

**KESAN PARAMETER PEMROSESAN PENGISARAN  
PLANETARI TERHADAP HASILAN ELEKTROSERAMIK  
 $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$**

**UMAR AL-AMANI B. HJ. AZLAN**

**UNIVERSITI SAINS MALAYSIA**

**DISEMBER 2006**

**KESAN PARAMETER PEMROSESAN PENGISARAN  
PLANETARI TERHADAP HASILAN ELEKTROSERAMIK  
 $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$**

**oleh**

**UMAR AL-AMANI B. HJ. AZLAN**

**Tesis yang diserahkan untuk memenuhi keperluan bagi  
Ijazah Sarjana Sains**

**APRIL 2007**

## PENGHARGAAN

Segala pujian dan syukur kehadiran Ilahi dengan limpah kurniaanNya. Segala pujian khusus kepada Nabi Junjungan Muhammad S.A.W dan kesejahteraan para sahabat dan para anbiya'a.

Pertama sekali ucapan setinggi terima kasih dan sekalung penghargaan kepada penyelia utama, Prof. Madya Dr. Ahmad Fauzi Mohd Noor yang banyak membantu dan memberi bimbingan serta dorongan sepanjang perjalanan projek ini. Ucapan terima kasih diajukan kepada Pusat Pengajian Kejuruteraan Bahan & Sumber Mineral kerana memberi peluang bagi saya menyambung pengajian ke peringkat Sarjana. Ucapan terima kasih kepada Dekan, Timbalan-timbalan Dekan, para pensyarah serta kakitangan pusat pengajian khasnya para juruteknik yang sentiasa membantu dalam menjayakan projek.

Ucapan terima kasih juga kepada Kementerian Sains, Teknologi dan Alam Sekitar yang membiayai sepenuhnya pengajian saya di bawah geran *Processing of Ultrafine Barium Strontium Titanate ( $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ ) By Mechanical Activation Technique* (No. Projek: 09-02-05-3260 EA 016). Tidak dilupakan setinggi ucapan terima kasih kepada Dr. Teoh Wah Tzu yang memberi cadangan, bimbingan serta dorongan kepada saya dalam menyempurnakan projek. Buat arwah ayah Hj. Azlan B. Hj. Mohd Salleh dan ibu yang disayangi Hajjah Noor Aminah Bte. Mohd Ali Hanapiah, terima kasih atas kasih sayang serta segala pengorbanan yang telah dicurahkan. Buat adik-beradik Azura, Usman, Amir, Ali, Salleh dan Ismail, terima kasih atas segala sokongan dan galakan yang telah dicurahkan. Semoga doa

kalian akan diberkati oleh Yang Maha Esa. Buat tunang tercinta Malihah Bt. Mat Yusof, terima kasih atas segala-galanya.

Buat rakan seperjuangan khususnya rakan-rakan Ijazah Tinggi, Hamisah, Zarina, Niki, Trung Kien, Salimin, Mat Arip, Nuar Junoh, Halim dan semua yang terlibat dalam penyelidikan ini yang banyak membantu, memberi tunjuk ajar dan sokongan serta menceriakan suasana sepanjang pengajian didahulukan dengan ucapan terima kasih. Sokongan dan galakan kalian menjadi pendorong bagi saya menyempurnakan tesis ini.

Sekian, terima kasih.

**UMAR AL-AMANI B. HJ. AZLAN**

Disember 2006

## ISI KANDUNGAN

<b>PENGHARGAAN</b>	I
<b>ISI KANDUNGAN</b>	III
<b>SENARAI JADUAL</b>	IX
<b>SENARAI RAJAH</b>	X
<b>SENARAI LAMPIRAN</b>	XVI
<b>SENARAI SINGKATAN</b>	XVI
<b>ABSTRAK</b>	XVII
<b>ABSTRACT</b>	XVIII
<b>BAB 1 - PENGENALAN</b>	
1.1 Latar Belakang Kajian	1
1.2 Kenyataan Masalah	5
1.3 Objektif Kajian	6
1.4 Skop Kajian	6
<b>BAB 2 - KAJIAN PERSURATAN</b>	
2.1 Pengenalan	8
2.2 Elektroseramik	9
2.2.1 Seramik Piezoelektrik, Piroelektrik dan Feroelektrik	10
2.2.2 Pemalar Dielektrik	12
2.2.3 Faktor-Faktor Yang Mempengaruhi Pemalar Dielektrik	14
2.2.3.1 Saiz Ira	14
2.2.3.2 Suhu Semasa Pengukuran	17
2.2.3.3 Komposisi	18
2.3 Kaedah Tindakbalas Keadaan Pepejal	19

2.3.1 Kelebihan Dan Kekurangan Tindakbalas Keadaan Pepejal	21
2.4 Proses Hasilan Bahan Elektroseramik	22
2.4.1 Bahan Mentah	23
2.4.2 Pencampuran Dan Pengisaran	25
2.4.2.1 Aglomerat	28
2.4.3 Pengkalsinan	30
2.4.4 Pembentukan	31
2.4.4.1 Penekanan Kering Eka-paksi	32
2.4.5 Pensinteran	34
2.5 Teknik Pengaktifan Mekanikal	38
2.5.1 Pengaktifan Primer Dan Sekunder	39
2.6 Pengisaran Planetari	41
2.6.1 Parameter-Parameter Proses Pengisaran	43
2.6.1.1 Jenis Bekas Pengisar	44
2.6.1.2 Media Kisaran	44
2.6.1.3 Halaju Kisaran	48
2.6.1.4 Tempoh Kisaran	50
2.6.1.5 Nisbah Berat Bebola terhadap Serbuk	53
2.7 Kata Penutup	54
<b>BAB 3 - TATACARA EKSPERIMEN</b>	
3.1 Pengenalan	55
3.2 Peringkat 1 – Kajian Awal Penentuan Masa Dan Halaju Kisaran	58
3.2.1 Bahan-Bahan Mentah	58
3.2.2 Formulasi Komposisi	59

3.2.3 Pengisaran Planetari	60
3.3 Peringkat 2 – Kajian Kesan Suhu Pengkalsinan	63
3.3.1 Pengkalsinan	62
3.3.2 Penggranulan	63
3.3.3 Penekanan Eka-Paksi	64
3.3.4 Pensinteran	65
3.4 Peringkat 3– Kajian Kesan Masa Kisaran Singkat Pada Halaju Kisar Tinggi	66
3.5 Peringkat 4 – Kajian Kesan Pra-campuran Serbuk	67
3.5.1 Pra-Campuran Serbuk	68
3.6 Kaedah Pencirian Bahan Mentah Dan Hasil Sinter	69
3.6.1 Analisis Ketulenan Bahan Mentah Dengan XRF	69
3.6.2 Analisis Mikrostruktur dengan SEM	70
3.6.3 Analisis Mikrostruktur Dengan TEM	73
3.6.4 Analisis Taburan Saiz Partikel	74
3.6.5 Analisis TG	74
3.6.6 Penentuan Kehilangan Berat	75
3.6.7 Penentuan Ketumpatan Serbuk	76
3.6.8 Analisis XRD	77
3.6.9 Analisis Kecut Bakar	78
3.6.10 Penentuan Ketumpatan Dan Keliangan Oleh Prinsip Archimedes	80
3.6.11 Pengukuran Sifat-Sifat Dielektrik	83

## **BAB 4 - KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN**

4.1 Pengenalan	85
4.2 Pencirian Bahan Mentah	85
4.2.1 Morfologi Bahan Mentah	85
4.2.2 Analisis Taburan Saiz Partikel	87
4.2.3 Analisis Ketulenan Bahan Mentah	88
4.3 Peringkat 1- Penentuan Awal Halaju Dan Masa Kisaran Sesuai	89
4.3.1 Pencirian Selepas Kisaran	92
4.3.1.1 Perubahan Saiz Dan Morfologi Partikel	92
4.3.1.2 Taburan Saiz Partikel	94
4.3.1.3 Analisis Kelakuan Terma	96
4.4 Peringkat 2- Analisis Kesan Suhu Pengkalsinan	99
4.4.1 Ujian Ketumpatan Serbuk	99
4.4.2 Analisis Fasa XRD	101
4.4.3 Analisis Mikrostruktur Serbuk Selepas Kalsin	105
4.4.4 Analisis Fasa Untuk Sampel Pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ Sinter	106
4.4.5 Analisis Kecut Bakar	107
4.4.6 Analisis Ketumpatan Relatif Dan Keliangan Ketara	110
4.4.7 Analisis Sifat-Sifat Dielektrik	112
4.4.8 Analisis Mikrostruktur Untuk Sampel Pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ Sinter	118
4.4.8.1 Kesan Suhu Sinter	121
4.4.8.2 Kesan Masa Kisaran	123
4.5 Peringkat 3- Analisis Kesan Masa Kisaran Singkat Pada Halaju Kisar Tinggi	124



4.5.1 Analisis Mikrostruktur Selepas Kisaran	125
4.5.2 Analisis Fasa XRD	126
4.5.3 Analisis Kecut Bakar	128
4.5.4 Analisis Ketumpatan Relatif Dan Keliangan Ketara	130
4.5.5 Analisis Sifat-Sifat Dielektrik	133
4.5.6 Analisis Mikrostruktur Sampel Pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ Sinter	135
4.6 Peringkat 4- Analisis Kesan Pra-Campuran Serbuk	140
4.6.1 Analisis Ketumpatan Serbuk	141
4.6.2 Analisis Fasa XRD	143
4.6.3 Analisis Kecut Bakar	145
4.6.4 Ketumpatan Relatif Dan Keliangan Ketara Untuk Pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ Sinter	148
4.6.4.1 Perbandingan Ketumpatan Relatif Untuk Pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ Sinter Daripada Serbuk Pra-Campuran Dan Serbuk Tanpa Pra-Campuran	150
4.6.5 Sifat-Sifat Dielektrik Untuk Sampel Pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ Sinter	152
4.6.5.1 Perbandingan Sifat-Sifat Dielektrik Untuk Pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ Sinter Daripada Serbuk Pra-Campuran Dan Serbuk Tanpa Pra-Campuran	154
4.6.5.2 Perbandingan Pemalar Dielektrik Dengan Kajian Lain	157
4.6.6 Analisis Mikrostruktur Sampel Pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ Sinter	159
4.6.6.1 Perbandingan Mikrostruktur Pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ Sinter Yang Diperolehi Daripada Serbuk Pra-Campuran Dan Serbuk Tanpa Pra-Campuran	163
<b>BAB 5 - KESIMPULAN DAN CADANGAN</b>	
5.1 Kesimpulan	165
5.2 Cadangan Penyelidikan Pada Masa Hadapan	167

<b>RUJUKAN</b>	169
<b>SENARAI KERTAS PENERBITAN</b>	175
LAMPIRAN A	176
LAMPIRAN B	177
LAMPIRAN C	178
LAMPIRAN D	179
LAMPIRAN E	180
LAMPIRAN F	181
LAMPIRAN G	182
LAMPIRAN H	183
LAMPIRAN I	184
LAMPIRAN J	185

## KESAN PARAMETER PEMROSESAN PENGISARAN PLANETARI TERHADAP HASILAN ELEKTROSERAMIK $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$

### ABSTRAK

Kajian dilakukan untuk melihat keberkesanan pengisar bebola planetari menghasilkan seramik feroelektrik  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$  dengan sifat pemalar dielektrik tinggi. Pada mulanya, analisis kehilangan berat telah digunakan dalam menentukan halaju dan masa kisaran yang sesuai. Analisis mendapati bahawa halaju kisaran 400 ppm dengan tempoh 4, 24 dan 48 minit adalah sesuai dan telah digunakan untuk peringkat seterusnya. Kajian pengkalsinan selama 3 jam pada  $950\text{ }^{\circ}\text{C}$  telah menunjukkan kehadiran fasa bakian  $BaCO_3$  dengan fasa  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$  merupakan fasa yang dominan. Pemerhatian juga mendapati agregat-agregat keras telah terbentuk selepas pengkalsinan. Lantaran itu, pensinteran pada suhu  $1250\text{ }^{\circ}\text{C}$  menunjukkan pelet-pelet dalam keadaan berdebu, iaitu tidak tersinter sempurna, dan memerlukan suhu pensinteran lebih tinggi. Ketumpatan relatif yang hampir konsisten dan tinggi (94 – 96 %) diperolehi selepas suhu sinter  $1300\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Dalam pada itu, pemalar dielektrik yang dihasilkan adalah sekitar 3000 hingga 6500 dan didapati meningkat dengan suhu sinter. Kajian juga mendapati kisaran pada halaju tinggi (600 ppm) telah menghasilkan campuran serbuk yang bersaiz nano. Saiz nano ini turut memberi kesan terhadap pembesaran saiz ira selepas sinter yang hanya mencapai kurang daripada  $3.0\text{ }\mu\text{m}$  dan seterusnya menghasilkan pemalar dielektrik yang lebih rendah (3000 hingga 4800) berbanding peringkat 2. Kesan pra-campuran serbuk telah menunjukkan bahawa nilai tertinggi bagi pemalar dielektrik boleh dicapai pada suhu sinter  $1300\text{ }^{\circ}\text{C}$  berbanding kesan tanpa pra-campuran, iaitu  $1350$  dan  $1400\text{ }^{\circ}\text{C}$ .

