

SINTESIS BAHAN PIEZOELEKTRIK BNT-BT DENGAN PENAMBAHAN Ta_2O_5 MENGGUNAKAN METODE *SOLID STATE REACTION*

Sonya Rahayu¹, Astuti¹, Mardiyanto²

¹Jurusan Fisika FMIPA Universitas Andalas

²Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN-BATAN)

Kawasan Puspipetek, Serpong 15314, Tangerang

e-mail : sonya.rahayu@rocketmail.com, e-mail : astuti@fmipa.unand.ac.id,

e-mail : mardiyanto_panitra@yahoo.co.id

ABSTRAK

Telah dilakukan sintesis bahan piezoelektrik BNT-BT dengan penambahan Ta_2O_5 menggunakan metode solid state reaction. Pada metode ini dilakukan penggerusan selama 4 jam, kompaksi dengan tekanan 5000 psi, kalsinasi selama 1 jam pada suhu $300^\circ C$ dan sintering pada suhu $1000^\circ C$ selama 4 jam. Pada penelitian ini, dilakukan variasi terhadap penambahan $BaTiO_3$ sebesar 3%, 5%, 7% dan 9%. Sampel dikarakterisasi menggunakan XRD dan SEM. Berdasarkan XRD, diperoleh bahwa bahan BNT-BT-Ta memiliki struktur tetragonal karena menghasilkan parameter kisi a dan b sebesar 3,87; 3,88; 3,89; 3,90 dan nilai c sebesar 3,88; 3,89; 3,90; 3,91 dengan sudut α, β dan γ adalah 90° . Bentuk morfologi dari bahan BNT-BT-Ta berbentuk jarum, tetapi pada saat penambahan 9% BT, bentuk mikrograf dari bahan tidak terlihat jelas karena butiran-butiran kristal bergabung dan tidak teratur.

ABSTRACT

The research on synthesis of BNT-BT piezoelectric material with addition Ta_2O_5 have been carried out by using solid state reaction method. In this research, samples were made by using these parameters, 4 hours millings, compaction on 5000 psi, calcination on $300^\circ C$ and sintering on $1000^\circ C$ for 4 hours. Samples were performed into four variations by doped 3%,5%,7% and 9% of $BaTiO_3$. Every sample was characterized by XRD and SEM. Based on XRD, it is obtained that BNT-BT-Ta have tetragonal structure because produced lattice parameter a and b in the amount of 3,87; 3,88; 3,89; 3,90 and lattice parameter c in the amount of 3,88; 3,89; 3,90; 3,91 with α, β and γ angles are 90° . The morphology form of BNT-BT-Ta is like a needle, but at the moment of adding 9% of BT, the micrographs form of samples were not obvious because the crystal granules were merged and disorganized.

I. PENDAHULUAN

Bahan piezoelektrik adalah suatu bahan material yang apabila diberikan tekanan atau regangan akan menghasilkan tegangan listrik dan sebaliknya, bahan akan menghasilkan tekanan atau regangan mekanik jika diberikan tegangan listrik. Bahan piezoelektrik banyak diaplikasikan dalam bidang teknologi maupun nonteknologi, salah satunya adalah pada printer. Bahan piezoelektrik yang banyak digunakan dalam aplikasi adalah *lead zirconium titanat* (PZT). Bahan ini banyak digunakan karena memiliki konstanta dielektrik yang tinggi dan sifat piezoelektrisitasnya. Namun, bahan ini mengandung bahan dasar timbal yang bersifat racun, apabila diproduksi dalam skala besar akan membahayakan lingkungan dan menyebabkan gangguan pada kesehatan (Krisdianto,2011).

Para peneliti terus mencoba meneliti bahan piezoelektrik lain yang lebih ramah lingkungan dan dapat menggantikan bahan PZT serta memiliki unjuk kerja sama atau melebihinya. Bahan piezoelektrik bebas timbal pada dasarnya bahan yang memiliki struktur perovskite, seperti : $BaTiO_3$ (BT), $KNbO_3$ dan $NaTaO_3$ serta *non-perovskite* seperti bahan feroelektrik bismut lapisan terstruktur (BLSF) dan bahan feroelektrik *tungsten-bronze* (Mardianto dan Ahda, 2012).

