

**KESAN PENAMBAHAN  $\text{SnO}_2$  TERHADAP BAHAN  
FERROELEKTRIK BARU  $\text{BaTi}_2\text{O}_5$  MELALUI KAEDAH  
TINDAK BALAS PEPEJAL**

*Kfias buat ayahanda dan bonda yang dikasihni lagi dihormati,*

*Berkat sokongan, didikan, kasih sayang, pengorbanan, dan restumu semoga anakanda  
menjadi insan yang berguna untuk kesinambungan kesejahteraan agama, bangsa dan  
negara.*

## PENGHARGAAN

Setinggi-tinggi kesyukuran dirafa'kan ke hadrat Ilahi kerana dengan limpah kurniaNya dapat saya menyempurnakan laporan Projek Ilmiah Tahun Akhir dengan jayanya. Saya ingin mengambil kesempatan ini untuk merakamkan ucapan terima kasih yang tidak terhingga kepada penyelia projek, Profesor Madya Dr. Ahmad Fauzi bin Mohd Noor yang telah memberi bimbingan sepanjang penyelidikan ini. Tidak dilupakan juga Puan Srimala A/P Sreekantan kerana telah memberi sumbangan idea dan nasihat dalam menjayakan projek ini.

Sekalung penghargaan yang tidak terhingga kepada Profesor Zainal Arifin bin Ahmad, Profesor Razali Othman, Profesor Syed Idris bin Syed Hassan, Profesor Ibrahim Abu Talib, dan juruteknik makmal terutamanya En. Syarul Ami, En. Kemuridan, Pn. Fong, En. Rashid, En. Syahid, En. Razak dan En. Mokhtar ke atas bantuan alatan dan kerjasama yang diberikan semasa penyelidikan. Tidak dilupakan juga, juruteknik P.P. Kej. Elektrik dan Elektronik serta Jab. Mineral dan Geosains Perak yang telah membenarkan saya menggunakan peralatan di sana.

Setulus kasih dihulurkan kepada ayahbonda, Hj. Amir Hj. Omar dan Hjh. Mariyam bt. Mat Isa serta seisi keluarga kerana telah memberi sokongan yang tidak berbelah bahagi kepada saya selama ini sehingga saya yakin untuk terus melangkah. Doa dan harapan mereka sentiasa bersama saya untuk terus mengorak kejayaan.

Tidak dilupakan kepada kepada semua pensyarah Pusat Pengajian Kejuruteraan Bahan dan Sumber Mineral yang telah banyak mencurahkan ilmu dan mendidik saya dengan penuh rasa tanggungjawab selama saya menuntut di kampus ini. Saya juga ingin berterima kasih kepada rakan-rakan seperjuangan yang telah banyak membantu saya. Akhir sekali, jutaan penghargaan kepada individu-individu lain yang turut terlibat secara langsung atau tidak langsung, untuk menjayakan kajian ini.

Saya berharap agar kajian ini menjadi pembuka jalan untuk penyelidikan selanjutnya pada masa akan datang.

Amalina Amir  
Universiti Sains Malaysia  
Mac 2005.

## SENARAI KANDUNGAN

TAJUK	i
PENGHARGAAN	ii
SENARAI KANDUNGAN	iii
SENARAI JADUAL	vii
SENARAI RAJAH	viii
ABSTRAK	xi
ABSTRACT	xii
<b>BAB 1:        PENGENALAN</b>	
1.1    Pendahuluan	1
1.2    Objektif Kajian	2
1.3    Pendekatan Kajian	2
<b>BAB 2 :        KAJIAN PERSURATAN</b>	
2.1    Pendahuluan	5
2.2    Struktur Barium Titanat	5
2.3    Penjelmaan Barium Titanat	7
2.4    Barium dititanat	9
2.5    Ba <sub>6</sub> Ti <sub>17</sub> O <sub>40</sub>	11
2.6    Ferroelektrik	12
2.7    Bahan Dopan	16
2.8    Bahan dielektrik	18
2.9    Kebertelusan ( <i>permittivity</i> )	20
2.10   Struktur domain	21
2.11   Sintesis tindakbalas keadaan pepejal	22
2.11.1 Bahan Mentah	24

2.12	Pencampuran dan pengisaran	24
2.13	Pembakaran Sampel	27
2.13.1	Pengkalsinan	28
2.14	Aplikasi Barium Titanat	30
2.14.1	Kapasitor	30
2.14.2	Termistor	30
2.14.3	Piezoelektrik	31

### **BAB 3 : BAHAN MENTAH DAN TATACARA EKSPERIMEN**

3.1	Pendahuluan	32
3.2	Bahan Mentah	32
3.3	Pencirian bahan mentah	33
3.3.1	Teknik Pembelauan Sinar-X (XRD)	33
3.3.2	Mikroskop Imbasan Elektron (SEM)	33
3.3.3	Analisa Saiz Partikel	34
3.3.4	Teknik Pendafluor Sinar-X (XRF)	34
3.4	Penyediaan Komposisi	35
3.5	Penyediaan sampel	37
3.5.1	Pencampuran dan pengisaran	39
3.5.2	Pengkalsinan	41
3.5.3	Pengisaran	42
3.5.4	Pencampuran basah	42
3.5.5	Pengeringan dan penghancuran	44
3.5.6	Penggranulan	44
3.5.7	Pembentukan pelet	45

3.5.8	Pengeringan Pelet	45
3.5.9	Pensinteran	45
3.6	Ujian sifat fizikal	46
3.6.1	Ujian perubahan dimensi	47
3.6.2	Ujian keliangan, dan ketumpatan	47
3.5	Sifat elektrik	49
3.5.1	Pemalar dielektrik	49

#### **BAB 4 : KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN**

4.1	Pendahuluan	51
4.2	Pencirian bahan mentah	51
4.2.1	Serbuk barium karbonat	51
4.2.1	Serbuk Titanium (II) Oksida	54
4.2.3	Stanum (II) Oksida	55
4.3	Analisis Sampel Selepas Pengisaran	57
4.4	Analisis sampel selepas pengkalsinan dan persinteran	64
4.5	Ujian Fizikal	67
4.5.1	Ketumpatan Ketara dan Keliangan	67
4.5.2	Pengecutan	68
4.6	Mikrograf SEM	70
4.7	Ujian pemalar dielektrik	73

#### **BAB 5 : KESIMPULAN DAN CADANGAN**

5.1	Kesimpulan	75
5.1	Cadangan	76

**RUJUKAN**

77

**LAMPIRAN A**

## SENARAI JADUAL

### BAB 3

Jadual 3.1 : Jisim bahan mentah bagi setiap komposisi

Jadual 3.2 : Parameter kajian iaitu komposisi bahan, suhu kalsin dan suhu sinter

### BAB 4

Jadual 4.1 : Saiz dan taburan saiz partikel bagi bahan mentah

Jadual 4.2 : Julat dan purata taburan saiz serbuk selepas pencampuran

Jadual 4.3 : Ringkasan analisa fasa dan saiz butiran

Jadual 4.4 : Ujian fizikal bagi sampel yang dikalsin pada pelbagai suhu dan disinter pada 1300°C

Jadual 4.5 : Ujian fizikal bagi sampel yang dikalsin pada pelbagai suhu dan disinter pada 1300°C

Jadual 4.6 : Nilai pemalar dielektrik

## SENARAI RAJAH

### BAB 1

Rajah 1.1 : Carta alir menunjukkan pendekatan kajian yang dilakukan dalam penghasilan BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub>

### BAB 2

- Rajah 2.1 : Struktur perovskit
- Rajah 2.2 : Struktur perovskit; susunan kiub berpusat muka yang dibentuk oleh ion Ba<sup>2+</sup> dan ion O<sup>2-</sup> dengan ion Ti<sup>4+</sup> terletak di pusat hablur
- Rajah 2.3 : Fasa peralihan dalam herotan unit sel polimorf BaTiO<sub>3</sub>
- Rajah 2.4 : a) Penjelmaan struktur ortorombik menyebabkan pengutuban spontan berlaku arah <110> pada suhu -90°C < T < 5°C  
b) Penjelmaan struktur rombohedral menyebabkan pengutuban spontan berlaku arah <111> pada suhu < -90°C
- Rajah 2.5 : Gambarajah fasa sistem BaTiO<sub>3</sub>-TiO<sub>2</sub> yang sedang dikaji
- Rajah 2.6 : Hubungan pemalar dielektrik dengan suhu Curie
- Rajah 2.7 : Graf histerisis bagi ferroelektrik
- Rajah 2.8 : Pengutuban spontan octahedron TiO<sub>6</sub> dalam BaTiO<sub>3</sub>
- Rajah 2.9 : Pemalar dielektrik seramik barium titanat
- Rajah 2.10 : Kesan penggantian ion isovalen pada suhu peralihan barium titanat
- Rajah 2.11 : Kesan bahan dopan altervalensi ke atas semikonduktor dan mikrostruktur seramik PTCR barium titanat
- Rajah 2.12 : Bahan dielektrik di antara plat kapasitor selari
- Rajah 2.13 : Kinetik pengisaran barium titanat dengan menggunakan pelbagai cara
- Rajah 2.14 : Pemalar dielektrik bagi barium titanat melawan suhu bagi pelbagai saiz butiran
- Rajah 2.15 : Kesan rawatan pengkalsinan spinel reaktif pada ketumpatan penekanan dan pensinteran



