

Kesan Suhu Pensinteran terhadap Mikrostruktur dan Sifat Mekanikal Perovskit Seramik $\text{SrFe}_{0.9}\text{Ti}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ -SDC (Effect of Sintering Temperature on the Microstructure and Mechanical Property of $\text{SrFe}_{0.9}\text{Ti}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ -SDC Ceramic Perovskite)

AZREEN JUNAIDA ABD AZIZ¹, NURUL AKIDAH BAHARUDDIN^{1,*}, MAHENDRA RAO SOMALU¹, ANDANASTUTI MUCHTAR^{1,2} & SAHRIM HAJI AHMAD³

¹*Solid Oxide Fuel Cell Group, Fuel Cell Institute, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600 UKM Bangi, Selangor Darul Ehsan, Malaysia*

²*Department of Mechanical & Manufacturing Engineering, Faculty of Engineering & Built Environment, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600 UKM Bangi, Selangor Darul Ehsan, Malaysia*

³*Department of Applied Physics, Faculty of Science and Technology, Universiti Kebangsaan Malaysia, 43600, UKM Bangi, Selangor Darul Ehsan, Malaysia*

Diserahkan: 31 Januari 2022/Diterima: 20 Mac 2023

ABSTRAK

Kesan suhu sinter ke atas sifat bahan seramik perovskit $\text{SrFe}_{0.9}\text{Ti}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ -SDC dikaji di dalam penyelidikan ini. Pada asasnya, proses sinter dilakukan bagi memperkecilkan keliangan di dalam sesuatu bahan yang telah dipadatkan. Melalui kajian ini, tiga suhu digunakan untuk mengkaji kesan suhu sinter iaitu 1200, 1250, 1300 °C. Bahan seramik yang diperbuat daripada SDC terlebih dahulu dibentuk menjadi sel butang dengan mengenakan tekanan ekapaksi 5.2MPa. Dakwat seramik $5\text{SrFe}_{0.9}\text{Ti}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ -5SDC dicetak ke atas kedua-dua permukaan sel butang bagi menghasilkan sel simetri elektrod/elektrolit/elektrod. Kesemua sel ini dibakar dengan 3 suhu sinter yang berbeza. Sifat fizikal dan morfologinya dikaji. Hasil kajian ini mendapati sel simetri yang dikenakan suhu yang berbeza mempengaruhi sifat bahan tersebut. Kenaikan suhu sinter menyebabkan bahan menjadi semakin aglomerat dan keliangan semakin berkurang sehingga 24.38%. Ketumpatan bahan juga semakin meningkat dan menyebabkan bahan mudah patah. Ketahanan bahan berkurang dengan kenaikan suhu. Dalam kajian ini, bahan $5\text{SrFe}_{0.9}\text{Ti}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ -5SDC didapati sesuai disinter pada suhu 1250 °C kerana memberikan nilai keliangan, kadar penggumpalan, ketumpatan dan dan ketahanan yang baik pada ketika itu.

Kata kunci: Kekerasan; mikrostruktur; pensinteran; perovskit; seramik

ABSTRACT

Sintering temperature effects on perovskite ceramic $\text{SrFe}_{0.9}\text{Ti}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ -SDC was investigated in this research. A fact that the sintering process was carried out to reduce the porosity in the materials that have been pressed. Three different temperatures used in this research range from 1200, 1250, and 1300 °C. The button cell was developed from the ceramic material SDC with 5MPa pressure. $5\text{SrFe}_{0.9}\text{Ti}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ -5SDC ink was printed on top of the button cell on each side to build a symmetrical cell with a configuration electrode/electrolyte/electrode. All symmetrical cells were sintered at 3 different temperatures. Physical and morphology were studied. It was found that symmetrical cells with different sintering temperatures show a different character. The porosity tends to decrease up to 24.38% with the increase of sintering temperature, therefore, increasing the agglomeration and decreasing the strength of the materials. In this study, the material $5\text{SrFe}_{0.9}\text{Ti}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ -5SDC is suitable to sinter at 1250 °C and gives the best porosity, aggregation rate, and density while providing a good endurance.

Keywords: Ceramic; hardness; microstructure; perovskite; sintering

PENDAHULUAN

Perkataan sinter berasal daripada Bahasa Jerman iaitu 'Cinder' yang bermaksud bara. Perkataan cinder ini telah

diadaptasi ke dalam bahasa inggeris dengan istilah 'sinter'. Pada asasnya, proses pensinteran membawa maksud sesuatu proses pembuatan bahan daripada serbuk dengan

mengenakan haba atau pemanasan sehingga membentuk ikatan antara partikel di dalam bahan tersebut. Untuk kegunaan kejuruteraan, proses pensinteran kebiasaannya terjadi pada suhu yang masih di bawah suhu takat lebur bahan tersebut.

Menurut De Jonghe dan Rahaman (2003) suhu sinter untuk sesuatu bahan haruslah sekitar 50% hingga 75% daripada suhu takat lebur sesuatu bahan. Secara teknikalnya, dapatlah dirumuskan bahawa proses pensinteran dijalankan ke atas sesuatu bahan setelah selesai proses pembuatan bahan yang dibuat daripada serbuk dengan mengenakan tekanan dan kemudian dibakar di bawah suhu takat lebur. Proses sinter membantu mengoptimalkan sifat sesuatu bahan dengan cara mengawal saiz butiran, fasa pembentukan butiran dan fasa pembentukan pada permukaan butiran, aglomerat dan kepadatan secara relatif (Lee 1996). Antara teknologi bahan yang memerlukan kepada proses sinter adalah penghasilan bahan bagi peranti penghasil tenaga seperti bateri dan sel fuel oksida pepejal. Pembuatan bahan bagi bidang ini memerlukan kepada suhu pensinteran yang tepat bagi menghasilkan bahan yang mampu memberikan prestasi elektrokimia yang baik.

SEL FUEL OKSIDA PEPEJAL (SOFC)

Sel fuel oksida pepejal (SOFC) merupakan satu alat atau peranti untuk menukarkan tenaga elektrokimia kepada tenaga elektrik dengan hanya membebaskan sedikit karbon. SOFC disuapkan dengan bahan bakar hidrogen dan oksigen. Sel yang membentuk peranti ini terdiri daripada berbilang sel tunggal yang ditindakan untuk membentuk satu peranti. Sel tunggal pula terdiri daripada beberapa komponen seperti katod, anod dan elektrolit. Bagi aplikasi SOFC, kebiasaannya bahan yang digunakan untuk membentuk komponen katod, anod dan elektrolit diperbuat daripada bahan yang berunsurkan seramik. Keupayaan bahan seramik untuk menahan suhu yang tinggi menjadi penyebab utama bagi pemilihannya sebagai bahan asas SOFC. Bahan yang dipilih haruslah dijalankan uji kaji bagi menentukan kesemua sifat yang ada pada bahan tersebut menepati ciri yang diperlukan oleh sel SOFC. Ini juga akan memastikan setiap komponen berupaya untuk beroperasi pada ketetapan yang terbaik dan optimum.

