

# PENGARUH PENAMBAHAN BKT PADA PIEZOELEKTRIK RAMAH LINGKUNGAN $\text{Bi}_{0,5}\text{Na}_{0,5}\text{TlO}_3\text{-BaTlO}_3\text{-Bi}_{0,5}\text{K}_{0,5}\text{TlO}_3$ (BNT-BT-BKT)

Alimin Mahyudin,<sup>1</sup>Helga Dwi Fahyuan<sup>1</sup>, Syahfandi Ahda<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Jurusan Fisika Universitas Andalas, Padang, Indonesia

<sup>2</sup> Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTNBIN) Badan Tenaga Nuklir Nasional (BATAN), Tangerang, Indonesia

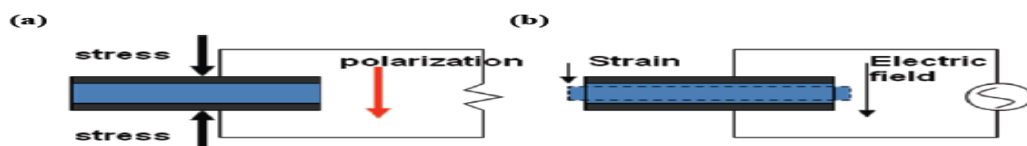
## ABSTRAK

Proses sintesis BNT-BT-BKT telah dilakukan dengan menggunakan metode *solid state reaction*. Sintesis BNT-BT dengan penambahan % mol BKT yaitu 2%, 5%, 8%, 15% juga mendapatkan struktur *perovskite* dengan komposisi yang optimal pada penambahan 5% mol BKT. Pola difraksi XRD pada bahan BNT-BT dengan penambahan % mol BKT menunjukkan adanya perubahan puncak-puncak yang tumpang tindih dari (200) rhombohedral menjadi (200) dan (002) dari tetragonal. Daerah perubahan fasa ini dikenal dengan MPB yang terjadi pada komposisi penambahan BKT 2%. Penambahan bahan dopan BKT ke BNT-BT menunjukkan perubahan pola difraksi sinar-x dengan pergeseran sudut  $45^\circ - 47^\circ$ . Mikrograph SEM, menunjukkan penambahan 2% BKT pada BNT-BT memiliki bentuk partikel seperti jarum dengan panjang rata-rata 1,608 – 2,589  $\mu\text{m}$ .

**Kata kunci:** Piezoelektrik, BNT, BNT-BT-BKT, PZT, MPB.

## 1. PENDAHULUAN

Bahan piezoelektrik merupakan salah satu bahan feroelektrik yang memiliki fenomena sangat menarik yakni dapat membangkitkan muatan listrik pada saat material dikenai stress mekanis, begitu juga sebaliknya, fenomena tersebut dapat pula membangkitkan strain mekanis dalam merespon medan listrik yang teraplikasi pada bahan tersebut. Sehingga pengembangan bahan dan aplikasinya sangat diminati oleh para peneliti dan perekayasa dewasa ini, dikarenakan banyak sekali bentuk-bentuk penggunaannya dalam masyarakat nanti dan sekarang ini. Diantaranya adalah pada bidang kesehatan, piezoelektrik dapat dimanfaatkan sebagai transduser yang digunakan pada alat-alat ultrasonografi (USG). Selain pada bidang kesehatan, piezoelektrik juga dapat diaplikasikan dalam bidang instrumentasi yaitu sebagai sensor, dengan menggunakan mikrokontroler. Selain itu piezoelektrik juga diaplikasikan pada pembangkit daya, motor listrik kecil, dan alat-alat berteknologi tinggi.



**Gambar 1.** Efek Piezoelektrik (a) *Direct piezoelectric effect* (b) *converse piezoelectric effect* (sumber : Huang, 2008)

Bahan piezoelektrik yang banyak diaplikasikan dewasa ini adalah bahan keramik  $\text{PbZr}_x\text{Ti}_{(1-x)}\text{O}_3$  (lebih dikenal dengan PZT). Akan tetapi pada proses sintesis dan pengaplikasian bahannya sangat perlu diwaspadai, dikarenakan sifat beracun yang dimilikinya, yaitu Pb (sebagai bahan dasar PZT). Begitu juga proses penguapan selama proses sintesis akan menyebabkan problem yang cukup serius secara jangka panjang. Maka dari itu suatu pemilihan bahan aplikasi, baik pada skala labor maupun industri menjadi sangat bermakna sekali dalam penentuan kebijaksanaan nasional jangka panjang.

