

## Kajian Histeresis Feroelektrik dan Pengutuban Dinamik bagi Seramik (Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>)(Zr<sub>0.025</sub>Ti<sub>0.975</sub>)O<sub>3</sub> dengan Penggantian Kecil Ca (Ferroelectric Hysteresis and Dynamic Polarization Studies of Lower Ca-substituted (Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>)(Zr<sub>0.025</sub>Ti<sub>0.975</sub>)O<sub>3</sub> Ceramics)

NUR SOLEHAH ALI<sup>1</sup>, NOR HUWAIDA JANIL @ JAMIL<sup>1</sup>, NOR AMALINA AHMAD<sup>1,2</sup>,  
MOHAMMAD HAFIZUDDIN HJ JUMALI<sup>1,\*</sup> & ZALITA ZAINUDDIN<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Jabatan Fizik Gunaan, Fakulti Sains dan Teknologi, Universiti Kebangsaan Malaysia,  
43600 UKM Bangi, Selangor, Malaysia

<sup>2</sup>Pusat Pengajian Pra-Universiti, Universiti Malaysia Sarawak (UNIMAS),  
94300 Kota Samarahan, Sarawak, Malaysia

Diserahkan: 6 Februari 2024/Diterima: 24 Jun 2024

### ABSTRAK

Penyelidikan ini dijalankan untuk mengkaji kesan penggantian kecil Ca terhadap sifat feroelektrik seramik (Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>)(Zr<sub>0.025</sub>Ti<sub>0.975</sub>)O<sub>3</sub> (BCZT). Seramik BCZT disediakan menggunakan kaedah tindak balas keadaan pepejal dan disinter pada suhu 1350 °C selama 2 jam. Analisis XRD menunjukkan semua seramik BCZT mempunyai fasa tunggal yang stabil dengan struktur hablur tetragon. Walaupun seramik Ba(Zr<sub>0.025</sub>Ti<sub>0.975</sub>)O<sub>3</sub> (BZT) tulen ( $x = 0.000$ ) menunjukkan ketumpatan tertinggi iaitu 98.0%, saiz butiran yang paling besar diperoleh bagi seramik BCZT dengan komposisi  $x = 0.025$ . Seramik BCZT dengan penggantian Ca yang terendah menunjukkan sifat piezoelektrik dan feroelektrik yang lebih baik berbanding seramik dengan kandungan Ca yang lebih tinggi. Ujian medan elektrik berulang menunjukkan kestabilan dinamik serta sifat kebangkitan bagi seramik BCZT dengan  $x = 0.025$  dan  $0.050$ .

Kata kunci: BaTiO<sub>3</sub> dan titanat; medan elektrik berulang; sifat piezoelektrik; tindak balas keadaan pepejal

### ABSTRACT

This research was conducted to study the effects of lower Ca substitution on the ferroelectric properties of (Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>)(Zr<sub>0.025</sub>Ti<sub>0.975</sub>)O<sub>3</sub> (BCZT) ceramics. BCZT ceramics were prepared using the solid-state reaction method and sintered at 1350 °C for 2 h. XRD analysis shows that all BCZT ceramics have a stable single phase with tetragonal crystal structure. Although pristine Ba(Zr<sub>0.025</sub>Ti<sub>0.975</sub>)O<sub>3</sub> (BZT) ceramic ( $x = 0.000$ ) displays the highest density of 98.0%, the largest grain size was obtained in BCZT ceramics with  $x = 0.025$ . BCZT ceramic with the lowest Ca substitution exhibits better piezoelectric and ferroelectric properties compared to ceramics with higher Ca contents. The repetitive electric fields test shows the dynamic stability and wake-up behavior for BCZT ceramics with  $x = 0.025$  and  $0.050$ .

Keywords: BaTiO<sub>3</sub> and titanates; piezoelectric properties; repetitive electric fields, solid state reaction

### PENGENALAN

Sifat feroelektrik merupakan keupayaan sesuatu bahan menunjukkan pengutuban spontan,  $P_s$  tatkala medan elektrik dikenakan ke atasnya. Penggunaan bahan bagi seramik feroelektrik dalam kehidupan moden adalah sangat meluas terutamanya dalam aplikasi penyimpanan maklumat, sensor, transduser, aktuator dan penuai tenaga. Sejak penemuan seramik Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> (PZT) pada tahun 1950, seramik berasaskan Pb ini telah mendominasi pasaran dunia untuk aplikasi-aplikasi tersebut disebabkan

sifat piezoelektriknya yang cemerlang. Namun, kegunaan PZT mula dihadkan kerana unsur Pb yang bersifat toksik kepada alam sekitar dan kesihatan awam. Keadaan ini telah menyumbang kepada penerokaan dan kajian aktif ke atas seramik bebas Pb seperti (K,Na)NbO<sub>3</sub> (KNN) (Izzuddin et al. 2016; Jamil et al. 2022), (Na,Bi)TiO<sub>3</sub> (NBT) (França et al. 2021; Jumali et al. 2010) dan BaTiO<sub>3</sub> (Jamil et al. 2019; Sagdeo et al. 2018; Zolkepli & Zainuddin 2017).

Berbanding seramik bebas Pb yang lain, BaTiO<sub>3</sub> terkenal sebagai seramik yang stabil secara mekanik dan kimia, mudah disediakan, mesra pengguna serta memaparkan sifat feroelektrik pada suhu bilik. Pada tahun 2009, pasangan penyelidik dari Jepun iaitu Liu dan Ren telah mencipta kejayaan apabila seramik berasaskan BaTiO<sub>3</sub> yang disediakan mereka menunjukkan nilai pemalar piezoelektrik yang tinggi ( $d_{33} = \sim 620$  pC/N). Menurut laporan, strategi mereka adalah menggantikan unsur Ca serta Zr masing-masing pada tapak A dan B struktur perovskit ABO<sub>3</sub> seramik BaTiO<sub>3</sub>. Sejak itu, pengoptimuman kaedah penyediaan termasuk pengubahsuaian kimia seramik jenis ini menggunakan unsur pengganti Ca dan Zr telah banyak dilakukan. Kesannya mempengaruhi struktur hablur dan morfologi butiran sehingga berjaya melonjakkan nilai  $d_{33}$  (Bai et al. 2016; Castkova et al. 2015; Coondoo et al. 2018; Guo et al. 2019; Li et al. 2018; Liu et al. 2018). Nilai  $d_{33}$  tertinggi terkini yang berjaya dicatatkan bagi seramik berasaskan BaTiO<sub>3</sub> adalah  $\sim 755$  pC/N (Liu et al. 2017). Nilai  $d_{33}$  tersebut diukur pada seramik (Ba<sub>0.94</sub>Ca<sub>0.06</sub>)(Ti<sub>0.95</sub>Zr<sub>0.05</sub>)O<sub>3</sub> yang mereka sediakan menggunakan kaedah templat pertumbuhan butiran.

Selain nilai pemalar piezoelektrik yang tinggi, keupayaan seramik untuk kekal cemerlang beroperasi dalam satu jangka panjang juga adalah amat penting. Kebanyakan seramik didapati akan mengalami kemerosotan dan kerosakan mekanik apabila menjalani kitaran pengutuban elektrik secara berterusan (Genenko et al. 2015; Hao et al. 2018; Shi, Hoffman & Kumar 2019). Masalah ini dikenali sebagai kelesuan feroelektrik. Malah, seramik PZT yang mendominasi pasaran turut menghadapi masalah yang sama (Promsawat et al. 2017; Yingwei et al. 2020; Zhenhua et al. 2021). Tinjauan kajian lepas ke atas seramik berasaskan (Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>)(Zr<sub>y</sub>Ti<sub>1-y</sub>)O<sub>3</sub> menyimpulkan bahawa kelesuan feroelektrik dipengaruhi oleh faktor intrinsik dan ekstrinsik seramik (Acosta et al. 2015; Gao et al. 2014; Rojas et al. 2017; Zhang et al. 2019). Faktor intrinsik adalah faktor dalaman seramik yang kompleks berlaku pada peringkat atom mahupun mikrostruktur seperti pengepunan dinding domain, herotan kekisi dan perambatan kecacatan. Faktor ekstrinsik pula merupakan faktor luaran seramik termasuk tegasan mekanik, elektrik dan suhu. Kesan faktor ekstrinsik ini lazimnya berlaku bergandingan dengan kesan dari faktor intrinsik.