Bismuth Natrium Titanate yang biasa disingkat dengan BNT ($Bi_{0,5}Na_{0,5}TiO_3$) merupakan kandidat yang kuat untuk menggantikan bahan PZT. Bahan ini tidak beracun sehingga lebih ramah lingkungan dan memiliki sifat piezoelektrisitas yang cukup tinggi. Akan tetapi, bahan ini masih memiliki temperatur Curie dibawah PZT, yaitu $320^\circ C$. Untuk mengatasi

masalah ini, dilakukan pengembangan terhadap bahan BNT yaitu dengan mendopingkan berbagai senyawa dengan harapan terbentuk larutan-larutan padat yang memiliki sifat mekanik dan listrik yang sepadan dengan PZT. Oleh karena itu, BNT didoping dengan Barium Titanate ($BaTiO_3$) menghasilkan BNT-BT. Pada penelitian ini dikembangkan bahan BNT-BT menjadi BNT-BT-Ta₂O₅ (Takenaka, 1991).

Sintesis bahan piezoelektrik ini dapat dilakukan dengan beberapa metode, diantaranya adalah metode kering (*solid state reaction*) dan metode basah seperti hidrotermal, sol-gel dan molten salt. Metode yang sering digunakan adalah metode kering karena pengerjaannya lebih mudah. Proses sintesis bahan dengan menggunakan metode kering relatif sederhana dibandingkan metode basah. Pada metode ini dilakukan penggerusan sebagai langkah awal untuk mensintesis suatu bahan (Sung-Soo dan Dang, 2007)

Sintesis BNT-BT-Ta₂O₅ dilakukan dengan metode *solid state reaction*. Penelitian ini pernah dilakukan oleh Zuo, dkk (2007) yaitu menambahkan Ta₂O₅ ke dalam 0,94(Bi_{0,5}Na_{0,5})TiO₃-0,06BaTiO₃ (BNT6BT) dengan memvariasikan Ta₂O₅ sebanyak 0-4%. Ta₂O₅ memiliki konstanta dielektrik yang tinggi, sehingga dapat menyimpan muatan lebih banyak ketika diberikan suatu medan listrik. Selain itu, Ta⁺⁵ memiliki jari-jari atom lebih besar dibandingkan dengan Ti⁺⁴ (R Ta dan R Ti adalah 0,64 Å dan 0,61 Å) yang akan berpengaruh terhadap kedudukan atom Ti⁺⁴. Penelitian tersebut menghasilkan nilai konstanta piezoelektrik cukup tinggi, yaitu 171 pc/N dan temperatur curie sebesar 273°C.

Pada penelitian ini akan dilakukan penambahan 1% Ta₂O₅ dan variasi penambahan BaTiO₃ sebanyak 3 %, 5 %, 7 % dan 9 %. Penambahan Ta₂O₅ dan variasi BaTiO₃ ini dapat mengubah nilai parameter kisi dan menyebabkan perubahan struktur kristal bahan. Hasil sintesis dikarakterisasi dengan menggunakan XRD dan SEM.

II. METODE

Bahan BNT-BT didoping dengan 1% Ta₂O₅ dan dilakukan variasi penambahan terhadap BaTiO₃ sebanyak 3%, 5%, 7% dan 9%. Bahan yang digunakan adalah Bi₂O₃, Na₂CO₃, TiO₂, BaCO₃, dan Ta₂O₅. Awalnya dilakukan penimbangan bahan menggunakan neraca digital sesuai dengan stoikiometri, selanjutnya, seluruh bahan dasar dicampurkan. Persamaan reaksi dari bahan-bahan ini dapat dilihat pada persamaan 1 dan variasi massa bahan dasar dapat dilihat pada Tabel 1.