Komponen katod bagi SOFC adalah bahagian yang menyediakan pelantar untuk reaksi elektrokimia yang melibatkan tindak balas penurunan oksigen di dalam sistem SOFC. Justeru, untuk sesuatu komponen katod

beroperasi cemerlang di dalam sistem SOFC, bahan katod tersebut haruslah memenuhi beberapa ciri penting (Tahir et al. 2021). Antara ciri penting yang perlu ada bagi sesuatu komponen katod yang baik ialah rintangan pengutuban yang rendah (Abdul Samat et al. 2019). Katod yang baik bagi sesuatu peranti SOFC juga haruslah mempunyai keliatan yang tinggi bagi membenarkan jerapan gas oksigen yang optimum dapat diperoleh semasa merentasi katod. Selain itu, katod juga perlulah memiliki kekonduksian elektrik yang tinggi berserta ketahanan pengembangan terma sepadan dengan pengembangan terma elektrolit (Baharuddin et al. 2019). Salah satu permasalahan yang wujud dalam SOFC ialah suhu operasinya yang sangat tinggi iaitu sekitar 800 °C sehingga 1000 °C (Abd Aziz et al. 2020). Suhu operasi yang tinggi ini menimbulkan pelbagai masalah seperti kos bahan yang lebih mahal dan juga kos penyelenggaraan yang tinggi. Usaha untuk mengkaji bahan baharu yang mempunyai kesesuaian untuk beroperasi dalam suhu pertengahan iaitu sekitar 600 °C sehingga 800 °C giat dijalankan (Chen et al. 2020). Bahan baharu ini perlulah mempunyai prestasi seperti mana bahan yang beroperasi pada suhu yang tinggi namun boleh diperoleh dengan harga yang lebih rendah serta mempunyai ketahanan yang lama semasa beroperasi (Baharuddin, Muchtar & Somalu 2017b). Antara bahan seramik yang masih baharu dalam kajian untuk komponen katod SOFC bersuhu sederhana ialah $\text{SrFe}_{0.9}\text{Ti}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ (Baharuddin, Muchtar & Somalu 2017b) dan $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{CoO}_{3-\delta}$ (Abdul Samat et al. 2019).

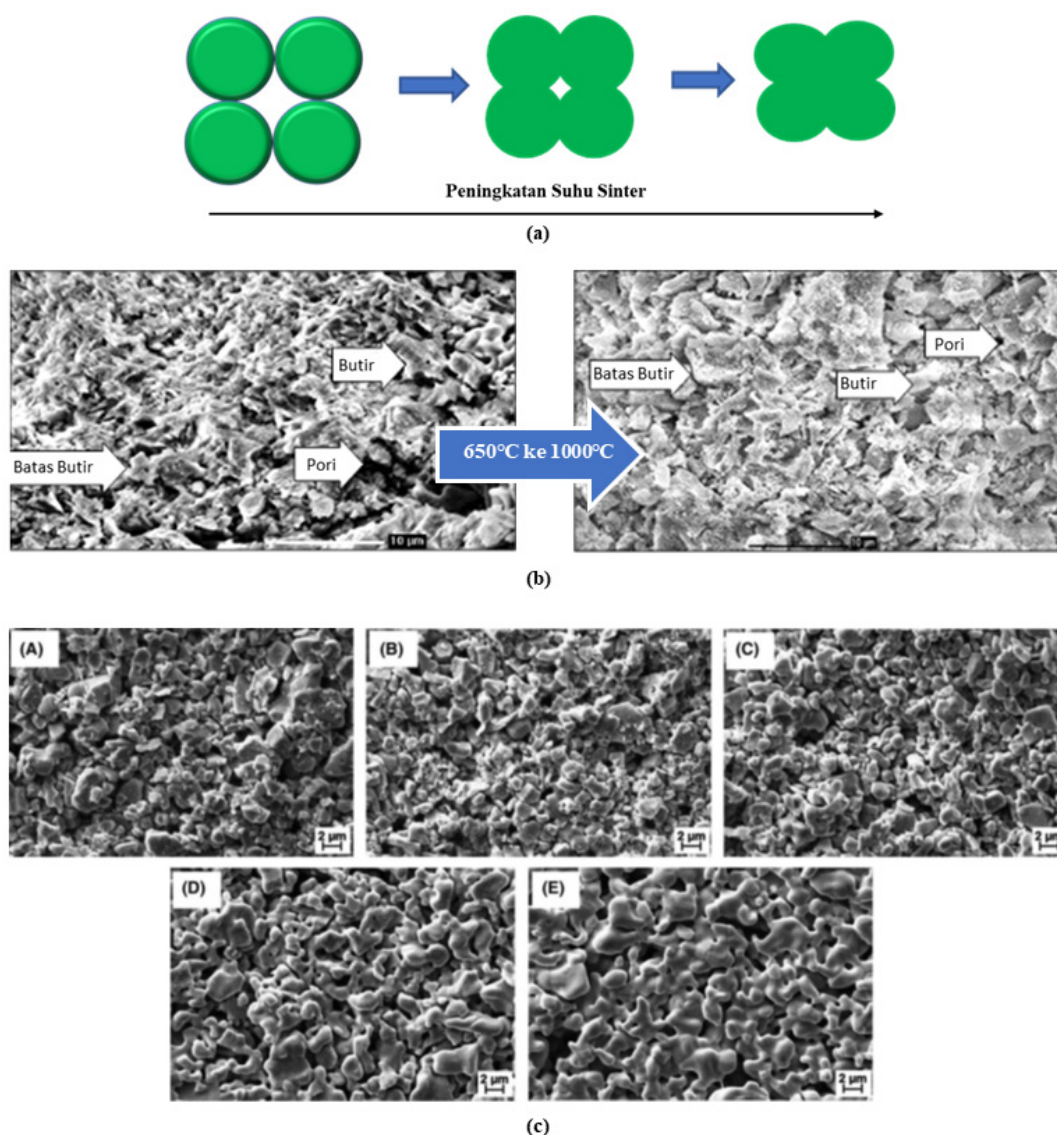
$\text{SrFe}_{0.9}\text{Ti}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$ merupakan antara bahan perovskit seramik yang masih baharu ditonjolkan untuk dijadikan sebagai komponen katod. Bahan ini bebas kobalt dan umum mengetahui kobalt adalah antara unsur yang mahal (Baharuddin, Muchtar & Somalu 2017a). Baharuddin et al. (2016) memperoleh nilai rintangan pengutuban R_p serendah 0.68 Ωcm^2 pada suhu sinter 600 °C. Bahan yang sama namun berbeza komposisi iaitu $\text{SrFe}_{0.95}\text{Ti}_{0.05}\text{O}_{3-\delta}$ pula dikaji oleh Yu et al. (2014) dan menunjukkan prestasi elektrokimia yang sangat baik dengan memperoleh nilai R_p sebanyak 0.116 Ωcm^2 dan nilai rintangan tentu luas (ASR) serendah 0.058 Ωcm^2 . Bagi elektrod SOFC, nilai ASR yang rendah daripada 1 Ωcm^2 dianggap sebagai bahan yang berpotensi tinggi untuk dijadikan katod berprestasi tinggi. Berdasarkan kajian yang lalu oleh Abdul Rahman et al. (2022), bahan ini dilihat sebagai antara bahan yang berpotensi untuk menjadi bahan baharu bagi katod SOFC pada suhu sederhana dan rendah. Ikatan antara zarah bahan

seramik hanya akan terbentuk pada suhu yang tinggi. Malah, dalam kajian oleh Abd Rahman dan Yacob (2008) menunjukkan bahan seramik yang disinter dua kali pada suhu 1100 °C sehingga 1500 °C mempunyai ikatan zarah dan kekuatan bahan yang lebih baik berbanding bahan yang hanya disinter sekali. Oleh itu, pembakaran pada suhu yang tinggi adalah salah satu keperluan untuk menghasilkan bahan seramik yang berkualiti tinggi (Rahaman 2013). Dalam kajian berkaitan SOFC, pembakaran pada suhu yang tinggi ini disebut sebagai proses pensinteran dan merupakan antara kaedah penghasilan bahan yang berkualiti tinggi (Lee 1996).

