

Kesan Penggantian Litium ke atas Struktur, Sifat Fizikal dan Sifat Elektrik terhadap Seramik BCZT

(The Effect of Lithium Substitution on the Structure, Physical, and Electrical Properties of BCZT Ceramic)

HAZIQA FADHLINA¹, A. ATIQA^{1*}, ZALITA ZAINUDDIN², NUR SHAKILA OTHMAN², SOLEHAH ALI² & NOR AMALINA²

¹*Institute of Microengineering and Nanoelectronics, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600 UKM Bangi, Selangor, Malaysia*

²*School of Applied Physics, Faculty of Science and Technology, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600 UKM Bangi, Selangor, Malaysia*

Diserahkan: 30 Julai 2023/Diterima: 24 Januari 2024

ABSTRACT

The invention of novel lead-free piezoelectric materials with ABO₃ perovskite structure, based on barium calcium zirconate titanate (BCZT) for application in various device especially in sensor application. In this work, BCZT with lithium substitution at the calcium site with composition Ba_{0.85}Ca_{0.15-x}Li_{2x}Zr_{0.1}Ti_{0.9}O₃ (x = 0.00, 0.03, 0.06, 0.09 and 0.12) were synthesized by using the conventional, solid state reaction method. The influence of different Li content on the structure, microstructure, density, and electrical properties were investigated. The results show that substitution led to the improvement of the physical and electrical properties of the piezoelectric ceramic materials. The physical properties show the largest grain size and the highest value of density, ρ which is 4.158 g/cm³ for x = 0.06. This physical properties led to the highest value of piezoelectric coefficient, d_{33} , remnant polarisation, P_r and saturated polarization, P_s which are 304.6 pC/N, 3.27 μ C/cm², and 5.54 μ C/cm², respectively, while the highest dielectric constant, ϵ_r was 3994 when x = 0.12.

Keywords: BCZT materials; ceramic materials; d_{33} ; lead-free piezoelectric material; lithium substitution; piezoelectric coefficient

ABSTRAK

Inovasi bahan piezoelektrik bebas plumbum yang berstruktur perovskit ABO₃, berasaskan barium kalsium zirkonat titanat (BCZT) bagi mencipta peranti yang dapat digunakan secara meluas terutamanya dalam aplikasi sensor. Dalam kajian ini, BCZT dengan penggantian litium pada tapak kalsium dengan komposisi bahan Ba_{0.85}Ca_{0.15-x}Li_{2x}Zr_{0.1}Ti_{0.9}O₃ (x = 0.00, 0.03, 0.06, 0.09 dan 0.12) telah disintesis menggunakan kaedah konvensional, tindak balas keadaan pepejal. Kesan kandungan Li yang berbeza terhadap struktur, mikrostruktur, ketumpatan dan sifat elektik telah dikaji. Hasi kajian menunjukkan penggantian Li membawa kepada peningkatan sifat fizikal dan elektrik bahan seramik piezoelektrik. Sifat fizikal bahan menunjukkan saiz butiran yang paling besar dan nilai ketumpatan, ρ yang paling tinggi iaitu 4.158 g/cm³ apabila x = 0.06. Sifat fizikal ini menyumbang kepada nilai pemalar piezoelektrik, d_{33} , pengutuban baki, P_r dan pengutuban tepu, P_s yang tertinggi dengan nilai masing-masing ialah 304.6 pC/N, 3.27 μ C/cm² dan 5.54 μ C/cm² manakala bagi pemalar dielektrik, ϵ_r nilai paling tinggi diperoleh apabila x = 0.12 iaitu 3994.

Kata kunci: Bahan BCZT; bahan piezoelektrik bebas plumbum; bahan seramik; d_{33} ; pemalar piezoelektrik; penggantian litium

PENGENALAN

Kesan piezoelektrik berlaku apabila tekanan mekanik dikenakan ke atas hablur tertentu bagi menghasilkan

cas elektrik dan juga sebaliknya (Izzuddin et al. 2016; Mohammad Hafizuddin et al. 2010; Nor Huwaida et al. 2019; Sarizal et al. 2017). Bahan piezoelektrik digunakan

secara meluas dalam pelbagai aplikasi seperti dalam sistem komunikasi, peralatan perubatan seperti alat pemantauan kesihatan serta peranti elektronik seperti optoelektronik, mikrofon, resonator, transduser, penggerak, buzer dan alat penuaian tenaga (Jiang et al. 2019; Perumal, Athikesavan & Nair 2018; Yan et al. 2019).

Pada tahun 1950-an, plumbum zirkonat titanat (PZT) merupakan bahan yang paling popular dan telah mendominasi pasaran bagi bahan seramik piezoelektrik kerana sifat piezoelektriknya yang baik iaitu mempunyai pemalar piezoelektrik yang tinggi (d_{33} , $d_{31} \sim 370$ pC/N) dan pemalar gandingan elektromekanik yang baik (k_p , $k_t \sim 60\%$). Di samping itu, bahan ini juga menunjukkan sifat feroelektrik dan juga dielektrik yang baik ($T_c \sim 159$ °C - 330 °C) (Kaleva et al. 2020; Li et al. 2020; Ma et al. 2020). Walau bagaimanapun, PZT menghasilkan lebih daripada 60% plumbum beracun ketika proses penyediaan sampel iaitu semasa pengkalsinan dan pensinteran. Pembebasan kandungan plumbum toksik yang sangat tinggi ini membahayakan kesihatan manusia serta memberi kesan terhadap alam sekitar dan menyebabkan perubahan iklim (Benyoussef et al. 2018; Cheng et al. 2020; He et al. 2020; Kumar, Kurchania & Kumar 2019). Oleh itu, kajian terhadap bahan bebas plumbum telah banyak mendapat perhatian bagi menggantikan PZT.

Banyak perhatian telah diberikan kepada bahan seramik piezoelektrik bebas plumbum yang berstruktur sama dengan PZT iaitu perovskit ABO_3 , seperti barium titanat, $BaTiO_3$ (BT), bismut ferit, $BiFeO_3$ (BFO), kalium natrium niobat, $(K,Na)NbO_3$ (KNN) dan natrium bismut titanat, $Na_{0.5}Bi_{0.5}TiO_3$ (NBT) (Aziguli, Zhang & Yu 2020; Nor Huwaida et al. 2019). KNN mempunyai sifat feroelektrik (pengutuban baki, $P_r \sim 20$ $\mu\text{C}/\text{cm}^2$) dan piezoelektrik yang baik (Izzuddin et al. 2016) dengan nilai pemalar piezoelektrik yang tinggi, $d_{33} \sim 80$ -160 pC/N serta nilai pemalar gandingan yang tinggi, $k_t \sim 48\%$ serta menunjukkan sifat dielektrik yang baik dengan suhu Curie, T_c yang tinggi iaitu $T_c \sim 420$ °C (Deng et al. 2020; Kornphom et al. 2017; Zhai et al. 2020). NBT pula menunjukkan sifat feroelektrik yang baik seperti pengutuban baki yang tinggi ($P_r \sim 38$ - 47 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$) dan mempunyai sifat dielektrik yang baik dengan nilai suhu Curie, $T_c \sim 320$ °C serta sifat elektromekanik yang baik ($k_t \sim 0.25$ -0.40) (Gao et al. 2020; Halim, Abd. Majid & Velayutham 2019; Mawani et al. 2020; Politova et al. 2020). Walau bagaimanapun, nilai medan paksaan yang besar ($E_c \sim 63$ - 73 kV/cm), pemalar piezoelektrik yang rendah ($d_{33} \sim 57$ - 90 pC/N), kekonduksian yang tinggi serta berlakunya kebocoran arus merupakan

kelemahan bagi bahan ini (Bajpai & Tamrakar 2017; Jain Ruth, Venkidu & Sundarakannan 2018; Kornphom, Laowanidwatana & Bongkarn 2017; Mawani et al. 2020; Reshetnikova, Lisnevskaya & Terekhin 2020; Verma et al. 2018).