Sebahagian besar faktor intrinsik yang menyumbang kepada kelesuan feroelektrik seramik (Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>)(Zr<sub>y</sub>Ti<sub>1-y</sub>)O<sub>3</sub> adalah berpunca daripada komposisi yang digunakan (Acosta et al. 2015; Fan et al. 2018; Rojas et al. 2017). Sebagai contoh, variasi kelakuan kelesuan feroelektrik dapat dilihat apabila pelbagai komposisi unsur Ca digunakan (Rojas et al. 2017; Zhang et al. 2016). Kelesuan feroelektrik dilaporkan dapat dikekang sehingga kitaran ke-10<sup>5</sup> apabila sebanyak 15.0 mol % Ca diganti dalam seramik Ba<sub>0.85</sub>Ca<sub>0.15</sub>Ti<sub>0.9</sub>Zr<sub>0.1</sub>O<sub>3</sub> (Zhang et al. 2019). Selain itu, terdapat laporan menyatakan bahawa penggunaan

kuantiti unsur Ca yang lebih kecil ( $x < 0.100$ ) bukan sahaja meningkatkan kerintangan kelesuan ke kitaran yang lebih tinggi, malahan mendorong kepada kebangkitan sifat feroelektrik (Liu et al. 2018). Corak kelakuan feroelektrik yang hampir serupa juga ditunjukkan oleh seramik (Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>)(Zr<sub>y</sub>Ti<sub>1-y</sub>)O<sub>3</sub> apabila komposisi unsur Zr semakin berkurangan (Jamil 2022; Liu et al. 2018; Zhang et al. 2016). Justeru, penyelidikan ini telah dilakukan bertujuan untuk mengkaji kesan penggantian kecil kedua-dua unsur ke atas struktur serta sifat elektrik seramik (Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>)(Zr<sub>0.025</sub>Ti<sub>0.975</sub>)O<sub>3</sub>. Kuantiti penggantian unsur Ca adalah sekitar  $0.000 \leq x \leq 0.100$  manakala kandungan unsur Zr telah ditetapkan iaitu sebanyak 2.5 mol %. Perhatian khusus diberikan ke atas kajian seramik BCZT di bawah pengaruh medan elektrik berulang bagi memahami tahap ketahanan seramik setelah penggantian kecil unsur Ca tersebut dilakukan.

#### KAEDAH KAJIAN

Dalam kajian ini, seramik (Ba<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>)(Zr<sub>0.025</sub>Ti<sub>0.975</sub>)O<sub>3</sub> dengan  $0.000 \leq x \leq 0.100$  disediakan secara tindak balas keadaan pepejal. Bahan pelopor yang digunakan adalah BaCO<sub>3</sub> (Sigma-Aldrich: 99.0 %), CaCO<sub>3</sub> (Sigma-Aldrich: 99.0 %), ZrO<sub>2</sub> (Strem Chemicals: 99.0 %) dan TiO<sub>2</sub> (Sigma-Aldrich: 99.9 %). Kesemua bahan pelopor tersebut ditimbang berdasarkan perkadaran stoikiometri dan dikisar menggunakan pengisar bebola dalam cecair C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>OH (System: 95.0 %) selama 2 jam. Selepas dikeringkan, campuran serbuk dikalsin pada suhu 1000 °C selama 4 jam diikuti dengan proses pengisaran bagi meleraikan aglomerat butiran. Selepas itu, beberapa titis alkohol polivinil ditambahkan ke dalam serbuk sebagai perekat dan pelet hijau disediakan menggunakan teknik tekanan sepaksi. Magnitud tekanan dan saiz acuan yang digunakan masing-masing adalah 30 kPa dan 1.3 cm. Pelet yang disediakan akhirnya disinter mengikut profil persinteran dua peringkat masing-masing pada 600 °C dan 1350 °C selama 2 jam.

Ketumpatan pelet BCZT yang terhasil ditentukan berdasarkan teknik Archimedes. Corak pembelauan sinar-X yang terhasil diperoleh menggunakan mesin pembelau sinar-X (Bruker model D8 Advance) dengan Cu sebagai anod sasaran. Morfologi butiran dan permukaan pelet dicerap menggunakan mikroskop imbasan elektron (SEM) (Zeiss model SUPRA 55 VP).

Sifat feroelektrik seramik BCZT ditentukan dengan mengukur perubahan nilai pengutuban,  $P$  terhadap medan elektrik,  $E$  ulang-alik yang dikenakan. Pengukuran ini dilakukan menggunakan sistem litar Sawyer-Tower dengan ketebalan pelet ditetapkan pada  $(0.1 \pm 0.01)$  cm. Penjana fungsi (MCP MPF-2010 B) dan amplifier (TREK 10/10-2) telah digunakan untuk menjana magnitud medan elektrik ulang-alik 20 kV/cm dan frekuensi 50 Hz. Bagi memastikan kualiti sentuhan yang baik, cat perak disapu pada kedua-dua permukaan rata pelet dan dikeringkan pada suhu 120 °C selama 15 min. Akhir sekali, nilai

$d_{33}$  ditentukan dengan menggunakan meter-piezo (APC International model Ltd-YE27330 A). Bagi tujuan ini, seramik BCZT dikutubkan terlebih dahulu pada suhu 60 °C selama 10 min dalam medan elektrik bermagnitud 3.6 kV (Jamil et al. 2019).

#### HASIL KAJIAN DAN PERBINCANGAN

Rajah 1(a) menunjukkan corak difraktogram seramik BCZT bagi semua komposisi Ca. Kesemua corak difraktogram tersebut berjaya dipadankan dengan pangkalan data ICDD bernombor PDF 01-075-9822 dan menunjukkan struktur tetragon tanpa kehadiran fasa sekunder. Keputusan ini menunjukkan bahawa penggantian kecil unsur Ca ( $x \leq 0.100$ ) di tapak Ba tidak mengganggu struktur asas hablur tetragon. Walau bagaimanapun, penelitian terperinci pada sudut sempit 44° hingga 47° mendapati terdapat anjakan puncak ke arah sudut  $2\theta$  yang lebih tinggi apabila unsur Ca semakin bertambah (Rajah 1(b)). Kewujudan anjakan ini menandakan telah berlaku pengecutan pada kekisi hablur seramik.

Bagi membuktikan hujah terbabit, nilai pemalar kekisi ditentukan dengan menggunakan kaedah penyuaian Pawley sehingga mencapai nilai penyuaian terbaik (GOF),  $\chi^2$  terendah. Keputusan penyuaian dipaparkan dalam Jadual 1. Ternyata berlaku pengecutan yang hampir berkadar bagi nilai pemalar kekisi  $a$  dari 3.9942 Å ke 3.9834 Å manakala nilai pemalar kekisi  $c$  dari 4.0322 Å menjadi 4.0236 Å. Akibatnya, nilai isi padu unit sel kekisi seramik BCZT turut berkurang dari 64.330 Å<sup>3</sup> kepada 63.844 Å<sup>3</sup>. Pengecutan ini berlaku kerana ion Ca<sup>2+</sup> yang mempunyai jejari atom yang lebih kecil iaitu 0.99 Å telah berjaya menggantikan ion Ba<sup>2+</sup> dengan jejari atom 1.35 Å di tapak A. Walaupun berbeza komposisi, keputusan kajian ini adalah selaras dengan corak hasil kajian terdahulu (Mane, Tirmali & Kulkarni 2018; Mondal, Majee & Das 2017; Yuan et al. 2017). Di samping itu, nilai ketetragonan,  $c/a$  pula secara umumnya tidak menunjukkan sebarang corak yang nyata dengan peningkatan penggantian unsur Ca. Antara punca yang dikenal pasti menyebabkan nilai  $c/a$  sebegitu adalah kerana pengecutan panjang nilai kekisi  $c$  dilihat tidak ketara berbanding kekisi  $a$ .