Rajah 1(a) menunjukkan gambaran mekanisme kesan perubahan suhu sinter terhadap perubahan struktur zarah sesuatu bahan. Mikrograf FESEM

(Rajah 1(b)) pula menunjukkan contoh perubahan mikrostruktur selari dengan pertambahan suhu sinter daripada suhu 650 °C kepada suhu 1000 °C (Nurhayati et al. 2013). Setelah disinter pada suhu 1000 °C, keadaan struktur zarah telah berubah menjadi lebih padat dan bergabung. Trend perubahan mikrostruktur elektrolit daripada kajian lepas ini adalah selari dengan trend yang lazimnya direkodkan untuk katod SOFC. Walau bagaimanapun, katod SOFC masih memerlukan keliangan sekitar 20-40%, menjadikan pemilihan suhu sinter yang bertepatan sebagai satu parameter yang menarik untuk dikaji.

Rajah 1(c) menunjukkan mikrograf FESEM katod yang berubah selari dengan pertambahan suhu sinter daripada 900 °C ke 1300 °C, dengan keliangan masih



RAJAH 1. (a) Gambaran mekanisme pensinteran terhadap struktur zarah, (b) perubahan mikrostruktur elektrolit apabila suhu sinter berubah dari 650 °C kepada 1000 °C (Nurhayati, Syarif & Setiawan 2013) dan (c) perubahan mikrostruktur katod apabila suhu sinter berubah dari 900 °C kepada 1300 °C

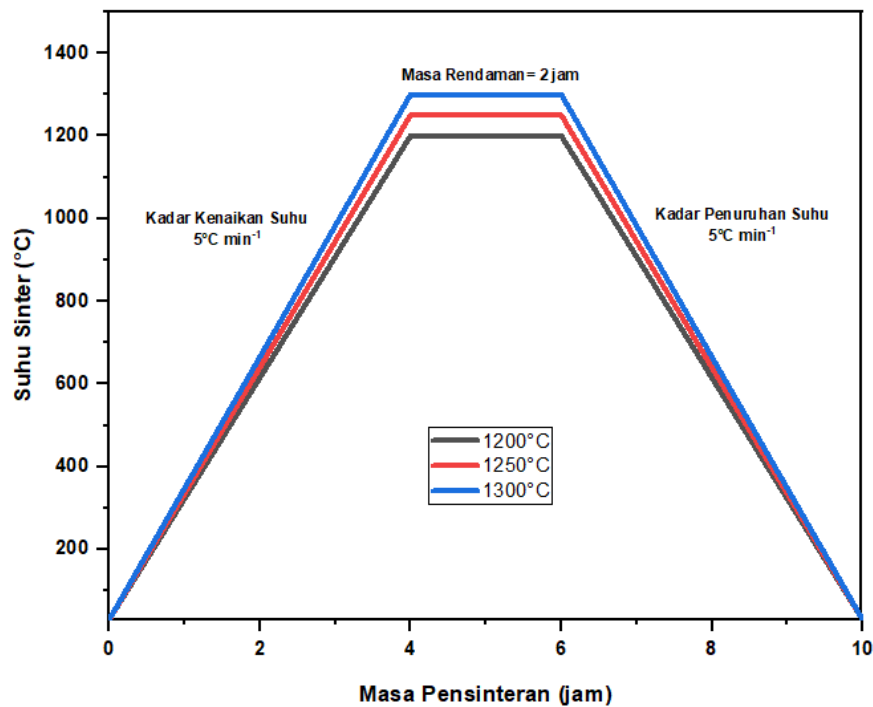
kekal wujud berbanding struktur elektrolit dalam Rajah 1(b). Pembentukan struktur zarah seperti ini sangat penting bagi katod kerana selain memerlukan ciri kekonduksian ion yang baik, struktur berliang katod masih perlu dikekalkan kerana katod SOFC turut berperanan sebagai tapak berlakunya penjerapan fuel oksigen, O_2 (Baharuddin et al. 2018). Semasa proses sinter dilakukan, zarah bahan akan menjadi semakin padat dan juga berlakunya pertumbuhan butir yang akan mengikat zarah bahan. Keadaan ini akan menyebabkan keliangan serbuk berkurang dan seterusnya mewujudkan ketumpatan yang semakin meninggi.

BAHAN DAN KAEDAH

Dalam kajian ini, serbuk katod komposit $SrFe_{0.9}Ti_{0.1}O_{3-\delta}$ (SFT)- $Sm_{0.2}Ce_{0.8}O_{2-\delta}$ (SDC) digunakan sebagai bahan elektrod manakala serbuk SDC digunakan sebagai elektrolit. Serbuk SFT komersial dibeli daripada pembekal Kceracell manakala serbuk SDC komersial dibeli dari Sigma-Aldrich (Malaysia). Kedua-dua serbuk ini dicampur dengan nisbah berat 50%:50% iaitu ringkasnya 5SFT dan 5SDC (5SFT-5SDC). Seterusnya serbuk sebatian 5SFT-5SDC yang terbentuk tadi dicampur dengan etanol sebagai medium pencampuran dan diikuti dengan proses pengisaran bebola berhalaju tinggi. Kelajuan 500 rpm digunakan dalam pengisaran yang mengambil masa selama 2 jam dengan nisbah 1:10 bebola dan serbuk.

Serbuk 5SFT-5SDC seterusnya dikalsinkan pada suhu $700\text{ }^{\circ}\text{C}$ selama 2 jam dengan kenaikan dan penurunan suhu sebanyak $5\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{minit}$. Serbuk tulen yang dihasilkan kemudiannya diproses untuk menjadi dakwat dengan menggunakan mesin penggelek tiga roda. Kemudian, 3 g serbuk SDC dikenakan tekanan ekapaksi sebanyak 5 MPa bagi menghasilkan sel butang elektrolit. Proses penekanan ini dilakukan dengan menggunakan mesin tekanan ekapaksi (Carver, USA). Seterusnya sel simetri dihasilkan dengan mencetak dakwat katod komposit 5SFT-5SDC di atas permukaan kedua-dua belah elektrolit SDC menggunakan mesin percetakan skrin dengan keluasan cetakan 1 cm^2 .

Hanya satu lapisan dakwat komposit katod 5SFT-5SDC yang dicetak pada kedua-dua bahagian sel butang. Kemudian, ketiga-tiga sel simetri yang terbentuk disinter pada tiga suhu yang berbeza iaitu $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$, $1250\text{ }^{\circ}\text{C}$ dan $1300\text{ }^{\circ}\text{C}$ menggunakan relau pembakar (Berkeley Scientific, BSK-1700X-S, USA) dengan kadar kenaikan dan kadar penurunan suhu pada $5\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{minit}$. Rajah 2 menunjukkan graf profil suhu sinter melawan masa yang dikenakan ke atas setiap sel simetri semasa proses pensinteran. Suhu sinter permulaan dan pengakhiran dengan tetapan pada relau pembakar ditetapkan pada $30\text{ }^{\circ}\text{C}$. Walaupun kebanyakan pengkaji lain menggunakan suhu permulaan pada $0\text{ }^{\circ}\text{C}$, kajian ini menggunakan suhu paling rendah relau pembakar sebagai suhu permulaan pendakian suhu dan penurunan suhu. Tempoh rendaman dimalarkan kepada 2 jam bagi



RAJAH 2. Graf profil suhu sinter melawan masa

kesemua sampel. Kesemua sel simetri ini dilakukan pencirian dengan menggunakan mesin pembelauan sinar-X (XRD), mikroskop elektron imbasan pancaran medan (FESEM) dan perisian *ImageJ* untuk mendapatkan peratusan keliangan permukaan bagi setiap sampel. Setelah itu, kesemua mikrograf keratan rentas FESEM yang diperoleh dianalisis menggunakan perisian *Digimizer* versi 6.1 (2022) bagi mendapatkan ketebalan setiap filem katod. Ketebalan diukur sehingga 6 kali bagi tujuan mendapatkan nilai purata ketebalan.