### **BAB 3**

- Rajah 3.1 : Carta alir penyediaan sampel
- Rajah 3.2 : Contoh profil pembakaran pada sulu kalsin 1100°C selama 2 jam dengan kadar pemamasan 5°C/min
- Rajah 3.3 : Profil pembakaran pelet pada suhu sinter 1250°C selama 2 jam dengan kadar pemanasan 5°C/min
- Rajah 3.4 : Mesin RCL
- Rajah 3.5 : Carta alir yang menunjukkan proses ujian elektrik dijalankan

### **BAB 4**

- Rajah 4.1 : Graf yang menunjukkan taburan saiz partikel BaCO<sub>3</sub>
- Rajah 4.2 : Mikrostruktur SEM bagi serbuk BaCO<sub>3</sub>
- Rajah 4.3 : Corak pembelauan bagi serbuk BaCO<sub>3</sub>
- Rajah 4.4 : Graf DTA bagi serbuk BaCO<sub>3</sub>
- Rajah 4.5 : Graf yang menunjukkan taburan saiz partikel TiO<sub>2</sub>
- Rajah 4.6 : Graf pembelauan bagi TiO<sub>2</sub>
- Rajah 4.7 : Graf DTA bagi TiO<sub>2</sub>
- Rajah 4.8 : Graf yang menunjukkan taburan saiz partikel SnO<sub>2</sub>
- Rajah 4.9 : Mikrostruktur SEM bagi SnO<sub>2</sub>
- Rajah 4.10 : Graf pembelauan bagi SnO<sub>2</sub>
- Rajah 4.11 : Graf DTA bagi SnO<sub>2</sub>
- Rajah 4.12 : Graf yang menunjukkan taburan saiz partikel BT<sub>aa</sub>
- Rajah 4.13 : Graf yang menunjukkan taburan saiz partikel 0.1SnBT<sub>aa</sub>
- Rajah 4.14 : Graf yang menunjukkan taburan saiz partikel 0.2SnBT<sub>aa</sub>
- Rajah 4.15 : Graf yang menunjukkan taburan saiz partikel 0.3SnBT<sub>aa</sub>
- Rajah 4.16 : (a) Graf TG bagi sampel BT<sub>aa</sub> selepas pengisaran dan pencampuran  
(b) Graf DTA bagi sampel BT<sub>aa</sub> selepas pengisaran dan pencampuran
- Rajah 4.17 : (a) Graf TG bagi sampel 0.1SnBT<sub>aa</sub> selepas pengisaran dan pencampuran  
(b) Graf DTA bagi sampel 0.1SnBT<sub>aa</sub> selepas pengisaran dan pencampuran

- Rajah 4.18 : (a) Graf TG bagi sampel 0.2SnBTaa selepas pengisaran dan pencampuran  
(b) Graf DTA bagi sampel 0.2SnBTaa selepas pengisaran dan pencampuran
- Rajah 4.19 : (a) Graf TG bagi sampel 0.3SnBTaa selepas pengisaran dan pencampuran  
(b) Graf DTA bagi sampel 0.3SnBTaa selepas pengisaran dan pencampuran
- Rajah 4.20 : Peratus pengecutan pelet yang dikalsin pada suhu (a) 1100°C, (b) 1200°C dan (c) 1300°C dan kemudian disinter pada 1250°C
- Rajah 4.21 : Keputusan SEM bagi sampel BTaa pada suhu pengkalsinan 1100°C, 1200°C dan 1300°C
- Rajah 4.22 : Data SEM bagi sampel yang dikalsin pada 1300°C dan disinter pada 1250°C dengan peratus SnO<sub>2</sub> yang berlainan a) tanpa SnO<sub>2</sub>; b) 0.1SnBTaa; c) 0.2SnBTaa dan d) 0.3SnBtaa

# BAB 1

## PENGENALAN

### 1.1 Pendahuluan

Perkataan seramik berasal daripada perkataan Greek *keramos* yang bermaksud tembikar tanah liat atau barang hiasan yang dibuat daripada tanahliat dan dibakar serta boleh dirujuk sebagai poteri (Moulson dan Herbert, 2003). Seramik juga boleh didefinisikan sebagai sebatian pepejal yang terbentuk melalui kenaan haba atau haba dan tekanan. Seramik merupakan kombinasi sekurang-kurangnya dua pepejal bukan logam elemen dan satu bahan bukan logam (Barsoum, 2000). Seramik digunakan dengan meluas dalam industri elektrik kerana sifatnya yang mempunyai kestabilan terma dalam keadaan lampau dan kerintangan elektrik yang tinggi (Moulson dan Herbert, 2003).

Pada pertengahan 1950an, bahan berasaskan barium titanat mulai menarik perhatian pakar saintis kerana sifatnya yang mempunyai pemalar dielektrik yang tinggi. Asas bagi ketelapan barium titanat berasal daripada sifat ferroelektriknya yang boleh mengekalkan kutub elektrik bakian selepas voltan kenaan dialihkan. Di samping itu, ferroelektrik mempunyai paksi kutub yang menarik yang mana boleh ditukar dengan arah oleh medan luaran. (Moulson dan Herbert, 2003).

Selain daripada barium titanat, barium dititanat ( $\text{BaTi}_2\text{O}_5$ ) juga didapati mempunyai sifat ferroelektrik yang mengagumkan.  $\text{BaTi}_2\text{O}_5$  mempunyai pemalar dielektrik yang tinggi iaitu boleh mencapai 30 000 (paksi-*b*) pada suhu Curie yang tinggi iaitu 430°C (Akishige *et. al.*, 2003) berbanding  $\text{BaTiO}_3$  yang mana suhu Curie

nya adalah 126°C. Walau bagaimanapun BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> merupakan satu fasa metastabil yang hanya stabil di bawah suhu 1200°C. Oleh yang demikian kajian mengenai penstabilan fasa BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> telah menjadi tumpuan para saintis sejak kebelakangan ini. Akishige *et. al.*, (2003) telah berjaya menghasilkan hablur tunggal BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> yang lutsinar dan tidak mempunyai warna dan mempunyai dwipaksi secara optik. Ia mempunyai ketumpatan  $5.20 \pm 0.15 \text{ g/cm}^3$ . Pemalar dielektiknya tinggi (30 000) dan dalam julat yang luas. Xu dan Huang (2003) pula berjaya menstabilkan BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> melalui kaedah sol-gel dan mendapati fasa ini hanya stabil pada suhu kurang daripada 1200°C.

Memandangkan tidak ada kajian mengenai penghasilan seramik BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> melalui kaedah tindakbalas pepejal, maka kajian ini ditumpukan untuk penghasilan fasa tunggal BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> yang stabil dengan penambahan SnO<sub>2</sub> sebagai penstabil.