## **EFFECT OF PROCESSING PARAMETERS OF PLANETARY MILL ON Ba<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>TiO<sub>3</sub> ELECTROCERAMIC PRODUCT**

### **ABSTRACT**

The study was conducted to evaluate the effectiveness of planetary ball milling in producing Ba<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>TiO<sub>3</sub> ferroelectric ceramic with a high dielectric constant. Initially, weight loss analysis was used to determine a suitable speed and time of milling. The analysis found that a speed of 400 rpm with a period of 4, 24 and 48 minutes was suitable and was subsequently used in further stages of this work. Calcination study of 3 hours at 950 °C showed presence of BaCO<sub>3</sub> remnants with Ba<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>TiO<sub>3</sub> phase being dominant. It was also observed that hard aggregate was formed after calcination. Hence, sintering at a temperature of 1250 °C showed the pellets in a powdery form due to insufficient sintering, and required higher sintering temperatures. A consistent and high relative density (94 – 96%) was obtained after sintering at 1300 °C. Subsequently, the dielectric constant was found to be around 3000 – 6500, and the values increased with increasing of sintering temperature. The study also found that milling at high speed (600 rpm) had produced mixed powder of nano-sized. The nano-size powders had affected the grain size upon sintering, which was found to be less than 3.0 µm, and hence, producing low dielectric constant (3000 – 4800) as compared to the second stage. The effect of pre-mixing of the powders had showed that the highest dielectric constant could be achieved at sintering temperature of 1300 °C as compared to effect of non-premixing, i.e. at 1350 and 1400 °C.

## SENARAI JADUAL

### BAB 2

Jadual 2.1 Contoh beberapa sebatian elektroseramik mengikut jenis kumpulan 10

Jadual 2.2 Pemalar dielektrik pada 25 °C 13

Jadual 2.3 Kesan saiz ira selepas sinter terhadap pemalar dielektrik 17

### BAB 3

Jadual 3.1 Jisim setiap bahan mentah untuk menyediakan 10 g hasilan  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  bagi setiap set campuran serbuk 60

### BAB 4

Jadual 4.1 Analisis XRF bagi serbuk  $\text{BaCO}_3$  89

Jadual 4.2 Analisis XRF bagi serbuk  $\text{SrCO}_3$  89

Jadual 4.3 Analisis XRF bagi serbuk  $\text{TiO}_2$  89

Jadual 4.4 Ringkasan analisis saiz ira selepas setiap suhu sinter 123

Jadual 4.5 Ringkasan suhu sinter terhadap purata saiz ira 139

Jadual 4.6 Ringkasan keputusan untuk peringkat pra-campuran 163

### BAB 5

Jadual 5.1 Perbandingan keputusan akhir dengan mengikut peringkat kajian 167

## SENARAI KERTAS PENERBITAN

Umar Al-Amani & Ahmad Fauzi Mohd Noor (2006) Planetary milling of fine powders of  $\text{BaCO}_3\text{-SrCO}_3\text{-TiO}_2$  and resultant properties, *Malaysian Journal of Microscopy*. In Press.

Umar Al-Amani & Ahmad Fauzi Mohd Noor (2006) Formation of  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  via planetary milling and automated mortar grinder, National Seminar On Science and Its Application in Industry (SSASI 2006), In Proceeding Format, Century Mahkota Hotel, Malacca, Feb. 14 - 15

Saidatulakmar Shamsuddin, Umar Al-Amani Haji Azlan, Ahmad Fauzi Mohd Noor and Zainal Arifin Ahmad (2005) A Study On  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  By Solid State Reaction, The XXII Regional Conference on Solid State Science & Technology, Kuantan, Pahang, Dis. 18 - 21

Umar Al-Amani & Ahmad Fauzi Mohd Noor (2005) Non-uniformity in planetary milling of fine powders of  $\text{BaCO}_3\text{-SrCO}_3\text{-TiO}_2$  and resultant properties, 14<sup>th</sup> Scientific Conference of Electron Microscopy Society of Malaysia 2005, In CD Format, Vistana Hotel, Penang, Dis. 5 - 7

Umar Al-Amani & Ahmad Fauzi Mohd Noor (2005) Microstructure and Properties of  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  Prepared by Planetary Milling, 5<sup>th</sup> Annual Scientific Conference of the Microscopy Society of the Philippines (MICROSPHIL), In CD Format, Holiday Inn Galleria One Asian Development Bank Avenue Ortigas Center, Pasia City, Philippines, Nov. 24 - 25

## SENARAI LAMPIRAN

Lampiran A	Pengiraan bahan mentah yang diperlukan untuk menyediakan 10 g hasilan $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$	172
Lampiran B	Kaedah pengiraan kehilangan berat teori $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$	173
Lampiran C	MSDS $\text{BaTiO}_3$	174
Lampiran D	Data-data ujian ketumpatan serbuk	175
Lampiran E	Data-data ujian kecut bakar	176
Lampiran F	Data-data ujian ketumpatan relatif dan keliangan ketara	177
Lampiran G	Data-data sifat-sifat dielektrik	178
Lampiran H	Data-data ujian XRF	179
Lampiran I	Graf kesan frekuensi terhadap kapasitans	180
Lampiran J	Graf-graf XRD	181

## SENARAI SINGKATAN

$\text{BaCO}_3$	Barium karbonat
$\text{SrCO}_3$	Strontium karbonat
$\text{TiO}_2$	Titanium(IV) oksida
SEM	Mikroskop Elektron Imbasan
TEM	Mikroskop Elektron Transmisi
XRD	Pembelauan Sinar-X
XRF	Pendafloor Sinar-X
TG	Termogravimetri
DTA	Analisis Pembezaan Haba

## SENARAI RAJAH

### BAB 1

Rajah 1.1	Struktur umum perovskit BaTiO <sub>3</sub>	2
Rajah 1.2	Pengaruh suhu ke atas pemalar dielektrik untuk BaTiO <sub>3</sub>	2
Rajah 1.3	Peringkat-peringkat kajian dalam penyelidikan	7

### BAB 2

Rajah 2.1	Gelung histerisis bagi struktur hablur feroelektrik	12
Rajah 2.2	Kesan saiz ira ke atas pemalar dielektrik untuk BaTiO <sub>3</sub>	15
Rajah 2.3	Perubahan pemalar dielektrik terhadap suhu untuk BaTiO <sub>3</sub> dengan (a) saiz ira 1 µm dan (b) saiz ira 50 µm	16
Rajah 2.4	Pengaruh komposisi bahan terhadap pemalar dielektrik	18
Rajah 2.5	Kesan nisbah mol bagi bahan dopan terhadap suhu	19
Rajah 2.6	Skematik proses hasilan Ba <sub>0.7</sub> Sr <sub>0.3</sub> TiO <sub>3</sub>	23
Rajah 2.7	Pandangan sisi pengisaran bola	26
Rajah 2.8	Lakaran skematik yang menunjukkan daya-daya yang terbentuk di antara partikel-partikel halus dalam keadaan cecair dan pepejal yang membentuk aglomerat	29
Rajah 2.9	Peringkat-peringkat yang terlibat dalam penekanan kering eka-paksi; (a) penggelongsoran dan penyusunan semula, (b) penyerpihan partikel dan (c) penyingkiran liang-liang	33
Rajah 2.10	Tahap-tahap dalam penempatan jadad seramik semasa pensinteran. (a) Tahap serbuk bebas (b) Tahap permulaan pengikatan (c) Tahap pembentukan sempadan ira (d) Tahap penempatan dan penghapusan liang pada sempadan ira	36
Rajah 2.11	Mesin pengisar planetari daripada jenis <i>Pulverisette 5, Fritsch</i>	42
Rajah 2.12	Ilustrasi pergerakan semasa pengisar bebola planetari berlaku	43



Rajah 2.13	Perubahan saiz partikel bagi sampel talkum yang terkisar dengan masa pengisaran. (Halaju putaran: 500 ppm)	46
Rajah 2.14	Pengaruh halaju pengisaran dengan diameter bebola yang berlainan terhadap tenaga hentaman	50
Rajah 2.15	Perubahan taburan saiz partikel bagi sampel talkum terhadap masa pengisaran (Halaju putaran: 500 ppm; diameter bebola: 9.5 mm)	52
Rajah 2.16	Masa pengisaran yang diperlukan untuk mencapai saiz partikel yang paling halus daripada saiz partikel asal yang kasar dan kecil	52
<b>BAB 3</b>		
Rajah 3.1	Carta alir penghasilan $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ . Peringkat 2 dijalankan selepas penentuan halaju dan masa pengisaran yang sesuai daripada peringkat 1.	56
Rajah 3.2	Profil pengkalsinan untuk campuran serbuk kisanan	63
Rajah 3.3	Profil pensinteran untuk pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$	66
Rajah 3.4	Lakaran skematik lengkap untuk operasi SEM	72
Rajah 3.5	Profil pembakaran untuk TG	75
Rajah 3.6	Alat <i>AccuPyc 1330 Gas Pycnometer</i>	76
Rajah 3.7	Pemasangan set penentuan ketumpatan pada alat penimbang analitikal	80
Rajah 3.8	Alat Meter LCR Berketepatan Tinggi	83
Rajah 3.9	Peringkat-peringkat salutan perekat emas pada permukaan pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sinter	84
<b>BAB 4</b>		
Rajah 4.1	Mikrograf TEM untuk setiap bahan mentah: (a) $BaCO_3$ , (b) $SrCO_3$ dan (c) $TiO_2$	86
Rajah 4.2	Taburan saiz partikel campuran bahan mentah sebelum kisanan	87.