Keberacunan bahan PZT ini membuat para peneliti mencari alternatif bahan piezoelektrik yang lain bebas dari Pb dalam rangka proteksi lingkungan. Keluarga keramik berstruktur bismut ini

telah menjadi pilihan yang tepat dalam penelitian kali ini untuk menyiasati bahan yang tidak beracun dan mempunyai sifat piezoelektrik kuat. Sehingga bahan  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  (BNT) menjadikan kandidat kuat bahan piezoelektrik bebas Pb [1,2,3]. Sintesis BNT yang dilakukan dewasa ini dilaboratorium PTBIN-BATAN telah menunjukkan terbentuknya sistem kristal perovskite dengan menggunakan metoda *solid state reaction*, sebagaimana dilaporkan oleh Ahda dkk [4]. Pengembangan bahan piezoelektrik BNT ini terus dikembangkan, agar dapat meningkatkan *kinerja* dari aplikasinya nanti.

Dalam penelitian kali ini dilakukan sintesis  $(0.95-x)\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3-0.05\text{BaTiO}_3-x\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TiO}_3$  (BNT-BT-BKT100x) dengan x berkisar 0 - 20 % mol. Proses homogenisasi dilakukan dengan pencampuran dan penggerusan sampel dengan menggunakan mortar selama 4 jam, kemudian dikompaksi dan dilanjutkan dengan proses kalsinasi pada suhu  $300\text{ }^\circ\text{C}$  selama 1 jam dan proses sintering pada suhu  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  selama 4 jam. Pada penelitian ini juga dilakukan karakterisasi dengan XRD (*x-ray diffraction*) dan SEM (*scanning electron microscope*).

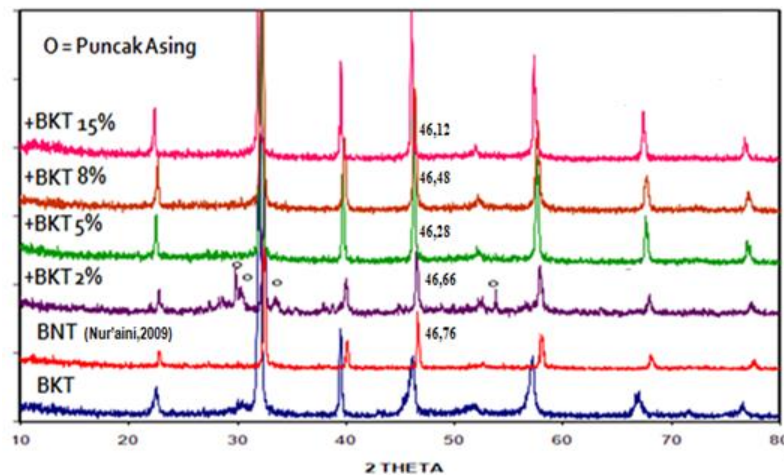
## 2. BAHAN DAN METODE

### Sintesis Bismut Natrium Titanat - Barium Titanat - Bismut Kalium Titanat (BNT-BT-BKT)

Bahan-bahan dasar (serbuk BNT-BT dan BKT) ditimbang dengan berbagai variasi mol BKT (2%, 5%, 8%, dan 15%), kemudian digerus. Penggerusan dilakukan selama 4 jam dengan mortar. Hasil penggerusan tersebut dipanaskan pada suhu  $100\text{ }^\circ\text{C}$  dengan menggunakan oven selama 1 jam. Sintesis ini dilakukan dengan menggunakan metode *solid state reaction* dengan parameter yang dominan pada penelitian kali ini adalah homogenisasi yang cukup merata, kompaksi dan suhu sintering. Homogenisasi dikualifikasi dengan lamanya penggerusan. Sedangkan kompaksi dengan penekanan 3500 psi dan sintering pada suhu  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  selama 4 jam. Untuk kalsinasi pada suhu  $300\text{ }^\circ\text{C}$  selama 1 jam. Setelah proses sintesis dilakukan, dilanjutkan dengan pengidentifikasian dan karakterisasi menggunakan *x-ray diffraction* (XRD) dan *scanning electron microscope* (SEM).