BCZT ialah bahan berasaskan BT dengan penggantian kation kalsium (Ca^{2+}) pada tapak A dan kation zirkonium (Zr^{4+}) ion pada tapak B (Bansal et al. 2021). Bahan ini menunjukkan sifat piezoelektrik yang baik dengan nilai pemalar piezoelektrik yang tinggi setara dengan PZT iaitu $d_{33} \sim 300$ - 650 pC/N kerana pembentukan fasa peralihan polimorfik (PPT) iaitu suhu fasa peralihan ortorombik-tetragon (T_{o-T}) beralih ke suhu bilik serta mempunyai nilai pemalar gandingan elektromekanik yang tinggi ($k_p \sim 56\%$ - 60%) (Chen et al. 2019; Kornphom et al. 2017; Tan, Yao & Ma 2012; Wu et al. 2018). Bahan ini mempunyai pemalar dielektrik yang tinggi serta menunjukkan sifat feroelektrik yang baik dengan pengutuban baki yang besar ($P_r \sim 8.02$ - 12.20 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$) dan medan paksaan yang rendah ($E_c = 3.80$ - 4.50 kV/cm). Walau bagaimanapun, kelemahan bahan ini ialah suhu Curienya, T_c yang rendah ($T_c \sim 83$ -100 °C) (Awan et al. 2018; Orlik et al. 2020; Xu et al. 2021, 2020) dan perlu ditambah baik. Pembentukan hablur yang tidak sempurna menyebabkan bahan yang berkualiti tinggi sukar untuk disediakan (Xu et al. 2021). Oleh itu, para pengkaji melakukan pendopan bahan atau penggantian unsur yang bersesuaian ke dalam bahan ini bagi meningkatkan lagi pencapaiannya (Fadhilina, Afdzaluddin & Zainuddin 2022), antaranya ialah Er^{3+} (Xu et al. 2021, 2020), $CoFe_2O_4$ (Negi et al. 2018; Sharma et al. 2021a, 2021b), Cu^{2+} dan Y^{3+} (Wu et al. 2018), nanofiber (Wu et al. 2019), $Co^{3+/Co^{2+}}$ (Shi, Hashimoto & Sekino 2021), MnO_2 (Mekonnen & Tadesse 2021), Sm^{3+} (Wang et al. 2020), Yb^{3+} dan Tm^{3+} (Tian et al. 2020) dan Bismut Erbium Oksida ($BiErO_3$) (Awan et al. 2018), unsur yang digunakan bagi kaedah pendopan dan Bi^{3+} dan Mn^{4+} (Wang, Yue & Liu 2021), unsur yang digunakan dalam kaedah penggantian.

Perbezaan antara pendopan dan penggantian ialah penggantian berlaku apabila unsur asal di tapak A atau/dan B digantikan dengan unsur yang lain dalam stoikiometri kimia dan elektron yang sama manakala pendopan pula ialah dengan memasukkan unsur lain tanpa mengubah stoikiometri kimia asal bahan tersebut. Kedua-dua kaedah akan menyebabkan kecacatan titik seperti penggantian dan/atau kecacatan celahan. Suhu fasa peralihan ortorombik-tetragon (T_{o-T}) didapati berganjak ke suhu yang lebih rendah di samping T_c juga dapat ditingkatkan dengan kaedah pendopan (Zhao et al. 2020). Pendopan Li membantu dalam peningkatan

terikan dalam bahan BCZT (Tan, Yao & Ma 2013) dan ia juga digunakan sebagai pembantu pensinteran iaitu suhu pensinteran dan suhu pengkalsinan dapat diturunkan dengan penambahan Li serta pembentukan hablur dapat ditingkatkan sekalipun menggunakan suhu yang rendah bagi bahan berasaskan BT (Hwang et al. 2012; Ul et al. 2019). Walau bagaimanapun, pembentukan fasa kedua boleh berlaku dalam sesetengah keadaan apabila menggunakan alat bantuan pensinteran ini dan boleh membawa kepada penurunan sifat piezoelektrik bahan (Gio & Phong 2015). Kesan penggantian unsur Li ke dalam bahan berasaskan KNN dapat meningkatkan T_c daripada 420 °C kepada 471 °C serta peningkatan pemalar dielektrik dan pemalar piezoelektrik dengan nilai masing-masing ialah $\epsilon = 736$ dan $d_{33} = 188$ pC/N (Wongsanmai, Ananta & Yimnirun 2012). Wang et al. (2020) melaporkan bahawa penggantian Li pada tapak A bagi bahan berasaskan NBT $[B_{10.5}(Na_{0.4-x}K_{0.1}Li_x)]_{0.96}Sr_{0.04}Ti_{0.975}Ta_{0.025}O_3$ telah menunjukkan peningkatan saiz butiran sehingga $x = 0.050$ kerana pembentukan fasa cecair yang berlaku ketika proses persinteran. Takat lebur Li yang rendah membantu pertumbuhan butiran. Oleh itu, kajian ini telah memilih unsur Li untuk digantikan pada tapak A bahan $Ba_{0.85}Ca_{0.15}Zr_{0.1}Ti_{0.9}O_3$ dan mengkaji struktur, sifat fizikal dan sifat elektrik bahan seramik ini. Pelbagai kaedah boleh digunakan untuk menyediakan bahan seramik piezoelektrik ini antaranya ialah tindak balas keadaan pepejal, teknik kimia basah dan hidroterma (Mohammad Hafizuddin et al. 2010). Dalam kajian ini, teknik tindak balas keadaan pepejal digunakan.

BAHAN DAN KAEDAH

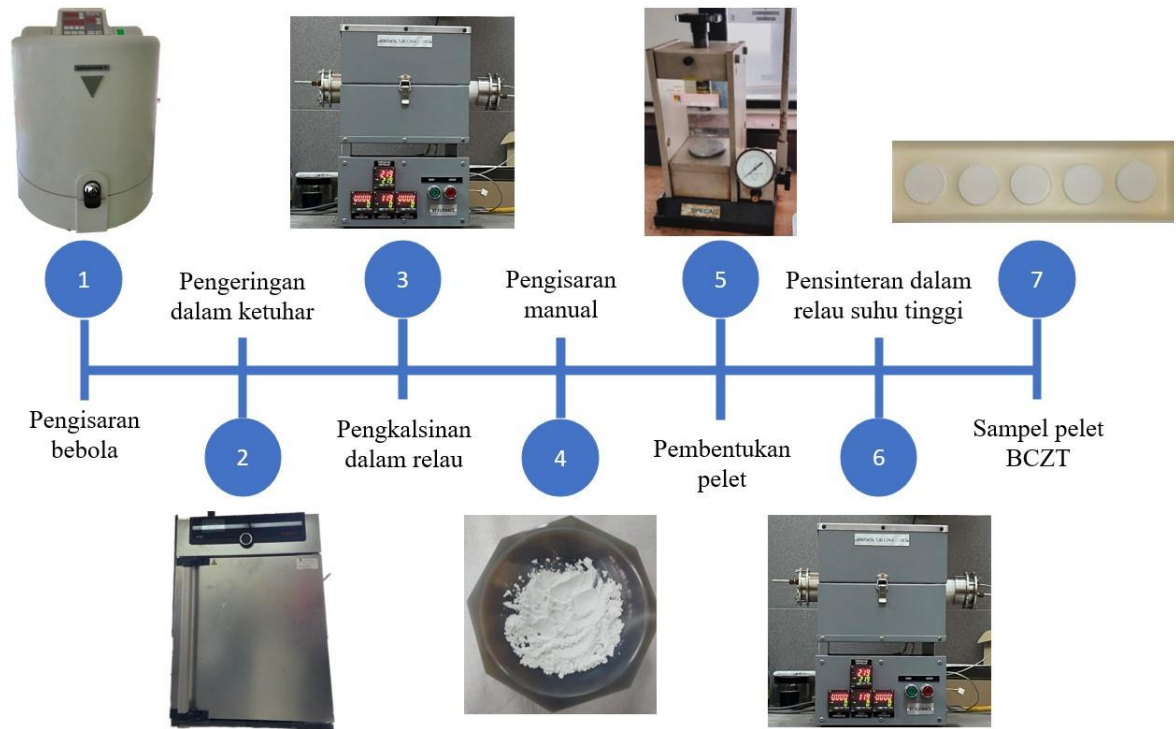
Bahan pelopor $BaCO_3$, $CaCO_3$, TiO_2 , ZrO_2 dan Li_2CO_3 (daripada Nacalai Tesque, Inc., Japan, $\geq 98\%$) telah ditimbang berdasarkan campuran stoikiometri. $Ba_{0.85}Ca_{0.15-x}Li_{2x}Zr_{0.1}Ti_{0.9}O_3$ (BCLZT) dengan $x = 0.00, 0.03, 0.06, 0.09$ dan 0.12 telah disediakan menggunakan kaedah konvensional tindak balas keadaan pepejal. Serbuk yang ditimbang dicampurkan bersama etanol menggunakan pengisar bebola datar Fritsch Pulverisette dengan kadar 250 rpm selama 24 jam dan kemudian dikeringkan pada suhu 150 °C selama 2 jam dalam ketuhar Memmert UF-55. Selepas pengeringan, pengkalsinan dilakukan pada suhu 1000 °C selama 4 jam. Seterusnya serbuk dikisar secara manual menggunakan mortar selama 1 jam serta dibentuk menjadi pelet dan akhir sekali disinter pada suhu 1350 °C selama 2 jam dalam relau bersuhu tinggi model Vistech.