Rajah 4.3	Kehilangan berat untuk campuran kisanan yang dikalsin pada suhu 950 °C selama 3 jam sebagai fungsi halaju dan masa pengisaran	91
Rajah 4.4	Mikrograf TEM untuk campuran serbuk: (a) sebelum kisanan dan selepas kisanan selama (b) 4 minit serta (c) 48 minit	93
Rajah 4.5	Taburan saiz partikel untuk campuran kisanan selama (a) 4, (b) 24 dan (c) 48 minit	95
Rajah 4.6	Keluk TG untuk campuran kisanan selama (a) 4, (b) 24 dan (c) 48 minit	97
Rajah 4.7	Ketumpatan serbuk untuk campuran kisanan selama 24 minit sebagai fungsi suhu kalsin	100
Rajah 4.8	Graf-graf rujukan XRD untuk (a) BaCO <sub>3</sub> , (b) SrCO <sub>3</sub> , (c) TiO <sub>2</sub> dan (d) Ba <sub>0.67</sub> Sr <sub>0.23</sub> TiO <sub>3</sub>	101
Rajah 4.9	Graf XRD untuk campuran kisanan sebagai fungsi masa kisanan dan suhu kalsin: (a) 850, (b) 900, (c) 950 dan (d) 1000 °C selama 3 jam	102
Rajah 4.10	Mikrograf SEM untuk partikel-partikel Ba <sub>0.7</sub> Sr <sub>0.3</sub> TiO <sub>3</sub> selepas kalsin	105
Rajah 4.11	Graf XRD untuk sampel pelet Ba <sub>0.7</sub> Sr <sub>0.3</sub> TiO <sub>3</sub> yang disinter pada suhu (a) 1250 dan (b) 1300 °C selama 3 jam	106
Rajah 4.12	Graf pengecutan diameter untuk sampel pelet Ba <sub>0.7</sub> Sr <sub>0.3</sub> TiO <sub>3</sub> daripada hasil campuran kisanan pada halaju 400 ppm dengan masa kisanan berbeza	108
Rajah 4.13	Graf pengecutan dimensi untuk sampel pelet Ba <sub>0.7</sub> Sr <sub>0.3</sub> TiO <sub>3</sub> pada suhu sinter 1300 °C	109
Rajah 4.14	Graf ketumpatan relatif untuk sampel pelet Ba <sub>0.7</sub> Sr <sub>0.3</sub> TiO <sub>3</sub> yang disinter pada suhu yang berbeza. Sampel disediakan daripada campuran kisanan untuk 4, 24 dan 48 minit pada halaju 400 ppm	110
Rajah 4.15	Graf keliangan ketara untuk sampel pelet Ba <sub>0.7</sub> Sr <sub>0.3</sub> TiO <sub>3</sub>	112

Rajah 4.16	Graf pemalar dielektrik untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sebagai fungsi suhu sinter dan masa kisan	113
Rajah 4.17	Hubungan pemalar dielektrik dan ketumpatan relatif sebagai fungsi suhu sinter dan masa kisan; (a) 4, (b) 24 dan (c) 48 minit	115
Rajah 4.18	Mikrograf SEM untuk permukaan patah $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ yang diperolehi daripada campuran kisan 4 minit pada halaju 400 ppm	116
Rajah 4.19	Graf faktor pelepasan untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$	117
Rajah 4.20	Graf mikrostruktur untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ yang terbentuk daripada peringkat 2	119
Rajah 4.21	Lapisan-lapisan lamela yang terbentuk akibat tumbesaran ira tidak normal.	124
Rajah 4.22	Mikrograf TEM untuk campuran kisan 12 minit pada halaju pengisaran 600 ppm	126
Rajah 4.23	Graf XRD untuk campuran kisan pada suhu kalsin 950 °C selama 3 jam sebagai fungsi masa kisan; (a) 2, (b) 4 dan (c) 12 minit	126
Rajah 4.24	Graf pengecutan diameter untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sinter daripada hasil pada halaju kisan 600 ppm sebagai fungsi suhu sinter dan masa kisan	128
Rajah 4.25	Graf pengecutan dimensi bagi pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sinter pada suhu 1300 °C sebagai fungsi masa kisan	129
Rajah 4.26	Graf ketumpatan relatif untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sinter. Sampel disediakan daripada hasil campuran kisan pada halaju 600 ppm dengan tempoh kisan yang berbeza	131
Rajah 4.27	Graf keliangan ketara untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sinter daripada hasil campuran kisan pada 600 ppm sebagai fungsi suhu sinter dan masa kisan	132

Rajah 4.28	Graf pemalar dielektrik untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sinter daripada hasil campuran kisanan pada 600 ppm sebagai fungsi suhu sinter dan masa kisar	133
Rajah 4.29	Graf faktor pelepasan untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sinter sebagai fungsi suhu sinter dan masa kisanan. Sampel disediakan daripada hasil campuran kisanan pada halaju 600 ppm	135
Rajah 4.30	Mikrostruktur untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sinter yang terbentuk daripada kesan kisanan masa singkat pada halaju tinggi	136
Rajah 4.31	Gambaran skematik untuk kesan percubaan serbuk berwarna selepas dilakukan (a) tanpa pra-campuran dan (b) pra-campuran	140
Rajah 4.32	Graf ketumpatan serbuk untuk serbuk pra-campuran pada suhu kalsin 950 °C selama 3 jam	142
Rajah 4.33	Graf XRD pada suhu kalsin 950 °C untuk serbuk pra-campuran selama (a) 1, (b) 3 dan (c) 5 jam	143
Rajah 4.34	Graf pengecutan diameter untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sebagai fungsi suhu sinter dan tempoh pra-campuran	146
Rajah 4.35	Graf pengecutan dimensi untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ pada suhu sinter 1300 °C sebagai fungsi tempoh pra-campuran	147
Rajah 4.36	Graf ketumpatan relatif untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sebagai fungsi suhu sinter dan tempoh pra-campuran	148
Rajah 4.37	Graf keliangan ketara untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sebagai fungsi suhu sinter dan tempoh pra-campuran	150
Rajah 4.38	Perbandingan ketumpatan relatif untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sinter daripada hasil serbuk pra-campuran dan serbuk tanpa pra-campuran	151
Rajah 4.39	Graf pemalar dielektrik untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sebagai fungsi suhu sinter dan tempoh pra-campuran	152
Rajah 4.40	Graf faktor pelepasan untuk sampel pelet $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ sebagai fungsi suhu sinter dan tempoh pra-campuran	154

Rajah 4.41	Perbandingan pemalar dielektrik untuk sampel pelet $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$ sinter daripada hasil serbuk pra-campuran dan serbuk tanpa pra-campuran	155
Rajah 4.42	Mikrograf SEM untuk permukaan sampel pelet $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$ yang terbentuk daripada peringkat pra-campuran serbuk	160

## RUJUKAN

- Alexandru, H.V., Berbecaru, C., Ioachim, A., Toacsen, M.I., Banciu, M.G., Nedelcu, L. & Ghetu, D. (2004). Oxides ferroelectric (Ba, Sr)TiO<sub>3</sub> for microwave devices. *Materials Science and Engineering*. **109**: 152-159.
- Anilkumar, M., Dhage, S.R & Ravi, V. (2005). Synthesis of bismuth titanate by the urea method. *Materials Letters*. **59**: 514– 516.
- Bengisu, M. (2001). *Engineering Ceramics*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, New York.
- Bennison, S.J. (1991). Grain Growth. In: S.R. Lampman, M.S. Woods & T.B. Zorc, (eds). *Volume 4 Engineered materials handbook: ceramics and glasses*. Ohio: American Society for Materials.
- Berbenni, V. & Marini, A. (2002) Synthesis of Sr<sub>x</sub>Ba<sub>(1-x)</sub>TiO<sub>3</sub> Solid Solutions from the Mechanically Activated System BaCO<sub>3</sub>-SrCO<sub>3</sub>-TiO<sub>2</sub>. *Z. Naturforsch*, 57b, p.859-864.
- Bindell, J.B. (1993). Elements of Scanning Electron Microscopy. *Adv. Mater. & Proc.* **143 [3]**: 20-27.
- Burn, I. (1991). Ceramic capacitor dielectrics. In: S.R. Lampman, M.S. Woods & T.B. Zorc, (eds). *Volume 4 Engineered materials handbook: ceramics and glasses*. Ohio: American Society for Materials.
- Bryant, W.A. (1977). Fundamental of Chemical Vapor Deposition. *J. Mater. Sci.* **7**: 1285-1306.
- Brzozowski, E. & Castro, M.S. (2003). Lowering the synthesis temperature of high-purity BaTiO<sub>3</sub> powders by modifications in the processing conditions. *Thermochimica Acta*. **398**: 123-129.
- Cady, W.G. (1964). *Piezoelectricity*. Vol. 1 & 2. Dover, New York.
- Callister Jr., W.D. (2000). *Materials science and engineering-an introduction 5<sup>th</sup> ed.*. New York: John Wiley & Sons.
- Cullity, B.D. (1978). *Elements of X-Ray Diffraction*. Addison-Wesley Reading MA.
- Eremenko, V.N., Naidich, Y.V. & Lavrinko, I.A. (1970). *Liquid Phase Sintering*, Consultant Bureau.

- Evans, I.R., Howard, J.A.K., Sreckovic, T. & Ristic, M.M. (2003). Variable temperature in situ X-ray diffraction study of mechanically activated synthesis of calcium titanate,  $\text{CaTiO}_3$ . *Materials Research Bulletin*. **38**: 1203–1213.
- Fu, C., Yang, C., Chen, H., Wang, Y., & Hu, L. (2005). Microstructure and dielectric properties of  $\text{Ba}_x\text{Sr}_{1-x}\text{TiO}_3$  ceramics. *Materials Science and Engineering*. **B 119**: 185–188.
- Gallagher, P.K. (1991). Chemical synthesis. *In Ceramics and Glasses*, Vol. 4. Engineering Materials Handbook, ASM International. USA: ASM International.
- Goldstein, J.I., Newbury, D.E., Echlin, P., Joy, D.C., Fiori, C. & Lifshin, E. (1981). *Scanning Electron Microscopy and X-Ray Microanalysis*, Plenum Press NY.
- Goodman, G., Buchanan, R.C. & Reynolds III, T.G. (1991) Ceramic capacitor materials. In: R.C. Buchanan, (ed). *Ceramic materials for electronics*. New York: Marcel Dekker.
- Guo, H.L., Gao, W. & Yoo J.Y. (2003). The effect of sintering on the properties of  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  ferroelectric films by electrophoretic deposition. *Mater. Lett.* **58**[7-8]: 1387-1391.
- Chen, G. & Niu, D. (2005). Mechanical activation of barium aluminate formation from  $\text{BaCO}_3\text{--Al}_2\text{O}_3$  mixtures, *Journal of Alloys and Compounds*. **413**: 319-322.
- Haertling, G.H. (1988). *Electro-optic Ceramics and Devices*. In: L.M. Levinson, (ed). *Electronic ceramics*. New York: Marcel Dekker.
- Halloran, J.W. (1991). Calcination. In: S.R. Lampman, M.S. Woods & T.B. Zorc, (eds). *Volume 4 Engineered materials handbook: ceramics and glasses*. Ohio: American Society for Materials.
- Hamid Mostaghaci (1996). *Advanced Ceramic Materials*. Trans Tech Publications Ltd, Switzerland.
- Heuer, A.H., Lou, V., Ogbugji, L. & Mitchell, T.E. (1977). Lattice Resolution Studies of Engineering Ceramics. *J. Microsc. Et Spectr. Electr.* **2**: 475-480.
- Hilton, A.D. & Ricketts, B.W. (1996). Dielectric properties of  $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$  ceramics. *J. Phys. D: Appl. Phys.* **29**: 1321-1323.
- Jeon, J.H., Hahn, Y.D. & Kim, H.D. (2001). Microstructure and dielectric properties of barium-strontium titanate with a functionally graded structure. *J. Euro. Ceram. Soc.* **21**: 1653-1656.