HASIL DAN PERBINCANGAN

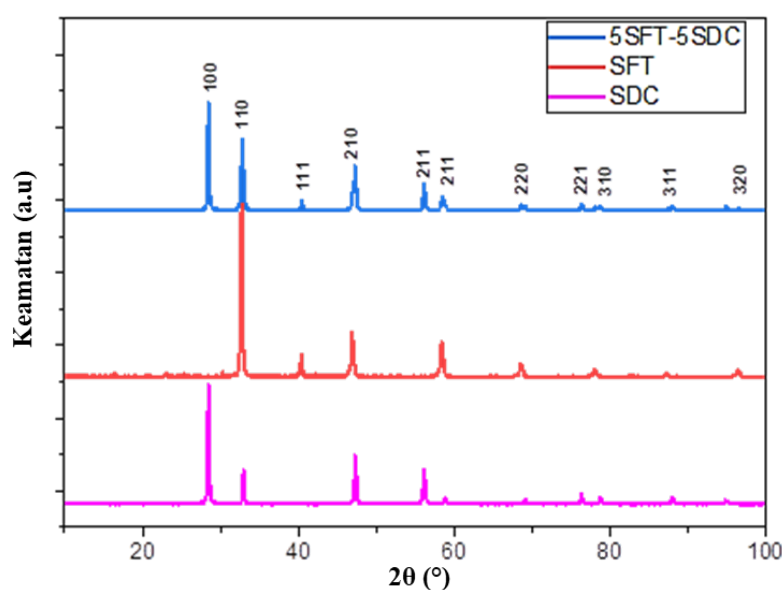
PERUBAHAN TERHADAP MIKROSTRUKTUR PERMUKAAN DAN KERATAN RENTAS SEL SIMETRI

Rajah 3 menunjukkan keputusan XRD bagi serbuk 5SFT-5SDC yang telah dihasilkan bagi kegunaan kajian ini. Pembentukan fasa berlaku dengan sempurna bagi bahan 5SFT-5SDC. Turut dimasukkan ke dalam Rajah 3 adalah keputusan XRD bagi bahan kawalan dalam kajian ini iaitu serbuk SFT dan serbuk SDC. Puncak yang terhasil bagi serbuk 5SFT-5SDC menunjukkan kesemua puncak yang diperoleh melalui serbuk kawalan SFT dan SDC. Bahan yang terhasil untuk kajian ini dapatlah dirumuskan berada dalam keadaan yang tulen tanpa kehadiran unsur lain. Oleh itu, bahan 5SFT-5SDC yang terbentuk ini dilihat sebagai terhablur dalam struktur

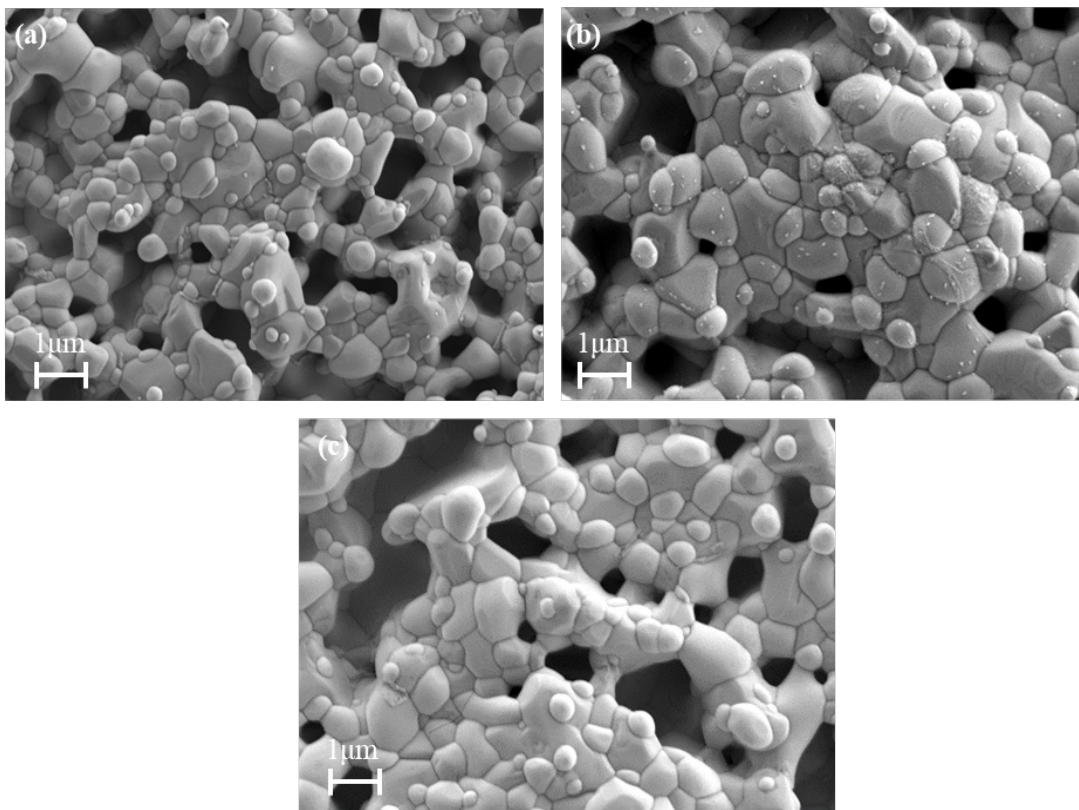
perovskit fasa tunggal berikutan tiada puncak asing yang dibaca melalui keputusan XRD. Struktur XRD bagi 5SFT-5SDC ini dikategorikan di dalam kumpulan ruang $Pm-3m$ jenis kubik. Kesemua puncak pembelauan untuk SFT induk dan SDC terbitan ditetapkan oleh kad JCPDS 01-081-0685 dan 01-075-0158.

Keputusan penghalusan Rietveld menunjukkan padanan yang baik antara corak XRD yang diperoleh dan dihitung untuk bahan 5SFT-5SDC. Keputusan bagi d-jarak adalah 2.73485Å (SFT) dan 3.13402Å (SDC) manakala kekisi-Å bagi SFT dicatatkan pada 3.8705 dan kekisi-Å bagi SDC pula adalah 5.4364. Faktor kebolehpercayaan R_{wp} dan R_p masing-masing mencatatkan nilai 4.32 dan 5.43. Justeru, kebaikan padanan (Goodness of fit, Gof) yang dihitung menggunakan formula $Gof = R_{wp}/R_p$ memberikan nilai 1.22. Nilai bagi GoF yang baik dicadangkan berada pada nilai 1 sehingga 2 (Toby 2006). Ini menunjukkan bahawa bahan 5SFT-5SDC mempunyai struktur perovskit kubik.