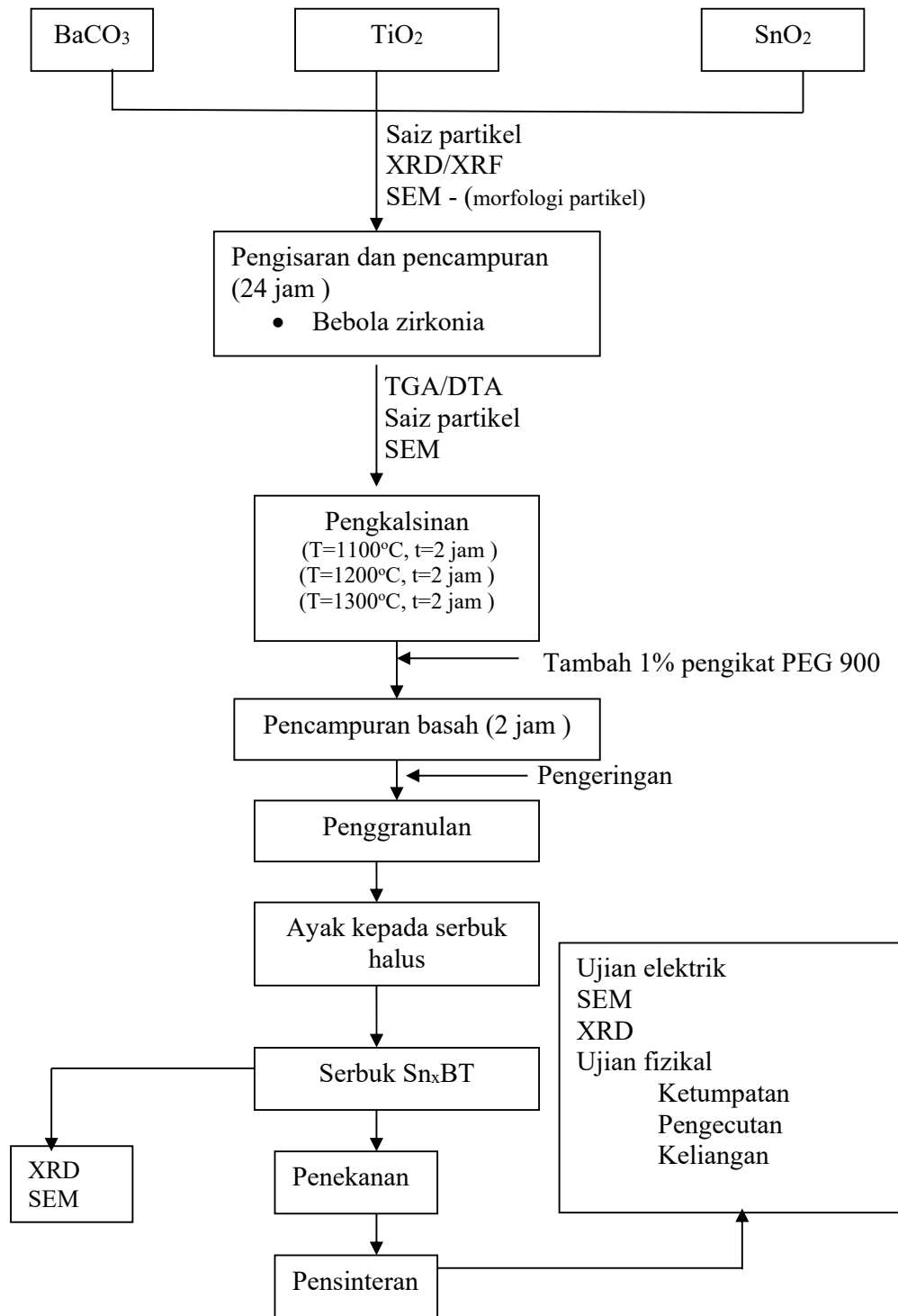
## **1.2 Objektif Kajian**

Kajian ini bertujuan untuk menghasilkan seramik BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> melalui tindakbalas kaedah pepejal. Tumpuan diberikan kepada kesan penambahan SnO<sub>2</sub> dan suhu pembakaran untuk menstabilkan BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub>. Perubahan fizikal, mikrostruktur dan sifat elektrik yang berlaku akibat daripada penambahan SnO<sub>2</sub> dikaji untuk memahami sifat ferroelektrik BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> dengan lebih mendalam lagi.

## **1.3 Pendekatan Kajian**

Carta alir bagi penghasilan BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> ditunjukkan dalam Rajah 1.1. Bahan mentah yang digunakan adalah BaCO<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub> dan SnO<sub>2</sub>. Bahan mentah ditimbang mengikut komposisi (Jadual 3.1) yang dikehendaki lalu dicampurkan. Kandungan stanum (II) oksida diubah dari 0.1% berat SnO<sub>2</sub> ke 0.2% berat SnO<sub>2</sub> dan seterusnya ke

0.3% berat SnO<sub>2</sub>. Kemudian serbuk dikalsinkan pada tiga suhu yang berbeza iaitu 1100°C, 1200°C dan 1300°C. Analisis DTA dan TG dilakukan pada serbuk sebelum proses pengkalsinan untuk mengenalpasti suhu bagi perubahan fasa dan jumlah kehilangan berat. Di samping itu, analisis XRD dijalankan selepas pengkalsinan sampel untuk mengenalpasti fasa yang wujud. Selepas pengkalsinan, serbuk tersebut ditekan dengan menggunakan tekanan sebanyak 100 MPa untuk membentuk pelet berdiameter 14mm dengan tebal sebanyak 1 hingga 2 mm. Pelet ini kemudian disinter pada 1250°C selama 2 jam. Kemudian, pelet akan diuji dengan ujian fizikal dan elektrik.



Rajah 1.1: Carta alir menunjukkan pendekatan kajian yang dilakukan dalam penghasilan BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub>.

## BAB 2

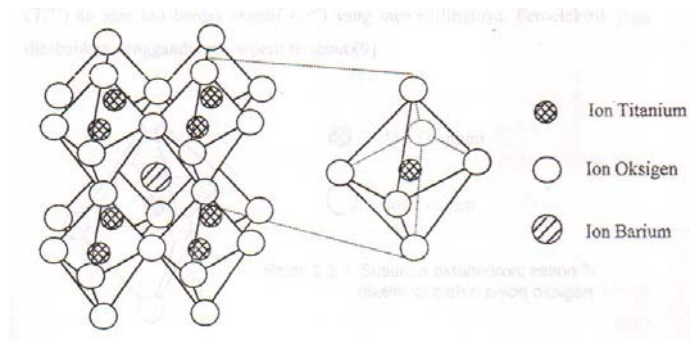
### KAJIAN PERSURATAN

#### 2.1 Pendahuluan

Barium titanat,  $\text{BaTiO}_3$  digunakan dengan meluas di dalam kapasitor kerana ia mempunyai pemalar dielektrik yang luar biasa berbanding dielektrik polimer dan bahan-bahan seramik yang lain. Serbuk  $\text{BaTiO}_3$  boleh disediakan dengan tindakbalas (pengkalsinan) campuran barium karbonat dan titanium oksida pada suhu kira-kira  $1100^\circ\text{C}$ . Walau bagaimanapun, teknik pencampuran cecair banyak digunakan pada masa kini untuk meningkatkan prestasi kapasitor dan kaedah penghasilannya adalah lebih baik. Kaedah pencampuran basah bahan kimia ini adalah seperti oksalat, alkoksida, atau proses hidrotermal yang lebih mahal daripada proses pencampuran serbuk tradisional tetapi ia boleh menghasilkan serbuk yang mempunyai ketulenan yang tinggi, taburan saiz partikel submikron dan nisbah barium kepada titanium boleh dikawal dengan lebih tepat (Burn, 1991).

#### 2.2 Struktur Barium Titanat

Barium titanat mempunyai struktur yang sama dengan mineral perovskit ( $\text{CaTiO}_3$ ) yang berbentuk tetragonal pada suhu bilik dengan nilai  $a=3.995$ ,  $c=4.034\text{\AA}$  dengan struktur seperti Rajah 2.1 di bawah.



Rajah 2.1: Struktur perovskit; anion oksigen terletak pada setiap sudut oktahedron. Kation kecil titanium terletak pada tengah oktahedron yang dikelilingi oleh 6 ion oksigen. Kation besar barium terletak pada kekosongan tengah yang dikelilingi oleh 12 anion.

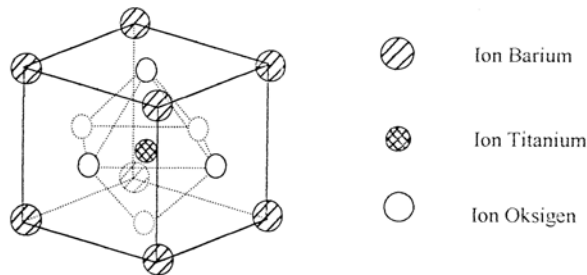
Dalam barium titanat, ion  $\text{Ti}^{4+}$  dikelilingi oleh 6 ion oksigen dalam bentuk oktahedron. Ion oksigen dalam struktur perovskit mempunyai ikatan dengan 2 ion  $\text{Ti}^{4+}$ . Oleh itu,  $\text{TiO}_6$  dalam barium titanat boleh ditempatkan dalam orientasi yang sesuai di mana ion  $\text{Ba}^{2+}$  boleh ditempatkan pada bucuanya. Susunan oktahedron seperti  $\text{TiO}_6$  mempunyai pemalar dielektrik yang tinggi (Hench, 1989). Disebabkan Ti adalah terlalu kecil untuk tapak oktahedra, ia akan menyesar lebih kurang 6% daripada jarak Ti-O ke salah satu oksigen sisi, dan ion  $\text{Ba}^{2+}$  juga turut melalui sedikit sesaran pada arah yang sama. Ini akan mengurangkan koordinat Ti kepada 5 (piramid bertapak segiempat) dan untuk mendapatkan panjang ikatan Ti-O, struktur akan mengecut sedikit pada satah  $ab$  (West, 1996).