Junya, K. & Fumio, S. (1998). Correlation of powder characteristics of talc during Planetary Ball Milling with the impact energy of the balls simulated by the Particle Element Method, *Powder Technology*. **98**: 166-170.

Kahn, M., Burks, D.P., Burn, I. & Schulze, W.A. (1988). *Ceramic capacitor technology*. In: L.M. Levinson, (ed). Electronic ceramics. New York: Marcel Dekker.

Kong, L.B., Ma, J., Zhu, W. & Tan, O.K. (2001). Preparation of Bi<sub>4</sub>Ti<sub>3</sub>O<sub>12</sub> ceramics via a high-energy ball Bi<sub>4</sub>Ti<sub>3</sub>O<sub>12</sub> milling process, *Materials Letters*. **51**: 108–114.

Kong, L.B., Ma, J., Huang, H., Zhang, R.F. & Que, W.X. (2002). Barium titanate derived from mechanochemically activated powders. *Journal of Alloys and Compounds*. **337**: 226-230.

Liang, X., Wu, W., & Meng, Z. (2003). Dielectric and tunable characteristics of barium strontium titanate modified with Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> addition. *Materials Science and Engineering*. **B99**: 366-369.

Ling, T.Y., Junmin, X. & Wang, J. (2000). Stabilization of perovskite phase and dielectric properties of 0.9PZN–0.05BT derived from mechanical activation, *Alloys Comp*. **297**: 92–98.

Luo, S., Tang, Z., Yao, W. & Zhang, Z. (2003). Low-temperature combustion synthesis and characterization of nanosized tetragonal barium titanate powders. *Microelectronic Engineering*. **66**: 147–152.

Man, F.Y. (1991). Solid-State Sintering. In: S.R. Lampman, M.S. Woods & T.B. Zorc, (eds). *Volume 4 Engineered materials handbook: ceramics and glasses*. Ohio: American Society for Materials.

Messer, P.F. (1991). Batching and mixing. In: S.R. Lampman, M.S. Woods & T.B. Zorc, (eds). *Volume 4 Engineered materials handbook: ceramics and glasses*. Ohio: American Society for Materials.

Mio, H., Kano, J., Saito, F. & Kaneko, K. (2004). Optimum revolution and rotational directions and their speeds in planetary ball milling. *Int. J. Miner. Process*. **74S**: S85–S92.

Mostaghaci Hamid (1996). *Advanced Ceramic Materials*. Trans Tech Publications Ltd, Switzerland.

Moulson, A.J. & Herbert, J.M. (2003). *Electroceramics-materials, properties & applications*. London: Chapman & Hall.



Newnham, R.E. (1975). *Structure-Property Relations*. Springer-Verlag, New York.

Peng, Z. & Chen, Y. (2003). Preparation of BaTiO<sub>3</sub> nanoparticles in aqueous solutions. *Microelectronic Engineering*. **66**: 102–106.

Randall, M.G. (1991). Fundamentals of Sintering. In: S.R. Lampman, M.S. Woods & T.B. Zorc, (eds). *Volume 4 Engineered materials handbook: ceramics and glasses*. Ohio: American Society for Materials.

Reed, J.S. (1988). *Introduction to the Principles of Ceramic Processing*, John Wiley & Sons, New York.

Richerson, D.W. (1992). *Modern Ceramic Engineering*, 2nd edition, Marcel Dekker, Inc., Ny.

Ries, A., Simoes, A.Z., Cilense, M., Zaghete, M.A. & Varela, J.A. (2003). Barium strontium titanate powder obtained by polymeric precursor method. *Material Characterization*. **50**: 217-221.

Rios, P.R., Yamamoto, T., Kondo, T. & Sakuma, T. (1997). Abnormal Grain Growth Kinetics Of BaTiO<sub>3</sub> With An Excess TiO<sub>2</sub>. *Acta Mater*. **46**: 1617-1623.

Safari, A., Panda, R.K. & Janas, V.F. (1996). Ferroelectricity: Materials, Characteristics & Applications. *Trans Tech Publications, Switzerland*. **122-124**: 35-70.

Senna, M., Baek, J.G. & Isobe, T. (1997). Synthesis of pyrochlore free 0.9[0.6Pb(Zn<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-0.4Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>]-0.1PbTiO<sub>3</sub> ceramics via soft mechanochemical route. *J. Am. Ceram. Soc.* **80**: 973–981.

Shaw, T.M., Suo, Z., Huang, M., Liniger, E., Laibowits, R.B. & Banieki, J.D. (1999). The effect of stress on the dielectric properties of Barium Strontium Titanate thin films. *Appl. Phys. Lett.* **75[14]**: 2129-2131.

Somiya, S. (1984). *Advanced Technical Ceramics*. Academic Press, Inc., Japan.

Stojanovic, B.D., Pavlovic, V.B., Pavlovic, V.P., Djuric, S., Marinkovic, B.A. & Ristic, M.M. (1999). Dielectric properties of Barium Titanate sintered from tribophysically activated powders. *J. Euro. Ceram. Soc.* **19**: 1081-1083.

Stojanovic, B.D. (2003). Mechanochemical synthesis of ceramic powders with perovkite structure. *J. Mater. Proc. Tech.* **143-144**: 78-81.

Stojanovic, B.D., Simoes, A.Z., Paiva-Santos, C.O., Jovalekic, C., Mitic, V. & Varela, J.A. (2005). Mechanochemical synythesis of barium titanate. *Journal of the European Ceramic Society*. **25**: 1985 – 1989.

Stojanovic, B.D., Paiva-Santos, C.O., Jovalekic, C. Simoes, A.Z., Filho, F.M., Lazarevic, Z. & Varela, J.A. (2006). Mechanically activating formation of layered structured bismuth titanate. *Materials Chemistry and Physics*. **96**: 471–476.

Suryanarayana, C. (2004). *Mechanical Alloying and Milling*. Marcel Dekker, New York, USA.

Sung B. L., Wilfried, S. & Manfred, R. (2002). Investigation of grain boundaries in abnormal grain growth structure of TiO<sub>2</sub>-excess BaTiO<sub>3</sub> by TEM and EELS analysis. *Acta Materials*. **50**: 2151-2162.

Teoh, W.T., Zainal, A.A. & Ahmad, F.M.N. (2002). Synthesis of strontium-doped barium titanate. *Malaysian Journal of Microscopy*. **21A**: 165-167.

Teoh, W.T., Zainal, A.A. & Ahmad, F.M.N. (2005). The effect of sintering on the dielectric properties of Ba<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>TiO<sub>3</sub>. *Malaysian Journal of Microscopy*. **1**: 59-64.

Teoh, W.T., Zainal, A.A. and Ahmad Fauzi, M.N.. (2004). Dielectric Properties of Ba<sub>0.70</sub>Sr<sub>0.30</sub>TiO<sub>3</sub> derived from mechanically activated BaCO<sub>3</sub>-SrCO<sub>3</sub>-TiO<sub>2</sub>. The 5<sup>th</sup> International Symposium on the 21<sup>st</sup> Century COE Program of Nagaoka University of Technology.

Teoh, W.T. (2005) Lowering of processing temperature and improved properties of Ba<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>TiO<sub>3</sub> by mechanical activation technique. Ph.D thesis, Universiti Sains Malaysia.

Thakur, O.P., Prakash, C. & Agrawal, D.K. (2002). Dielectric behaviour of Ba<sub>0.95</sub>Sr<sub>0.05</sub>TiO<sub>3</sub> ceramics sintered by microwave. *Mater. Sci. Eng. B*. **96**: 221-225.

Tian, Y.L., Johnson, D.L. & Brodwin, M.E. (1988). Microwave Sintering of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-TiC Composite. *Ceramic Powder Science*. **II**: 933-938.

Wu, L., Chen, Y., Huang, C.L., Chou, Y.P. & Tasi, Y.T. (2000). Direct-current field dependence of dielectric properties in alumina-doped barium strontium titanate. *J. Am. Ceram. Soc.* **83** [7]: 1713-1719.

Xu, Y. (1991). *Ferroelectric Materials and their Application*. (North Holland, Amsterdam.

Xue, J., Wan, D., Lee, S.E. & Wang, J. (1999). Mechanochemical synthesis of nanosized lead titanate powders from mixed oxides. *J. Am. Ceram. Soc.* **82 (7)**: 1687–1692.

Ze'lia, S.M. & Antonio C.H. (2002). Laser sintering of  $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$  ferroelectric ceramics, *Materials Letters*. **55**: 217– 220.

Zhang, Q. & Saito, F. (2000). Mechanochemical synthesis of  $\text{LaMnO}_3$  from  $\text{La}_2\text{O}_3$  and  $\text{MnO}_3$  powders. *Alloys Comp.* **297**: 99–103.

## **LAMPIRAN A**

Pengiraan bahan mentah yang diperlukan untuk menyediakan 10 g hasilan  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$

## **LAMPIRAN B**

Kaedah pengiraan kehilangan berat teori  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$

# **LAMPIRAN C**

MSDS BaTiO<sub>3</sub>

# **LAMPIRAN D**

Data-data ujian ketumpatan serbuk

# **LAMPIRAN E**

Data-data ujian kecut bakar



# **LAMPIRAN F**

Data-data ujian ketumpatan relatif dan keliangan ketara

# **LAMPIRAN G**

Data-data sifat-sifat dielektrik

# **LAMPIRAN H**

Data-data ujian XRF

# **LAMPIRAN I**

Graf kesan frekuensi terhadap kapasitans

# **LAMPIRAN J**

Graf-graf XRD

# BAB 1 PENGENALAN

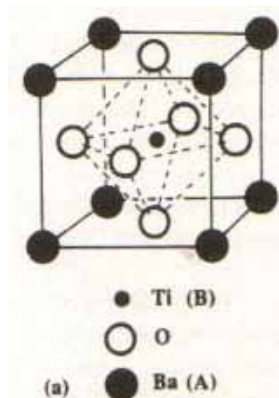
## 1.1 Latar Belakang Kajian

Barium titanat ( $\text{BaTiO}_3$ ) adalah salah satu bahan elektroseramik feroelektrik yang digunakan secara meluas sebagai kapasitor dielektrik untuk beberapa dekad yang lepas.  $\text{BaTiO}_3$  telah ditemui sekitar tahun 1940-an. Pemalar dielektrik yang tinggi dalam julat 2000 hingga 10,000 adalah salah satu kelebihan utama yang dimiliki oleh  $\text{BaTiO}_3$  pada masa itu (Moulson & Herbert, 2003).

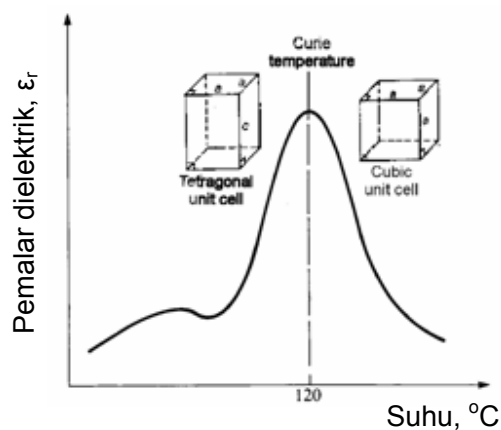
$\text{BaTiO}_3$  membawa struktur perovskit dengan formula umum  $\text{ABO}_3$  yang mengandungi saiz kation-kation A dan B yang berlainan. Struktur ini adalah terbitan daripada struktur kiub berpusat muka (KBM) dengan saiz kation A yang besar dan dengan ion oksigen bersama-sama membentuk kekisi KBM manakala kation B yang kecil menduduki di celahan oktahedral di dalam tatasusunan KBM seperti dilakarkan secara skematik dalam Rajah 1.1. Selain  $\text{BaTiO}_3$ , terdapat beberapa bahan yang turut menunjukkan struktur perovskit. Antara bahan tersebut adalah kalsium titanat ( $\text{CaTiO}_3$ ), plumbum titanat ( $\text{PbTiO}_3$ ), plumbum zirkonia titanat (PZT) dan plumbum lantanum zirkonia titanat (PLZT).