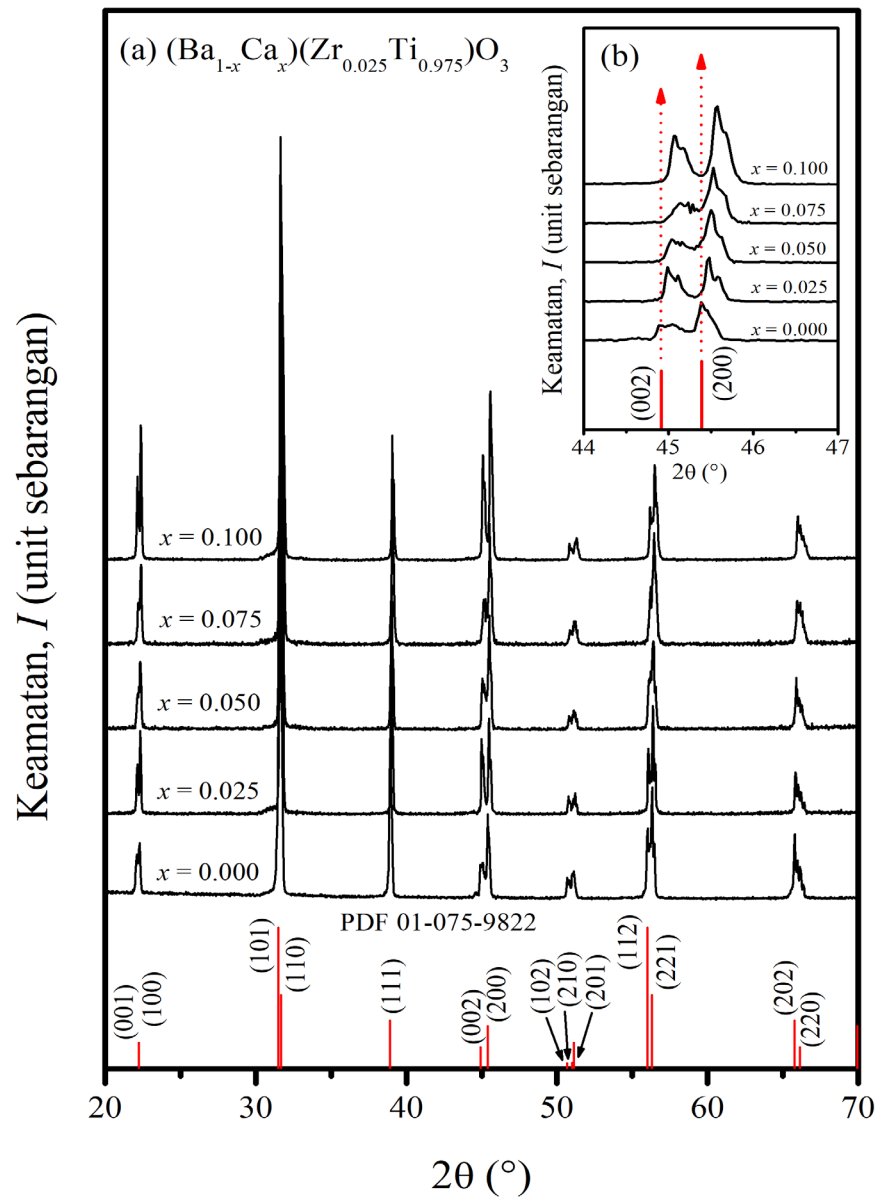
Kesan penggantian Ca terhadap morfologi butiran dan permukaan seramik BCZT dapat diperhatikan pada Rajah 2. Butiran seramik BCZT bagi semua komposisi memaparkan bentuk polihedron dengan pertambahan liang antara butiran apabila unsur Ca meningkat selaras dengan kemerosotan ketumpatan relatif,  $\rho_{rel}$  (Jadual 2). Nilai ketumpatan seramik BCZT dengan penggantian Ca kurang daripada 0.075 kekal tinggi ( $\geq 95.0\%$ ) sebelum merosot secara mendadak apabila  $x \geq 0.075$ . Selain mempengaruhi nilai ketumpatan, ternyata penggantian unsur Ca ke atas tapak Ba turut membawa kesan besar terhadap nilai purata saiz butiran,  $g$ . Seramik BZT tulen mempunyai purata saiz butiran terkecil iaitu  $(2.7 \pm 1.0)$  µm sementara seramik BCZT dengan  $x = 0.025$

menunjukkan purata saiz butiran terbesar iaitu  $(15.0 \pm 4.9)$  µm. Walau bagaimanapun, penambahan unsur penggantian Ca yang lebih tinggi telah menyebabkan purata saiz butiran merosot. Meskipun begitu, sentuhan yang baik di sempadan antara butiran yang dilihat pada semua komposisi. Pemerhatian ini jelas menandakan tiada fasa amorfus dalam seramik BCZT yang dihasilkan. Keputusan tersebut adalah selari dengan keputusan daripada ujian penentuan XRD yang tidak menunjukkan sebarang kewujudan bonggol amorfus pada mana-mana bahagian difraktogram.

Persinteran merupakan suatu proses yang kompleks. Hasil akhir yang diperoleh merupakan natijah daripada beberapa faktor seperti komposisi, keadaan pemprosesan dan tingkah laku sedia ada seramik yang disinter. Kewujudan banyak butiran kecil dengan taburan saiz yang seragam dalam seramik BZT tulen menunjukkan kehadiran banyak nuklei terhablur secara homogen semasa proses persinteran berlangsung. Butiran kecil tumbuh daripada nuklei ini secara serentak. Pada peringkat awal penukleusan butiran, sempadan butiran adalah bertenaga tinggi dan bergerak pantas untuk membesar sehingga ia melanggar antara satu sama lain. Pada ketika ini, keadaan keseimbangan tercapai dan proses resapan atom merentasi sempadan butiran menjadi amat perlahan. Keadaan ini juga merencatkan kadar pertumbuhan butiran. Perkara ini merupakan pemerhatian yang biasa bagi seramik BZT tulen (Jian et al. 2018; Öksüz, Sen & Sen 2015; Xu & Li 2020).

Mikrograf SEM untuk  $x = 0.025$  pula menunjukkan campuran antara butiran bersaiz besar dan kecil. Kewujudan butiran dengan saiz yang berbeza dengan nilai sisihan piawai yang lebih besar merupakan petanda kepada kewujudan nuklei pada masa yang berbeza akibat kehadiran Ca dalam komposisi ini. Butiran besar merupakan butiran yang tumbuh daripada nuklei yang terhasil lebih awal. Berbantuan persekitaran yang sesuai, pertumbuhan butiran awal boleh menjadi tidak terkawal mengakibatkan terhasilnya butiran yang besar tanpa saiz yang seragam. Sebaliknya, butiran kecil pula bukan sahaja lewat tumbuh tetapi ia mungkin tumbuh pada persekitaran yang kurang sesuai. Liang-liang kecil yang diperhatikan turut menyumbang kepada nilai ketumpatan yang lebih rendah berbanding seramik BZT tulen.