Struktur hablur ditentukan menggunakan meter pembelauan sinar-X (XRD) Bruker D8 Advance dengan

menggunakan CuK α sebagai sumber sinaran. Morfologi permukaan dan mikrostruktur sampel dikaji dengan menggunakan mikroskop elektron imbasan pancaran medan (FESEM, Zeiss Supra 55VP). Ketumpatan sampel ditentukan menggunakan konsep Archimedes dan minyak silika digunakan sebagai medium pengukuran. Bagi mengkaji sifat elektrik, sampel digilap dan dicat dengan lapisan cat perak yang bertindak sebagai elektrod pada kedua-dua belah permukaan rata pelet. Sebelum mengukur pemalar piezoelektrik, pengutuban sampel dilakukan dengan membekalkan voltan 2.5 kV/mm selama 10 minit. Sampel kemudiannya dibiarkan selama 24 jam sebelum pengukuran pemalar piezoelektrik, d_{33} dilakukan dengan menggunakan piezometer model YE2780A. Seterusnya, sifat dielektrik dikaji menggunakan parameter yang diperoleh melalui meter LCR jenis GW-Instek 819 dan perisian TCR-Acquisition dan sifat feroelektrik pula dianalisis menggunakan kaedah Sawyer Tower. Rajah 1 menunjukkan proses penyediaan sampel menggunakan kaedah tindak balas keadaan pepejal bagi penghasilan bahan seramik BCZT.

KEPUTUSAN DAN PERBINCANGAN

Corak pembelauan sinar-X bagi $Ba_{0.85}Ca_{0.15-x}Li_{2x}Zr_{0.1}Ti_{0.9}O_3$ ($x = 0.00, 0.03, 0.06, 0.09$ dan 0.12) menunjukkan semua sampel mempunyai struktur perovskit rombohedral setelah dipadankan dengan data ICDD (00-063-0612) bagi BCZT (Rajah 2). Semua sampel mempunyai sefasa, tanpa kehadiran unsur lain. Puncak keamatan dilihat beralih ke sudut yang lebih rendah apabila jumlah penggantian Li meningkat tetapi struktur hablur masih kekal. Ini menunjukkan bahawa berlakunya peningkatan pemalar kekisi iaitu berlakunya pembesaran kekisi hablur. Kim et al. (2018) melaporkan bahawa jarak dan pemalar kekisi meningkat apabila puncak keamatan bergerak ke arah kiri. Pergerakan puncak ke sudut yang lebih rendah boleh dibincangkan melalui faktor saiz ion, daya pengikat antara kation dan oksigen serta pembesaran saiz butiran. Bagi mengekalkan keelektroneutralan seramik, kation dwivalen Ca^{2+} perlu diganti dengan dua kation isovalen Li^+ . Satu daripada Li^+ akan menduduki tapak Ca^{2+} di dalam kekisi manakala satu Li^+ lagi akan berada di celahan kekisi. Kecacatan celahan ini akan menyebabkan berlakunya peningkatan pemalar kekisi. Seterusnya, ion valensi yang kecil mempunyai daya pengikat yang lemah dengan O^{2-} . Oleh itu daya pengikat yang lemah antara Li^+ dan O^{2-} antara penyumbang kepada pembesaran kekisi. Akhir sekali, kesan pembesaran saiz butiran juga membawa kepada peningkatan pemalar kekisi (Zhang, Sun & Chen 2016).



RAJAH 1. Proses penyediaan sampel pelet $\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15-x}\text{Li}_{2x}\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_3$ ($x = 0.00 - 0.12$)

Mikrograf FESEM bagi $\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15-x}\text{Li}_{2x}\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_3$ ($x = 0.00, 0.03, 0.06, 0.09$ dan 0.12) ditunjukkan dalam Rajah 3. Melalui rajah yang ditunjukkan, saiz butiran sampel didapati meningkat dengan peningkatan Li sehingga $x = 0.06$. Walau bagaimanapun, saiz butiran kembali berkurang dan keliangan meningkat apabila $x \geq 0.09$. Li bertindak sebagai alat bantuan pensinteran iaitu terbentuknya fasa cecair semasa pensinteran bagi membolehkan pertumbuhan butiran yang menyebabkan ketumpatan sampel meningkat (Chen et al. 2015; Kim et al. 2018; Wongsanmai, Ananta & Yimmirun 2012). Walau bagaimanapun, fasa cecair yang berlebihan boleh mengakibatkan pertumbuhan saiz butiran dan sempadan butiran menjadi terhenti seperti yang dilaporkan oleh Sun et al. (2019).

Seterusnya, Rajah 4 menunjukkan ketumpatan semakin meningkat dengan peningkatan Li sehingga $x = 0.06$ dan kemudian berkurang apabila $x \geq 0.09$. Nilai ketumpatan yang paling tinggi ialah $\rho = 4.158 \text{ g/cm}^3$ apabila $x = 0.06$ dan sampel tanpa sebarang penggantian Li ($x = 0.00$) mempunyai ketumpatan paling rendah iaitu $\rho = 2.872 \text{ g/cm}^3$. Nilai ketumpatan dipengaruhi

oleh saiz butiran dan keliangan bahan iaitu apabila saiz butiran meningkat dan keliangan bahan berkurang, nilai ketumpatan juga meningkat dan sebaliknya.