Feroelektrik adalah suatu keadaan yang mengalami pengutuban spontan tanpa penerapan medan elektrik (Callister, 2000). Semua bahan feroelektrik mempunyai suhu peralihan khusus yang dikenali sebagai suhu Curie ( $T_c$ ) yang ditakrifkan sebagai suhu pada mana bahan tersebut memberikan pemalar dielektrik tertinggi (Safari et al. 1996; Teoh et al. 2005). Lazimnya,  $T_c$  untuk  $\text{BaTiO}_3$  adalah

pada 120 °C. Rajah 1.2 menunjukkan pengaruh suhu terhadap pemalar dielektrik BaTiO<sub>3</sub>. Fasa paraelektrik, iaitu suatu fasa yang tidak mempamerkan ciri-ciri feroelektrik dengan bentuk kubik berlaku apabila suhu, suhu (T) melebihi T<sub>c</sub>. Dalam julat suhu di antara 5 hingga 120 °C, fasa yang terbentuk adalah fasa feroelektrik dengan bentuk tetragonal.



Rajah 1.1: Struktur umum perovskit BaTiO<sub>3</sub> (Safari et al. 1996).



Rajah 1.2: Pengaruh suhu ke atas pemalar dielektrik untuk BaTiO<sub>3</sub> (Goodman et al. 1991).

Seperti diterangkan,  $T_c$  untuk  $BaTiO_3$  adalah agak tinggi untuk kegunaan peranti pada suhu bilik. Bagi merendahkan  $T_c$ , maka  $BaTiO_3$  perlu didopkan dengan bahan lain. Dalam kajian ini, strontium karbonat ( $SrCO_3$ ) digunakan sebagai bahan dopan untuk memberikan ion Strontium ( $Sr^{2+}$ ) menggantikan ion Barium ( $Ba^{2+}$ ) untuk menghasilkan  $BaTiO_3$  terdop Sr atau Barium Strontium Titanat ( $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ ) (Berbenni & Marini, 2002; Teoh et al. 2002).

Strontium titanat ( $SrTiO_3$ ) adalah bahan yang berstruktur perovskit, berbentuk kubik dengan fasa paraelektrik pada suhu bilik (Shaw et al. 1999). Pemalar dielektrik untuk  $SrTiO_3$  pada suhu bilik adalah 320 dan ia meningkat berterusan sehingga mencapai 20,000 pada suhu  $-273\text{ }^\circ\text{C}$  (Kahn et al. 1988). Oleh itu, pembolehubah  $x$  dalam formula kimia  $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$  divariasikan untuk menghasilkan pemalar dielektrik tertinggi di antara suhu  $-273\text{ }^\circ\text{C}$  dan  $120\text{ }^\circ\text{C}$  (Hilton & Ricketts, 1996).

Penggantian ion  $Ba^{2+}$  oleh ion  $Sr^{2+}$  untuk pembentukan  $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$  ini dikenali sebagai penggantian isovalen. Jenis penggantian ini adalah suatu penggantian ion yang mempunyai saiz dan cas yang sama. Sebagai contoh, ion  $Sr^{2+}$  dan  $Pb^{2+}$  boleh menggantikan  $Ba^{2+}$  dalam sistem  $BaTiO_3$ . Lazimnya, penggantian ion  $Sr^{2+}$  dengan ion  $Ba^{2+}$  boleh merendahkan  $T_c$  hingga menghampiri suhu bilik (Fu et al. 2005; Alexandru et al. 2004; Teoh et al. 2002) manakala penggantian ion  $Pb^{2+}$  dengan ion  $Ba^{2+}$  boleh meningkatkan  $T_c$  (Safari et al. 1996; Fu et al. 2005).



Memandangkan ion Sr dapat merendahkan  $T_c$ , maka perubahan Sr telah dipilih. Dalam kajian ini, 0.3 mol Sr telah ditambah untuk membentuk suatu komposisi baru iaitu  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ . Penetapan jumlah mol ini dibuat berdasarkan kajian yang telah dijalankan oleh Teoh (2005). Menurut laporan beliau,  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$  telah menghasilkan pemalar dielektrik tertinggi pada suhu bilik berbanding komposisi-komposisi yang lain ( $BaTiO_3$ ,  $Ba_{0.85}Sr_{0.15}TiO_3$ ,  $Ba_{0.55}Sr_{0.45}TiO_3$  and  $SrTiO_3$ ).

Beliau juga telah melaporkan  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$  yang dihasilkan dengan teknik konvensional (pengisar bebola biasa) selama 18 jam kemudiannya dikalsin pada suhu 1150 °C dan disinter pada suhu 1300 °C, telah menghasilkan pemalar dielektrik setinggi 11300 manakala  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$  yang dihasilkan dengan teknik pengaktifan mekanikal menggunakan pengisar lesung automatik dan disinter pada suhu 1250 °C, telah menghasilkan pemalar dielektrik setinggi 17100.

Kajian ini mengutarakan satu teknik pengaktifan mekanikal lain, iaitu pengisar planetari, yang diasaskan daripada kaedah pengalioian mekanikal yang dibangunkan untuk penghasilan serbuk komposit, sebatian antaralogam dan serbuk logam amorfus (Suryanarayana, 2004). Ia kemudiannya digunakan untuk sintesis serbuk magnetik dan ultrahalus melalui pengaktifan bahan-bahan mula secara mekanikal dengan menggunakan pengisaran tenaga tinggi. Teknik pengaktifan mekanikal telah berjaya digunakan oleh ramai penyelidik dalam menghasilkan serbuk-serbuk elektroseramik yang ultrahalus dan berfasa tunggal (Stojanovic et al. 2005; Kong et al. 2001).

Pengisar bebola planetari adalah salah satu alat yang menggunakan konsep pengaktifan mekanikal. Parameter pengisaran seperti halaju dan masa pengisaran merupakan aspek yang diberi penekanan untuk menghasilkan taburan partikel yang seragam, fasa tunggal yang dikehendaki, mikrostruktur dan sifat-sifat fizikal yang baik. Oleh itu, dalam kajian ini penghasilan  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$  menggunakan pengisaran planetari dilakukan untuk mengkaji kesan-kesan pada sifat-sifat dielektrik dan mekanikal serta mikrostruktur yang terbentuk pada hasilan.

## 1.2 Kenyataan Masalah

Kebanyakan kajian yang menggunakan jenis pengisaran planetari hanya tertumpu dalam penghasilan  $BaTiO_3$  berbanding  $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ . Kong et al. (2002) dan Stojanovic et al. (2005) telah menghasilkan serbuk  $BaTiO_3$  melalui pengisaran planetari. Brzozowski & Castro (2003) telah menjalankan pengisaran planetari ke atas serbuk-serbuk  $BaCO_3$  dan  $TiO_2$  untuk menghasilkan  $BaTiO_3$ .

Kajian untuk menghasilkan  $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$  melalui pengisaran planetari ke atas serbuk  $BaCO_3$ ,  $SrCO_3$  dan  $TiO_2$  tidak diberi perhatian secara khusus. Fu et al. (2005) telah menghasilkan  $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$  ( $x=0.45, 0.5, 0.6, 0.65, 0.8$  dan  $0.9$ ) dengan pengisaran bebola konvensional. Teoh (2005) telah menghasilkan  $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$  dengan menggunakan pengisaran lesung automatik. Oleh itu, kajian penghasilan  $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$  yang menetapkan  $x = 0.3$  mol dengan pengisaran planetari dijalankan untuk mengkaji kesan sifat-sifat dielektrik, mekanikal dan mikrostruktur yang terbentuk.

### **1.3 Objektif Kajian**

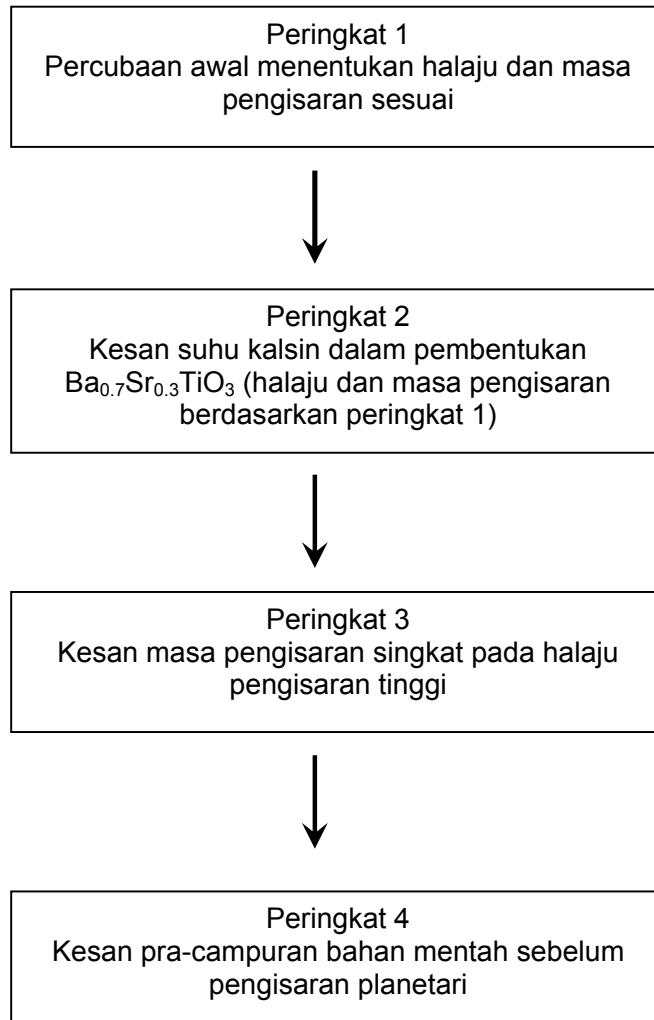
Objektif utama kajian adalah untuk mengkaji kesan parameter pemprosesan pengisar planetari ke atas hasilan elektroseramik  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$ . Ini melibatkan kajian parameter kawalan alatan, pengkalsinan dan pensinteran dalam kesan terhadap sifat fizikal, dielektrik dan mikrostruktur.

### **1.4 Skop Kajian**

Prosedur eksperimen secara lanjut diterangkan dan dimuatkan dalam bab 3. Bagi memenuhi objektif yang dinyatakan sebelum ini, maka bentuk kajian boleh diringkaskan dalam Rajah 1.3. Peringkat 1 adalah percubaan awal untuk menentukan halaju dan masa pengisaran yang sesuai. Kedua-dua parameter ini ditentukan melalui analisis kehilangan berat dengan membandingkan kehilangan berat campuran dan teori. Lanjutan daripadanya, peringkat 2 dilakukan untuk kajian kesan suhu kalsin ke atas pembentukan fasa  $\text{Ba}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{TiO}_3$  yang dihasilkan daripada campuran kisaran pada halaju dan masa pengisaran sesuai berdasarkan hasil yang didapati pada peringkat 1.