Tabel 1 Massa bahan dasar berdasarkan variasi % massa Ta₂O₅

Penambahan BaTiO ₃	Massa (gram)				
	Bi ₂ O ₃	Na ₂ CO ₃	TiO ₂	BaCO ₃	Ta ₂ O ₅
3 %	0,6247	0,1421	0,4417	0,0330	0,02468
5 %	0,6105	0,1388	0,4408	0,0550	0,02463
7 %	0,5963	0,1356	0,4399	0,0768	0,02459
9 %	0,5822	0,1324	0,4391	0,0986	0,02454

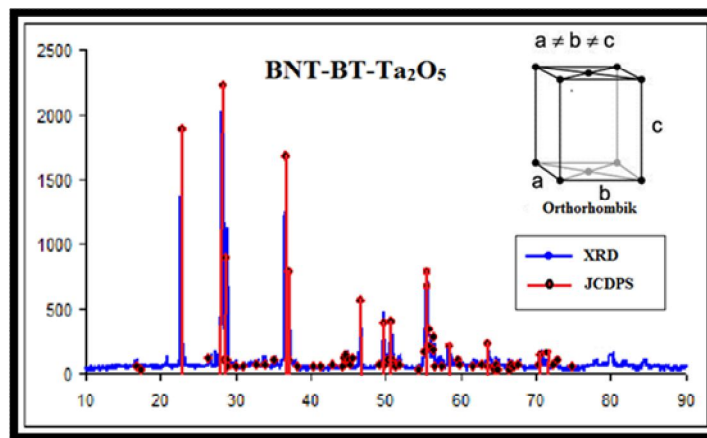
Penelitian ini menggunakan metode kering atau lebih dikenal dengan metode reaksi padat (*solid state reaction*). Metode ini diawali dengan proses penggerusan dimana bertujuan untuk homogenisasi bahan dan membuat semua bahan dasar tercampur. Proses ini dilakukan dengan menggunakan mortar selama 4 jam. Selanjutnya, dilakukan kompaksi untuk memperkecil rongga antar bahan yang masih ada pada saat dilakukan penggerusan. Kompaksi dilakukan menggunakan alat kompaksi (*hydraulic press*) dengan memberikan tekanan sebesar 5000 psi. Setelah sampel dikompaksi, selanjutnya sampel dikalsinasi selama 1 jam dengan suhu 300°C. Kalsinasi bertujuan untuk menguapkan kontaminan-kontaminan dari luar selama transportasi sampel pada saat penimbangan, penggerusan dan kompaksi. Selanjutnya, dilakukan sintering pada suhu 1000°C selama 4 jam. Pada sintering terjadi proses kimia antar bahan dasar sehingga menghasilkan kualitas bahan yang lebih tinggi.

Sampel dikarakterisasi menggunakan alat XRD (*X-ray Diffraction*) dan SEM (*Scanning Electron Microscopy*). Pertama, karakterisasi XRD dilakukan untuk melihat kemurnian bahan dasar Ta₂O₅ dengan membandingkan pola difraksi dengan JCPDS. Selanjutnya, karakterisasi ini digunakan untuk membandingkan struktur kristal BNT-BT dengan produk baru serta menganalisis pengaruh penambahan dopant Ta₂O₅ dan variasi penambahan BT pada BNT-BT. Karakterisasi menggunakan SEM bertujuan untuk melihat bentuk morfologi bahan. Untuk karakterisasi dengan sampel SEM, sampel ditempatkan pada pada plat aluminium kemudian dilapisi dengan pelapis emas setebal 48 nm.

III. HASIL DAN DISKUSI

3.1 Analisis Kemurnian Bahan Dopant Ta₂O₅

Pola difraksi XRD menghasilkan tiga puncak relatif maksimum yaitu pada sudut 2θ sebesar 28,3°; 22,92° dan 36,694°. Adapun 3 puncak yang relatif maksimum pada JCPDS terdapat pada sudut 2θ sebesar 28,313°; 22,85° dan 36,7°. Persentase perbedaan hasil eksperimen dengan data JCPDS kurang dari 0,5%. Hal ini menunjukkan bahwa Ta₂O₅ yang digunakan cukup representatif dan baik. Perbedaan yang kecil itu dipengaruhi oleh resolusi XRD yang digunakan. Pola difraksi bahan dopan Ta₂O₅ cocok dengan data JCPDS nomor 25-0922. Struktur kristal yang dimiliki oleh Ta₂O₅ adalah orthorhombik dengan nilai a,b dan c adalah 6,198; 4,029 dan 3,888 dengan sudut α, β dan γ sebesar 90° sesuai dengan data JCPDS nomor 25-0922. Pencocokan pola difraksi bahan dengan JCPDS dapat dilihat pada Gambar 1 dan perbandingan puncak maksimum antara hasil eksperimen dengan JCPDS juga dapat dilihat pada Tabel 2.