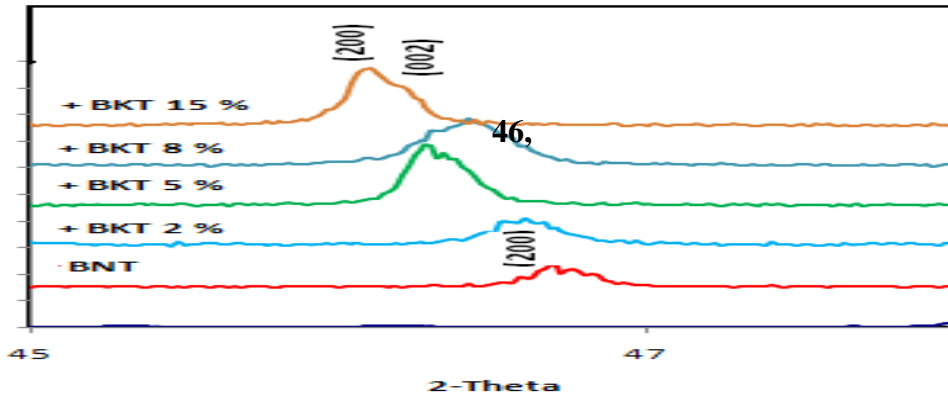
## 3. HASIL DAN PEMBAHASAN

Pola difraksi yang diperoleh dari penambahan 2%, 5%, 8%, dan 15%BKT pada BNT-BT seperti yang terlihat pada Gambar 2.



**Gambar 2.** Pola difraksi BNT-BT-BKT dengan sudut  $2\theta$  antara  $10^\circ - 80^\circ$

Semua pola difraksi (XRD) dari BNT-BT-BKT100x keramik memiliki struktur *perovskite* murni. Pola difraksi pada sampel BNT memiliki struktur *rhombohedral* [7, 4]. Pada penambahan BKT 2% ke dalam BNT-BT, tampak adanya puncak-puncak asing yang terlihat pada sudut  $29,86^\circ$ ,  $33,64^\circ$ ,  $37,98^\circ$ , dan  $53,84^\circ$ . Semua puncak asing tidak mengidentifikasi adanya puncak-puncak bahan dasar, dengan kata lain pada BNT-BT-BKT 2% semua bahan dasar telah tersintesis secara sempurna. Puncak-puncak asing itu dimungkinkan strukturnya masih dalam tahap pembentukan *perovskite*. Sedangkan pada penambahan BKT 5%, 8% dan 15% pola difraksi *clear* menunjukkan struktur *perovskite* dan tidak memiliki puncak asing.



**Gambar 3.** Pergeseran puncak-puncak yang agak spesifik dari penambahan BKT

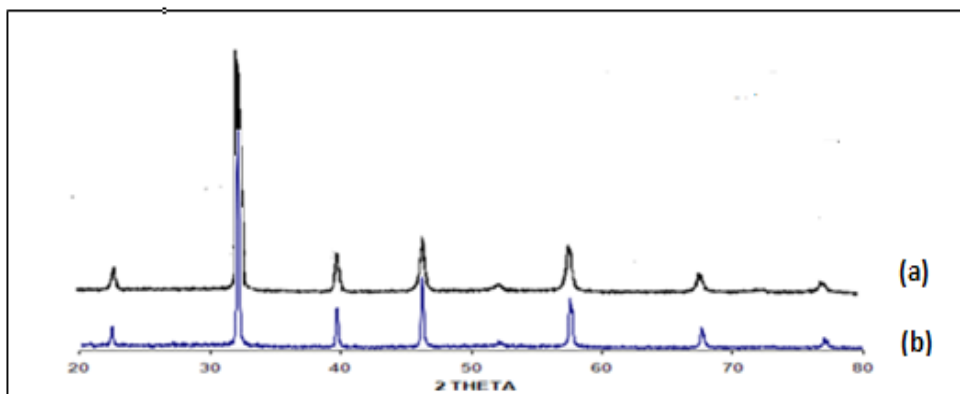
Pola difraksi BKT 2% ke BKT 5%, tampak jelas terjadi perubahan struktur. Hal tersebut dapat dilihat dari pergeseran sudut (2-theta) ke arah kiri yang mengakibatkan jarak antar bidang ( $d$ ) menjadi bertambah besar. Secara keseluruhan terjadi pergeseran sudut sebagaimana terlihat pada salah satu puncak BNT  $46,76^\circ$  menjadi  $46,66^\circ$ ,  $46,28^\circ$ ,  $46,48^\circ$ ,  $46,12^\circ$  secara berurutan dengan penambahan BKT. Sehingga dimungkinkan struktur BNT yang ditambahkan BKT menjadi berubah, baik bentuk, jarak antar bidang dan parameter kisi. Seperti yang terlihat pada Gambar 3.