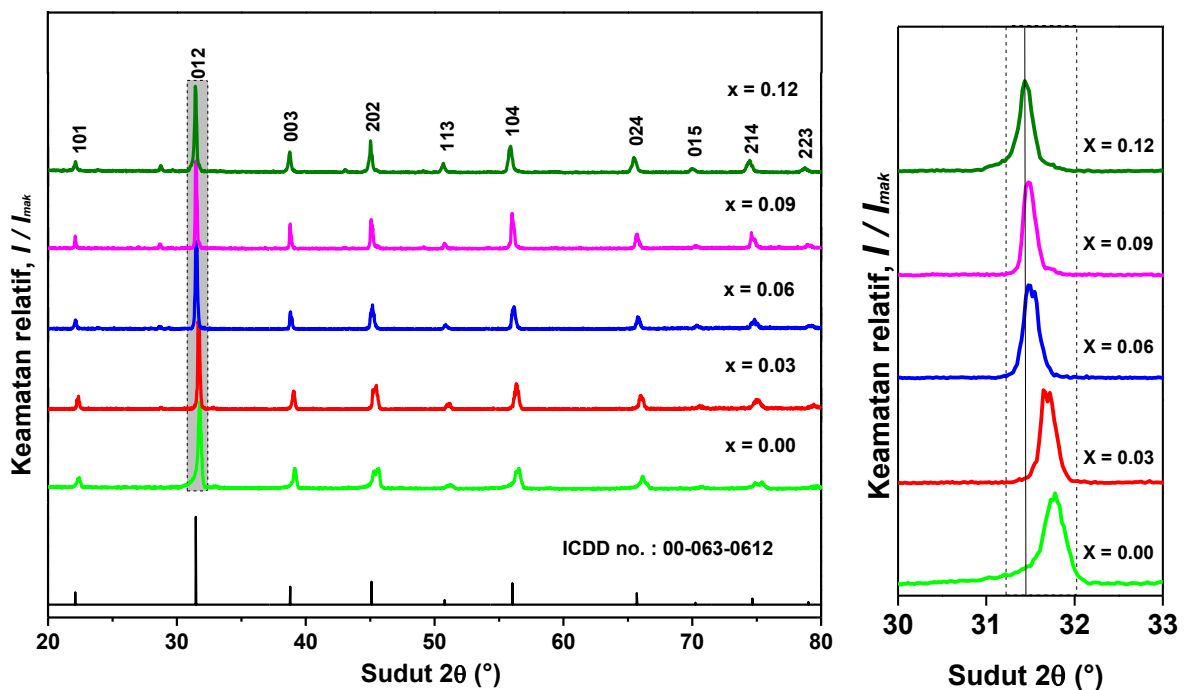
Rajah 4 menunjukkan sifat elektrik bahan iaitu pemalar piezoelektrik, d_{33} bagi kesemua sampel. Pemalar piezoelektrik ialah cas elektrik yang terjana dalam arah paksi-x (3) apabila tekanan mekanik dikenakan pada arah yang sama. Corak perubahan d_{33} dengan kandungan Li adalah hampir sama dengan corak perubahan yang ditunjukkan oleh ketumpatan. Ini menunjukkan bahawa sampel yang berketumpatan tinggi menyumbang kepada penghasilan d_{33} yang lebih baik. Sampel dengan $x = 0.06$ menunjukkan nilai pemalar piezoelektrik yang paling tinggi ($d_{33} = 304.6 \text{ pC/N}$) sementara bagi sampel $x = 0.00$, nilai pemalar piezoelektrik yang paling rendah diperoleh iaitu 122 pC/N . Ini juga dapat dilihat dalam bahan seramik piezoelektrik yang lain iaitu penggantian litium dalam bahan berasaskan NBT juga memberi kesan positif terhadap pemalar piezoelektrik bahan seperti $\text{Bi}_{0.5}(\text{Na}_{0.65}\text{K}_{0.25}\text{Li}_{0.10})_{0.5}\text{TiO}_3$ dan $0.5(\text{Na}_{0.72}\text{K}_{0.22}\text{Li}_{0.06})_{0.5}\text{TiO}_3$ dengan nilai pemalar piezoelektrik, d_{33} masing-masing ialah 100 pC/N dan 252 pC/N (Ming, Wang & Zang

2008). Prestasi sifat piezoelektrik sememangnya dipengaruhi oleh saiz butiran serta ketumpatan bahan (Sun et al. 2019).

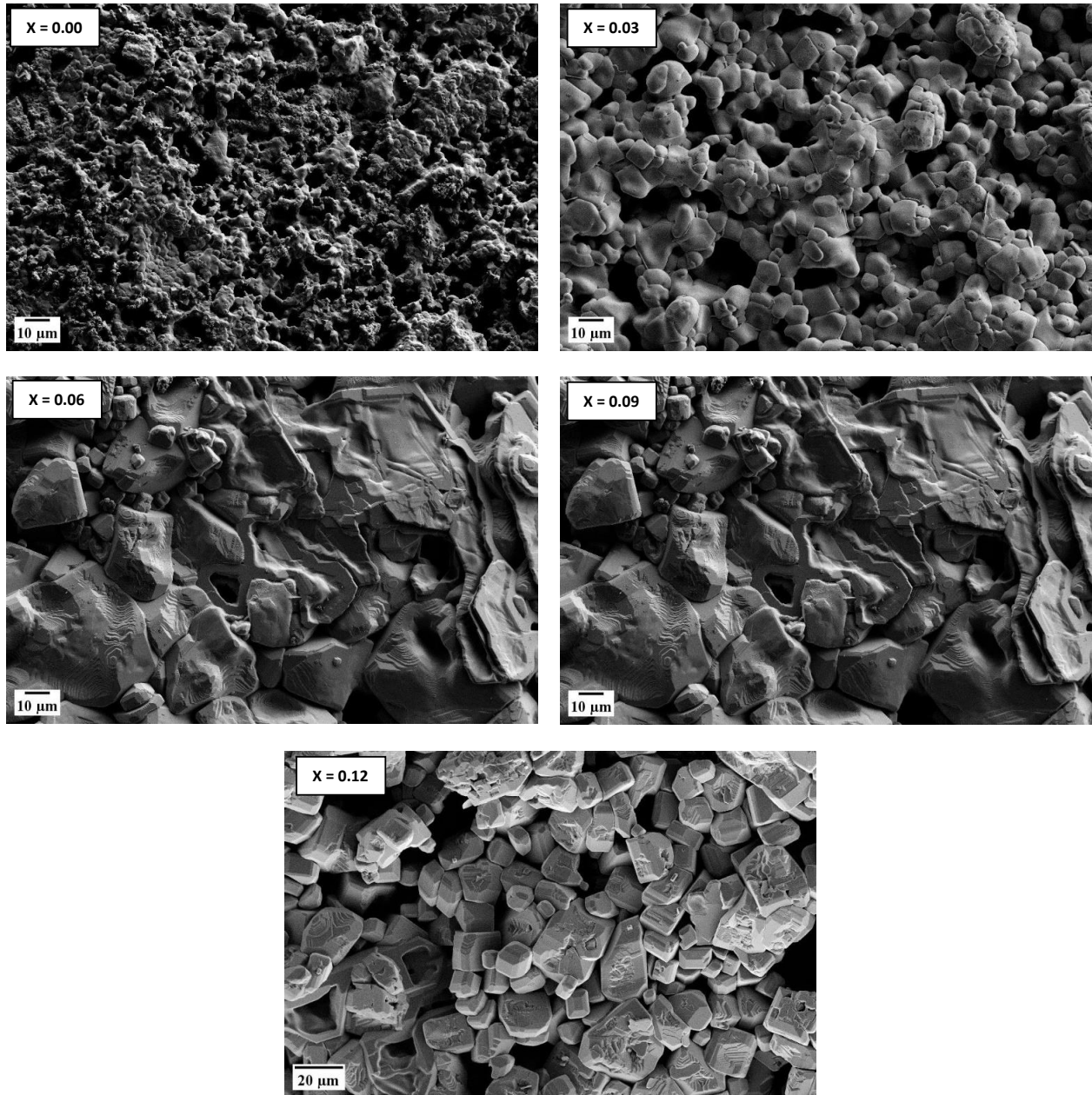
Graf pemalar dielektrik melawan suhu dengan komposisi Li yang berbeza ditunjukkan dalam Rajah 5(a). Puncak bagi graf menunjukkan bahawa suhu berlakunya fasa peralihan tetragonal kepada kubus atau dikenali sebagai suhu Curie, T_c . Nilai T_c didapati berkurang dengan penambahan penggantian Li ke dalam bahan BCZT seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 5(b). Walau bagaimanapun, nilai pemalar dielektrik meningkat dengan jumlah penggantian litium yang semakin meningkat dengan nilai pemalar dielektrik yang paling tinggi ialah apabila $x = 0.12$ iaitu 3994.

Sifat feroelektrik boleh dilihat melalui gelung histerisis pengutuban, P melawan medan paksaan, E seperti yang ditunjukkan dalam Rajah 6. Nilai yang diperoleh bagi pengutuban baki, P_r , pengutuban tepu,