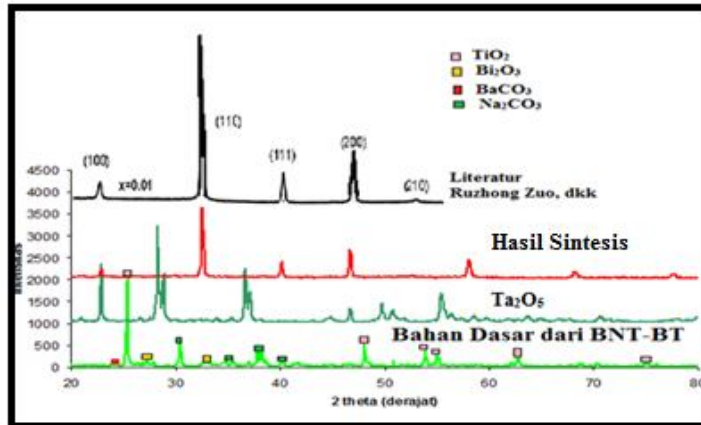


Gambar 1 Pencocokan pola difraksi dengan data JCPDS bahan Ta₂O₅

Tabel 2 Pencocokan puncak-puncak maksimum hasil eksperimen dan JCPDS bahan dopan Ta₂O₅

2θ eksperimen (°)	2θ JCPDS (°)
28,3	28,313
22,85	22,92
36,7	36,695

3.2 Analisis Pola Difraksi Bahan BNT-BT-Ta₂O₅

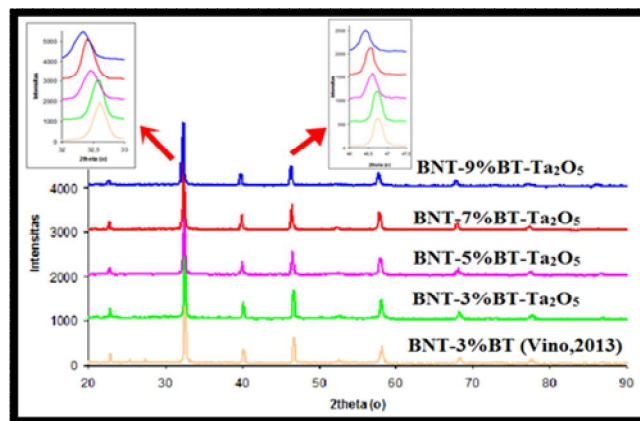


Gambar 2 Pola difraksi bahan dasar, dopan Ta₂O₅ dan hasil sintesis

Gambar 2 merupakan pola difraksi bahan dasar, dopan Ta₂O₅ dan hasil sintesis. Pada pola difraksi terlihat puncak-puncak bahan dasar dan dopan tidak terdapat lagi pada produk hasil sintesis. Hal ini menunjukkan bahwa telah terjadi difusi antar partikel bahan dasar, sehingga menyebabkan reaksi kimia dan menghasilkan suatu produk baru hasil sintesis. Puncak-puncak utama dari difraksi produk sintesis sangat berbeda dengan puncak-puncak utama dari bahan dasar dan bahan dopan. Secara keseluruhan puncak asing relatif tidak ada.

Pola difraksi dari produk sintesis, dibandingkan dengan penelitian yang dilakukan oleh Zuo, dkk (2008) dengan mensintesis bahan (1-x)(0,94BNT-0,06BT)-xTa menggunakan metode *solid state reaction*. Terlihat pola difraksi produk baru hasil sintesis memiliki puncak yang identik sama dengan pola difraksi literatur. Puncak-puncak maksimum yang terlihat pada pola difraksi hasil sintesis terletak pada sudut 2θ sebesar 22,9°; 32,4°; 40,2° dan 46,7° sama dengan puncak-puncak yang ditunjukkan oleh literatur. Jadi, dapat disimpulkan bahwa sintesis menggunakan *solid state reaction* telah berhasil dilakukan dan menghasilkan produk baru hasil sintesis.