Atom Ti dalam unit sel bersebelahan turut melalui sesaran pada arah yang sama dan struktur yang terhasil mempunyai momen dwikutub yang besar disebabkan oleh pemisahan pusat cas positif dan negatif. Orientasi dwikutub ini boleh berubah-ubah dengan mengenakan medan elektrik, maka ion  $\text{Ti}^{4+}$  akan bergerak melalui pusat tapak oktahedra ke arah satu daripada ion  $\text{O}^{2-}$  sisi. Kebolehan pembalikan (*reversibility*) ini



memberikan struktur kebolehtubuhan dan kebertelusan atau pemalar dielektrik yang tinggi dan ia akan mempengaruhi sifat keferroelektrikan (West, 1996).

Dalam  $\text{BaTiO}_3$ , ion  $\text{Ba}^{2+}$  dan ion  $\text{O}^{2-}$  akan membentuk satu kekisi tiub berpusat muka (kfm) dengan ion  $\text{Ti}^{4+}$  dimuatkan dalam kekosongan oktahedron. Ion  $\text{Ba}^{2+}$  yang bersaiz besar menyebabkan saiz unit sel kfm  $\text{BaO}_3$  juga besar. Ini menyebabkan tenaga yang lebih kecil akan mengherot (ion  $\text{Ti}^{4+}$ ) dari kedudukan pusat dalam oktahedron. Kesan momen dwikutub kekal lebih senang dihasilkan (Hench, 1989).

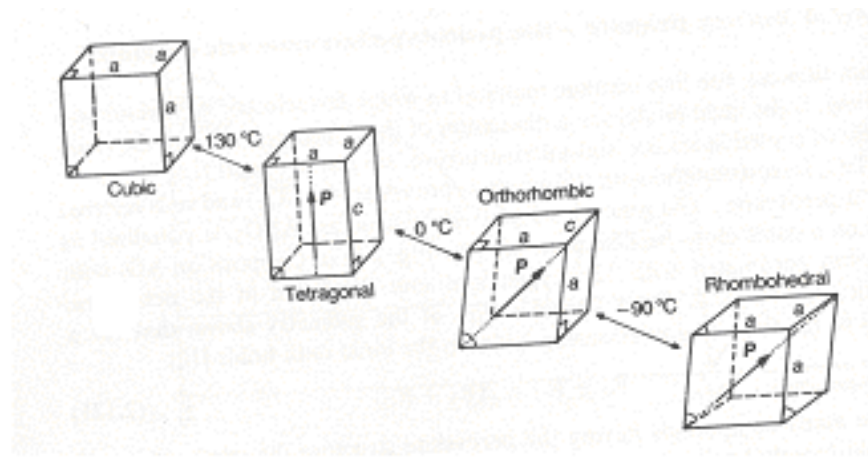


Rajah 2.2: Struktur perovskit; susunan kiub berpusat muka yang dibentuk oleh ion  $\text{Ba}^{2+}$  dan ion  $\text{O}^{2-}$  dengan ion  $\text{Ti}^{4+}$  terletak di pusat hablur.

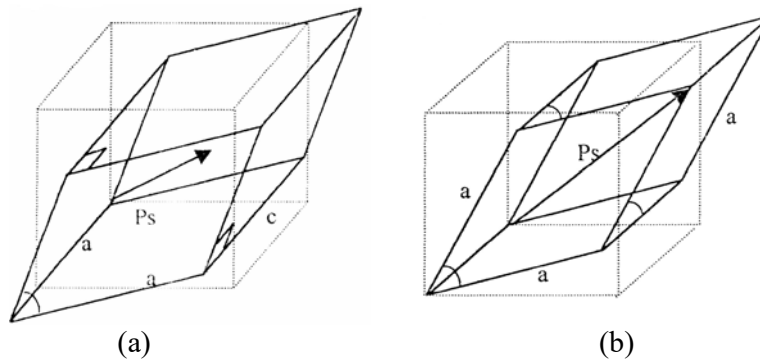
### 2.3 Penjelmaan Barium Titanat

Barium titanat mengalami perubahan fasa seperti di dalam Rajah 2.3 pada julat suhu yang berlainan. Pada suhu yang lebih tinggi dari suhu Curie ( $130^\circ\text{C}$ ), unit sel  $\text{BaTiO}_3$  adalah kiub simetri, dan ion  $\text{Ti}^{4+}$  berpusat pada unit sel. Di antara  $0^\circ\text{C}$  dan  $130^\circ\text{C}$ ,  $\text{BaTiO}_3$  akan mengherot pada arah  $c$  kepada struktur perovskit dengan pengutuban dan peralihan ion  $\text{Ti}^{4+}$  pada sel unit hablur. Oleh sebab ini,  $\text{BaTiO}_3$  selalunya berbentuk tetragonal pada suhu bilik. Apabila suhu diturunkan sehingga  $5^\circ\text{C}$   $\text{BaTiO}_3$  akan menjelma kepada fasa ortorombik dengan pemesanan berlaku sepanjang paksi- $c$ . Pengutuban spontan yang tepu,  $P_s$  berlaku pada arah  $\langle 110 \rangle$ , iaitu terdapat 12

arah yang serasi pada  $\langle 110 \rangle$ . Ini menunjukkan bahawa  $\text{BaTiO}_3$  pada suhu ini juga merupakan bahan ferroelektrik (Hench, 1989). Fasa peralihan lain berlaku di antara  $0^\circ\text{C}$  dan  $-80^\circ\text{C}$ ; di bawah  $0^\circ\text{C}$  sel unit adalah ortorombik dengan paksi kutub selari dengan permukaan penjuru. Penjelmaan bentuk tidak berhenti setakat itu sahaja tetapi apabila penurunan suhu ke  $-90^\circ\text{C}$ ,  $\text{BaTiO}_3$  menjelma kepada bentuk rombohedral seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 2.4. Pada suhu ini,  $\text{BaTiO}_3$  merupakan bahan ferroelektrik dengan pengutuban spontan berlaku selari dengan arah  $\langle 111 \rangle$  dan mempunyai 8 mod pengutuban.



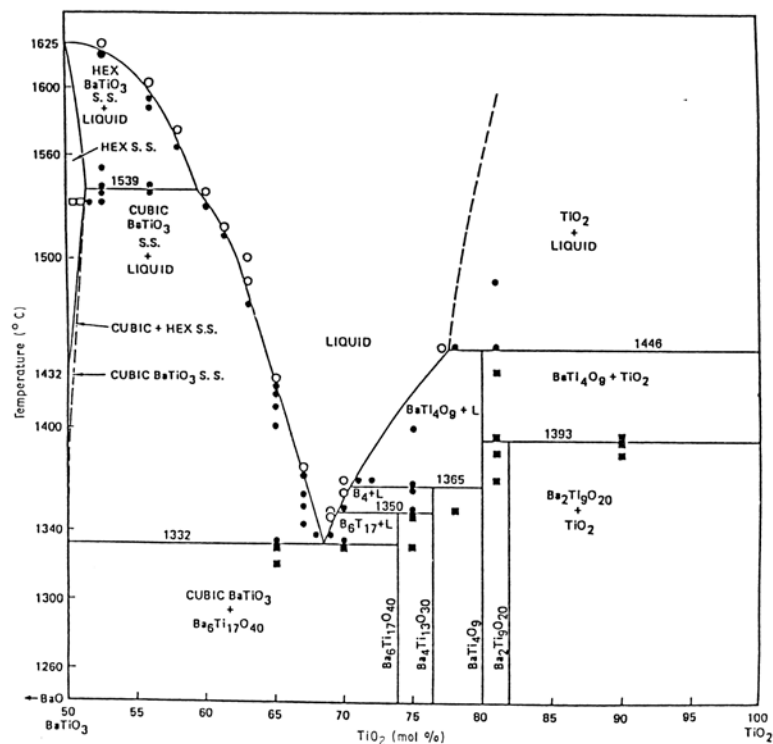
Rajah 2.3: Fasa peralihan dalam herotan unit sel polimorf  $\text{BaTiO}_3$ .