Pola difraksi sampel dalam kisaran 2 theta adalah  $45^\circ - 47^\circ$ , seperti yang ditunjukkan pada Gambar 3. Telah terjadi perubahan struktur dari BNT rhombohedral (200) menjadi (200) dan (002) tetragonal dengan penambahan BKT, sehingga adanya perubahan fasa berbasis BNT rhombohedral ke tetragonal dengan daerah *Morphotropic Phase Boundary* (MPB) berkisar 2% sampai 15%.

Pada puncak penambahan 5% dan 15% mol BKT ke dalam BNT-BT terlihat jelas terjadi tumpang tindih, dikarenakan ada puncak (200) dan (002) dari tetragonal, sedangkan pada penambahan 2% dan 8% tidak jelas terjadi tumpang tindih.

Pada penambahan 5% mol BKT, tidak ada perubahan yang jelas dalam pola difraksi jika diamati dan dibandingkan dengan BNT keramik. Tetapi pada puncak sekitar  $46,3^\circ$  terlihat sedikit asimetris. Ketidaksimetrisan itu terjadi akibat pengaruh variasi komposisi dan struktur kristal yang dianggap sebagai suatu koeksistensi fasa rhombohedral dan tetragonal, yang menunjukkan batas fasa *morphotropic* (MPB) harus dekat BNT-BT pada komposisi 5% mol BKT [5].

Perubahan struktur dari BKT dan BNT-BT-BKT telah terjadi selama proses sintering dimana BKT berdifusi kedalam kisi BNT-BT untuk membentuk larutan padat. Komposisi yang tepat dalam mensintesis BNT-BT-BKT adalah pada penambahan 5% mol BKT, yang akan meningkatkan sifat piezoelektrik secara signifikan. Selain itu, pola difraksi BNT-BT-BKT5% sesuai dengan literatur, seperti yang terlihat pada Gambar 4.



**Gambar 4.** Pola hasil difraksi BNT-BT-BKT5% (a) BNT-BT-BKT5%  $1170^\circ\text{C}$  literatur (Wang, 2004) (b) BNT-BT-BKT5%  $1000^\circ\text{C}$  eksperimen.

Dengan keberadaan fasa dengan struktur rhombohedral maupun tetragonal, kita dapat menentukan parameter kisi dengan rumus sebagai berikut :

$$\frac{1}{d^2} = \frac{(h^2+k^2+l^2)\sin^2\alpha+2(hk+kl+hl)(\cos^2\alpha-\cos\alpha)}{a(1-3\cos^2\alpha+2\cos^3\alpha)} \text{ (Rhombohedral)} \quad (1)$$

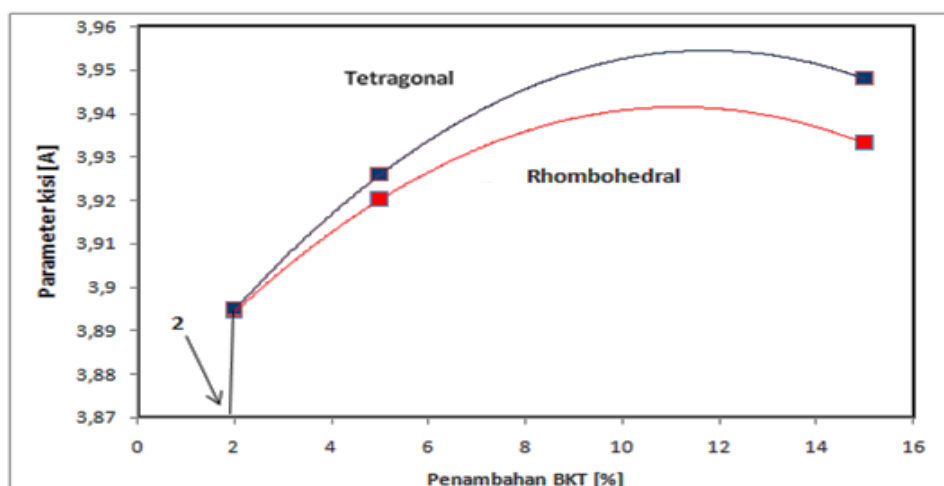
$$\frac{1}{d^2} = \frac{h^2+k^2}{a^2} + \frac{l^2}{c^2} \text{ (Tetragonal)} \quad (2)$$