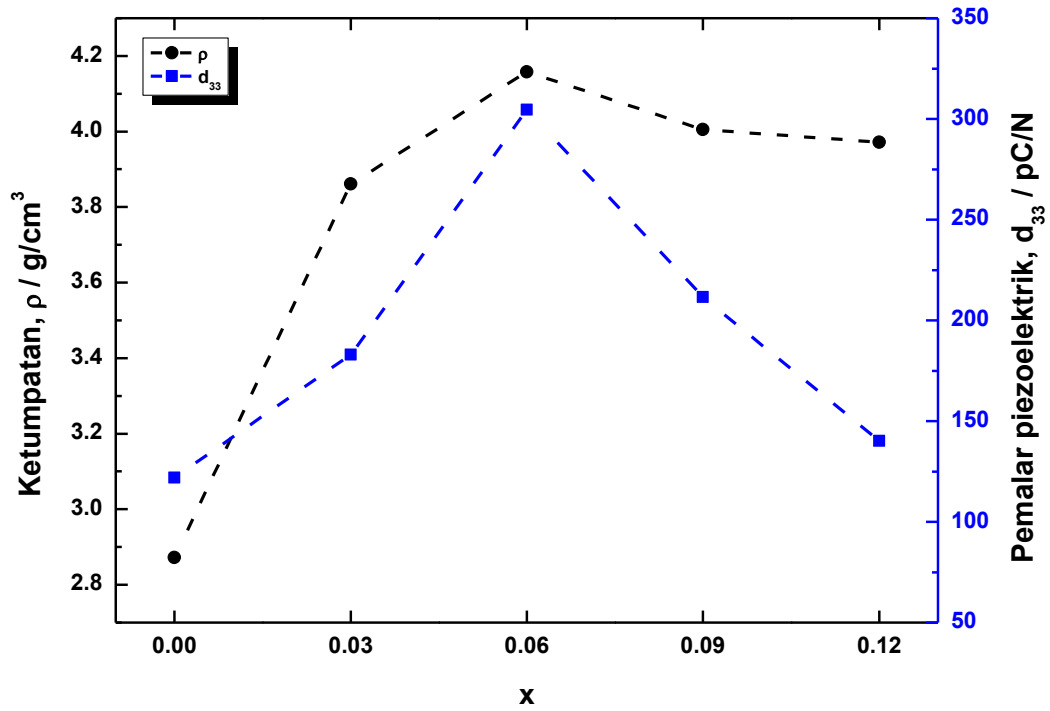
P_s dan medan paksaan, E_c adalah seperti dalam Jadual 1. Kesemua sampel dikutubkan dengan medan elektrik 25 kV/cm. Kedua-dua P_r dan P_s meningkat dengan peningkatan Li sehingga $x = 0.06$ dan berkurang jika x ditingkatkan lagi. Peningkatan pengutuban baki menunjukkan kebanyakan momen dwikutub tidak terarah dan kekal sejajar walaupun apabila $E = 0$. Pengutuban tepu berlaku apabila orientasi dwikutub mencapai nilai maksimum. Walau bagaimanapun, tiada corak tertentu bagi perubahan E_c . E_c yang kecil membolehkan orientasi momen dwikutub terarah dengan lebih mudah berbanding dengan nilai yang lebih besar (Chen et al. 2015). Nor Huwaida et al. (2019) melaporkan dalam kajiannya bahawa nilai P_r dan P_s yang tinggi serta E_c yang kecil menunjukkan sesuatu bahan itu mempunyai sifat piezoelektrik yang baik. Ini sejajar dengan keputusan yang diperoleh bagi BCZT dengan $x = 0.06$.



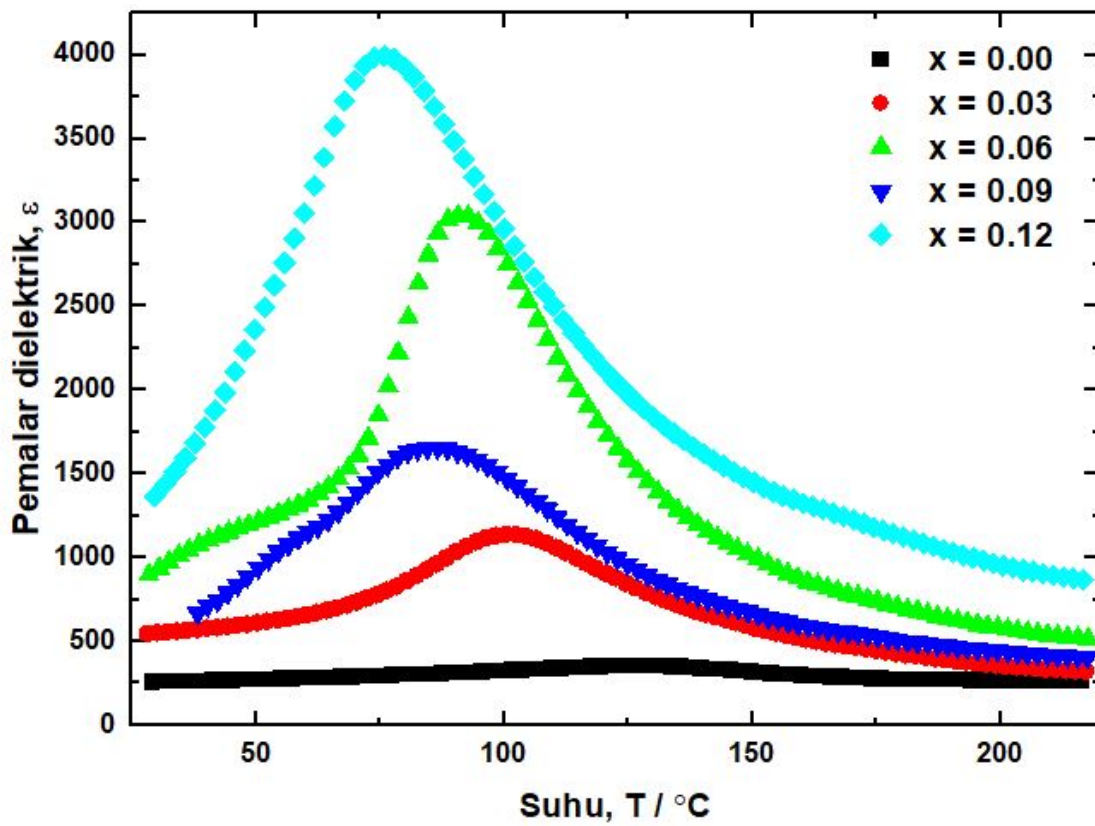
RAJAH 2. Difraktogram XRD bagi $\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15-x}\text{Li}_{2x}\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_3$ ($x = 0.00 - 0.12$)



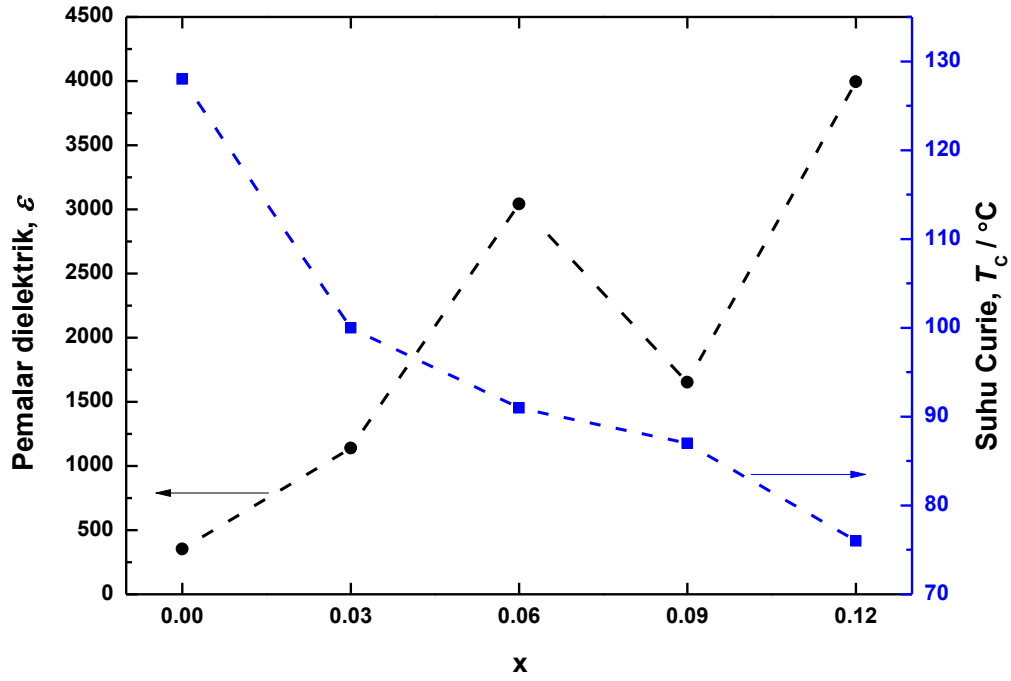
RAJAH 3. Mikrograf FESEM bagi $\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15-x}\text{Li}_{2x}\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_3$ ($x = 0.00 - 0.12$)