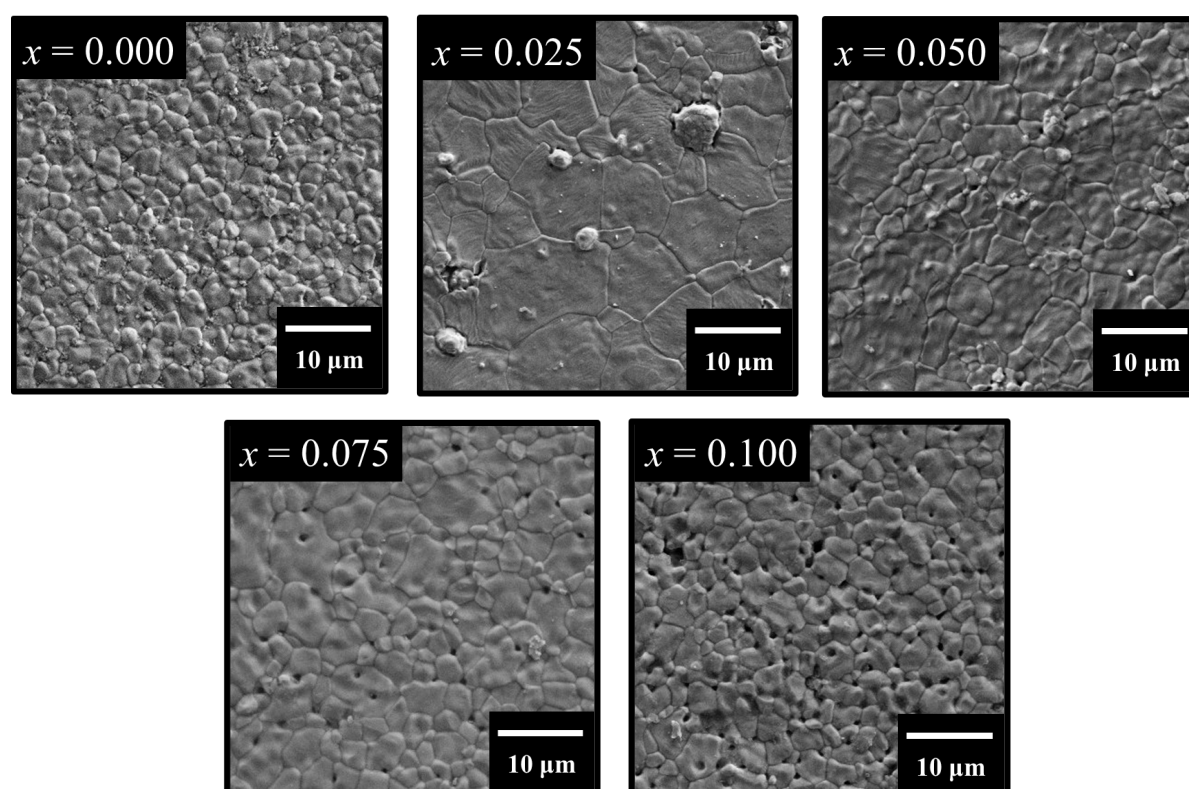
Walaupun bagaimanapun, peningkatan penggantian unsur Ca ke atas tapak Ba seterusnya didapati membawa kesan berbeza kepada mikrostruktur seramik yang dihasilkan. Bukan sahaja saiz butiran yang terhasil menjadi lebih kecil, tetapi kewujudan liang di antara butiran dan di dalam butiran juga semakin jelas diperhatikan. Reyes-Montero et al. (2017) melaporkan bahawa pada kepekatan yang tinggi, ion Ca<sup>2+</sup> cenderung bertindak sebagai penghalang kepada pertumbuhan butiran. Hal ini kerana kehadiran lebih banyak unsur Ca boleh menyebabkan kecacatan pada kekisi hablur sekali gus menyebabkan kesukaran kepada butiran untuk tumbuh. Akibatnya, butiran yang lebih kecil dengan saiz yang lebih seragam terhasil.



RAJAH 1. Difraktogram XRD bagi seramik  $(\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x)(\text{Zr}_{0.025}\text{Ti}_{0.975})\text{O}_3$

JADUAL 1. Keputusan penyuaihan Pawley bagi seramik  $(\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x)(\text{Zr}_{0.025}\text{Ti}_{0.975})\text{O}_3$

Komposisi Ca, $x$	Nilai pemalar kekisi		Ketetragonan, $c/a$	Isi padu unit sel ( $\text{\AA}^3$ )	GOF, $\chi^2$
	$a$ ( $\text{\AA}$ )	$c$ ( $\text{\AA}$ )			
0.000	3.9942 (9)	4.0322 (11)	1.0095	64.330 (4)	1.85
0.025	3.9937 (12)	4.0325 (13)	1.0097	64.318 (4)	1.25
0.050	3.9915 (17)	4.0253 (2)	1.0085	64.131 (6)	1.24
0.075	3.9908 (19)	4.0232 (2)	1.0081	64.074 (7)	1.18
0.100	3.9834 (10)	4.0236 (11)	1.0101	63.844 (4)	1.17



RAJAH 2. Mikrograf SEM bagi seramik  $(\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x)(\text{Zr}_{0.025}\text{Ti}_{0.975})\text{O}_3$

JADUAL 2. Senarai ketumpatan relatif, purata saiz butiran dan nilai  $d_{33}$  bagi seramik  $(\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x)(\text{Zr}_{0.025}\text{Ti}_{0.975})\text{O}_3$

Komposisi Ca, $x$	Ketumpatan relatif, $\rho_{\text{rel}}$ (%)	Purata saiz butiran, $g$ ( $\mu\text{m}$ )	Nilai $d_{33}$ (pC/N)
0.000	98.0	$2.7 \pm 1.0$	$140 \pm 6$
0.025	96.0	$15.0 \pm 4.9$	$158 \pm 3$
0.050	95.0	$4.1 \pm 2.1$	$123 \pm 5$
0.075	90.6	$3.6 \pm 1.2$	$120 \pm 6$
0.100	86.6	$3.2 \pm 1.3$	$71 \pm 5$

Nilai pemalar piezoelektrik bagi kesemua seramik BCZT yang disediakan dalam kajian ini juga dipaparkan pada Jadual 2. Nilai  $d_{33}$  bagi seramik tanpa penggantian Ca ( $x = 0.000$ ) adalah 140 pC/N. Penggantian kecil unsur Ca di tapak Ba telah melonjakkan nilai  $d_{33}$  kepada 158 pC/N. Walau bagaimanapun, peningkatan penggantian unsur Ca seterusnya menyebabkan nilai  $d_{33}$  menurun dengan mendadak kepada 123 pC/N. Seramik BCZT dengan penggantian unsur Ca tertinggi ( $x = 0.100$ ), mencatatkan nilai  $d_{33}$  yang paling rendah iaitu 71 pC/N yang disebabkan oleh ketumpatannya yang sangat rendah.

Perbandingan corak perubahan nilai  $d_{33}$  dengan corak perubahan ketumpatan relatif dan purata saiz butiran sebagai fungsi kepada nilai  $x$  menggambarkan wujudnya

hubung kait antara ketiga-tiga parameter ini. Oleh kerana perbezaan struktur hablur dan ketumpatan yang sangat kecil, maka lonjakan  $>12.0\%$  pada nilai  $d_{33}$  bagi  $x = 0.025$  berbanding seramik BZT tulen menandakan pengaruh besar saiz butiran ke atas sifat piezoelektrik. Pemerhatian ini turut disokong oleh kejatuhan nilai  $d_{33}$  seperti yang dicatatkan oleh seramik BCZT apabila  $x = 0.050$ .