Dengan  $a$ ,  $c$  dan  $\alpha$  merupakan parameter kisi,  $h$ ,  $k$  dan  $l$  adalah indeks Miller dari bidang refleksi, sedangkan  $d$  adalah jarak antar bidang refleksi yang didapat dari  $\lambda = 2 d \sin \theta$ . Panjang gelombang sinar-x yang digunakan berasal dari  $\text{CuK}\alpha$  sebesar  $\lambda = 1,54056 \text{ \AA}$  dan  $\theta$  merupakan sudut refleksi sinar-x. Hasil dari penghitungan dengan menggunakan data-data puncak pola difraksi diatas dan indek miller yang telah diteliti[8] sehingga diperoleh harga parameter kisi sebagai berikut :

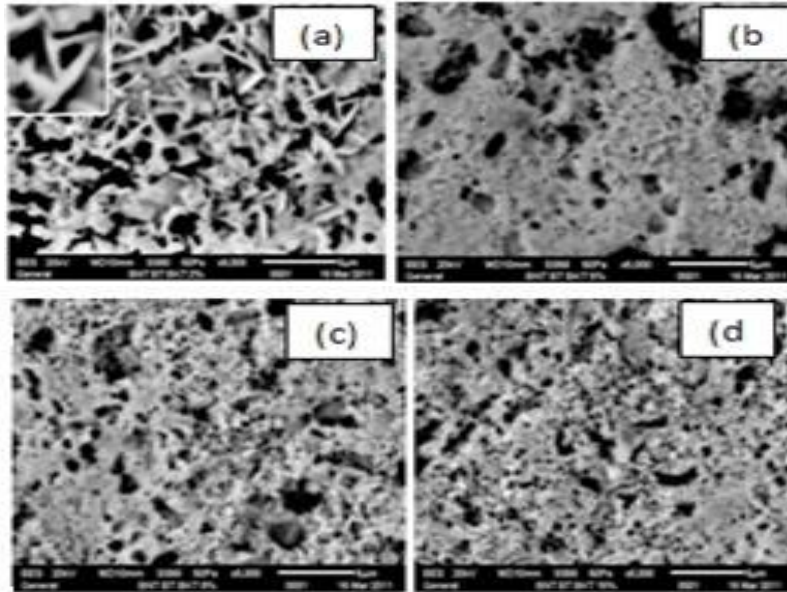
**Tabel 1.** Hasil perhitungan parameter kisi untuk rhombohedral dan tetragonal

No	% BKT	Rhombohedral		Tetragonal	
		a[Å]	$\alpha$ [°]	a[Å]	c[Å]
1	2	3,8944	89,98	3,8949	2,7541
2	5	3,9202	89,83	3,9258	2,7760
3	8	3,9096	89,89	3,9131	2,7670
4	15	3,9332	89,56	3,9479	2,7916

Harga parameter kisi ( $a$ ) dari rhombohedral mengalami kenaikan sebanding dengan kenaikan % mol BKT, begitu juga untuk tetragonal mengalami kenaikan dengan penambahan % mol BKT. Gambar 5 merupakan gambar hubungan harga parameter kisi ( $a$ ) untuk rhombohedral dan tetragonal. Perpotongan harga  $a$  dalam Angstrom diperkirakan terjadi pada persentase penambahan BKT sebesar 2%. Besar harga  $a$  untuk tetragonal dan rhombohedral pada daerah penambahan 2% BKT cenderung sama, sedangkan untuk penambahan BKT di atas 2%, harga  $a$  untuk tetragonal cenderung lebih besar dari rhombohedral. Dari analisis di atas dimungkinkan adanya batas MPB dari rhombohedral ke tetragonal pada penambahan 2% mol BKT. Prediksi MPB juga dilakukan dengan cara yang sama oleh [9], pada bahan BNT dengan penambahan BZT dan juga dengan penambahan BSrT.



**Gambar 5.** Hubungan harga  $a$ [Å] dari rhombohedral dan tetragonal terhadap penambahan % BKT



**Gambar 6.** Dari SEM dengan perbesaran 5000 kali untuk sampel penambahan (a) 2% BKT, (b) 5% BKT, (c) 8% BKT, (d) 15% BKT

Hasil SEM terhadap kristal BNT-BT-BKT dengan perbesaran sampai 5000 kali dapat dilihat pada Gambar 6.