3.3 Analisis Struktur Bahan BNT-BT-Ta₂O₅

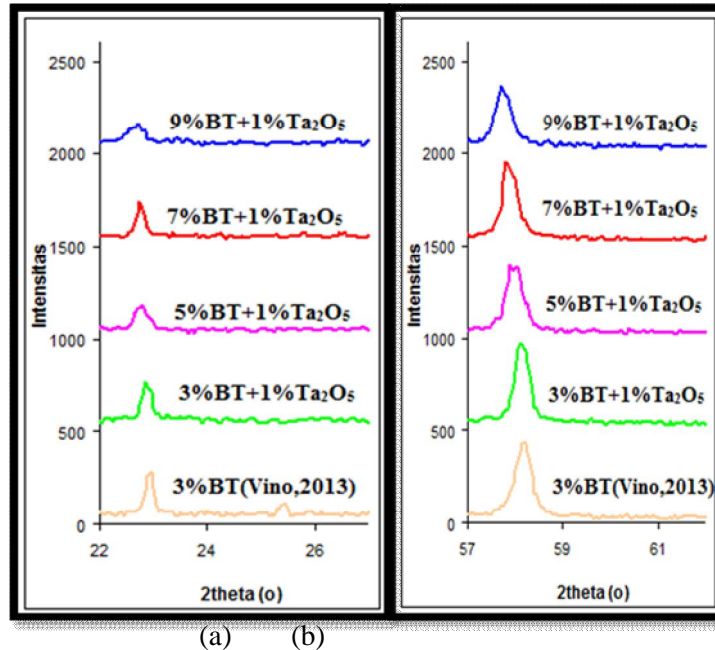


Gambar 3 Pola difraksi BNT-BT dopan Ta₂O₅ semua variasi penambahan BT

Pada pola difraksi semua variasi BT, dapat dilihat bahwa semakin besar penambahan BT, menunjukkan puncak-puncak utama dari pola difraksi bergeser ke arah kiri. Hal ini lebih jelas terlihat pada gambar *insert* yang merupakan pembesaran sudut 2θ yaitu 32,45° dan 45°. Pergeseran ke arah kiri menyebabkan sudut 2θ semakin kecil. Berdasarkan Hukum Bragg (Persamaan 2), semakin kecil sudut 2θ mengakibatkan nilai jarak antar bidang (d) semakin membesar. Dengan kata lain, parameter kisi yang dihasilkan akan semakin bertambah besar.

$$n\lambda = 2d \sin \theta, n = 1, 2, \dots \quad (2)$$

dimana λ adalah panjang gelombang sinar-X yang digunakan, d adalah jarak antara bidang, θ adalah sudut antara sinar datang dan sinar pantul dengan bidang normal, dan n adalah orde pembiasan yang merupakan bilangan bulat.

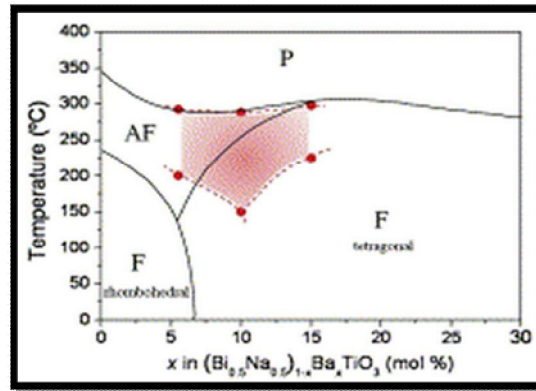


Gambar 4 Pola difraksi bahan BNT-BT-Ta pada sudut (a) 2θ sebesar 22° - 28° dan (b) 2θ sebesar 57° - 61°

Sifat kesimetrisan dan ketidaksimetrisan puncak dapat digunakan untuk mengindikasikan bidang-bidang yang terbentuk atau tidak. Menurut penelitian Fernando (2013) pada penambahan 3% BT struktur kristal yang dimiliki bahan adalah rhombohedral, dibuktikan dengan terbentuknya puncak yang cukup simetris terlihat pada sudut 2θ sebesar 22° dan sudut 2θ sebesar 57° sesuai dengan Gambar 4 (a) dan (b).