Mikrograf FESEM yang diperoleh dalam Rajah 4 diambil pada permukaan sel simetri. Berdasarkan pemerhatian, didapati bahawa terdapat pertambahan saiz ira bagi katod 5SFT-5SDC selari dengan pertambahan suhu sinter. Selain itu, katod yang disinter pada suhu 1200 °C memperlihatkan lebih banyak taburan zarah bersaiz kurang dari 1 µm. Apabila suhu sinter meningkat, diperhatikan bahawa saiz zarah juga bertambah (selari



RAJAH 3. Hasil analisis XRD untuk bahan 5SFT-5SDC, SFT dan SDC



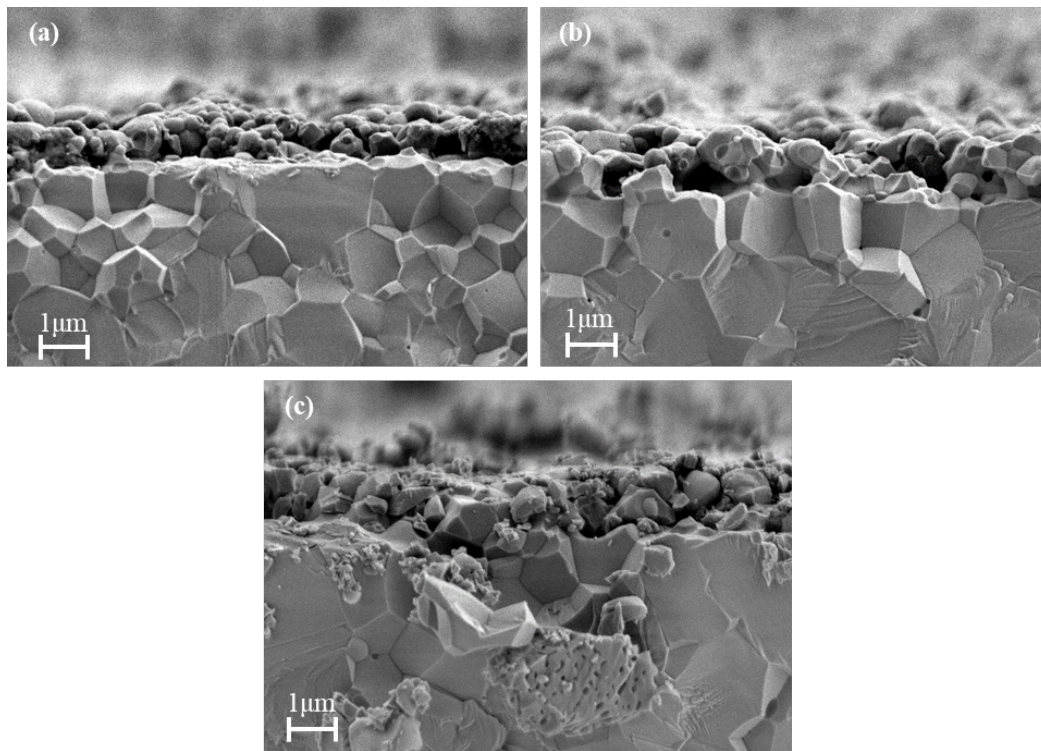
RAJAH 4. Imej FESEM permukaan katod komposit 5SFT-5SDC yang telah disinter pada suhu (a) 1200 °C (b) 1250 °C dan (c) 1300 °C

dengan peningkatan saiz ira). Mikrograf dalam Rajah 4 ini juga menunjukkan bahawa keliangan semakin berkurang apabila suhu sinter bertambah. Perbincangan berkaitan keliangan dibincangkan dengan lebih teliti dalam bahagian berikutnya.

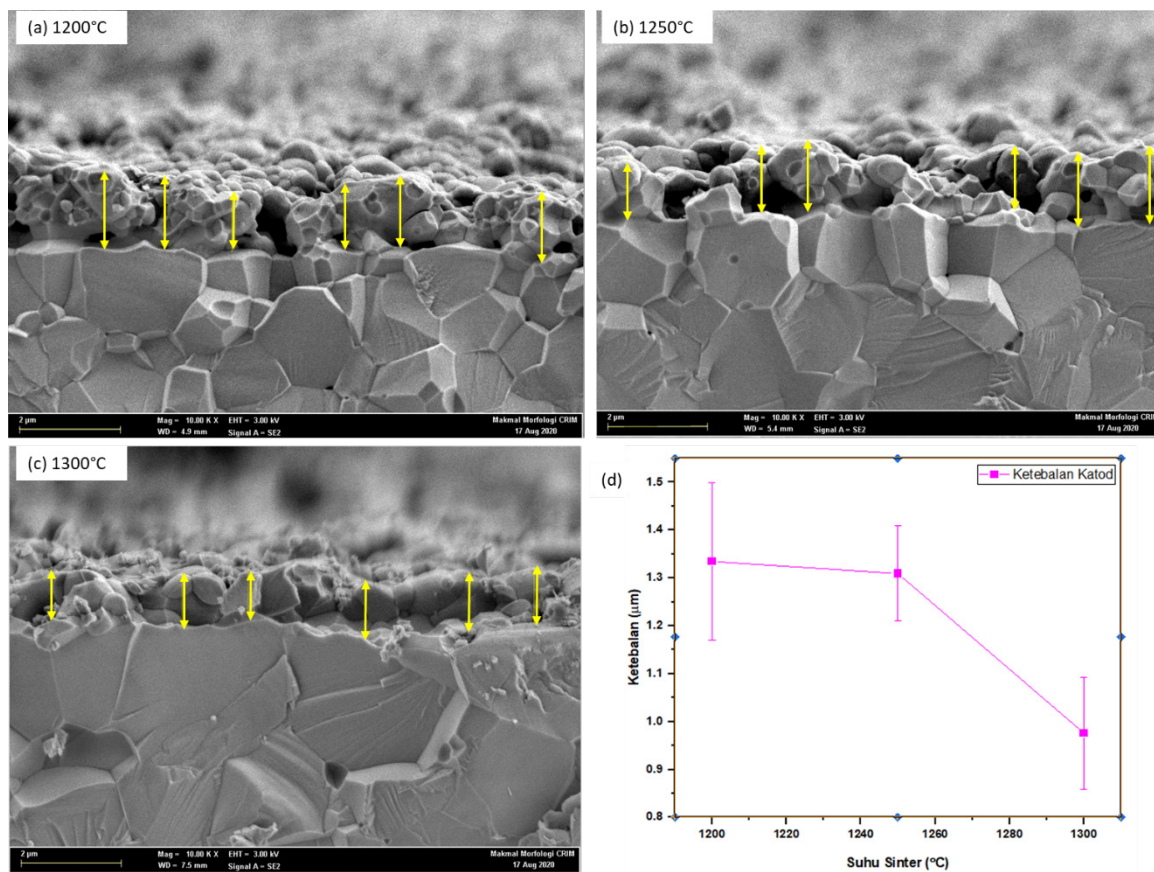
Dalam kajian yang dijalankan oleh Baharuddin, Muchtar dan Somalu (2017a), penempatan katod SrFeTiO berlaku dengan baik pada suhu 1200 °C dan mereka menjalankan kajian dengan suhu permulaan 900 °C sehingga 1300 °C. Dengan perubahan mol bahan Sr, Fe dan Ti yang digunakan dalam kajian tersebut, suhu sinter yang mewujudkan penempatan terbaik bagi bahan asas yang hampir sama dengan kajian ini. Di dalam kajian ini SFT dengan komposisi yang sama ditambah dengan bahan elektrolit SDC.