Secara umumnya, persaingan yang kompleks antara beberapa faktor intrinsik banyak mempengaruhi nilai  $d_{33}$  seramik. Antara contoh faktor intrinsik adalah struktur hablur dan kehabluran, kekutuban, saiz butiran, ketumpatan, orientasi hablur, ketulenan dan kecacatan. Oleh kerana parameter yang dimanipulasi dalam kajian ini adalah komposisi unsur penggantian Ca ke atas tapak Ba, maka faktor intrinsik ini banyak dipengaruhi

oleh komposisi yang digunakan. Walaupun peningkatan nilai  $d_{33}$  sering kali dikaitkan dengan saiz butiran yang kecil (Dai et al. 2017; Kang 2005; Kang et al. 2019), namun kajian ini menunjukkan keputusan berbeza. Hasil ini menandakan saiz butiran bukanlah faktor yang paling dominan dalam penentuan nilai  $d_{33}$ . Oleh kerana perbezaan nilai yang sangat kecil, sumbangan struktur hablur dan ketumpatan ke atas nilai  $d_{33}$  juga tidaklah jauh berbeza antara seramik BCZT apabila  $x \leq 0.050$ . Menariknya, keputusan daripada pengukuran perubahan nilai  $P$  dalam seramik terhadap nilai  $E$  yang dikenakan mendedahkan bahawa ketersediaan seramik untuk dikutubkan turut memainkan peranan yang penting dalam penentuan nilai  $d_{33}$ .

Profil gelung histeresis tunggal bagi graf pengutuban melawan medan elektrik,  $P$ - $E$  seramik BCZT menunjukkan perubahan ketara dengan peningkatan unsur penggantian Ca (Rajah 3). Tanpa unsur Ca, seramik BZT tulen menunjukkan sifat feroelektrik keras dengan nilai medan paksaan,  $E_c$  yang tinggi sekitar 6.66 kV/cm, nilai pengutuban baki,  $P_r$  serta pengutuban maksimum,  $P_{max}$  yang rendah masing-masing iaitu  $\sim 6.04 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  dan  $\sim 10.85 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ . Ciri-ciri seramik BZT tulen ini adalah seperti dilaporkan dalam kajian lepas (Parhi et al. 2023; Sawangwan et al. 2008; Xu & Li 2020). Walau bagaimanapun, sifat feroelektrik keras ini serta-merta bertukar kepada jenis lembut apabila berlaku kejatuhan mendadak nilai  $E_c$  melebihi 50.0 % dengan penggantian unsur Ca ke atas tapak Ba. Perubahan ini bermaksud bahawa semua seramik BCZT menunjukkan kesediaan yang lebih tinggi untuk dikutubkan. Kehadiran unsur Ca telah merangsang penjajaran domain walaupun pada magnitud medan elektrik yang rendah (20 kV/cm). Menarik diperhatikan bahawa seramik  $x = 0.025$  menunjukkan nilai  $P_r$  dan  $P_{max}$  tertinggi masing-masing  $9.22 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  dan  $17.31 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ . Hasil tersebut menjadi bukti bahawa terdapat lebih banyak domain terjajar pada medan elektrik yang dikenakan dalam kajian ini dan kekal dalam keadaan terkutub selepas ketiadaan medan elektrik. Pemerhatian ini adalah sepadan dengan nilai  $d_{33}$  paling tinggi yang dicatatkan oleh seramik. Namun, adalah penting untuk dinyatakan bahawa peningkatan penggantian unsur Ca ke atas Ba telah menyebabkan kedua-dua jenis nilai pengutuban berkurang secara berterusan sehingga  $x = 0.075$ . Penurunan yang selaras dengan kemerosotan nilai  $d_{33}$  ini dipercayai disumbangkan oleh kehadiran liang yang banyak di dalam seramik terbut. Selain itu, kecacatan hablur akibat lebih banyak penggantian ion dengan beza saiz yang besar turut menyumbang kepada kemerosotan ini. Selain XRD, kesan peningkatan kecacatan hablur dapat dikenal pasti ditandai dengan pertambahan kecondongan lengkung histeresis akibat peningkatan Ca (Fu & Itoh 2015; Premkumar, Sarangapani & Mathe 2021). Melebihi  $x = 0.075$ , ciri feroelektrik seramik BCZT sebaliknya menunjukkan sedikit peningkatan. Nilai pengutuban

dilihat meningkat mungkin disebabkan oleh pertambahan kecil nilai ketetragonan manakala masalah keliangan kian memburuk menjadi punca nilai  $E_c$  turut menaik.

Kestabilan sifat mekanik dan elektrik bagi seramik adalah penting untuk kegunaan aplikasi elektronik untuk tempoh panjang. Ketahanan seramik BCZT umumnya dapat ditentukan melalui kesan tegasan mekanik atau medan elektrik berulang. Dalam kajian ini, ujian kestabilan dinamik seramik BCZT dengan  $x = 0.025$  dan  $0.050$  ditentukan melalui kesan medan elektrik berulang sehingga  $10^6$  kitaran. Pemilihan kedua-dua komposisi seramik tersebut adalah berdasarkan keputusan pencirian sifat feroelektrik tunggal dan piezoelektrik yang memberangsangkan berbanding komposisi lain.

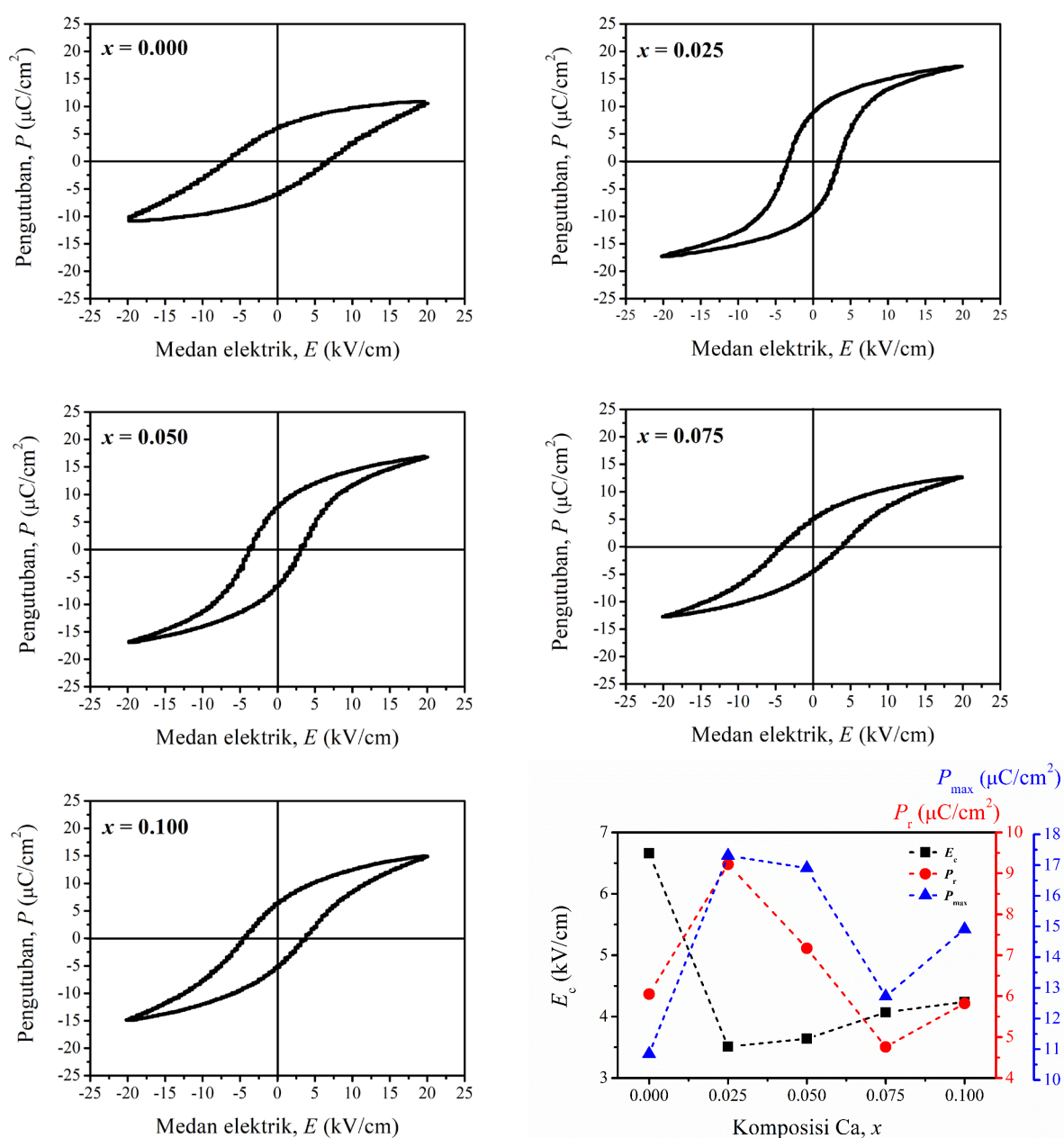
Rajah 4(a)-4(b)) menunjukkan gelung histeresis komposisi  $x = 0.025$  dan  $0.050$  sehingga kitaran medan elektrik ke- $10^6$  pada magnitud malar iaitu 20 kV/cm. Berdasarkan rajah, didapati bahawa profil gelung histeresis bagi kedua-duanya kelihatan stabil lantas membuktikan ketahanan tinggi sifat feroelektrik seramik. Walau bagaimanapun, pencerakinan ke atas hasil ujian penentuan gelung  $P$ - $E$  mendedahkan bahawa wujud perbezaan asas yang agak ketara antara kedua-dua seramik terbut. Maklumat parameter utama gelung histeresis  $P$ - $E$  ( $2E_c$ ,  $2P_r$  dan  $2P_{max}$ ) dikutip pada sela kitaran tertentu (Rajah 4(c)-4(d)). Hasil penelitian awal mendedahkan bahawa seramik BCZT dengan  $x = 0.025$  dan  $0.050$  kajian menunjukkan kelakuan kebangkitan sifat feroelektrik. Meskipun terdapat peningkatan pada kebanyakan nilai pengutuban, kadar kebangkitan feroelektrik didapati adalah sangat berbeza. Seramik  $x = 0.025$  menunjukkan peningkatan nilai  $2P_r$  yang lebih perlahan dan dalam julat yang kecil berbanding seramik  $x = 0.050$ . Seramik BCZT dengan  $x = 0.050$  pula bermula dengan nilai  $2P_r$  yang lebih rendah telah menunjukkan kebangkitan yang lebih mantap sehingga ke dekad kitaran terakhir.