Pola difraksi yang terlihat pada BNT-3%BT ditambah dengan Ta₂O₅ menghasilkan puncak yang tidak simetris. Pada daerah ini terjadinya tumpang tindih yaitu terbentuk dua puncak yang berdekatan. Puncak yang tumpang tindih tersebut terjadi pada bidang (200) yaitu sudut 2θ sebesar $46,7^{\circ}$ dan $46,75^{\circ}$. Hal ini menyebabkan jarak antar bidang masing-masing akan berbeda.

Selanjutnya, dilakukan variasi BT yaitu 5,7 dan 9% BT. Variasi BT yang dilakukan menghasilkan puncak pola difraksi yang tidak simetris. Pada penambahan 5%, terbentuk puncak yang semakin tidak simetris pada bidang (200) yaitu sudut 2θ sebesar $46,6^{\circ}$ dan $46,65^{\circ}$. Selanjutnya pada variasi 7% dan 9%, puncak tumpang tindih semakin terlihat. Pada 7% bidang (200) terletak pada sudut 2θ sebesar $46,5^{\circ}$ dan $46,6^{\circ}$ dan bidang (200) pada penambahan 9% terletak pada sudut 2θ sebesar $46,4^{\circ}$ dan $46,45^{\circ}$. Semakin besar variasi penambahan BT, puncak yang terbentuk semakin tidak simetris. Hal ini mengindikasikan bahwa struktur kristal yang terbentuk adalah dominan tetragonal.



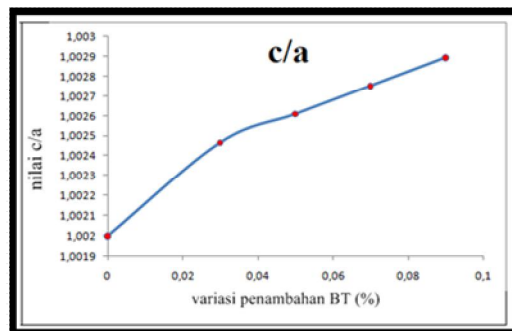
Gambar 5 Diagram fasa (1-x)BNT-xBT (sumber : Inigo, Bretos, 2011)

Berdasarkan diagram fasa BNT-BT, MPB (*Morphotropic Phase Boundary*) bahan BNT-BT adalah pada saat penambahan 7% BT. Pada daerah tersebut terjadi perubahan fasa dari rhombohedral menjadi tetragonal (Bretos, dkk, 2011). Pada saat penambahan 3%BT kedalam BNT, struktur kristal yang dimiliki oleh bahan hasil sintesis adalah rhombohedral (Fernando, 2013). Tetapi pada saat penambahan 3%BT dan 1% Ta₂O₅, bahan tersebut mengalami perubahan struktur menjadi dominan tetragonal. Pada penambahan Ta₂O₅, pada bidang (200) dengan sudut 2θ sebesar 46,7° berubah menjadi dua sudut yang berdekatan yaitu sudut 2θ sebesar 46,7° dan 46,75°. Menurut Do, dkk, (2011), substitusi Ta⁵⁺ akan mempengaruhi perubahan struktur terhadap bahan BNT-BT, hal ini disebabkan karena Ta⁵⁺ akan menggantikan posisi Ti⁴⁺ (Tukimin,2012). Selain itu, substitusi Ta akan menyebabkan pergeseran parameter kisi, ditandai dengan puncak tetragonal (200)/(002) bergeser ke sudut yang lebih kecil. Berdasarkan hasil tersebut, dengan menggunakan Persamaan (3) dapat ditentukan harga parameter kisi dan membuktikan bahwa struktur kristal yang terbentuk adalah dominan tetragonal.