Rajah 2.4 : a) Penjelmaan struktur ortorombik menyebabkan pengutuban spontan berlaku arah  $\langle 110 \rangle$  pada suhu  $-90^\circ\text{C} < T < 5^\circ\text{C}$  b) Penjelmaan struktur rombohedral menyebabkan pengutuban spontan berlaku arah  $\langle 111 \rangle$  pada suhu  $< -90^\circ\text{C}$

## 2.4 Barium dititanat

Rase dan Roy (1955) merupakan orang pertama melaporkan mengenai  $\text{BaTi}_2\text{O}_5$  atau  $\text{BT}_2$ . Mereka mendapati fasa ini menghablur dengan pantas daripada keadaan cecair di atas garisan solidus  $1320^\circ\text{C}$ . Walaubagaimanapun, mereka tidak dapat menghasilkan sebatian ini sebagai fasa tunggal di bawah garisan solidus (Rajah 2.5) dan menyimpulkan bahawa ia tidak stabil di bawah suhu  $1200^\circ\text{C}$ .



Rajah 2.5: Gambarajah fasa sistem  $\text{BaTiO}_3$ - $\text{TiO}_2$  yang sedang dikaji (Sumber: Phule dan Risbud)

Penyelidik lain juga gagal menghasilkan  $\text{BaTi}_2\text{O}_5$  melalui keadaan pepejal dan mereka menyimpulkan bahawa ia tidak stabil pada semua suhu. Mereka melaporkan bahawa fasa sekunder atau *piroklor* seperti  $\text{PbTiO}_3$  dan  $\text{BaTi}_2\text{O}_5$  akan sentiasa wujud sebelum pembentukan perovskit dalam tindakbalas keadaan pepejal konvensional hasil daripada tindakbalas antara muka. Guha (1977) mendapati  $\text{BaTi}_2\text{O}_5$  telah terbentuk

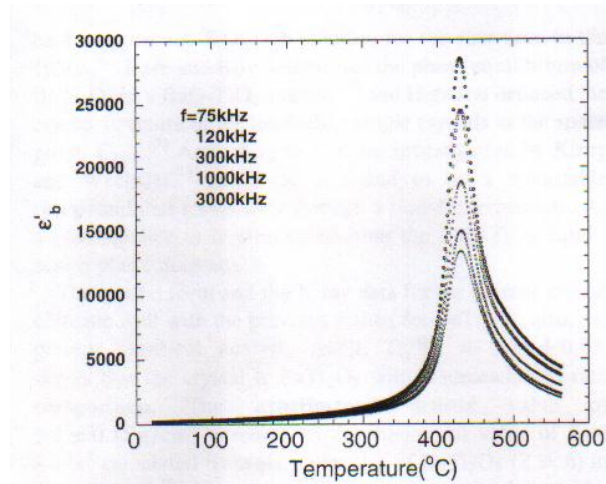
dengan kehadiran cecair pada suhu di atas 1300°C, tetapi mengurai kepada BaTiO<sub>3</sub> dan Ba<sub>6</sub>Ti<sub>17</sub>O<sub>40</sub> apabila dipanaskan di bawah suhu ini. Maka adalah sukar untuk mensintesis fasa tunggal BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> melalui kaedah tindakbalas keadaan pepejal konvensional. Sintesis kimia keadaan basah BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> turut dikaji oleh beberapa penyelidik (Rase dan Roy, 1955).

Ritter dan Roth menghasilkan spesimen BaO.2TiO<sub>2</sub> yang dipanaskan pada suhu 1400°C, disejukkan kepada 1300°C selama sejam sebelum dilindapkejut menghasilkan hanya Ba<sub>6</sub>Ti<sub>17</sub>O<sub>40</sub>, (6:17) dan BaTiO<sub>3</sub> heksagonal, (1:1). Ba<sub>6</sub>Ti<sub>17</sub>O<sub>40</sub> monoklinik pula stabil pada suhu tinggi dan tidak wujud dalam keseimbangan di bawah 1100°C, manakala fasa tunggal Ba<sub>6</sub>Ti<sub>17</sub>O<sub>40</sub> akan mula mengurai kepada 1:1 dan 4:13 di bawah suhu 1100°C.

Pada dasarnya spesimen fasa tunggal BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> disediakan dengan melindapkejut cecair daripada 1400°C yang dipanaskan semula pada pelbagai suhu dalam percubaan untuk mendapatkan parameter keseimbangan yang tepat untuk fasa ini. Semua rawatan haba di antara 1150°C dan garisan solidus akan menghasilkan permulaan bagi penguraian BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> kepada 6:17 dan 1:1 (Ritter dan Roth, 1986).

Spesimen BaO<sub>2</sub>TiO<sub>5</sub> yang disediakan melalui hidrolisis campuran larutan etoksida adalah amorfus apabila termendak. Ia menghablur pada 700°C kepada bentuk BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub>. struktur hablur fasa BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> dilaporkan oleh Harrison (1956) dan dikukuhkan lagi oleh Tillmanns (1974). Akishige dan Fukano (2003) melaporkan bahawa hablur ini adalah monoklinik dengan parameter unit sel  $a=16.91 \text{ \AA}$ ,  $b=3.94 \text{ \AA}$ ,  $c=9.49 \text{ \AA}$  dan  $\beta=103.0^\circ$ . Mereka mendapati bahawa hablur ini mempunyai suhu Curie yang tinggi

iaitu 430°C dan pemalar dielektrik yang luar biasa tinggi dan dalam julat yang luas iaitu 30 000 pada suhu Curie sepanjang paksi-*b* (Rajah 2.6) dan mempunyai kumpulan ruang C<sub>2</sub> pada suhu bilik.



Rajah 2.6: Hubungan pemalar dielektrik dengan suhu Curie

Ritter dan Roth (1986) menyimpulkan bahawa sebatian BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> stabil pada suhu rendah dalam sistem BaO-TiO<sub>2</sub>. Xu dan Huang (2003) menyediakan BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> melalui kaedah sintesis sol gel. Mereka mendapati fasa tunggal BaTi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> stabil pada suhu sekurang-kurangnya 1200°C. Lekuk DTA menunjukkan serbuk asas mempunyai puncak eksotermik pada 569°C dan 727°C, merujuk kepada bermulanya penghabluran. Kehilangan berat yang pertama adalah di antara 180°C pada lekuk TG disebabkan oleh dihidrasi *precursor* (Xu dan Huang, 2003).

## 2.5 Ba<sub>6</sub>Ti<sub>17</sub>O<sub>40</sub>

Fasa Ba<sub>6</sub>Ti<sub>17</sub>O<sub>40</sub> telah diterangkan oleh Tillmanns (1970) dan hubungan di antara fasa, hablur kimia kesamaan struktur dibincangkan oleh Negas dan Roth (1974). Dimensi unit sel adalah  $a=18.930\text{nm}$  (Jonker dan Kwestroo),  $b=17.103\text{nm}$  (Jonker dan Kwestroo),  $c=9.981\text{nm}$  (Rase dan Roy) x 10,  $\beta=98.74^\circ$  (Rase dan Roy). Fasa

monoklinik  $\text{Ba}_6\text{Ti}_{17}\text{O}_{40}$  hanya stabil pada suhu tinggi dan tidak wujud dalam keseimbangan di bawah suhu  $1100^\circ\text{C}$ . Fasa tunggal  $\text{Ba}_6\text{Ti}_{17}\text{O}_{40}$  akan mula mengurai kepada  $1:1$  dan  $4:13$  di bawah suhu  $1100^\circ\text{C}$  (Ritter dan Roth).

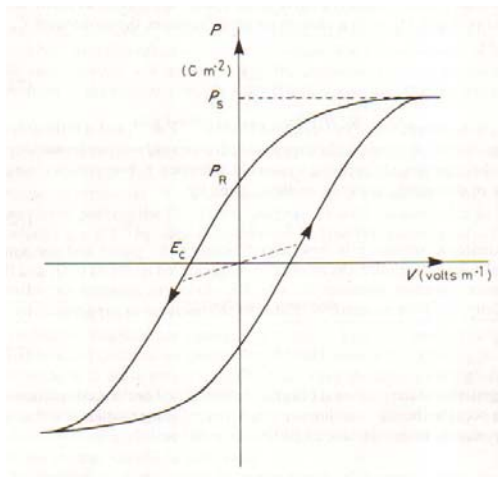
Lin dan Lu (2001) pula telah mendapati bahawa  $\text{Ba}_6\text{Ti}_{17}\text{O}_{40}$  monoklinik stabil di bawah suhu eutektik  $1332^\circ\text{C}$  apabila rawatan haba sepuhlandap dilakukan selepas pensinteran pada  $1000^\circ\text{C}$  selama 100 jam. Mereka telah menjumpai hubungan orientasi hablur  $(001)_t/(101)_m$ ,  $(111)_t/(001)_m$ ,  $(110)_t/(103)_m$ ,  $(111)_t/(101)_m$  dan  $[010]_m/[110]_t$  di antara  $\text{BaTiO}_3$  tetragonal dan  $\text{Ba}_6\text{Ti}_{17}\text{O}_{40}$  monoklinik.