Selain itu, corak kelakuan nilai pengutuban  $2P_{max}$  yang ditunjukkan juga adalah sebaliknya. Biarpun nilai  $2P_r$  kedua-dua komposisi semakin meningkat, nilai  $2P_{max}$  masing-masing dilihat kian merosot pada kitaran yang berbeza. Berbanding seramik  $x = 0.025$ , nilai  $2P_{max}$  seramik  $x = 0.050$  berjaya dikekang untuk tempoh yang lebih lama (kitaran ke- $10^5$ ). Keputusan ini membuktikan bahawa seramik BCZT dengan penggantian kecil unsur Ca ( $x \leq 0.050$ ) berjaya mempertingkatkan baki bilangan domain untuk kekal terkutub tetapi gagal mengekang kebanyakan domain tersebut daripada terus terjajar sepanjang proses penjajaran berlangsung.

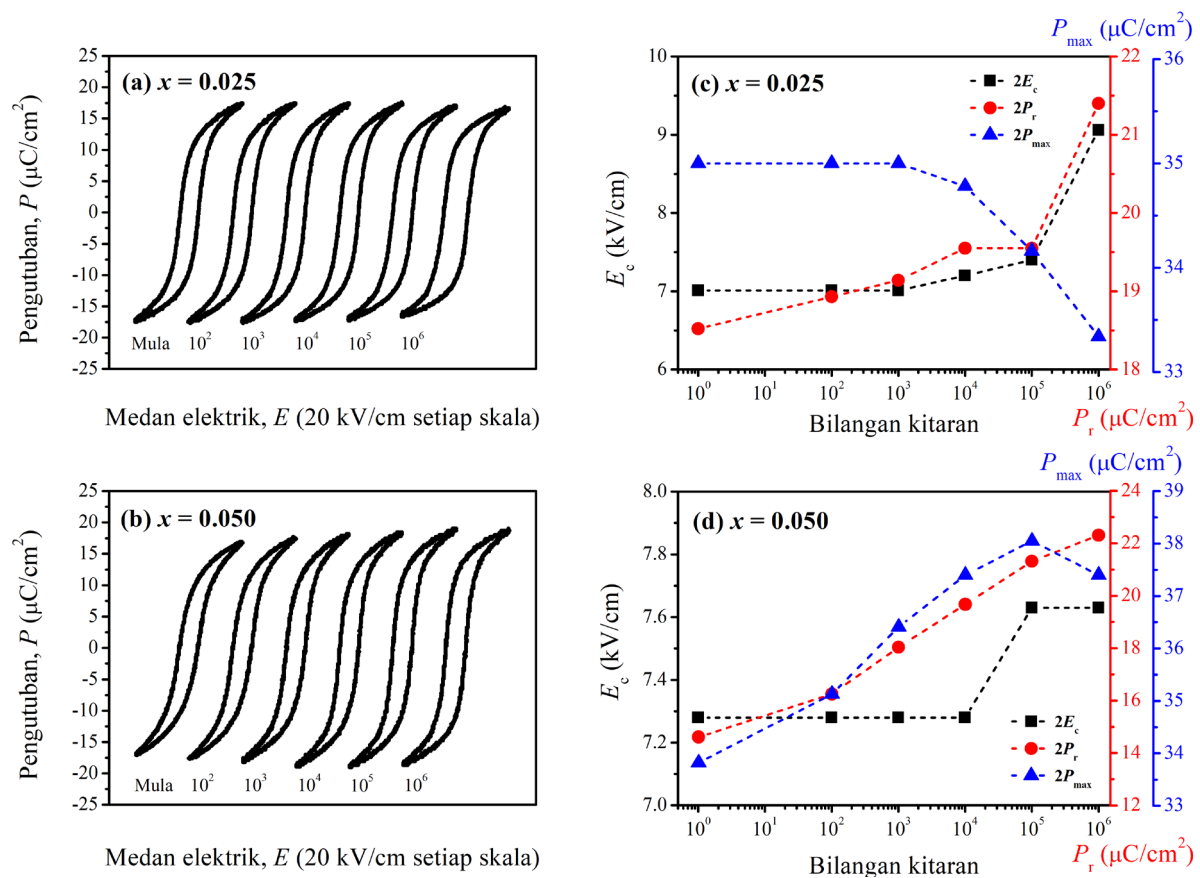
Seramik feroelektrik diketahui sebagai seramik yang unik kerana mempunyai kekutuban boleh berubah apabila dikenakan medan elektrik ulang-alik luaran. Walaupun nilai  $E_c$  merupakan magnitud medan elektrik yang diperlukan bagi menghapuskan kekutuban bersih, secara tidak langsung ia juga menandakan darjah kesukaran

untuk kekutuban bertukar arah mengikut arah penjarangan medan elektrik seramik. Nilai  $2E_c$  bagi kedua-dua komposisi tersebut didapati beransur meningkat hingga ke kitaran terakhir. Sebagai perbandingan, peningkatan nilai  $2E_c$  bagi seramik  $x = 0.025$  adalah lebih besar ( $7.0 \text{ kV/cm} < 2E_c < 9.5 \text{ kV/cm}$ ) sepanjang berada di bawah pengaruh medan elektrik berulang. Pemerhatian ini memberi maklumat bahawa seramik BCZT  $x = 0.025$  adalah lebih sukar untuk dikutubkan dan implikasinya menyebabkan kadar pengutuban yang lebih perlahan. Keadaan ini berlaku disebabkan oleh beberapa faktor khususnya kewujudan butiran bersaiz besar. Saiz

butiran yang besar ini sering kali disertai dengan darjah keablaran yang tinggi seperti dimanifestasikan oleh bentuk gelung histeresis  $P-E$  yang lebih menegak. Bilangan domain bersaiz gergasi dalam seramik  $x = 0.025$  adalah banyak sehingga menyebabkan pertambahan pengutuban menjadi lebih sukar. Walau bagaimanapun, persaingan faktor intrinsik lain seperti kecacatan hablur yang muncul akibat pengulangan aplikasi medan elektrik bermagnitud tinggi, rekahan mikro pada pelet yang diuji dan perambatan kekosongan kekisi mungkin turut menyumbang kepada kelakuan ini (Rojas et al. 2017; Shi, Hoffman & Kumar 2020; Zhang et al. 2016).