Pada suhu 1300 °C, kelihatan mikrostruktur 5SFT-5SDC dengan saiz ira yang semakin bertambah. Mikrostruktur tumpat bukanlah ciri yang sesuai sebagai katod SOFC. Katod SOFC perlu mempunyai ruang atau liang yang mencukupi untuk gas oksigen bergerak ke

sempadan tiga fasa (TPB). Liku-liku perjalanan di dalam komponen katod perlu mencukupi dan menjadi faktor penting kepada keupayaan penyerapan oksigen yang tinggi. Struktur yang melebur menyebabkan liku-liku perjalanan menjadi tinggi dan menyukarkan pergerakan ion oksida untuk ke sempadan tiga fasa. Melalui Rajah 5 iaitu mikrograf keratan rentas sel simetri 5SFT-5SDC/SDC/5SFT-5SDC, dapat dilihat ketebalan filem katod 5SFT-5SDC semakin berkurang berkadar langsung dengan kenaikan suhu sinter. Perkara ini menunjukkan berlakunya pemampatan zarah di dalam filem katod tersebut apabila suhu semakin meningkat (Shamsudin et al. 2020; Yuan et al. 2021). Untuk membuktikan dengan lebih jelas, mikrograf keratan rentas sel simetri 5SFT-5SDC/SDC/5SFT-5SDC direkodkan dengan FESEM menggunakan pembesaran 10.00 KX, EHT 3.00 kV. Rajah 6(a) hingga 6(c) menunjukkan skala pembesaran tersebut. Rajah 6(d) pula menunjukkan ketebalan filem katod diplot melawan suhu sinter. Penurunan ketebalan filem katod dapat dilihat dengan jelas melalui graf ini. Jadual 1



RAJAH 5. Gambarajah keratan rentas sel simetri yang disinter pada suhu (a) 1200 °C, (b) 1250 °C dan (c) 1300 °C



RAJAH 6. Pengukuran ketebalan film katod dengan menggunakan mikrograf keratan rentas sel simetri terbantu perisian *Digimizer* bagi sampel yang disinter pada suhu (a) 1200 °C, (b) 1250 °C, (c) 1300 °C dan (d) graf ketebalan melawan suhu sinter

menyenaikan keseluruhan ketebalan yang telah diukur menggunakan perisian *Digimizer*. Enam bacaan diambil bagi setiap imej dan purata (min) bagi suhu sinter masing-masing untuk 1200, 1250 dan 1300 °C adalah 1.33, 1.31 dan 0.98 μm . Ketebalan purata ini membuktikan bahawa berlaku pemampatan zarah sejajar dengan kenaikan suhu sinter. Ini menyebabkan ketebalan filem katod menjadi semakin berkurangan apabila suhu sinter dinaikkan.

Berdasarkan Rajah 5, pada suhu 1300 °C, terdapat runtuh kecil berlaku pada struktur elektrolit SDC yang menyebabkan lapisan filem katod menimbun ke dalam runtuh dan menyebabkan berlakunya perlekakan pada permukaan filem katod yang tidak dapat dilihat dengan mata kasar. Perkara ini berlaku kerana proses memotong sampel tidak dilakukan dengan menggunakan pemotong laser berbanding dengan dua lagi sampel yang disinter pada suhu 1200 °C dan 1250 °C berikutan kerosakan alat pemotong laser. Di dalam Rajah 6 pula, apabila imej difokuskan dengan lebih dekat, runtuh yang terjadi di bahagian tengah sampel sudah tidak terlihat. Melalui gambarajah yang dihasilkan oleh FESEM, kecacatan yang terhasil kepada sesuatu bahan yang dihasilkan dapat dikenal pasti.

PERUBAHAN TERHADAP KELIANGAN BAHAN

Suhu yang digunakan untuk melakukan proses pensinteran dilihat banyak mempengaruhi keliangan filem katod komposit dalam kajian ini. Analisis dilakukan ke atas keliangan bahan seramik 5SFT-5SDC dengan anggapan semua butir-butir bertabur secara seragam dan merata ke seluruh permukaan elektrolit SDC, ia juga dianggap bertabur seragam sehingga ke dasar filem.

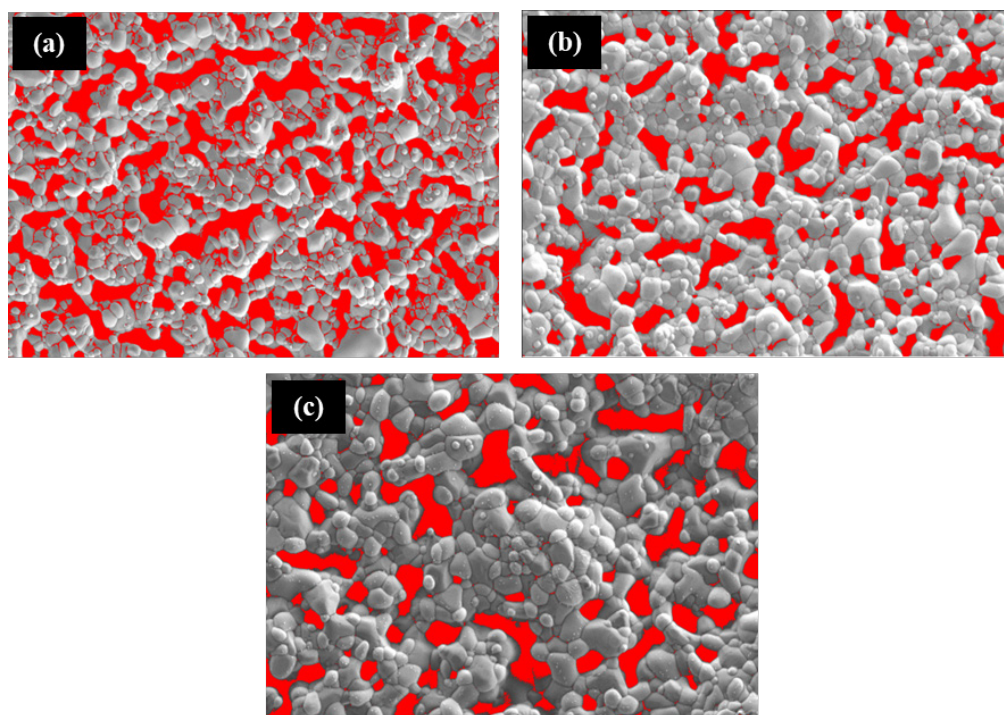
Bahan 5SFT-5SDC dilihat berinteraksi sejajar dengan kenaikan suhu sinter. Pada peringkat awal suhu sinter 1200 °C, zarah-zarah bahan seramik komposit ini dilihat mula berinteraksi antara satu sama lain dan mewujudkan percantuman. Pada suhu 1250 °C, zarah-zarah ini dilihat berhubungan dengan baik. Namun, ketika suhu dinaikkan ke 1300 °C, sempadan ira semakin membesar yang menutup liang-liang dan mewujudkan mikrostruktur padat.

Bahan seramik ini menjadi semakin aglomerat dan bergumpal serta berkadar langsung dengan peningkatan suhu seterusnya mengakibatkan saiz keliangan semakin berkurangan. Andaian dibuat sekiranya suhu dinaikkan dengan lebih tinggi daripada 1300 °C, ruang keliangan antara zarah akan terus menghilang. Hal ini memberi kesan negatif kepada laluan pengangkut gas oksigen terutamanya di komponen katod SOFC. Pengurangan kadar angkutan gas oksigen akan membawa kepada penurunan kebarangkalian tindak balas penurunan oksigen untuk berlaku (Flura et al. 2015; He et al. 2013). Perisian *Image-J* digunakan untuk mengkaji keliangan yang wujud pada permukaan sel simetri. Melalui perisian ini, jumlah keliangan dapat dihitung dengan lebih tepat. Rajah 7 menunjukkan kadar keliangan yang diperolehi di permukaan sel simetri dengan bahan elektrod 5SFT-5SDC yang disinter pada suhu yang berbeza. Imej daripada mikrograf FESEM digunakan bagi menganalisis menggunakan perisian *Image-J* bagi tujuan pengiraan keliangan permukaan yang wujud.