$\text{Ba}_6\text{Ti}_{17}\text{O}_{40}$  selalu dijumpai di sepanjang sempadan butir dan persimpangan tiga butiran dalam seramik  $\text{BaTiO}_3$  yang disinter di atas  $1332^\circ\text{C}$  (Lu *et al.*, 1990). O'Bryan dan Thomson (1974) mencadangkan bahawa polititanat terbentuk semasa pensinteran di antara  $\text{BaTiO}_3$  dan lebihan  $\text{TiO}_2$  semasa pemanasan suhu sinter, di mana ketidakseragaman kimia tidak dapat dielakkan sekiranya menggunakan tindakbalas keadaan pepejal. Walaupun fasa kedua polititanat dijangka berlaku dalam seramik  $\text{BaTiO}_3$  dengan adanya lebihan  $\text{TiO}_2$  pada suhu sinter tertentu, namun Lu *et al.* (1990) tidak menerangkan tentang mikrostruktur jasad sinter yang mengandungi fasa  $\text{Ba}_6\text{Ti}_{17}\text{O}_{40}$ .

## 2.6 Ferroelektrik

Bahan ferroelektrik berbeza daripada bahan dielektrik biasa kerana ia mempunyai kebertelusan yang sangat besar dan boleh mengekalkan kutub elektrik bakian selepas voltan kenan dialihkan. Apabila beza upaya yang dikenakan kepada bahan dielektrik ditingkatkan, pengutuban teraruh,  $P$  turut meningkat atau cas akan

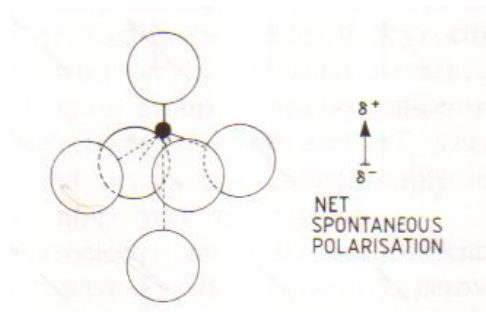
tersimpan,  $Q$ . Hubungan linear di antara  $P$  dan  $V$  tidak akan berlaku bagi ferroelektrik seperti dalam Rajah 2.7.



Rajah 2.7: Graf histerisis bagi ferroelektrik. Garisan putus-putus melalui asalan mewakili sifat bahan dielektrik normal.

Sifat pengutuban yang diperhatikan semasa peningkatan voltan tidak akan dihasilkan semula semasa penurunan voltan. Ferroelektrik menunjukkan pengutuban tepu,  $P_s$  pada kekuatan medan yang tinggi (untuk  $\text{BaTiO}_3$ ,  $P_s=0.26 \text{ Cm}^{-2}$  pada  $23^\circ\text{C}$ ) dan pengutuban kekal,  $P_R$  yang mana nilai ini kekal semasa voltan dikurangkan kepada sifar selepas penepuan. Untuk mengurangkan kekutuban kepada sifar, songsangan medan diperlukan, iaitu medan paksaan,  $E_c$ .

Sifat ferroelektrik ditunjukkan oleh jenis kation yang hadir, e.g.  $\text{Ti}^{4+}$  dalam  $\text{BaTiO}_3$  boleh melalui sesaran tertentu e.g.  $0.1\text{\AA}$ , berkait dengan jiran ioniknya. Sesaran cas ini meningkatkan dwikutub dan pemalar dielektrik yang tinggi adalah sifat kepada ferroelektrik.



Rajah 2.8: Pengutuban spontan oktahedron  $\text{TiO}_6$  dalam  $\text{BaTiO}_3$ .

Dalam ferroelektrik  $\text{BaTiO}_3$ , struktur domain terbentuk pada dwikutub  $\text{TiO}_6$  (Rajah 2.8) bersebelahan yang tersusun selari. Domain mempunyai pelbagai saiz tetapi selalunya agak besar,  $10\text{-}100\text{\AA}$ . Dalam satu domain tunggal, dwikutub mempunyai orientasi biasa. Pengutuban bersih bahan ferroelektrik adalah hasilan vektor pengutuban domain individu (West, 1996).

Penggunaan medan elektrik terhadap bahan ferroelektrik menyebabkan perubahan pengutuban bersih. Ia akan meningkat hasil daripada beberapa proses yang mungkin berlaku iaitu (West, 1996) :

- Arah pengutuban domain yang berubah. Ia akan berlaku sekiranya semua orientasi dwikutub  $\text{TiO}_6$  dalam domain berubah.
- Magnitud  $P$  dalam setiap domain meningkat terutama kerawakan dalam orientasi dwikutub hadir sebelum medan dikenakan.
- Migrasi dinding domain berlaku disebabkan oleh pertumbuhan saiz orientasi domain pilihan dan menghapuskan domain yang kecil.

Kadaan ferroelektrik biasanya berlaku pada suhu rendah kerana peningkatan pergerakan terma pada suhu tinggi cenderung untuk memecahkan penyusunan pada

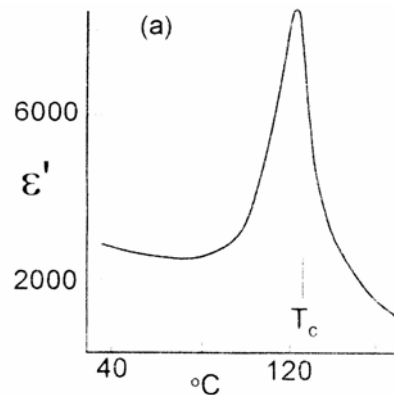


tapak oktahedra bersebelahan dan memusnahkan struktur domain. Suhu yang mana kejatuhan ini berlaku dipanggil suhu Curie ferroelektrik,  $T_c$  (Rajah 2.9). Apabila suhu melebihi suhu Curie, bahan akan menjadi paraelektrik (i.e.bukan-ferroelektrik). Pemalar dielektrik yang tinggi masih lagi berlaku apabila  $T > T_c$  tetapi tiada pengutuban bakian yang wujud apabila medan kenaan dikeluarkan. Melebihi  $T_c$ ,  $\epsilon'$  diberikan oleh Hukum Curie-Weiss,

$$\epsilon' = C / (T - \theta) \quad (2.1)$$

Dimana  $C$  = pemalar Curie,

$\theta$  = Suhu Curie-Weiss



Rajah 2.9: Pemalar dielektrik seramik barium titanat

Peralihan ferroelektrik kepada paraelektrik pada  $T_c$ , merupakan contoh peralihan fasa tersusun dan tidak tersusun. Susunan yang berlaku di bawah  $T_c$  melibatkan herotan terpilih atau condongan polihedra dan ini merupakan contoh peralihan fasa sesaran. Pada suhu tinggi dalam fasa paraelektrik herotan atau condongan polihedra berlaku tetapi secara rawak (West, 1996).

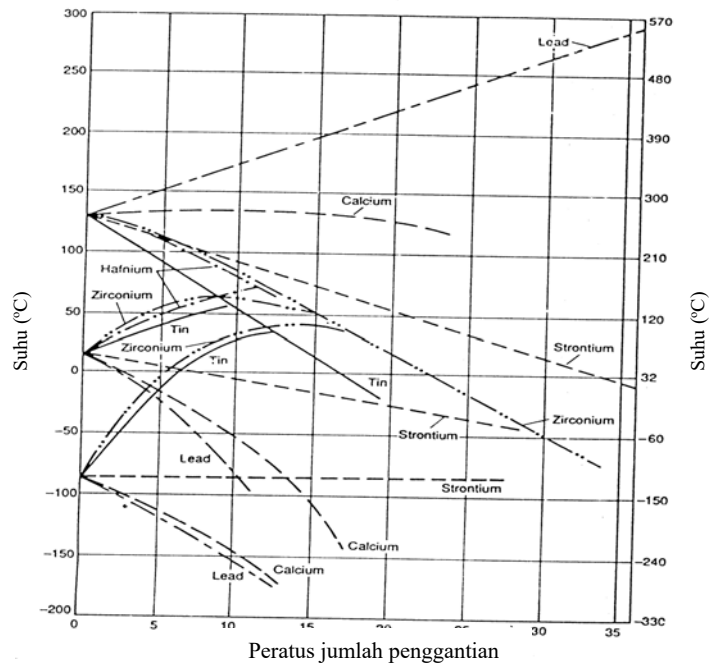
Untuk memaksimumkan  $\epsilon'$  untuk penggunaan yang lebih praktikal, adalah perlu untuk mengubah suhu Curie supaya lebih hampir kepada suhu bilik. Ia boleh diturunkan dan dilebarkan dengan  $\text{Bi}^{2+}$  atau  $\text{Ti}^{2+}$  yang akan digantikan separa oleh ion lain. Penggantian  $\text{Ba}^{2+} \rightarrow \text{Sr}^{2+}$  menyebabkan pengecutan unit sel dan pengurangan nilai Tc; penggantian  $\text{Ti}^{4+}$  'aktif' dengan ion tetravalent 'tidak aktif' seperti  $\text{Zr}^{4+}$  dan  $\text{Sn}^{4+}$  akan menurunkan Tc dengan mendadak (West, 1996).