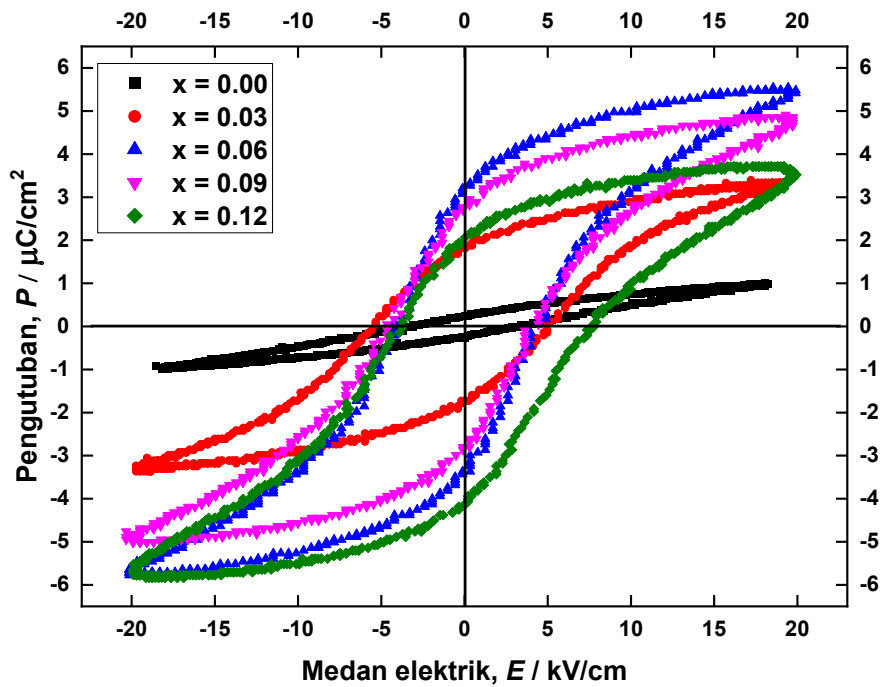
RAJAH 4. Ketumpatan, ρ dan pemalar piezoelektrik, d_{33} bagi $\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15-x}\text{Li}_{2x}\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_3$ ($x = 0.00 - 0.12$)



RAJAH 5(a). Graf pemalar dielektrik melawan suhu bagi $\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15-x}\text{Li}_{2x}\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_3$ ($x = 0.00 - 0.12$)



RAJAH 5(b). Graf pemalar dielektrik dan suhu curie, T_c bagi $\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15-x}\text{Li}_{2x}\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_3$ ($x = 0.00 - 0.12$)



RAJAH 6. Gelung histerisis bagi $\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15-x}\text{Li}_{2x}\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_3$ ($x = 0.00 - 0.12$)

JADUAL 1. Medan paksaan, E_c , pengutuban baki, P_r dan pengutuban tepu, P_s $Ba_{0.85}Ca_{0.15-x}Li_{2x}Zr_{0.1}Ti_{0.9}O_3$ ($x = 0.00 - 0.12$)

x	Pengutuban baki, P_r ($\mu C/cm^2$)	Pengutuban tepu, P_s ($\mu C/cm^2$)	Medan paksaan, E_c (kV/cm)
0.00	0.24	1.01	3.16
0.03	1.88	3.33	5.26
0.06	3.27	5.54	4.32
0.09	2.70	4.91	4.34
0.12	2.00	3.71	5.64

KESIMPULAN

Dalam kajian ini kesan penggantian Li^+ pada tapak A iaitu Ca^{2+} dalam bahan $Ba_{0.85}Ca_{0.15-x}Li_{2x}Zr_{0.1}Ti_{0.9}O_3$ ($x = 0.00, 0.03, 0.06, 0.09$ dan 0.12) terhadap struktur, mikrostruktur, sifat fizikal dan sifat elektrik bahan yang disintesis menggunakan kaedah tindak balas keadaan pepejal telah dikaji. Struktur bahan telah dikenal pasti menggunakan XRD iaitu struktur perovskit rombohedral. BCZT dengan $x = 0.06$ mempunyai saiz butiran yang paling besar dan ketumpatan, ρ yang paling tinggi iaitu $\rho = 4.158 \text{ g/cm}^3$. Sifat fizikal sampel ini menyumbang kepada nilai pemalar piezoelektrik dan pemalar pengutuban yang paling tinggi iaitu $d_{33} = 304.6 \text{ pC/N}$, $P_r = 3.27 \mu\text{C/cm}^2$ dan $P_s = 5.54 \mu\text{C/cm}^2$. Pemalar dielektrik yang paling tinggi diperoleh bagi $x = 0.12$. Pemalar piezoelektrik yang tinggi membolehkan bahan ini digunakan dalam aplikasi sensor pada suhu rendah kerana T_c yang agak rendah.

PENGHARGAAN

Penulis ingin merakamkan penghargaan dan ucapan ribuan terima kasih kepada Pusat Pengajian Fizik Gunaan, Fakulti Sains dan Teknologi, Universiti Kebangsaan Malaysia dan makmal I-CRIM untuk kemudahan peralatan dan pencirian sepanjang penyelidikan.

RUJUKAN

- Awan, M.Q., Ahmad, J., Sun, Q., Hu, W., Berlie, A. & Liu, Y. 2018. Structure, dielectric and ferroelectric properties of lead-free $(Ba,Ca)(Ti,Zr)O_{3-x}BiErO_3$ piezoelectric ceramics. *Ceramics International* 44(6): 6872-6877. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.01.112>
- Aziguli, H., Zhang, T. & Yu, P. 2020. Effect of additive glycerol on piezoelectric properties of modified sol-gel $(Ba_{0.85}Ca_{0.15})(Ti_{0.9}Zr_{0.1})O_3$ ceramics. *Materials Science Forum* 993 MSF: 791-798. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/MSF.993.791>

- Bajpai, P.K. & Tamrakar, P. 2017. Structural and dielectric behavior of doped bismuth sodium titanate: Lead free piezoelectric materials. *AIP Conference Proceedings* 1837(1): 040062. <https://doi.org/10.1063/1.4982146>
- Bansal, P., Kumar, M., Syal, R., Singh, A.K. & Kumar, S. 2021. Magnetoelectric coupling enhancement in lead-free BCTZ–XNZFO composites. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 32(13): 17512-17523. <https://doi.org/10.1007/s10854-021-06284-9>
- Benyoussef, M., Zannen, M., Belhadi, J., Monoun, B., Dellis, J-L., El Marssi, M. & Lahmar, A. 2018. Dielectric, ferroelectric, and energy storage properties in dysprosium doped sodium bismuth titanate ceramics. *Ceramics International* 44(16): 19451-19460. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.07.182>
- Chen, X., Ruan, X., Zhao, K., He, X., Zeng, J., Li, Y., Zheng, L., Hong, C. & Li, G. 2015. Low sintering temperature and high piezoelectric properties of Li-doped $(Ba, Ca)(Ti, Zr)O_3$ lead-free ceramics. *Journal of Alloys and Compounds* 632: 103-109. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2015.01.088>
- Chen, X., Zeng, J., Kim, D., Zheng, L., Lou, Q., Hong, C. & Li, G. 2019. Understanding of role of Li in high-performance Pb-free Li-doped $(Ba_{0.85}Ca_{0.15})(Ti_{0.9}Zr_{0.1})O_3$ piezoceramics from theory and experiments. *Materials Chemistry and Physics* <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2019.04.011>
- Cheng, Y., Xing, J., Wu, C., Wang, T., Xie, L., Liu, Y., Xu, X., Wang, K., Xiao, D. & Zhu, J. 2020. Investigation of high piezoelectric properties of KNNSb-SrxBNZ ceramics. *Journal of Alloys and Compounds* 815: 152252. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2019.152252>
- Deng, Y., Wang, J., Zhang, C., Bai, C., Liu, D., Wu, F. & Yang, B. 2020. Structural and electric properties of MnO_2 -Doped KNN-LT lead-free piezoelectric ceramics. *Crystals* 10(8): 705. <https://doi.org/10.3390/cryst10080705>
- Fadhilina, H., Afdzaluddin, A. & Zainuddin, Z. 2022. A review on lithium doped lead-free piezoelectric materials. *Materials Today Communications* 33: 104835. <https://doi.org/10.1016/j.mtcomm.2022.104835>