Melalui keputusan yang diberikan oleh perisian *Image-J*, filem yang disinter pada suhu 1200 °C memberikan keliangan sebanyak 34.70% dan merupakan keliangan tertinggi bagi ketiga-tiga filem yang disinter

JADUAL 1. Nilai purata ketebalan yang diukur dengan perisian *Digimizer* bagi filem katod dengan suhu sinter berbeza

Suhu sinter (°C)	Tebal 1 (μm)	Tebal 2 (μm)	Tebal 3 (μm)	Tebal 4 (μm)	Tebal 5 (μm)	Tebal 6 (μm)	Min	Sisihan Piawai
1200	1.07	1.32	1.54	1.26	1.35	1.46	1.33	0.16
1250	1.21	1.31	1.22	1.30	1.48	1.33	1.31	0.10
1300	1.04	0.85	1.05	1.11	0.82	0.99	0.98	0.12



RAJAH 7. Keliangan yang diukur menggunakan perisian *ImageJ* pada suhu (a) 1200 °C, (b) 1250 °C dan (c) 1300 °C

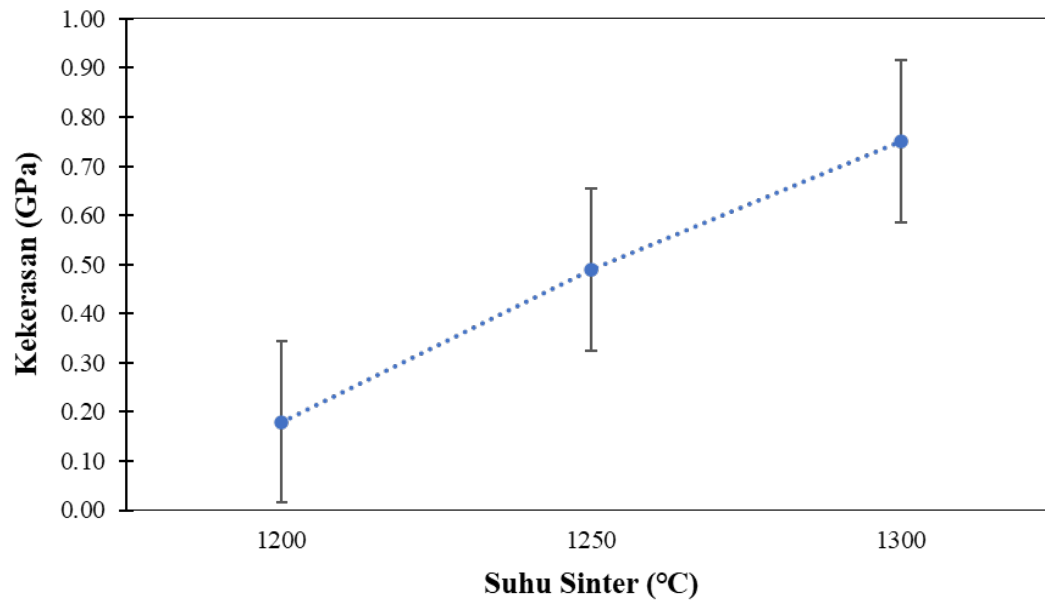
pada suhu yang berbeza. Keliangan ini masih berada dalam julat yang diterima sebagai keliangan yang optimum bagi sesuatu katod SOFC. Julat yang dinyatakan baik bagi sesuatu katod SOFC ialah antara 20 sehingga 40% (Baharuddin et al. 2016; Bandopadhyay & Nagabhushana 2003; Billemar 2014). Pada suhu 1250 °C, *Image-J* memberikan keliangan yang dibentuk oleh 5SFT-5SDC adalah sebanyak 28.29%. Keliangan ini juga berada dalam julat optimum. Kadar keliangan bagi bahan 5SFT-5SDC diperhatikan semakin menurun dengan menaiknya suhu pensinteran. Pada suhu sinter 1300 °C, keliangan yang dicatatkan adalah pada kadar 24.38% (Jadual 2). Secara amnya, kesemua suhu sinter yang dikaji ini menunjukkan keliangan yang terbentuk bagi bahan 5SFT-5SDC berada dalam julat yang baik. Secara teorinya, kekonduksian elektrik akan dapat berlaku pada paras optimum dengan keliangan yang ditunjukkan pada ketiga-tiga suhu sinter bagi bahan 5SFT-5SDC. Oleh itu, pemilihan suhu sinter yang terbaik perlulah disandarkan kepada faktor yang lain selain daripada hanya melihat kepada faktor keliangan.

Keliangan mempengaruhi liku-liku perjalanan ion oksigen sepanjang perjalanan merentas katod menuju

ke sempadan tiga fasa antara katod/elektrod. Keliangan yang diperlukan oleh katod SOFC hanyalah sebanyak 20-40% sahaja. Keliangan yang tinggi menyebabkan wujud banyak ruang kosong untuk ion oksigen bergerak melaluinya. Namun, keliangan yang tinggi akan menyebabkan struktur sesuatu katod menjadi lemah. Keliangan yang terlalu rendah pula menyebabkan laluan ion oksigen sepanjang katod menuju ke elektrolit menjadi berliku dan menyebabkan masa perjalanan lebih panjang. Keliangan yang terlalu rendah juga menyebabkan struktur bahan katod tidak kuat dan mudah pecah. Melalui kajian lain yang menggunakan SFT-SDC sebagai bahan kajian, prestasi ASR terbaik sebanyak 0.12 Ωcm^2 diperoleh menerusi keliangan 22.87% pada suhu sinter 1250 °C (Abd Aziz et al. 2022). Justeru, terbukti bahawa keliangan katod penting dalam menyediakan pelantar yang sesuai untuk pergerakan ion oksigen bagi memperoleh prestasi elektrokimia yang optimum.

PERUBAHAN TERHADAP SIFAT MEKANIKAL BAHAN

Semakin tinggi kandungan liang di dalam sesuatu struktur, semakin berkurang kekerasan struktur tersebut (Tang & Gong 2013). Sifat mekanikal seperti



RAJAH 8. Kekerasan sel simetri pada suhu sinter yang berbeza

kekerasan juga sama penting dengan sifat keliangan bagi katod SOFC. Hal ini berikutan operasi sebenar SOFC memerlukan kesemua komponen utama seperti anod, elektrolit dan katod mempunyai ketahanan mekanikal bagi mengelakkan daripada berlakunya degradasi stak atau sel (Ramadhani et al. 2017).

Risiko degradasi adalah disebabkan oleh tekanan terma dan beban tekanan mekanikal daripada susun atur tindanan stak (Mangalaraja et al. 2010). Walaupun ciri kekerasan lebih dominan untuk dimiliki oleh komponen elektrolit dalam memastikan ia berfungsi sebagai lapisan kedap gas yang menghalang pencampuran gas H_2 dan O_2 daripada berlaku (Wincewicz & Cooper 2005), komponen katod tidak terkecuali daripada keperluan kepada sifat kekerasan ini (Tekeli & Gürü 2007). Penyelidik terdahulu telah mencadangkan nilai kekerasan komponen yang bersesuaian iaitu 3.55 GPa bagi elektrolit, manakala elektrod di bawah 1 GPa (Fan et al. 2013; Shaikh et al. 2016).

Ujian kekerasan Vickers dilakukan ke atas kesemua sel simetri bagi mengetahui kekerasan setiap katod 5SFT-5SDC yang dikenakan suhu sinter yang berbeza. Sepanjang analisis dilakukan, beban dimalarkan kepada 98.07 mN dengan tempoh perlekukan selama 10 saat. Pengiraan kekerasan filem katod diperoleh dengan menggunakan persamaan $H_v = 1.854P/d^2$ dengan P adalah beban berat dan d adalah panjang diagonal (mm). Nilai kekerasan diperoleh dalam unit H_v dengan nilai pekali penukar iaitu 0.009807 (Aydın et al. 2015; Mahato et al. 2013). Berdasarkan graf ketumpatan pada Rajah 8, nilai kekerasan filem katod 5SF9T1-5SDC meningkat dengan meningkatnya suhu sinter. Penunjuk ini diimbangi dengan menurunnya kadar keliangan. Ini sejajar dengan teori bahawa kekerasan akan bertambah apabila keliangan semakin berkurang disebabkan oleh kesan kepadatan struktur bahan.