Peringkat 3 adalah kajian kesan masa pengisaran singkat pada halaju pengisaran yang lebih tinggi. Tujuan ia dilakukan bagi mengkaji kesan hentaman bebola ke atas serbuk pada halaju tinggi terhadap sifat-sifat dielektrik dan fizikal. Akhirnya setelah mengetahui masalah utama kajian adalah berkaitan dengan ketakseragaman campuran yang berdasarkan pemerhatian dan hasil yang diperolehi, maka peringkat seterusnya adalah untuk mengkaji kesan pra-campuran bahan mentah sebelum pengisaran planetari. Kajian ini dijalankan dengan

harapan melihat kesan campuran seragam sebelum campuran mengalami pengisaran planetari.



Rajah 1.3: Peringkat-peringkat kajian dalam penyelidikan.

## **BAB 2 KAJIAN PERSURATAN**

### **2.1 Pengenalan**

Sejak 10,000 tahun yang lalu, manusia telah mula menghasilkan bahan seramik yang pertama yang diperbuat daripada tanah liat dengan pembakaran mudah dan terbuka. Walaupun bahan yang dihasilkan adalah tidak sempurna tetapi era perkembangan seramik sebenarnya telah bermula (Somiya, 1984). Seramik adalah terbitan daripada perkataan Greek, iaitu *Keramos* yang merujuk pada tembikar yang diperolehi daripada lempung atau tanah liat yang dibentuk dan kemudiannya dibakar pada suhu tertentu (Moulson & Herbert, 2003).

Kira-kira 100 tahun yang lalu, produk-produk seramik yang dihasilkan adalah terhad untuk beberapa jenis tembikar yang berasaskan tanah liat dan banyak digunakan dalam kehidupan manusia seperti paip, batu bata, ubin lantai dan ubin atap serta tembikar sanitari. Pada pertengahan abad ke-19, refraktori merupakan bahan seramik yang sangat penting dalam industri keluli. Tanpa bahan refraktori, pengeluaran keluli dan beberapa logam yang lain tidak dapat dibangunkan sehingga ke hari ini (Somiya, 1984). Kini, dalam abad ke-21 aplikasi bahan-bahan seramik sangat meluas digunakan dalam pelbagai aspek kehidupan manusia. Antara aplikasi tersebut adalah merangkumi penggunaan magnet dalam set televisyen, fiber optik dalam bidang telekomunikasi, palam pencucuh dan penebat dalam kenderaan keretapi halaju tinggi.

Dalam bidang kejuruteraan, seramik digunakan sebagai komponen-komponen tertentu dalam bahagian enjin dan perkakasan pemotong manakala dalam bidang bioperubatan, seramik digunakan sebagai gantian gigi dan tulang buatan. Dalam bidang elektronik, elemen-elemen pemanas dan substrat untuk litar bersepadu juga adalah salah satu hasilan bahan seramik (Somiya, 1984).

## **2.2 Elektroseramik**

Perkembangan awal seramik yang berasaskan elektronik atau elektroseramik telah mula dikesan sekitar tahun 1940-an dengan penemuan suatu bahan yang berjaya menghasilkan pemalar dielektrik yang tertinggi iaitu dalam julat 2000 hingga 10,000 (Moulson & Herbert, 2003). Bahan ini adalah barium titanat ( $\text{BaTiO}_3$ ) yang banyak digunakan dalam peranti kapasitor.

Menurut Somiya (1984), elektroseramik dicirikan sebagai bahan seramik yang dihasilkan untuk mendapatkan sifat-sifat elektrik dan elektronik. Sifat-sifat tersebut diubahsuai supaya berfungsi sebagai bahan-bahan penebat (atau bahan-bahan dielektrik), seramik berpengalir tinggi, elektrod, penderia dan penggerak. Elektroseramik dibahagikan pada beberapa kumpulan yang berdasarkan sifat-sifat hasilnya. Kumpulan-kumpulan tersebut adalah piezoelektrik, piroelektrik dan feroelektrik sebagai satu kumpulan, semikonduktor, seramik elektro-optik, seramik magnet dan seramik superkonduktor (Moulson & Herbert, 2003). Jadual 2.1 menunjukkan beberapa bahan elektroseramik yang disenaraikan mengikut kumpulan-kumpulannya dengan secara ringkas.

Jadual 2.1: Contoh beberapa sebatian elektroseramik mengikut jenis kumpulan (Moulson & Herbert, 2003).

Kumpulan	Contoh bahan elektroseramik
Piezoelektrik, piroelektrik dan feroelektrik	Barium titanat ( $\text{BaTiO}_3$ ), bismuth titanat ( $\text{Bi}_4\text{Ti}_3\text{O}_{12}$ ), kalsium titanat ( $\text{CaTiO}_3$ ) & plumbum titanat ( $\text{PbTiO}_3$ )
Semikonduktor	Silikon karbida ( $\text{SiC}$ ), Galium arsenida ( $\text{GaAs}$ )
Elektro-optik	Plumbum lanthanum zirkonat titanat (PLZT)
Magnet	Zink ferum oksida ( $\text{ZnFe}_2\text{O}_4$ )
Superkonduktor	YBCO

### 2.2.1 Seramik Piezoelektrik, Piroelektrik dan Feroelektrik

Bahan-bahan seramik yang berfungsi sebagai penebat elektrik adalah dikenali sebagai bahan dielektrik iaitu suatu bahan yang tidak mengkonduksi elektrik di bawah pengaruh medan elektrik. Walau bagaimanapun, apabila pemindahan taburan cas berlaku dalam bahan dielektrik, momen dwikutub akan terbentuk. Fenomena ini dikenali sebagai pengutuban (Bengisu, 2001). Pengutuban spontan berlaku pada hablur tunggal bagi sesetengah bahan apabila tegasan dikenakan (Newnham, 1975; Cady, 1964). Satu bahagian dalam hablur akan menghasilkan cas positif manakala bahagian yang bertentangan pula akan menghasilkan cas negatif. Kesan ini dikenali sebagai piezoelektrik.

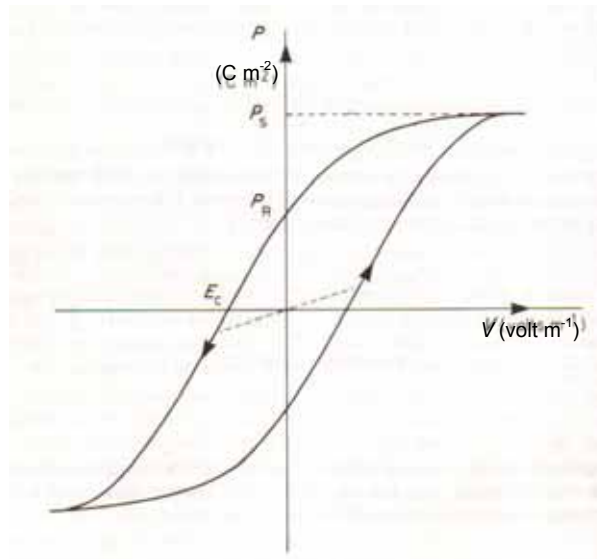
Fenomena piezoelektrik telah membawa kepada penggunaan seramik piezoelektrik yang luas dalam peralatan seperti mikrofon, meter pecut, tolok terikan dan peranti sonar. Kesan piezoelektrik ini ditemui oleh Pierre dan Jacques Curie pada tahun 1880 (Haertling, 1988). Antara bahan yang menghasilkan sifat piezoelektrik ini adalah  $\text{BaTiO}_3$ .

Hablur piroelektrik adalah subkelas bagi hablur piezoelektrik. Bagi bahan piroelektrik, magnitud bagi pengutuban spontan banyak bergantung pada suhu. Pemanasan hablur mengakibatkan berlaku ubah bentuk mekanikal yang disebabkan oleh pengembangan haba dan mampu mengubah darjah pengutuban. Antara seramik piroelektrik yang biasa dikenalpasti adalah plumbum zirkonat ( $\text{PbZrO}_3$ ). Kesemua bahan piroelektrik adalah piezoelektrik dan ia digunakan dalam aplikasi seperti alat kawalan pencemaran (Moulson & Herbert, 2003).

Bahan feroelektrik adalah subkelas bagi hablur piroelektrik. Hablur feroelektrik mengandungi pengutuban spontan, iaitu suatu fenomena yang dapat mengekalkan kekutuban walaupun tiada peneraan voltan seperti yang ditunjukkan oleh hablur piroelektrik. Ciri-ciri terpenting dalam hablur feroelektrik adalah arah pengutuban dapat diterbalikkan dalam medan elektrik dan ini mengakibatkan terbentuknya gelung histerisis seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 2.1. Kelakuan feroelektrik ini banyak bergantung pada struktur hablur. Hablur tersebut mestilah tidak memusat dan perlu mengandungi posisi atom atau orientasi molekul yang berselang untuk membenarkan kekutuban berbalik dan penahanan pengutuban selepas voltan tidak dikenakan (Mostaghaci, 1996).

Seramik feroelektrik mempunyai sifat-sifat yang berguna seperti pemalar dielektrik tinggi, pemalar piezoelektrik tinggi, kehilangan dielektrik yang rendah, keberintangan elektrik tinggi, kekuatan sederhana dan pekali piroelektrik tinggi.  $\text{BaTiO}_3$  dan  $\text{PbTiO}_3$  adalah antara seramik feroelektrik yang biasa digunakan.





Rajah 2.1: Gelung histerisis bagi struktur hablur feroelektrik (Xu, 1991).

### 2.2.2 Pemalar Dielektrik

Pemalar dielektrik didefinisikan sebagai darjah pengutuban atau keupayaan suatu bahan menyimpan cas apabila berlaku penebaran medan elektrik (Bengisu, 2001) atau dengan erti kata lain, iaitu kapasitans. Umumnya, pemalar dielektrik dengan nilai  $\epsilon_r$  yang rendah digunakan sebagai penebat manakala pemalar dielektrik dengan nilai  $\epsilon_r$  yang tinggi digunakan sebagai kapasitor. Kapasitor adalah suatu peranti elektronik yang berkeupayaan menyimpan cas di antara dua elektrod yang mana ia diukur dalam unit kapasitans, C. Katakan bahan dielektrik dalam keadaan vakum,  $C_0$  boleh ditaktifkan sebagai

$$C_0 = \frac{\epsilon_0 \cdot A}{t} \quad (2.1)$$

yang mana  $\epsilon_0$  adalah permitiviti vakum dengan nilainya  $8.8543 \times 10^{-12}$  F/m.

Jika bahan dielektrik dimasukkan di antara dua kepingan plat kapasitor yang dikenakan medan elektrik, satu plat bercas positif manakala satu plat lagi bercas negatif. Medan elektrik tersebut akan menghasilkan pengutuban dalam bahan

tersebut dan jumlah cas yang tersimpan di dalam kapasitor bergantung pada keupayaan bahan tersebut untuk terketub di bawah pengaruh medan elektrik.

Oleh itu, persamaan 2.1 boleh ditulis semula seperti berikut:

$$C = \frac{\epsilon \cdot A}{t} \quad (2.2)$$

yang mana  $\epsilon$  adalah permitiviti untuk bahan dielektrik, A adalah luas permukaan elektrod dan t adalah tebal untuk bahan dielektrik (Callister, 2000). Pemalar dielektrik atau permitiviti relatif,  $\epsilon_r$  membandingkan pengutuban atau keupayaan penyimpanan cas dalam bahan dengan keupayaan dalam vakum,

$$\epsilon_r = \frac{\epsilon}{\epsilon_0} \quad (2.3)$$

$$\epsilon_r = \frac{C \cdot t}{A \cdot \epsilon_0} \quad (2.4)$$

Pemalar dielektrik bagi beberapa bahan yang diukur pada suhu bilik, 25 °C adalah ditunjukkan dalam Jadual 2.2.