- Gao, X., Dong, N., Xia, F., Guo, Q., Hao, H., Liu, H. & Zhang, S. 2020. Impact of phase structure on piezoelectric properties of textured lead-free ceramics. *Crystals* 10(5): 367. <https://doi.org/10.3390/cryst10050367>
- Gio, P.D. & Phong, N.D. 2015. Effects of LiF on the structure and electrical properties of $(\text{Na}_{0.52}\text{K}_{0.435}\text{Li}_{0.045})\text{Nb}_{0.87}\text{Sb}_{0.08}\text{Ta}_{0.05}\text{O}_3$ lead-free piezoelectric ceramics sintered at low temperatures. *Journal of Materials Science and Chemical Engineering* 3(11): 13-20. <http://dx.doi.org/10.4236/msce.2015.311003>
- Halim, N.A., Abd. Majid, W.H. & Velayutham, T.S. 2019. Ferroelectric, pyroelectric and piezoelectric properties of CeO₂-doped Na_{0.5}Bi_{0.5}TiO₃ ceramics. *SN Applied Sciences* 1: 582. <https://doi.org/10.1007/s42452-019-0593-2>
- He, X., Han, F., Liu, M., Yuan, Z., Jiang, X., Hu, C., Ren, S., Lei, X. & Liu, L. 2020. High-temperature dielectric and relaxation behavior of tantalum-doped sodium bismuth titanate-barium titanate ceramics. *Journal of Electronic Materials* 49(11): 6643-6655. <https://doi.org/10.1007/s11664-020-08441-y>
- Hwang, C-C., Chou, C-C., Wang, J-L., Hsieh, T-Y. & Tseng, J-T. 2012. The lithium doping effect on $(\text{Na}_{0.5}\text{K}_{0.5})\text{NbO}_3$ lead-free piezo-ceramics structure structure stability and ferroelectric characteristics. 217-219: 682-685. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/AMM.217-219.682>
- Izzuddin, I., Jumali, M.H.H., Zalita, Z., Huwaida, J.N. & Awang, R. 2016. Influence of crystal structural orientation on impedance and piezoelectric properties of KNN ceramic prepared using sol-gel method. *Sains Malaysiana* 45(8): 1281-1287.
- Jain Ruth, D.E., Venkidu, L. & Sundarakannan, B. 2018. Structure-property relation to enhance the piezoelectric free piezoelectric ceramics. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 29: 5433-5438. <https://doi.org/10.1007/s10854-017-8509-7>
- Jiang, M., Zhang, J., Rao, G., Li, D., Randall, C.A., Li, T., Peng, B., Li, L., Gu, Z., Liu, X. & Huang, H. 2019. Ultrahigh piezoelectric coefficient of a lead-free $\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3$ -based single crystal fabricated by a simple seed-free solid-state growth method. *Journal of Materials Chemistry C* 7: 14845-14854. <https://doi.org/10.1039/c9tc05143k>
- Kaleva, G.M., Politova, E.D., Mosunov, A.V. & Stefanovich, S.Y. 2020. Phase formation, structure, and dielectric properties of modified potassium sodium niobate ceramics. *Inorganic Materials* 56(10): 1072-1078. <https://doi.org/10.1134/S0020168520100076>
- Kim, J., Ji, J-H., Shin, D-J. & Koh, J-H. 2018. Improved Li and Sb doped lead-free $(\text{Na,K})\text{NbO}_3$ piezoelectric ceramics for energy harvesting applications. *Ceramics International* 44(18): 22219-22224. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.08.341>
- Kornphom, C., Laowanidwatana, A. & Bongkarn, T. 2017. Influence of sintering temperature on properties of BNKLLT-wt% BCTZ binary lead-free piezoelectric ceramic prepared through the solid-state combustion technique. *Phase Transitions* 90(3): 317-324. <https://doi.org/10.1080/01411594.2016.1192169>
- Kornphom, C., Udeye, T., Thongbai, P. & Bongkarn, T. 2017. Phase structures, PPT region and electrical properties of new lead-free KNLNTS-BCTZ ceramics fabricated via the solid-state combustion technique. *Ceramics International* 43(Supplement 1): S182-S192. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.05.180>
- Kumar, S., Kurchania, R. & Kumar, A. 2019. Dielectric and impedance spectroscopic study of lithium doped potassium tantalum niobium oxide. *Ceramics International* 45(14): 17137-17143. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.05.267>
- Li, P., Fu, Z., Wang, F., Huan, Y., Zhou, Z., Zhai, J., Shen, B. & Zhang, S. 2020. High piezoelectricity and stable output in BaHfO₃ and $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{ZrO}_3$ modified $(\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5})(\text{Nb}_{0.96}\text{Sb}_{0.04})\text{O}_3$ textured ceramics. *Acta Materialia* 199: 542-550. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2020.08.058>
- Ma, J., Wu, J., Wu, B. & Wu, W. 2020. Advances in the modification of the contradictory relationship between piezoelectricity and curie temperature: Simultaneous realization of large piezoelectricity and high curie temperature in potassium sodium niobate-based ferroelectrics. *Journal of Materials Chemistry C* 8(28): 9506-9510. <https://doi.org/10.1039/d0tc01888k>
- Mawani, H.D., Shastri, N.M., Mangrola, M.H. & Joshi, V.G. 2020. Structural and electrical properties of sodium bismuth titanate prepared by solid state reaction method. *AIP Conference Proceedings* 2220(1): 140055. <https://doi.org/10.1063/5.0002127>
- Mekonnen, M.A. & Tadesse, M.Z. 2021. Low temperature sintering of $(\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15})(\text{Ti}_{0.90}\text{Zr}_{0.10})\text{O}_3$ lead-free piezoceramic with the additive of MnO₂. *Journal of Electroceramics* 46: 115-123. <https://doi.org/10.1007/s10832-021-00250-x>
- Ming, B-Q., Wang, J-F. & Zang, G-Z. 2008. Effects of Li substitution and sintering temperature on properties of $\text{Bi}_{0.5}(\text{Na,K})_{0.5}\text{TiO}_3$ lead-free piezoelectric ceramics. *Chinese Physics Letters* 25(10): 3776-3778. <http://dx.doi.org/10.1088/0256-307X/25/10/070>
- Mohammad Hafizuddin Haji Jumali, Mohd Riduan Mohd, Ngoi Yung Wee, Muhammad Yahaya & Muhammad Mat Salleh. 2010. Kelakuan pengesanan tekanan bagi seramik natrium bismut titanat. *Sains Malaysiana* 39(4): 621-626.
- Negi, N.S., Kumar, R., Sharma, H., Shah, J. & Kotnala, R.K. 2018. Structural, multiferroic, dielectric and magnetoelectric properties of $(1-x)\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15}\text{Ti}_{0.90}\text{Zr}_{0.10}\text{O}_3$ - $(x)\text{CoFe}_2\text{O}_4$ lead-free composites. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 456: 292-299. <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2017.12.095>
- Nor Huwaida Binti Janil @ Jamil, Mohammad Hafizuddin Bin Hj Jumali, Zalita Binti Zainuddin, Izura Binti Izzuddin & Soodkhet Pojprapai. 2019. Penentuan parameter optimum bagi rawatan pengutuban elektrik ke atas seramik-piezo (BaTiO_3) menggunakan sistem buatan sendiri. *Sains Malaysiana* 48(2): 425-433. <https://doi.org/10.17576/jmsm-2019-4802-21>