RAJAH 3. Gelung histeresis  $P-E$  bagi seramik  $(\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x)(\text{Zr}_{0.025}\text{Ti}_{0.975})\text{O}_3$



RAJAH 4. (a)-(b) Gelung histeresis  $P$ - $E$  bagi seramik  $(\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x)(\text{Zr}_{0.025}\text{Ti}_{0.975})\text{O}_3$  dan (c)-(d) maklumat parameter utama gelung di bawah pengaruh medan elektrik berulang

#### KESIMPULAN

Kesimpulannya, perubahan mikrostruktur dan sifat elektrik seramik  $(\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x)(\text{Zr}_{0.025}\text{Ti}_{0.975})\text{O}_3$  dengan penggantian kecil unsur Ca dapat diperhatikan dalam kajian ini. Kehadiran komposisi unsur Ca menyebabkan kemerosotan ketumpatan seramik serta menyumbang kepada perubahan purata saiz butiran. Walau bagaimanapun, kehadiran unsur Ca dengan kuantiti yang lebih rendah ( $x \leq 5.0$  mol %) berupaya menambah baik sifat piezoelektrik dan feroelektrik seramik BCZT. Sifat kebangkitan turut diperhatikan dalam kajian ini bagi seramik BCZT dengan  $x = 0.025$  dan  $0.050$ . Walau bagaimanapun, kedua-duanya menunjukkan parameter feroelektrik yang berbeza dengan pertambahan kitaran medan elektrik dipercayai disebabkan oleh saiz butiran serta sumbangan daripada faktor instrinsik. Seramik BCZT dengan  $x = 0.050$  didapati menunjukkan kelakuan kebangkitan feroelektrik yang lebih baik berbanding  $x = 0.025$ .

#### PENGHARGAAN

Penulis mengucapkan terima kasih kepada UKM untuk sumbangan kewangan geran no.: GP-2021-K006551. Sekalung penghargaan juga ditujukan kepada Pusat Pengurusan Penyelidikan dan Instrumentasi (CRIM) serta Jabatan Fizik Gunaan, Fakulti Sains dan Teknologi, UKM atas kemudahan infrastruktur yang digunakan.

#### RUJUKAN

- Acosta, M., Novak, N., George, J. & Rödel, J. 2015. Mechanisms of electromechanical response in  $(1-x)\text{Ba}(\text{Zr}_{0.2}\text{Ti}_{0.8})\text{O}_3$ - $x(\text{Ba}_{0.7}\text{Ca}_{0.3})\text{TiO}_3$  ceramics. *Applied Physics Letters* 107: 142906-5.
- Bai, W.F., Chen, D.Q., Li, P., Shen, B., Zhai, J.W. & Ji, Z.G. 2016. Enhanced electromechanical properties in  $\langle 001 \rangle$ -textured  $(\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15})(\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9})\text{O}_3$  lead-free piezoceramics. *Ceramics International* 42: 3429-3436.



- Castkova, K., Maca, K., Cihlar, J., Hughes, H., Matoušek, A., Tofel, P., Bai, Y. & Button, T. 2015. Chemical synthesis, sintering and piezoelectric properties of  $\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15}\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_3$  lead-free ceramics. *Journal of the American Ceramic Society* 98(8): 2273-2280.
- Coondoo, I., Panwar, N., Alikin, D., Bdikin, I., Islam, S.S., Turygin, A., Shur, V.Y. & Kholkin A.L. 2018. A comparative study of structural and electrical properties in lead-free BCZT ceramics: Influence of the synthesis method. *Acta Materialia* 155: 331-342.
- Dai, B., Hu, X., Yin, R., Bai, W., Wen, F., Deng, J., Zheng, L., Du, J., Zheng, P. & Qin, H. 2017. Piezoelectric grain-size effects of  $\text{BaTiO}_3$  ceramics under different sintering atmospheres. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 28: 7928-7934.
- Fan, Z., Koruza, J., Rödel, J. & Tan, X. 2018. An ideal amplitude window against electric fatigue in  $\text{BaTiO}_3$ -based lead-free piezoelectric materials. *Acta Materialia* 151: 253-259.
- França, E., Romanholo, P., Simões, S., Falcão, E., Franco, A. & Machado, F. 2021. Enhancing the electrical properties of NBT ceramics by the addition of small amounts of Yb. *Journal of Alloys and Compounds* 873: 159845-7.
- Fu, D. & Itoh, M. 2015. Role of Ca off-centering in tuning ferroelectric phase transitions in  $\text{Ba}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$  system. *Ferroelectric Materials - Synthesis and Characterization*. First ed. Croatia. InTech.
- Gao, J., Hu, X., Zhang, L., Li, F., Zhang, L., Wang, Y., Hao, Y., Zhong, L. & Ren, X. 2014. Major contributor to the large piezoelectric response in  $(1-x)\text{Ba}(\text{Zr}_{0.2}\text{Ti}_{0.8})\text{O}_3-x(\text{BaCa}_{0.3})\text{TiO}_3$  ceramics: Domain wall motion. *Applied Physics Letters* 104(205): 252909-5.
- Genenko, Y.A., Glaum, J., Hoffmann, M.J. & Albe, K. 2015. Mechanisms of aging and fatigue in ferroelectrics. *Materials Science and Engineering: B* 19: 52-82.
- Guo, F.Y., Cai, W., Gao, R.L., Fu, C.L., Chen, G., Deng, X.L., Wang, Z.H. & Zhang, Q.W. 2019. Microstructure, enhanced relaxor like behavior and electric properties of  $(\text{Ba}_{0.85}\text{Ca}_{0.15})(\text{Zr}_{0.1-x}\text{Hf}_x\text{Ti}_{0.9})\text{O}_3$  ceramics. *Journal of Electronic Materials* 48: 3239-3247.
- Hao, J., Li, W., Zhai, J. & Chen, H. 2018. Progress in high-strain perovskite piezoelectric ceramics. *Materials Science and Engineering: R: Reports* 135: 1-57.
- 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.
- Jamil, N.H.J. 2022. Kebangkitan sifat feroelektrik dalam seramik-fero bebas plumbum  $\text{BaTiO}_3$  dengan ubah suai unsur Ca dan Zr. Tesis Dr. Fal, Jabatan Fizik Gunaan, Fakulti Sains dan Teknologi, Universiti Kebangsaan Malaysia (Tidak diterbitkan).
- Jamil, N.H.J., Zainuddin, Z., Jumali, M.H.H., Izzuddin, I. & Nadzir, L. 2022. Tetragonal tungsten bronze phase potential in increasing the piezoelectricity of sol-gel synthesized  $(\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Li}_x\text{NbO}_3$  ceramics. *Ceramics International* 48(7): 9324-9329.
- Jamil, N.H.J., Jumali, M.H.H., Zainuddin, Z., Izzuddin, I. & Pojprapai, S. 2019. Penentuan parameter optimum bagi rawatan pengutuban elektrik ke atas seramik-piezo ( $\text{BaTiO}_3$ ) menggunakan sistem buatan sendiri. *Sains Malaysiana* 48(2): 425-433.
- Jian, X., Lu, B., Li, D., Yao, Y., Tao, T., Liang, B., Guo, J., Zeng, Y., Chen, J. & Lu, S. 2018. Direct measurement of large electrocaloric effect in  $\text{Ba}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$  ceramics. *ACS Applied Materials & Interfaces* 44(16): 19764-19770.
- Jumali, M.H.H., Mohd, M.R., Wee, N.Y., Yahaya, M. & Salleh, M.M. 2010. Kelakuan pengesanan tekanan bagi seramik natrium bismut titanat. *Sains Malaysiana* 39(4): 621-626.
- Kang, S.J.L. 2005. *Sintering: Densification, Grain Growth and Microstructure*. First ed. Oxford: Butterworth-Heinemann.
- Kang, W., Zheng, Z., Li, Y. & Zhao, R. 2019. Study on piezoelectric, dielectric and dispersive phase transition of  $\text{BaTiO}_3\text{-BaZrO}_3\text{-CaTiO}_3$  ceramics. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics* 30(17): 16244-16250.
- Li, S.B., Wang, C.B., Li, L., Shen, Q. & Zhang, L.M. 2018. Effect of annealing temperature on structural and electrical properties of BCZT ceramics prepared by plasma activated sintering. *Journal of Alloys and Compounds* 730: 182-190.
- Liu, W. & Ren, X. 2009. Large piezoelectric effect in Pb-free ceramics. *Physical Review Letters* 103: 257-602.
- Liu, Y., Chang, Y., Sun, E., Li, F., Zhang, S., Yang, B., Sun, Y., Wu, J. & Cao, W. 2018. Significantly enhanced energy harvesting performance and superior fatigue-resistant behavior in  $[001]c$ -textured  $\text{BaTiO}_3$  based lead-free piezoceramics. *ACS Applied Materials & Interfaces* 10(37): 31488-31497.
- Liu, Y.C., Chang, Y.F., Li, F., Yang, B., Sun, Y., Wu, J., Zhang, S.T., Wang, R.X. & Cao, W.W. 2017. Exceptionally high piezoelectric coefficient and low strain hysteresis in grain-oriented  $(\text{Ba,Ca})(\text{Ti,Zr})\text{O}_3$  through integrating crystallographic texture and domain engineering. *ACS Applied Materials & Interfaces* 9: 29863-29871.
- Mane, S., Tirmali, P. & Kulkarni, S. 2018. Hybrid microwave sintering and shifting of  $T_c$  in lead-free ferroelectric composition  $x(\text{Ba}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{TiO}_3)-(1-x)(\text{BaZr}_{0.2}\text{Ti}_{0.8}\text{O}_3)$ . *Materials Chemistry and Physics* 213: 482-491.
- Mondal, T., Majee, B.P. & Das, S. 2017. A comparative study on electrical conduction properties of Sr-substituted  $\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Zr}_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_3$  ( $x = 0.00-0.15$ ) ceramics. *Ionics* 23: 2405-2416.
- Öksüz, K., Sen, S. & Sen, U. 2015. Microstructural evaluation and characterization of solid-state reaction of  $\text{B}_2\text{O}_3$  doped  $\text{BaZr}_x\text{Ti}_{1-x}\text{O}_3$  ceramics. *Journal of the Australian Ceramic Society* 51: 137-143.
- Parhi, C.C., Thirumalasetty, A.B., James, A.R. & Wuppulluri, M. 2023. Relative investigation on microwave-assisted Zr-modified  $\text{PbTiO}_3$  and  $\text{BaTiO}_3$  ferroelectric ceramics for energy storage application. *ACS Omega* 8(41): 37752-37768.
- Premkumar, S., Sarangapani, R. & Mathe, V. 2021. Understanding the A and B-site engineered lead-free  $\text{Ba}_{(1-x)}\text{Ca}_x\text{Zr}_y\text{Ti}_{(1-y)}\text{O}_3$  piezoceramics: A perspective from DFT. *Journal of Materials Chemistry C* 9: 4248-4259.