Jadual 2.2: Pemalar dielektrik pada 25 °C (Burn, 1991)

Bahan	Pemalar dielektrik
Teflon	2.1
Kaca silica	3.8
Polivinilidena fluoride	8.4
Alumina	10
Magnesium oksida	20
Barium tetratitanat	40
Titanium oksida	100
Kalsium titanat	160
Strontium titanat	320

Seramik dielektrik dan penebat dibahagikan pada tiga kelas utama dengan berpandukan hasil pemalar dielektriknya. Kelas 1 adalah terdiri daripada pemalar dielektrik yang rendah dan sederhana dengan faktor pelepasan kurang daripada 0.003. Julat nilai yang dianggarkan adalah antara 15 hingga 500. (Moulson & Herbert, 2003). Kelas 2 dan 3 adalah terdiri daripada seramik feroelektrik dengan pemalar dielektrik yang tinggi iaitu dari nilai 2000 hingga 20 000 dengan faktor pelepasan kurang daripada 0.03. Antara aplikasi yang agak sesuai untuk julat dielektrik ini adalah peranti kapasitor. Sifat-sifat seramik daripada kelas ini adalah dibezakan oleh suhu, kekuatan medan elektrik dan frekuensi berbanding kelas 1.

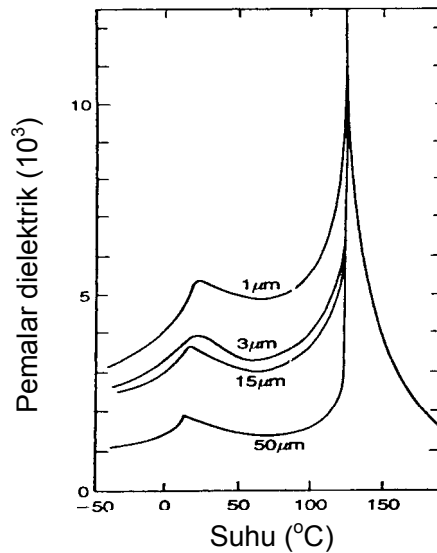
### **2.2.3 Faktor-Faktor Yang Mempengaruhi Pemalar Dielektrik**

Pemalar dielektrik untuk bahan-bahan elektroseramik adalah dipengaruhi oleh beberapa faktor. Antara faktor-faktor tersebut adalah saiz ira selepas sinter, suhu yang dikenakan semasa pengukuran dan komposisi.

#### **2.2.3.1 Saiz Ira**

Secara umumnya, pemalar dielektrik yang dipengaruhi oleh saiz ira selepas sinter dan seterusnya dipengaruhi oleh bentuk pemrosesan. Kesan saiz ira terhadap pemalar dielektrik adalah ditunjukkan dalam Rajah 2.2. Dalam julat saiz ira antara 1 hingga 50  $\mu\text{m}$ , pemalar dielektrik yang diperolehi adalah berbeza-beza iaitu semakin halus dan kecil saiz ira, maka pemalar dielektrik juga semakin meningkat (Moulson & Herbert, 2003). Dalam laporan yang lain, Safari et al.

(1996) juga telah mendapati bahawa saiz ira selepas sinter sangat mempengaruhi nilai pemalar dielektrik yang diberikan oleh BaTiO<sub>3</sub>.

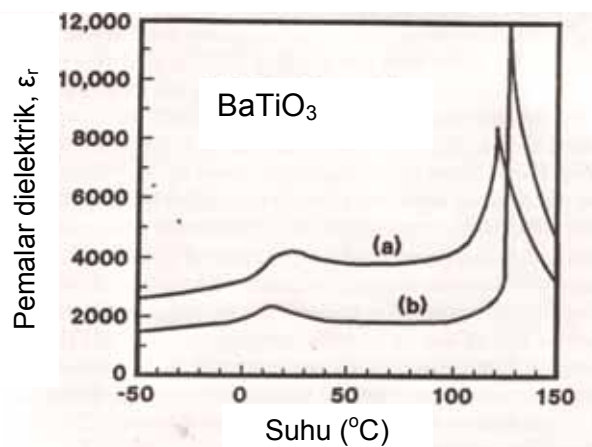


Rajah 2.2: Kesan saiz ira ke atas pemalar dielektrik untuk BaTiO<sub>3</sub> (Moulson & Herbert, 2003).

Rajah 2.3 menunjukkan perubahan pemalar dielektrik terhadap suhu untuk BaTiO<sub>3</sub> yang mengandungi saiz ira yang halus (~1  $\mu\text{m}$ ) dan kasar (~50  $\mu\text{m}$ ). Saiz ira BaTiO<sub>3</sub> yang besar dan kasar ( $\geq 1 \mu\text{m}$ ) menunjukkan pemalar dielektrik yang sangat tinggi pada suhu Curie,  $T_c$  (120  $^{\circ}\text{C}$ ). Kesan ini disebabkan berlaku pembentukan domain yang berganda dalam ira tunggal dan pergerakan dindingnya turut membantu meningkatkan pemalar dielektrik pada  $T_c$ .

Bagi saiz ira BaTiO<sub>3</sub> yang halus (~1 $\mu\text{m}$ ), pembentukan domain yang tunggal berlaku dalam setiap ira. Pergerakan dinding-dinding domain turut dibatasi oleh sempadan-sempadan ira. Oleh itu, pemalar dielektrik yang lebih rendah dihasilkan pada  $T_c$  apabila saiz ira kecil digunakan berbanding dengan saiz ira BaTiO<sub>3</sub> yang

kasar (Safari et al. 1996). Kesan saiz ira ke atas pemalar dielektrik pada suhu bilik telah dilaporkan oleh Safari et al. (1996). Beliau telah mencadangkan supaya tegasan dalaman yang terbentuk dalam ira-ira BaTiO<sub>3</sub> yang halus mesti lebih besar daripada ira-ira BaTiO<sub>3</sub> yang kasar, seterusnya menghasilkan pemalar dielektrik yang lebih tinggi pada suhu bilik.



Rajah 2.3: Perubahan pemalar dielektrik terhadap suhu untuk BaTiO<sub>3</sub> dengan (a) saiz ira 1 μm dan (b) saiz ira 50 μm (Safari et al. 1996).

Beliau juga telah mengkaji struktur domain dalam BaTiO<sub>3</sub> dan mendapati bahawa pada suhu bilik, pemalar dielektrik telah mencapai puncaknya dengan saiz ira kira-kira ~ 0.7 μm. Mereka juga membuat kesimpulan bahawa peningkatan pemalar dielektrik adalah disebabkan berlaku peningkatan ketumpatan dinding domain 90°. Mobiliti dinding domain 90° dalam ira-ira BaTiO<sub>3</sub> yang halus dihalang dan kurang daripada 25 % daripada pemalar dielektrik yang berjaya dicapai. Oleh itu, kawalan saiz ira merupakan aspek penting untuk aplikasi komponen elektronik.

Namun begitu, dalam kajian penghasilan  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$  oleh Teoh (2005), julat saiz ira yang optimum untuk menghasilkan pemalar dielektrik yang tinggi adalah di antara 3 hingga 10  $\mu m$ . Beliau telah melakukan pengukuran pemalar dielektrik pada frekuensi 1 kHz dengan voltan  $1V_{ac}$  pada suhu bilik. Jadual 2.3 adalah ringkasan keputusan bagi kesan saiz ira selepas sinter pada suhu-suhu berbeza terhadap pemalar dielektrik.

Jadual 2.3: Kesan saiz ira selepas sinter terhadap pemalar dielektrik (Teoh, 2005)

Suhu sinter	Sampel	Saiz ira ( $\mu m$ )	Pemalar dielektrik
1250	20 minit	< 3.0	6000
1300		3.2	13000
1350		3.1	6400
1250	60 minit	3.8	16000
1300		5.8	13000
1350		9.8	14000
1250	360 minit	3.7	17100
1300		7.2	9100
1350		16.0	6400

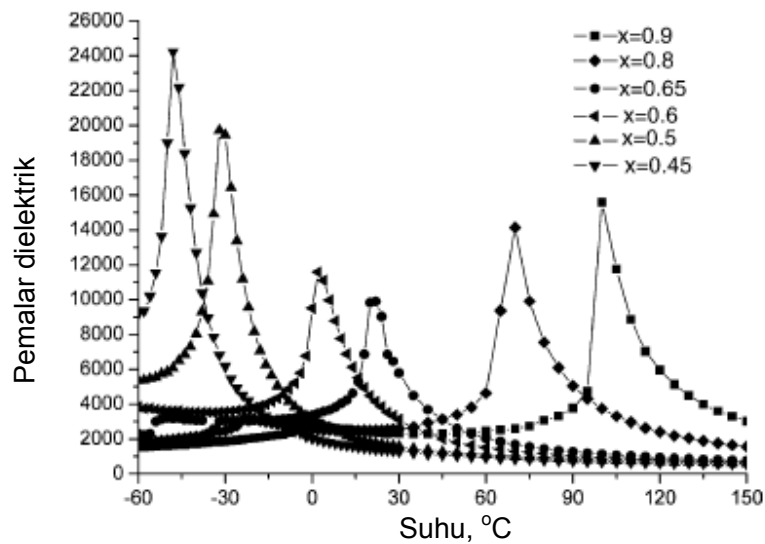
### 2.2.3.2 Suhu Semasa Pengukuran

Selain itu, suhu yang dikenakan semasa pengukuran adalah faktor kedua yang akan mempengaruhi pemalar dielektrik untuk bahan-bahan elektroseramik. Dalam Rajah 2.2 dan 2.3 sebelum ini, suhu-suhu dengan ukuran yang berbeza telah memberikan nilai pemalar dielektrik yang berlainan. Puncak pemalar dielektrik yang tertinggi dikesan pada suhu Curie,  $T_c$ . Setiap bahan elektroseramik seperti  $BaTiO_3$ ,  $PbTiO_3$  dan  $Bi_4Ti_3O_{12}$  mempunyai  $T_c$  yang berbeza-beza iaitu 120, 490 dan 650  $^{\circ}C$ , masing-masing (Mostaghaci, 1996) Nilai-nilai pemalar dielektrik yang diberikan untuk bahan-bahan elektroseramik pada suhu yang kurang atau

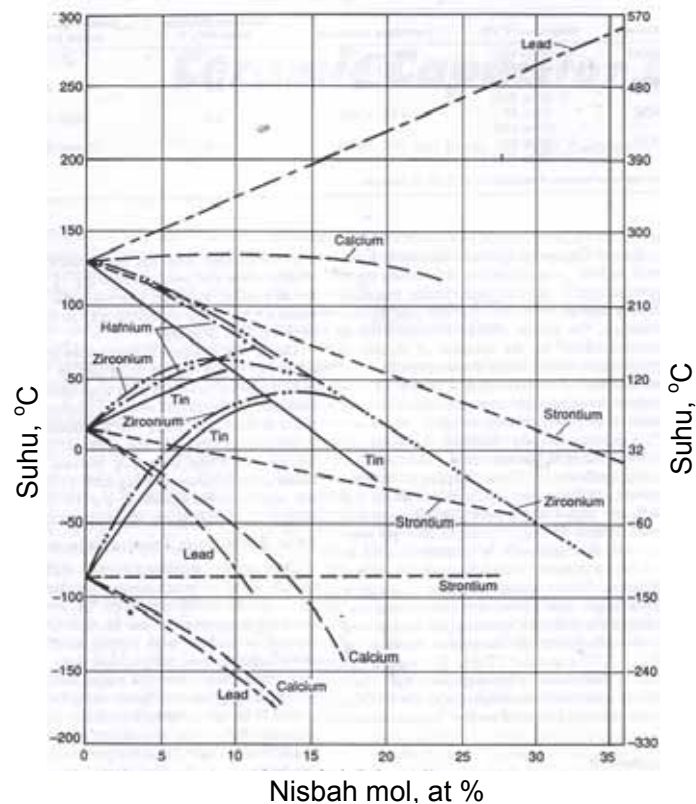
lebih daripada  $T_c$  adalah lebih rendah berbanding nilai pada  $T_c$  dan ini dapat diperhatikan dalam kedua-dua rajah yang sama.