$$\frac{1}{d^2} = \frac{h^2 + k^2}{a^2} + \frac{l^2}{c^2} \tag{3}$$

Tabel 3 Parameter kisi sampel BNT-BT dengan dopan Ta₂O₅

Penambahan BaTiO ₃	a = b	c	c/a
0,03	3,877648695	3,887219239	1,002468131
0,05	3,885485679	3,895630683	1,002611
0,07	3,893357376	3,904079354	1,002753916
0,09	3,901264009	3,912565497	1,002896878



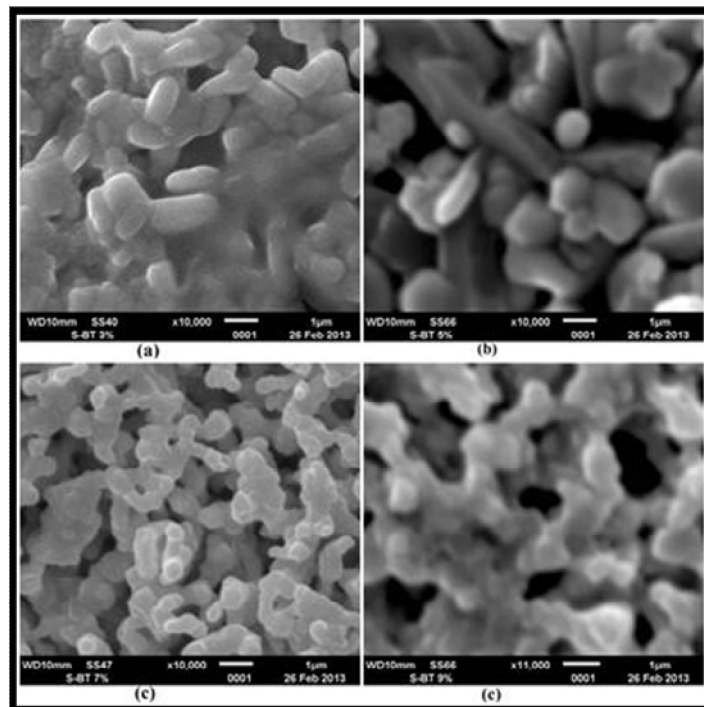
Gambar 6 Grafik perbandingan c dengan a

Gambar 6 merupakan grafik perbandingan nilai parameter kisi c dan a. Pada grafik terlihat semakin besar penambahan BT maka c/a yang dihasilkan akan semakin besar dan tidak

ada penurunan terhadap parameter kisi. Hal ini disebabkan karena struktur kristal yang terbentuk dari hasil sintesa adalah dominan tetragonal.

3.4 Analisis Morfologi BNT-BT-Ta₂O₅ dengan SEM

Gambar 7 merupakan hasil karakterisasi sampel dengan menggunakan SEM. Karakterisasi menggunakan SEM dilakukan untuk melihat struktur mikro dari bahan material, dimana variasi penambahan BaTiO₃ dan Ta₂O₅ berpengaruh terhadap butiran-butiran kristal yang terbentuk. Pada Gambar 7 (a) terlihat butiran kristal yang terbentuk seperti jarum, batas butirnya jelas, dan dapat dihitung. Ukuran partikel berkisar antara 1,02-2,08 μm. Selanjutnya, Gambar 7 (b) adalah hasil mikrograf BNT-BT dengan variasi penambahan BaTiO₃ 5 % dengan 1 % Ta₂O₅, bentuk butiran kristal mulai tidak jelas, tetapi masih terlihat batas butir dan ukuran partikel masih dapat dihitung. Ukuran partikel berada pada rentang 0,86-3,80 μm. Pada Gambar 7 (c) butiran kristal semakin tidak jelas dan batas butir kristal juga tidak terlihat lagi. Ukuran partikel tidak dapat lagi dihitung karena batas butir kristal tidak terlihat jelas dan butiran-butiran tersebut mengalami penggabungan. Pada Gambar 7 (d) bentuk butiran kristal seperti elips tidak jelas lagi, batas butir sangat tidak jelas karena butiran-butiran bergabung dan tidak teratur. Oleh karena itu, dapat disimpulkan bahwa apabila BNT-BT ditambahkan Ta₂O₅ dan penambahan BaTiO₃ divariasikan, maka bentuk butiran kristal semakin tidak terlihat jelas.