## 2.7 Bahan Dopan

Bahan dopan merupakan 'bendasing' dengan kuantiti yang sangat kecil, yang sengaja ditambah ke dalam bahan induk (barium titanat) untuk mendapatkan sifat-sifat yang dikehendaki. Kepekatan yang ditambah bergantung kepada sifat yang dikehendaki, contohnya bahan dopan sebanyak 0.2 – 0.3% diperlukan untuk mendapatkan kerintangan pekali positif (PTCR) (Jakowlew *et. al.*, 1981).

Ion dengan saiz dan cas yang sama dengan  $\text{Ba}^{2+}$  atau  $\text{Ti}^{4+}$  boleh diganti di dalam kekisi hablur perovskit. Titanium boleh digantikan dengan ion seperti  $\text{Zr}^{4+}$ ,  $\text{Hf}^{4+}$  atau  $\text{Sn}^{4+}$  yang mempunyai suhu Curie yang lebih rendah. Rajah 2.10 menunjukkan pemerhatian yang hebat oleh Jaffe *et al.* yang merumuskan kesan peralihan fasa penggantian ion isovalen dalam  $\text{BaTiO}_3$ . (Burn, 1991). Namun, bukan semua perovskit adalah ferroelektrik kerana ia berkait dengan jejari ion yang terlibat. Ia kelihatan seperti ion  $\text{Ba}^{2+}$  yang lebih besar menyebabkan pengembangan unit sel relatif. Ikatan Ti-O yang lebih panjang dalam  $\text{BaTiO}_3$  dan ion  $\text{Ti}^{4+}$  lebih fleksibel untuk bergerak dalam oktahera  $\text{TiO}_6$ . Ferroelektrik oksida lain mempunyai kation yang tidak terikat dengan simetri kerana kehadiran pasangan elektron tunggal dalam petala valens terluar. Ia

adalah kation elemen berat blok-p dalam keadaan dua pengoksidaan kurang daripada valensi kumpulan seperti  $\text{Sn}^{2+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$  dan  $\text{Bi}^{2+}$  (West, 1996).



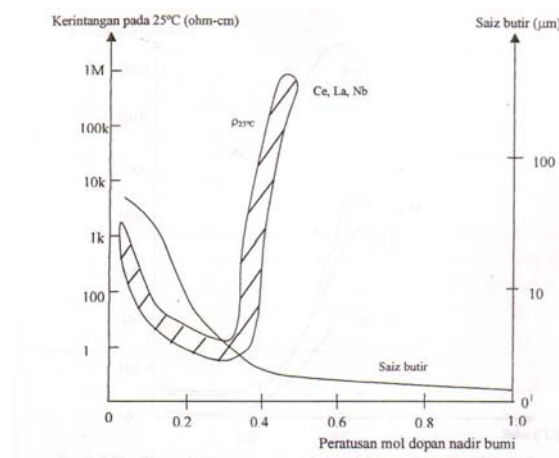
Rajah 2.10: Kesan penggantian ion isovalen pada suhu peralihan barium titanat (Jaffe *et al.*, 1990)

Bahan dopan seperti lanthalam,  $\text{La}^{3+}$  boleh menggantikan  $\text{Ba}^{2+}$  dalam kekisi perovskit tetapi ia akan menghasilkan semikonduktor jenis-n. Untuk mengekalkan kestabilan cas, sebarang ion pengganti trivalensi dengan saiz sesuai bila ganti ke dalam tempat barium akan menghasilkan satu ion  $\text{Ti}^{3+}$  pada tempat oktahedra  $\text{Ti}^{4+}$ . Formulasi umum bagi penggantian ini adalah:



Sebarang elemen nadir bumi yang diganti ke dalam kekisi perovskit juga akan menghasilkan sifat semikonduktor. Tetapi penghasilan komponen elektrik barium

titanat selalunya tertumpu kepada yttrium, lanthalam dan gadolinium sebagai dopan kekonduksian bagi tujuan penghasilan (Hill dan Tuller, 1986).



Rajah 2.11: Kesan bahan dopan altermalensi ke atas semikonduktor dan mikrostruktur seramik PTCR barium titanat (Hill dan Tuller, 1986)

## 2.8 Bahan dielektrik

Bahan dielektrik adalah bahan yang mempunyai kekonduksian yang lemah tetapi mempunyai keupayaan untuk menyimpan cas elektrostatik. Bahan dielektrik yang baik lazimnya ialah penebat. Ia mengalami pengutuban elektrik apabila suatu medan elektrik dikenakan ke atasnya.

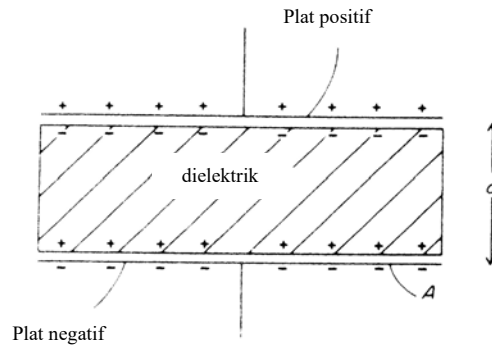
Pengutuban membuatkan bahan-bahan dielektrik baik untuk berfungsi sebagai kapasitor, substrat, dan penebat elektrik dalam pelbagai penggunaan. Untuk kegunaan praktik, bahan ini seharusnya mempunyai kekuatan dielektrik yang tinggi supaya dapat menahan voltan yang tinggi tanpa mengalami degradasi dan kehilangan yang rendah, i.e. kehilangan tenaga elektrik dalam bentuk haba dalam medan elektrik ulang alik mestilah diminimakan (West, 1996).

Pengutuban berlaku dengan terhasilnya dwikutub elektrik. Ada empat cara pengutuban boleh berlaku di dalam pepejal iaitu pengutuban elektronik, di mana berlaku anjakan elektron-elektron terhadap nukleus di dalam atom dan menyebabkan bahagian positif dan negatif di dalam atom tidak lagi seimbang. Kedua adalah pengutuban ionik iaitu pengherotan elastik pada ikatan kovalen. Yang ketiga adalah pengutuban orientasi iaitu pemutaran momen dwikutub kekal dan yang terakhir adalah pengutuban antara muka iaitu pengumpulan cas pada kawasan antara muka dua bahan.

Pengutuban boleh berlaku dalam bahan-bahan pepejal yang dikenakan kepada medan elektrik luaran kerana ia mengalami herotan elektron atau pemutaran dwikutub elektrik. Fenomena ini dinamakan sebagai elektrocerutan (*electrostriction*). Bagi hablur dielektrik yang mempunyai pusat simetri, kehadiran medan elektrik luar tidak mewujudkan anjakan cas positif dan negatif di dalam hablur maka bahan-bahan ini bukanlah bahan-bahan ferik. Tetapi bagi hablur yang tidak mempunyai pusat simetri, anjakan cas akan menghasilkan pengutuban.

Penggunaan beza keupayaan merentasi bahan dielektrik menyebabkan pengutuban cas walaupun pergerakan rangkaian ion atau elektron tidak berlaku. Pengutuban ini lesap apabila voltan di alihkan. Bahan ferroelektrik merupakan dielektrik yang istimewa kerana ia boleh menampung pengutuban cas baki yang besar selepas medan elektrik dialihkan (West,1996).

Sifat dielektrik boleh didefinisikan daripada sifat bahan dalam plat kapasitor. Ia terdiri daripada sepasang plat konduktif yang selari dan dipisahkan oleh ruang yang kecil,  $d$  berbanding dengan dimensi linear plat seperti Rajah 2.12 di bawah.



Rajah 2.12: Bahan dielektrik di antara plat kapasitor selari. (West,1996).

Dengan kehadiran vakum di antara dua plat ini, kapasitan  $C_0$  didefinisikan sebagai:

$$C_0 = \frac{\epsilon_0 A}{d} \quad (2.3)$$

di mana  $\epsilon_0$  adalah kebertelusan ruang bebas,  $8.854 \times 10^{-12} \text{ Fm}^{-1}$  dan A adalah luas plat.