### 2.2.3.3 Komposisi

Komposisi yang berlainan turut menghasilkan pemalar dielektrik yang berbeza. Penggunaan nisbah mol untuk strontium dalam sistem  $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$  telah dilaporkan oleh Fu et al. (2005). Beliau bersama rakan-rakannya telah mendapati bahawa komposisi yang berubah-ubah memberikan nilai maksimum pemalar dielektrik yang tidak sama pada suhu-suhu yang dikaji seperti ditunjukkan dalam Rajah 2.4. Secara keseluruhannya, kesan nisbah mol bagi beberapa bahan dopan terhadap suhu Curie ( $T_c$ ) dapat ditunjukkan dalam Rajah 2.5.



Rajah 2.4: Pengaruh nisbah mol bagi strontium dalam sistem  $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$  terhadap pemalar dielektrik (Fu et al. 2005).



Rajah 2.5: Kesan nisbah mol bagi bahan dopan terhadap suhu (Mouldson & Herbert, 2003).

### 2.3 Kaedah Tindakbalas Keadaan Pepejal

Tindakbalas keadaan pepejal adalah suatu kaedah tindakbalas penguraian kimia yang mana apabila suatu bahan bertindakbalas secara pepejal dikenakan dengan haba yang sesuai, satu bahan yang baru terbentuk dan gas sampingan turut terbebas. Tindakbalas ini adalah endotermik dan biasanya digunakan untuk menghasilkan bahan beroksida daripada bahan-bahan karbonat dan hidroksida (Halloran, 1991). Tindakbalas keadaan pepejal selalu memainkan peranan yang penting untuk operasi sintesis sebatian-sebatian elektroseramik seperti  $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$  dan  $PbZr_{1-x}Ti_xO_3$ . Tindakbalas yang melibatkan penguraian bahan pepejal atau tindakbalas kimia antara pepejal ini adalah dirujuk sebagai pengkalsinan.



Penghasilan serbuk titanat daripada kaedah tindakbalas keadaan pepejal banyak dibantu oleh penguraian oksida dengan kereaktifan tinggi.

Sebagai contoh, penghasilan barium strontium titanat dapat dilakukan dengan mengkalsinkan campuran  $\text{BaCO}_3$ ,  $\text{SrCO}_3$  dan  $\text{TiO}_2$  pada suhu tinggi, biasanya melebihi  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  (Wu et al. 2000; Thakur et al. 2002). Tindakbalas keadaan pepejal dalam sistem serbuk bergantung pada pelbagai parameter. Antara parameter-parameter tersebut adalah seperti sifat kimia bahan tindakbalas dan produk, saiz partikel, bentuk partikel, keseragaman campuran, persekitaran atmosfera, profil pembakaran dan lain-lain lagi (Gallagher, 1991).

Kajian menunjukkan kadar tindakbalas menurun dengan peningkatan saiz partikel bahan tindakbalas manakala kadar tindakbalas meningkat dengan suhu berdasarkan persamaan Arrhenius:

$$kt = Ae^{-E/RT} \quad (2.5)$$

di mana  $k$  ialah pemalar kadar spesifik,  $t$  ialah masa,  $A$  ialah istilah pra-eksponen,  $E$  ialah tenaga pengaktifan,  $T$  ialah suhu mutlak dan  $R$  ialah pemalar gas. Biasanya, keseragaman campuran adalah parameter yang paling penting kerana parameter ini mempengaruhi kadar resapan dan bilangan sentuhan antara partikel bahan tindakbalas. Seterusnya peningkatan kadar resapan dan persentuhan antara partikel dalam tindakbalas akan mempengaruhi keupayaan untuk menghasilkan serbuk homogen yang berfasa tunggal.

### **2.3.1 Kelebihan Dan Kekurangan Tindakbalas Keadaan Pepejal**

Seperti diterangkan sebelum ini, tindakbalas keadaan pepejal melibatkan proses kalsin untuk menghasilkan bahan berfasa tunggal dan membebaskan gas daripada campuran bahan asal. Umumnya, terdapat beberapa kelebihan kaedah ini berbanding kaedah yang melibatkan pembasahan kimia seperti sol gel, hidroterma dan pemendakan. Antaranya tindakbalas keadaan pepejal mudah dijalankan dengan kos peralatan yang agak murah, dapat dihasilkan dengan banyak, keseragaman serbuk yang baik, saiz serbuk hasilan mampu mencapai saiz nano dan tanpa melalui proses kalsin untuk serbuk mula daripada oksida (Stojanovic et al. 2005; Stojanovic et al. 2006). Kajian melibatkan keadaan pepejal telah dilakukan ramai penyelidik (Kong et al. 2001; Kong et al. 2002; Ze'lia & Antonio, 2002).

Walau bagaimanapun, terdapat beberapa kelemahan kaedah ini yang dikenalpasti seperti pengkalsinan pada suhu tinggi akan membentuk partikel-partikel yang kasar, kadar agregat dan aglomerat yang tinggi, luas permukaan partikel yang rendah serta kisaran dengan masa yang panjang akan memudahkan kemasukan bendasing-bendasing ke dalam campuran. Kong et al. (2002) telah melaporkan bahawa suhu kalsin setinggi 1200 °C diperlukan untuk penghasilan BaTiO<sub>3</sub>. Pengkalsinan pada suhu ini akan menghasilkan ciri-ciri yang memberi kesan akhir yang tidak baik terhadap sifat-sifat dielektrik dan fizikal.

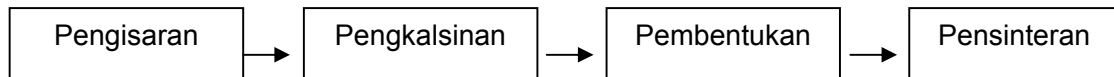
## 2.4 Proses Hasilan Bahan Elektrosamik

Pada asasnya, sifat-sifat bahan elektrosamik ditentukan oleh komposisi, saiz ira dan keliangan selepas pensinteran dan ciri-ciri ini turut dipengaruhi oleh kaedah fabrikasi. Kunci utama dalam fabrikasi bahan elektrosamik adalah pengkalsinan dan pensinteran (Moulson & Herbert, 2003).

Semasa kedua-dua proses berlaku (pengkalsinan dan pensinteran), jujuk-jujuk atom mengalami penyusunan semula di antara satu sama lain supaya dapat meminimalkan tenaga bebas dalam sistem. Ini melibatkan seperti pergerakan ion-ion yang banyak, peresapan dalaman untuk membentuk fasa baru, pengurangan luas permukaan dalaman dan peningkatan dalam saiz ira (Halloran, 1991). Lazimnya, keseluruhan dimensi mengalami pengecutan dan sangat penting untuk mendapatkan keseragaman pengecutan setiap dimensi pelet. Oleh itu, pengecutan dimensi dengan perubahan yang minimum dalam ketumpatan untuk setiap jasad sebelum sinter (jasad hijau) adalah wajar diperolehi.

Pemprosesan serbuk seramik bermula dengan mencampurkan serbuk-serbuk pada nisbah yang ditetapkan dan memasukkan campuran serbuk tersebut ke dalam bekas pengisar bersama-sama dengan media pengisar untuk proses kisanan. Campuran tersebut dikisar untuk suatu jangka masa tertentu sehingga suatu keadaan mantap dicapai apabila komposisi pada setiap partikel serbuk tersebut adalah sama dengan nisbah elemen bahan permulaan. Serbuk kisanan tersebut kemudiannya dikalsin pada suatu suhu tertentu untuk mencapai fasa tunggal sebatian yang dikehendaki dan kemudiannya ditekan untuk menjadi

bentuk pelet serta akhirnya disinter. Secara keseluruhannya, proses hasilan serbuk seramik seperti  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$  dapat disimpulkan dalam Rajah 2.6.



Rajah 2.6: Skematik proses hasilan  $Ba_{0.7}Sr_{0.3}TiO_3$ .

#### 2.4.1 Bahan Mentah

Hasilan bahan-bahan elektroseramik dengan sifat-sifat akhir yang baik adalah dipengaruhi oleh pemilihan bahan mentah yang tepat. Bahan-bahan mentah yang digunakan untuk hasilan ini adalah serbuk yang telah dikomersialkan secara meluas. Walau bagaimanapun, terdapat juga serbuk yang diperolehi secara tindakbalas kimia. Umumnya, pemilihan bahan mentah adalah berdasarkan jenis produk yang dihasilkan seperti produk-produk daripada seramik konvensional dan seramik termaju.

Untuk produk seramik konvensional, ciri-ciri bahan mentah yang digunakan adalah mudah didapati, kos yang rendah dan ketulenan yang tidak tinggi. Contohnya produk untuk jenis seramik ini adalah seperti tembikar sanitari, ubin lantai dan dinding serta bahan refraktori. Untuk produk seramik termaju khususnya untuk bahan elektroseramik yang banyak menekankan kualiti hasilan akhir, maka ciri-ciri bahan mentah yang diperlukan adalah serbuk dengan ketulenan tinggi, kelembapan yang rendah, tidak teraglomerat dan lain-lain lagi.

Ringkasnya, asas-asas pemilihan bahan mentah khususnya untuk bahan elektroseramik adalah dipengaruhi oleh beberapa kriteria yang diberikan iaitu:

i- Ketulenan

Bahan mentah yang berketulenan tinggi sangat penting khususnya untuk aplikasi peranti elektronik. Ketulenan yang tinggi akan mempengaruhi sifat-sifat dielektrik seperti pemalar dielektrik

ii- Kos

Kos bahan mentah daripada jenis oksida dan karbonat adalah berbeza-beza. Sebagai contoh, harga barium oksida (BaO) adalah lebih tinggi berbanding daripada BaCO<sub>3</sub>. Penggunaan BaO dan TiO<sub>2</sub> sebagai bahan mula akan meringkaskan proses hasilan BaTiO<sub>3</sub>, iaitu proses kalsin akan diabaikan. Bagi bahan mula seperti BaCO<sub>3</sub> dan TiO<sub>2</sub>, proses kalsin adalah diperlukan untuk menghasilkan BaTiO<sub>3</sub>. Kedua-dua keadaan ini akan memberi perbezaan hasilan akhir dalam sifat-sifat dielektrik dan fizikal.

iii- Kebolehdapatan

Bahan mentah yang mudah diperolehi adalah salah satu ciri dalam aspek pemilihan. Penggunaan bahan mentah yang sukar diperolehi akan memberi masalah semasa perjalanan projek dan seterusnya kos bahan mentah adalah tinggi.

iv- Kelembapan

Faktor kelembapan yang tinggi akan merendahkan kualiti selepas proses kisanan dan campuran. Oleh itu, serbuk-serbuk yang diperolehi daripada pembekal perlu dikeringkan sebelum dilakukan proses seterusnya.