- Orlik, K., Lorgouilloux, Y., Marchet, P., Thuault, A., Jean, F., Rguiti, M. & Courtois, C. 2020. Influence of microwave sintering on electrical properties of BCTZ lead free piezoelectric ceramics. *Journal of the European Ceramic Society* 40(4): 1212-1216. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2019.12.010>
- Perumal, R.N., Athikesavan, V. & Nair, P. 2018. Influence of lead titanate additive on the structural and electrical properties of $\text{Na}_{0.5}\text{Bi}_{0.5}\text{TiO}_3\text{-SrTiO}_3$ piezoelectric ceramics. *Ceramics International* 44(11): 13259-13266. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.04.155>
- Politova, E.D., Strebkov, D.A., Belkova, D.A., Kaleva, G.M., Mosunov, A.V., Sadovskaya, N.V. & Stefanovich, S.Y. 2020. Phase formation and relaxor properties of lead-free perovskite ceramics on the base of sodium-bismuth titanate $(\text{Na}_{0.5}\text{Bi}_{0.5})(\text{Ti,Mg})\text{O}_3$. *Ferroelectrics* 560(1): 48-53. <https://doi.org/10.1080/00150193.2020.1722882>
- Reshetnikova, E.A., Lisnevskaya, I.V. & Terekhin, A.I. 2020. Hydrothermal synthesis of sodium bismuth titanate ferroelectrics. *Inorganic Materials* 56(1): 83-90. <https://doi.org/10.1134/S0020168520010136>
- Sarizal Md Ani, Andanastuti Mughtar, Norhamidi Muhamad, & Jaharah A. Ghani. 2017. Kesan suhu pensinteran terhadap sifat mekanik dan mikrostruktur alumina-zirkonia yang difabrikasi dengan kaedah pengacuan suntikan seramik. *Sains Malaysiana* 46(10): 1979-1986. <https://doi.org/10.17576/jsm-2017-4610-37>
- Sharma, S., Sharma, H., Thakur, S., Shah, J., Kotnala, R.K. & Negi, N.S. 2021a. Structural, magnetic, magneto-dielectric and magneto-electric properties of $(1-x)\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15}\text{Ti}_{0.90}\text{Zr}_{0.10}\text{O}_3 - (x)\text{CoFe}_2\text{O}_4$ lead-free multiferroic composites sintered at higher temperature. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 538: 168243. <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2021.168243>
- Sharma, S., Thakur, S., Shah, J., Kotnala, R.K. & Negi, N.S. 2021b. Influence of phase dominance on structural, magneto-dielectric, magnetic-electric properties of $(\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15}\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9})\text{O}_3\text{-CoFe}_2\text{O}_3$ composites. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 32(5): 6570-6585. <https://doi.org/10.1007/s10854-021-05373-z>
- Shi, S., Hashimoto, H. & Sekino, T. 2021. Enhancing piezoelectric properties of $\text{Ba}_{0.88}\text{Ca}_{0.12}\text{Zr}_{0.12}\text{Ti}_{0.88}\text{O}_3$ lead-free ceramics by doping Co ions. *Ceramics International* 47(3): 3272-3278. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2020.09.167>
- Sun, Y., Yang, H., Guan, S., Cao, Y., Jiang, M. & Liu, X. 2019. Strong piezoelectricity of Li_2CO_3 -Doped $\text{BiFeO}_3\text{-BaTiO}_3\text{-Bi}(\text{Zn}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ lead-free piezoelectric ceramics with high curie temperature and high temperature stability. *Journal of Alloys and Compounds* 2019: 153058. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2019.153058>
- Tan, C.K.I., Yao, K. & Ma, J. 2013. Effects of LiF on the structure and properties of $\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15}\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_3$ lead-free piezoelectric ceramics. *International Journal of Applied Ceramic Technology* 10(4): 701-706. <https://doi.org/10.1111/j.1744-7402.2012.02771.x>
- Tian, Y., Wang, Q., Zhang, B., Qin, P., Gong, Y., Ji, X. & Jing, Q. 2020. Temperature-dependent ferroelectric and piezoelectric response of Yb^{3+} and Tm^{3+} co-doped $\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15}\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_3$ lead-free ceramics. *Research Square* <https://doi.org/10.21203/rs.3.rs-53948/v2>
- Ul, R., Marchet, P., Pham-Thi, M. & Tran-Hue-Huu, L-P. 2019. Improved properties of doped BaTiO_3 piezoelectric ceramics. *Physica Status Solidi* 2019: 1900413. <https://doi.org/10.1002/pssa.201900413>
- Verma, A., Yadav, A.K., Khatun, N., Kumar, S., Jangir, R., Srihari, V., Raghavendra Reddy, V., Liu, S.W., Biring, S. & Sen, S. 2018. Structural, dielectric and ferroelectric studies of thermally stable and efficient energy storage ceramic material $(\text{Na}_{0.5-x}\text{K}_x\text{Bi}_{0.5-x}\text{La}_x)\text{TiO}_3$. *Ceramics International* 44(16): 20178-20186. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.07.312>
- Wang, C., Li, Q., Zhang, W., Yan, B., Yadav, A.K., Peng, H. & Fan, H. 2020. $[\text{Bi}_{0.5}(\text{Na}_{0.4-x}\text{Li}_{0.1})]0.96\text{Sr}_{0.04}\text{Ti}_{0.975}\text{Ta}_{0.025}\text{O}_3$ lead-free relaxor ceramics with the enhanced recoverable energy density. *Ceramics International* 46(1): 715-721. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2019.09.024>
- Wang, Q., Lin, J., Zhou, Y., Lin, C., Lin, T. & Wu, X. 2020. Sm-induced multifunctionality and poling effect on luminescence of Sm-doped $(\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15})(\text{Ti}_{0.9}\text{Zr}_{0.1})\text{O}_3$ piezoceramics. *Functional Materials Letters* 13(5): 2051023. <https://doi.org/10.1142/S1793604720510236>
- Wang, X., Yue, J. & Liu, J. 2021. Enhanced temperature stability and electrical properties of Bi/Mn Co-doped $(\text{Ba,Ca})(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ lead-free ceramics. *Ceramics International* 47(2): 2525-2530. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2020.09.096>
- Wongsanmai, S., Ananta, S. & Yimnirun, R. 2012. Effect of Li addition on phase formation behavior and electrical properties of $(\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{NbO}_3$ lead free ceramics. *Ceramics International* 38(1): 147-152. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2011.06.049>
- Wu, Y., Ma, F., Qu, J., Luo, Y., Lv, C., Guo, Q. & Qi, T. 2019. Vertically-aligned lead-free BCTZY nanofibers with enhanced electrical properties for flexible piezoelectric nanogenerators. *Applied Surface Science* 469: 283-291. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2018.10.229>
- Wu, Y., Ma, F., Qu, J., Luo, Y., Song, J., Wei, G., Zhang, Y. & Qi, T. 2018. Role of Cu and Y in sintering, phase transition, and electrical properties of BCZT lead-free piezoceramics. *Ceramics International* 44(13): 15001-15009. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.05.129>
- Xu, J., Lu, Q., Lin, J., Lin, C., Zheng, X., Lin, T. & Wu, X. 2020. Enhanced ferro-/piezoelectric properties of tape-casting-derived Er^{3+} -doped $\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15}\text{Ti}_{0.9}\text{Zr}_{0.1}\text{O}_3$ optoelectronic thick films. *Journal of Advanced Ceramics* 9(6): 693-702. <https://doi.org/10.1007/s40145-020-0405-6>
- Xu, J., Zhou, Y., Li, Z., Lin, C., Zheng, X., Lin, T., Wu, X. & Wang, F. 2021. Microstructural, ferroelectric and photoluminescence properties of Er^{3+} -doped $\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15}\text{Ti}_{0.9}\text{Zr}_{0.1}\text{O}_3$ thin films. *Materials Chemistry and Physics* 262: 124320. <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2021.124320>

- Yan, X., Zheng, M., Zhu, M. & Hou, Y. 2019. Enhanced electrical resistivity and mechanical properties in BCTZ-based composite ceramic. *Journal of Advanced Dielectrics* 9(5): 1950036. <https://doi.org/10.1142/S2010135X1950036X>
- Zhai, Y., Du, J., Chen, C., Li, W. & Hao, J. 2020. The photoluminescence and piezoelectric properties of Eu_2O_3 doped KNN-based ceramics. *Journal of Alloys and Compounds* 829: 154518. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2020.154518>
- Zhang, Y., Sun, H.J. & Chen, W. 2016. Li-modified $\text{Ba}_{0.99}\text{Ca}_{0.01}\text{Zr}_{0.02}\text{Ti}_{0.98}\text{O}_3$ lead-free ceramics with highly improved piezoelectricity. *Journal of Alloys and Compounds* 694: 745-751. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2016.10.061>
- Zhao, R., Li, Y., Zheng, Z. & Kang, W. 2020. Phase structure regulation and enhanced piezoelectric properties of Li-doped KNN-based ceramics. *Materials Chemistry and Physics* 245: 122806. <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2020.122806>

*Pengarang untuk surat-menyurat; email: a.atiqah@ukm.edu.my