- Promsawat, M., Deluca, M. Kamposiri, S. Marungsri, B. & Pojprapai, S. 2017. Electrical fatigue behavior of lead zirconate titanate ceramic under elevated temperatures. *Journal of the European Ceramic Society* 37(5): 2047-2055.
- Rojas, V., Koruza, J., Patterson, E. A., Acosta, M., Jiang, X., Liu, N., Dietz, C. & Rödel, J. 2017. Influence of composition on the unipolar electric fatigue of  $\text{Ba}(\text{Zr}_{0.2}\text{Ti}_{0.8})\text{O}_3$ - $(\text{Ba}_{0.7}\text{Ca}_{0.3})\text{TiO}_3$  lead-free piezoceramics. *Journal of the American Ceramic Society* 100(10): 4699-4709.
- Reyes-Montero, A., Ramos-Alvarez, P., González, Amador, López-Juárez, R. & María-Elena, V. 2017. Dielectric and impedance analysis on the electrical response of lead-free  $\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Ti}_{0.9}\text{Zr}_{0.1}\text{O}_3$  ceramics at high temperature range. *Applied Sciences* 7(3): 214.
- Sagdeo, A., Nagwanshi, A., Pokhriyal, P., Sinha, A., Rajput, P., Mishra, V. & Sagdeo, P. 2018. Disappearance of dielectric anomaly in spite of presence of structural phase transition in reduced  $\text{BaTiO}_3$ : Effect of defect states within the bandgap. *Journal of Applied Physics* 123(16): 161424-8.
- Sawangwan, N., Barrel, J., Mackenzie, K. & Tunkasiri, T. 2008. The effect of Zr content on electrical properties of  $\text{Ba}(\text{Ti}_{1-x}\text{Zr}_x)\text{O}_3$  ceramics. *Applied Physics A: Materials Science and Processing* 90: 723-727.
- Shi, X., Hoffman, M. & Kumar, N. 2020. Electrical fatigue behavior of NBT-BT-xKNN ferroelectrics: Effect of phase transformations and oxygen vacancies. *Journal of Materials Chemistry C* 8: 3887-3896.
- Xu, Q. & Li, Z. 2020. Dielectric and ferroelectric behaviour of Zr-doped  $\text{BaTiO}_3$  perovskites. *Processing and Application of Ceramics* 14(3): 188-194.
- Yingwei, L. Xiangyang, C., Dapeng, Z. & Zhipeng, G. 2020. Influence of domain switching process on the electrical fatigue behavior of ferroelectrics. *Ceramics International* 46(15): 24213-24224.
- Yuan, R., Xue, D., Zhou, Y., Ding, X., Juan, L. & Xue, D. 2017. Ferroelectric, elastic, piezoelectric, and dielectric properties of  $\text{Ba}(\text{Ti}_{0.7}\text{Zr}_{0.3})\text{O}_3$ - $x(\text{Ba}_{0.82}\text{Ca}_{0.18})\text{TiO}_3$  Pb-free ceramics. *Journal of Applied Physics* 122(4): 044105.
- Zhang, Q., Cai, W., Li, Q., Gao, R., Chen, G., Deng, X., Wang, Z., Cao, X. & Fu, C. 2019. Enhanced piezoelectric response of  $(\text{Ba,Ca})(\text{Ti,Zr})\text{O}_3$  ceramics by super large grain size and construction of phase boundary. *Journal of Alloys and Compounds* 794: 542-552.
- Zhang, Y., Glaum, J., Ehmke, M., Blendell, J., Bowman, K. & Hoffman, M. 2016. High bipolar fatigue resistance of BCTZ lead-free piezoelectric ceramics. *Journal of the American Ceramic Society* 99(1): 174-182.
- Zhenhua L., Sirirat, K., Thita, S., Watcharin, J., Boonruang, M. & Soodkhet, P. 2021. A study of the electrical fatigue behavior of lead zirconate titanate for micro-actuator application in hard disk drives. *Integrated Ferroelectrics* 214(1): 11-18.
- Zolkepli, M.F.A.B. & Zainuddin, Z. 2017. Structural, magnetic and electrical properties of barium titanate and magnesium ferrite composites. *Sains Malaysiana* 46(6): 967-973.

\*Pengarang untuk surat-menyurat; email: hafizhj@ukm.edu.my