0,1]	1941
4.	Ta_2O_5 [0,12]	3779

Sedangkan ukuran partikel dari produk KNLNT dengan penambahan 7% tantalum oksida semakin kecil sehingga posisi atom pada kristal juga berubah. Ukuran partikel pada penambahan 10% tantalum oksida adalah 1941 nm sedangkan ukuran partikel dari produk KNLNT dengan penambahan 12% tantalum oksida semakin besar yaitu 3779 nm.

Jadi pengaruh penambahan tantalum oksida dapat mengubah posisi atom pada kristal sehingga struktur kristalnya juga kemungkinan akan berubah.

IV. KESIMPULAN

Telah terbentuk bahan piezoelektrik ($K_{0,5}Na_{0,5}$)_{0,96}Li_{0,04}NbO₃ dopan Ta_2O_5 (KNLNT) dengan metode *molten salt* (NaCl : KCl= 1:1) dengan penggerusan selama 4 jam, kalsinasi selama 1.5 jam pada suhu 250⁰C, dan sintering selama 4 jam pada suhu 920⁰C. Dengan pengaruh presentase penambahan bahan dopan Ta_2O_5 pada bahan piezoelektrik ($K_{0,5}Na_{0,5}$)_{0,96}Li_{0,04}NbO₃ menunjukkan bahan produk KNLNT memiliki mikrostruktur berupa granula dan memiliki bentuk-bentuk kristal berukuran mikropartikel, dengan demikian posisi atom bergeser terhadap struktur kristal sehingga struktur kristalnya berubah dari ortorhombik ke tetragonal. Pada penambahan 7% mol Ta_2O_5 terjadinya penurunan nilai c/a yang tajam. Hal ini menunjukkan bahwa pada rentang komposisi inilah daerah *motphotropic phase boundary* berada. Sedangkan dari hasil dari *particle size analysis* diketahui terjadi perubahan ukuran diameter partikel akibat pengaruh penambahan Ta_2O_5 .

DAFTAR PUSTAKA

- Donnelly, Harada, and Yamashita, 2007, *Cristal Growth and Elektrical Properties of Lead-Free Piezoelektric Material. (Na_{0,5}Bi_{0,5})TiO₃ – BaTiO₃. Japanese Journal Applied Physics*, 40, 5722-5726.
- Gronotte, A., 2009, *Development of New Chemical Processes to Lead-Free Piezoelectric and Ferroelectric Material*, simon fraser University.
- Cho, J. Ho, Lee, Y. H., Han, K. S., Chun, M. P., Nam J. H, and Kim, B. I., 2010. *Effect of Domain Size on the coer cive field of orthorhombic (Li, K)NbO₃*, Cemon Seol 153-023., Korea.
- López, J.R., González, G.F., Zárate, M.J., Escalona, G.R., Díaz, T.S., Villafuerte C., M.E, 2011, Piezoelectric properties of Li-Ta co- doped potassium sodium niobate ceramics prepared by spark plasma and conventional sintering. *J. Alloy compd.*, Vol. 509, No. 9, (Mar 2011), pp. 3837–3842, ISSN 0925-8388.
- Maida, T., Tobias H., and Takeshi M., 2012, *Piezoelektrik properties of Li-Doped (K_{0.48}Nb_{0.52})NbO₃ Ceramic Syntesized using Hidrottermik. Derivet KNb₃ and NaNb₃. Fine Powders*. Chibi 277-8563, Japan.
- Malic, B., Bernard, J., Holc, J., Jenko, D., Kosec, M, 2005, *Alkaline-earth dopping in (K,Na)NbO₃ Based Piezoelectrics*, *Journal of European Ceramic Society*, pp.2707-2711, Jozef Stefan institute, Slovenia.
- Robet, W. M., 2011, *The Synthesis and Characterisation of Lead-Free Piezoelectric Ceramic*, department of Merallurgy and Materials School of engineering. University of Birmingham.
- Yugong W, Zhang H, Zhang Y, Jinyi M, DA ohua X, *Mater.Sci*, 38 (2003) 987.
- Zuo, R., Ye, C., Fang, X., and Li, J., 2008, Tantalum doped 0,94Bi_{0,5}Na_{0,5}TiO_{0,5}-0,06BaTiO₃ piezoelektric ceramics, *Journal of the European Ceramic Socienty* 28 Page: 871-877, School of Materials Science dan Engineering, Materials and Structures Laboratory, Tokyo Instute of Tecnology, Cina, Japan.
- Zuo, R., Ye, C. and Fang, X, 2007, Dielectric and Piezoelectric Properties of Lead Free Na_{0,5}K_{0,5}NbO₃-BiScO₃ Ceramics. *J. Journal of Appl. Phys.*, Vol. 46, No. 10A, (2007), pp. 6733–6736, ISSN 0021-4922.