Partikel-partikel berbentuk jarum pada penambahan 2% BKT, sedangkan pada penambahan 5%, 8% dan 15% BKT bentuk butirannya tidak begitu jelas. Hal tersebut disebabkan karena penambahan mol BKT dalam jumlah besar, sehingga permukaan agak tertutup dan bentuk partikel tidak begitu terlihat, hal ini dimungkinkan karena bahan  $K_2CO_3$  yang bersifat higroskopis. Ukuran partikel untuk penambahan 2% BKT adalah  $1,608 - 2,589 \mu m$ , sedangkan pada penambahan 5%, 8%, 15% BKT tidak dapat diukur karena bentuk partikel yang tidak jelas.

#### 4. KESIMPULAN

Sintesis BKT dengan menggunakan metode *solid state reaction* mendapatkan struktur *perovskite* dengan besar tekanan optimal 3500 psi. Sintesis BNT-BT dengan penambahan % mol BKT yaitu 2%, 5%, 8%, 15% juga mendapatkan struktur *perovskite* dengan komposisi yang optimal pada penambahan 5% mol BKT. Penambahan bahan dopan BKT ke BNT-BT menunjukkan perubahan pola difraksi sinar-x dengan pergeseran sudut  $45^\circ - 47^\circ$ . Pola difraksi XRD pada bahan BNT-BT dengan penambahan % mol BKT menunjukkan adanya perubahan puncak-puncak yang *overlapping* dari (200) rhombohedral menjadi (200) dan (002) dari tetragonal, sehingga adanya perubahan fasa berbasis BNT rhombohedral ke tetragonal sehingga memungkinkan adanya batas MPB pada penambahan 2% mol BKT. Dari SEM, menunjukkan penambahan 2% BKT pada BNT-BT memiliki bentuk partikel seperti jarum dengan panjang rata-rata  $1,608 - 2,589 \mu m$ . Meningkatnya massa atom kalium (EDS) identik dengan penambahan BKT pada BNT-BT secara proposional.

#### UCAPAN TERIMAKASIH

Penulis mengucapkan terimakasih kepada Pusat Teknologi Bahan Industri Nuklir (PTBIN), Badan Tenaga Nuklir Nasional (BATAN), Kawasan Puspiptek Serpong, Tangerang. Atas dukungannya selama pelaksanaan proses sintesis bahan.

**DAFTAR PUSTAKA**

1. Paisa, S, Narueporn. V, Surphakan. K, Aree .T, Science and Technology of Advanced Materials 6 (2005) 278-281.
2. Chune.P, Jing-Feng Li, Wen Gong, Materials Letters 59 (2005) 1576-1580.
3. Shan Tao, Alain B.K., Emil A, Applied Physics 91 (2007) 112906.
4. S.Ahda dan Mardiyanto, Synthesis Of Lead Free Piezoelectric Bnt Ceramic By Use Of Solid State Reaction Method, ICMST, Oktober 2010.
5. Wang, X. G. Tang, and H. L. W. Chan. 2004. Bi<sub>1/2</sub>Na<sub>1/2</sub>TiO<sub>3</sub>-Bi<sub>1/2</sub>K<sub>1/2</sub>TiO<sub>3</sub>-BaTiO<sub>3</sub> lead-free piezoelectric ceramics.Department of Applied Physics and Materials Research Center, The Hong Kong Polytechnic University, Hunghom Kowloon, Hong Kong, China.
6. J. Scott and C.A. Araujo, Ferroelectric Memories, Science 246 (1989) 1400.
7. Toshihiko. 1998. The optimum conditions for preparing the lead-free piezoelectric ceramic of Bi<sub>0.5</sub>Na<sub>0.5</sub>TiO<sub>3</sub> using the Taguchi method. Journal of the Korean Physical Society, Vol. 32, No. , Feburary , pp. S1217\_S1220.
8. Konapala. 2010. Piezoelectric Properties of (Bi<sub>0,5</sub>Na<sub>0,5</sub>)TiO<sub>3</sub> Ceramics-Lead Free Piezoelectric Ceramics Developed at AIST Chubu.
9. Wei-Chih Lee, Chi-Yuen Huang, Liang-Kuo Tsao, Yu-Chun Wu. 2008.Chemical composition and tolerance factor at the morphotropic phase boundary in (Bi<sub>0.5</sub>Na<sub>0.5</sub>)TiO<sub>3</sub>-based piezoelectric ceramics.W.-C. Lee et al. / Journal of the European Ceramic Society.