Gambar 7 Hasil SEM dengan perbesaran 10.000 kali untuk semua variasi penambahan BaTiO₃ dan Ta₂O₅.(a) BNT-3%BT-Ta₂O₅,(b) BNT5%BT-Ta₂O₅, (c) BNT-7%BT-Ta₂O₅,(d) BNT-9%BT-Ta₂O₅

IV. KESIMPULAN

Pada penelitian ini telah terbentuk bahan piezoelektrik BNT-BT-Ta menggunakan metode *solid state reaction*. Berdasarkan XRD didapatkan bahwa apabila semakin besar variasi penambahan BT, maka puncak pola difraksi bergeser ke arah kiri atau sudut 2θ makin kecil, sehingga mengakibatkan parameter kisi yang dihasilkan semakin besar. Bahan BNT-BT yang ditambahkan Ta₂O₅ memiliki struktur kristal tetragonal karena menghasilkan parameter kisi a dan b sebesar 3,87; 3,88; 3,89; 3,90 dan nilai c sebesar 3,88; 3,89; 3,90; 3,91 dengan sudut α,β dan γ adalah 90°. Dari karakterisasi menggunakan SEM diperoleh apabila variasi penambahan BT semakin besar, maka bentuk mikrograf yang awalnya berbentuk jarum menjadi tidak jelas karena butiran-butiran bergabung dan tidak teratur.

DAFTAR PUSTAKA

- Bretos, Inigo, 2011, Evidence of Morphotropic Phase Boundary Displacement in Lead-Free $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$ Polycrystalline Thin Films, Vol 65, Issues 17-18, Pages 2714-2716
- Do, N. B., Lee, H. B., Yoon, C. H., Kang, J. K., Lee, J. S., Effect of Ta-Substitution on the Ferroelectric and Piezoelectric Properties of $\text{Bi}_{0.5}(\text{Na}_{0.82}\text{K}_{0.18})\text{TiO}_3$ Ceramics, 2011, Transactions On Electrical and Electronics Materials, Vol 12, No.2, pp. 64-67
- Fernando, V., 2013, Sintesis dan Karakterisasi Bahan Piezoelektrik $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3\text{-BaTiO}_3\text{-Gd}_2\text{O}_3$ dengan Metode Solid State Reaction, Skripsi, FMIPA, IPB, Bogor
- Krisdianto, A. N., 2011, Studi Karakteristik Energi yang Dihasilkan Mekanisme Vibration Energy Harvesting Dengan metode Piezoelektrik Untuk Pembebanan Frontal dan Lateral, Skripsi, FTI, ITS, Surabaya
- Mardianto, Ahda, S., 2012, Struktur Mikro Bahan Piezoelektrik Bebas Timbal Bismuth Natrium Titanat-Barium Titanat-Kalium Natrium *Niobate* Hasil Sintesis Dengan Metode Reaksi Padat, Indonesian Journal of Material Science Vol 13, No.2, hal : 120-124
- Sung-Soo, R., Dang, Hyok., 2007, Solid-state syntesis of nano-sized BaTiO_3 powder with high tetragonality, Journal of Material Science 42:7093-7099
- Takenaka, dkk, $(\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2})\text{TiO}_3\text{-BaTiO}_3$ System for Lead-Free Piezoelectric Ceramics. Jpn. J. Appl. Phys. Pt. 1 1991, 30, 2236-2239.
- Tukimin, 2012, Studi Spektroskopi Impedansi Bahan Perovskite $(\text{BaSr})\text{TiO}_3$ Pada Temperatur Tinggi, Tesis, FMIPA, UI, Jakarta
- Zuo, R., Ye, C., Fang, X., and Li, J., 2008, Tantalum doped $0.94\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3\text{-}0.06\text{BaTiO}_3$ piezoelectric ceramics, Journal of the European Ceramic Society 28 Page : 871-87, School of Materials Science and Engineering, Materials and Structures Laboratory, Tokyo Institute of Technology, Cina, Japan