Kapasitan bergantung kepada dimensi A dan d kerana  $\epsilon_0$  adalah pemalar. Apabila beza upaya, V dikenakan di antara dua plat, kuantiti cas yang tersimpan  $Q_0$  diberikan sebagai

$$Q_0 = C_0 V \quad (2.4)$$

Jika bahan dielektrik diletakkan di antara plat dan beza upaya yang sama digunakan, jumlah cas yang tersimpan meningkat kepada  $Q_1$  dan kapasitan turut meningkat kepada  $C_1$ . Pemalar dielektrik atau ketelusan relatif  $\epsilon'$  suatu dielektrik yang berkait dengan peningkatan kapasitan diberikan oleh:

$$\epsilon' = C_1 / C_0 \quad (2.5)$$

Magnitud  $\epsilon'$  bergantung kepada darjah pengutuban atau sesaran cas yang berlaku di dalam bahan. Untuk  $\text{BaTiO}_3$ ,  $\epsilon' = 10^3$  hingga  $10^4$ .

## 2.9 Kebertelusan (*permittivity*)

Sejak penemuan ferroelektrik barium titanat yang mempunyai kebertelusan,  $\epsilon$  yang tinggi pada tahun 1943, bahan seramik berasaskan sebatian ini digunakan untuk pembuatan kapasitor seramik.

Kebertelusan seramik BaTiO<sub>3</sub> sangat bergantung kepada saiz butiran,  $a$ . Seramik berbutir kasar ( $a=20-50\mu\text{m}$ ) menunjukkan  $\epsilon_r = 1500-2000$  pada suhu bilik. Beberapa penyelidik telah membuat pemerhatian bahawa butir-butir halus BaTiO<sub>3</sub> yang mampat mempunyai nilai  $\epsilon_r = 3500-4000$  dengan  $a=1\mu\text{m}$  (Kniekamp *et. al.*, 1954, Jonker and Noorlander, 1962, Sharma and McCartney, 1974). Brandmayr *et. al.* (1965) menjumpai nilai  $\epsilon_r=6000$  pada suhu bilik. Pada saiz butiran yang lebih kecil, terdapat penurunan  $\epsilon_r$  yang mendadak. Maka telah disimpulkan bahawa kebertelusan BaTiO<sub>3</sub> pada suhu bilik mempunyai nilai maksimum kira-kira  $1\mu\text{m}$ . Selain daripada saiz butiran, pemalar dielektrik turut bergantung kepada kandungan fasa, dan jenis dopan yang digunakan. Penyingkiran sempadan butiran, penghapusan kekangan daya butir sebelahan dan kejatuhan ketumpatan domain menyebabkan pengurangan pemalar dielektrik bagi serbuk BaTiO<sub>3</sub>. Maka seramik yang telah disinter dan serbuk yang belum disinter menunjukkan sifat elektrik yang berbeza (Kuo *et. al.*, 2003). Pemalar dielektrik yang tinggi bagi butiran halus BaTiO<sub>3</sub> boleh diterangkan oleh kesan saiz domain. Pada butir yang lebih kecil daripada  $a=1\mu\text{m}$ , struktur ferroelektrik berubah. Ini mungkin menyebabkan penurunan pemalar dielektrik (Arit *et al.*, 1985).

## 2.10 Struktur domain

Bahan-bahan oksida ferroelektrik mempunyai pemalar dielektrik yang tinggi. Walau bagaimanapun, bahan ferroelektrik tidak akan menunjukkan pengutuban bersih.

Ini bermakna pengutuban berlaku di dalam rantau-rantau kecil di dalam jasad bahan. Rantau-rantau kecil ini dinamakan domain. Setiap domain mempunyai dwikutub yang tersusun mengikut satu arah tertentu tetapi pengutuban di dalam domain ini selalunya membatalkan satu sama lain menjadikan nilai jumlah keseluruhan pengutuban sifar (atau nilai bukan sifar tetapi sangat kecil).

Tetapi apabila medan elektrik yang besar dikenakan kepada bahan ini, domain-domain akan berubah saiz di mana domain yang mempunyai arah yang sama dengan medan elektrik akan membesar dan domain-domain yang lain akan mengecil. Apabila kesemua domain-domain tersusun mengikut arah medan elektrik luar, bahan ini akan mencapai tahap pengutuban tepu. Dalam kaedah pengutuban, sifat ferroelektrik sesuatu bahan dapat diperkuatkan.

### **2.11 Sintesis tindakbalas keadaan pepejal**

Sintesis tindakbalas keadaan pepejal boleh dianggap sebagai kaedah tradisional tetapi sehingga ke hari ini masih digunakan dengan meluas dalam industri. Bahan mentah dalam bentuk serbuk pepejal dikenakan tindakbalas suhu tinggi bagi menghasilkan sebatian polihablur tumpat. Serbuk titania,  $\text{TiO}_2$  dan barium karbonat,  $\text{BaCO}_3$  biasa digunakan untuk teknik ini.

Faktor yang mempengaruhi ciri-ciri pemprosesan dalam sintesis tindakbalas keadaan pepejal adalah seperti ketulenan juzuk oksida, penisbahan yang betul, dan kehomogenan dalam campuran serbuk serta kawalan atmosfera dan suhu bakaran yang optimum semasa pensinteran (Snelling, 1988).



Faktor lain yang turut memainkan peranan penting ialah kos pemrosesan. Langkah inovatif dalam sesuatu penyelidikan boleh menghasilkan suatu produk elektroseramik yang hebat tetapi mungkin tidak ekonomik sekiranya dihasilkan di dalam industri. Penyelidikan untuk mempertingkatkan sifat-sifat elektroseramik yang melibatkan kos yang tinggi mestilah disertai dengan penghasilan produk tersebut secara besar-besaran di dalam industri. Oleh itu, kaedah tindak balas pepejal merupakan suatu kaedah yang efisien untuk tujuan ini.

Kaedah ini menggunakan kempa bebola secara basah ataupun kering dengan julat masa dari 1-10 jam. Kemudian, serbuk serbuk dikalsinkan pada julat suhu 800 - 1200°C. Untuk memastikan tindakbalas sempurna, campuran boleh dikalsinkan beberapa kali dan dihancurkan semula dengan pengisaran yang sederhana kepada produk. Selepas dikeringkan, sampel-sampel boleh ditekan di dalam dai dan seterusnya disinter pada julat suhu kira-kira 1200 - 1400°C selama 2-3 jam.

Kebiasaannya hasilan yang dikehendaki adalah homogen sepenuhnya dengan saiz partikel kecil ( $<1 \mu\text{m}$ ). Tindakbalas keadaan pepejal berlaku secara resapan pada kadar yang agak rendah. Jadi jarak resapan kecil atau suhu pengkalsinan tinggi diperlukan untuk menyempurnakan tindakbalas. Walau bagaimanapun, suhu pengkalsinan yang tinggi menyebabkan serbuk berbutir kasar menghadapi sifat-sifat pensinteran yang tidak sesuai. Masalah ini boleh diselesaikan dengan melakukan tatacara proses pencampuran dengan kaedah yang betul (kering atau basah menggunakan air, alkohol dan lain-lain). Masa pencampuran perlu dihadkan kerana masa yang panjang boleh meningkatkan kepekatan bendasing akibat tindakan lelasan mekanik peralatan pengempa.

Kaedah tindakbalas pepejal memerlukan pengawalan beberapa parameter penting kerana mutu hasilan, kehadiran fasa tambahan, morfologi butiran dan sifat-sifat fizikal suatu jasad seramik bergantung kepada:

- Ketulenan kimia
- Bentuk partikel serbuk
- Taburan saiz partikel bahan mentah yang digunakan

### **2.11.1 Bahan Mentah**

Dalam proses konvensional, sifat utama bagi bahan mentah adalah analisis kimia, bentuk dan taburan saiz bagi partikel dan kos. Jujuk minor atau bendasing akan memberikan kesan yang besar kepada sifat-sifat pada hasil akhir (Snelling, 1988). Maka adalah penting untuk menganalisa bahan mentah untuk mengetahui ketulenan, saiz partikel dan morfologinya. Taburan saiz bagi serbuk memberikan kesan yang ketara dari segi pencampuran, kebolehtekanan, pengecutan dan tindakbalas semasa pensinteran (Snelling, 1988).

### **2.12 Pencampuran dan pengisaran**

Biasanya, serbuk seramik kering diterima dalam bentuk aglomerat daripada pembekal. Teknik pengisaran basah lebih digemari kerana pengisaran kering mempunyai had dalam penghasilan partikel aglomerat yang lebih halus daripada beberapa mikrometer (Malghan, 1991).

Kominusi adalah penting dalam penyediaan serbuk secara kaedah konvensional kerana ia mempunyai beberapa tujuan iaitu deaglomerat dengan memecahkan partikel