JADUAL 2. Nilai keliangan dan kekerasan pada suhu sinter berbeza

Suhu sinter (°C)	Purata keliangan (%)	Kekerasan (GPa)
1200	34.70	0.18
1250	28.29	0.49

KESIMPULAN

Menerusi kajian ini, melihat kepada ciri fizikal dan mikrostruktur yang diperoleh, suhu sinter yang terbaik bagi perovskit komposit 5SFT-5SDC diperoleh pada suhu 1250 °C. Pada suhu ini, kadar keliangan menepati peratusan terbaik yang dicadangkan bagi komponen katod SOFC iaitu sebanyak 28.29%. Selain itu, kekerasan terbaik juga diperoleh pada suhu sinter ini iaitu 0.49 GPa. Kajian ini membuktikan kepentingan suhu sinter dititikberatkan dalam proses awal pembuatan bahan serbuk terutamanya bagi bahan seramik yang akan membentuk komponen sel SOFC. Peningkatan suhu sinter ternyata memberikan kesan fizikal dan morfologi terhadap sesuatu bahan dan seterusnya akan mempengaruhi kualiti bahan yang dihasilkan. Oleh itu, sewajarnya, analisis suhu sinter dijadikan kajian awalan yang perlu dilaksanakan didalam setiap kajian yang melibatkan bahan pepejal dan serbuk.

PENGHARGAAN

Sekalung penghargaan buat Universiti Kebangsaan Malaysia atas tajaan projek melalui geran penyelidikan GUP-2020-080. Penghargaan juga diberikan kepada Institut Sel Fuel UKM dan Pusat Pengurusan Penyelidikan & Instrumentasi UKM atas kemudahan menjalankan analisis sampel bagi kajian ini.

RUJUKAN

- Abd.Rahman, H. & Yacob, D. 2008. *Effect of Double Sintering on the Properties of Porous Ceramic*. https://www.researchgate.net/publication/277798322_Effect_of_double_sintering_on_the_properties_of_porous_ceramic
- Abdul Rahman, N.F., Yusop, U.A., Lowrance, Y.N., Abd. Rahman, H. Azmi, M.A., Mahzan, S. & Ismail, A. 2022. Formulation and characterisation of LSCF/YSZ-SDC and LSCF/YSZ-SDCC dual composite cathodes for intermediate- temperature solid oxide fuel cell. *Malaysian Journal of Analytical Sciences* 26(3): 600-612.
- Abd Aziz, A.J., Baharuddin, N.A., Somalu, M.R. & Muchtar, A. 2020. Review of composite cathodes for intermediate-temperature solid oxide fuel cell applications. *Ceramics International* 46(15): 23314-23325.
- Abdul Samat, A., Rao Somalu, M., Muchtar, A., Akidah Baharuddin, N. & Osman, N. 2019. Optimisation of screen-printed $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{CoO}_{3-\delta}$ cathode film for intermediate temperature proton-conducting solid oxide fuel cell application. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science* 268(1): 012137.
- Aydn, B., Pamir, T., Baltaci, A., Orman, M.N. & Turk, T. 2015. Effect of storage conditions on microhardness of crown enamel and dentin. *European Journal of Dentistry* 9(2): 262-266.
- Azreen Junaida Abd Aziz, Nurul Akidah Baharuddin, Mahendra Rao Somalu & Andanastuti Muchar. 2022. Layering optimization of the $\text{SrFe}_{0.9}\text{Ti}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}-\text{Ce}_{0.8}\text{Sm}_{0.2}\text{O}_{1.9}$ composite cathode. *Molecules* 27(8): 2549.
- Baharuddin, N.A., Muchtar, A. & Somalu, M.R. 2017a. Preparation of $\text{SrFe}_{0.5}\text{Ti}_{0.5}\text{O}_{3-\delta}$ perovskite-structured ceramic using the glycine-nitrate combustion technique. *Materials Letters* 194: 197-201.
- Baharuddin, N.A., Muchtar, A. & Somalu, M.R. 2017b. Short review on cobalt-free cathodes for solid oxide fuel cells. *International Journal of Hydrogen Energy* 42: 9149-9155.
- Baharuddin, N.A., Muchtar, A., Somalu, M.R., Kalib, N.S. & Raduwan, N.F. 2019. Synthesis and characterization of cobalt-free $\text{SrFe}_{0.8}\text{Ti}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$ cathode powders synthesized through combustion method for solid oxide fuel cells. *International Journal of Hydrogen Energy* 44(58): 30682-30691.
- Baharuddin, N.A., Somalu, M.R., Anwar, M., Ali, M., Abdul, S., Abdul, K. & Joelle, H. 2018. Effects of sintering temperature on the structural and electrochemical properties of $\text{SrFe}_{0.5}\text{Ti}_{0.5}\text{O}_{3-\delta}$ perovskite cathode. *International Journal of Applied Ceramic Technology* 15: 338-348.
- Baharuddin, N.A., Muchtar, A., Rao Somalu, M., Sulong, A.B. & Abdullah, H. 2016. Pengaruh suhu sinter terhadap prestasi elektrokimia katod komposit sel bahan. *Sains Malaysiana* 45(3): 459-465.
- Bandopadhyay, S. & Nagabhushana, N. 2003. *Crack Growth Analysis of Solid Oxide Fuel cell Electrolytes*. United States. <https://doi.org/10.2172/822680>
- Billemar, J. 2014. How anode porosity affects the performance of a solid oxide fuel cell. Chalmers University of Technology, Goteborg, Sweden (Unpublished).
- Chen, X., Wang, J., Liang, Q., Sun, X., Zhu, X., Zhou, D. & Meng, J. 2020. $\text{Pr}_2\text{NiO}_4-\text{Pr}_{0.2}\text{Ce}_{0.8}\text{O}_{1.9}$ composite cathode as a potential cathode material for intermediate temperature solid oxide fuel cells. *Solid State Sciences* 100: 106108.
- De Jonghe, L.C. & Rahaman, M.N. 2003. 4.1 Sintering of ceramics. *Handbook of Advanced Ceramics: Materials, Applications, Processing and Properties* 1-2: 187-264.
- Fan, X., Case, E.D., Yang, Q. & Nicholas, J.D. 2013. Room temperature hardness of gadolinia-doped ceria as a function of porosity. *Journal of Materials Science* 48(20): 6977-6985.
- Flura, A., Nicollet, C., Fourcade, S., Vibhu, V., Rougier, A., Bassat, J.M. & Grenier, J.C. 2015. Identification and modelling of the oxygen gas diffusion impedance in SOFC porous electrodes: Application to $\text{Pr}_2\text{NiO}_4+\delta$. *Electrochimica Acta* 174: 1030-1040.

- He, W., Zou, J., Wang, B., Vilayurganapathy, S., Zhou, M., Lin, X., Zhang, K.H.L., Lin, J., Xu, P. & Dickerson, J.H. 2013. Gas transport in porous electrodes of solid oxide fuel cells: A review on diffusion and diffusivity measurement. *Journal of Power Sources* 237: 64-73.
- Lee, W.E. 1996. Ceramic processing and sintering. *International Materials Reviews* 41(1): 36-37.
- Mahato, N., Sharma, S., Keshri, A.K., Simpson, A., Agarwal, A. & Balani, K. 2013. Nanomechanical properties and thermal conductivity estimation of plasma-sprayed, solid-oxide fuel cell components: Ceria-doped, yttria-stabilized zirconia electrolyte. *The Journal of The Minerals, Metals & Materials Society* 65(6): 749-762.
- Mangalaraja, R.V., Ananthakumar, S., Schachtsiek, A., López, M., Camurri, C.P. & Avila, R.E. 2010. Synthesis and mechanical properties of low temperature sintered, Sm³⁺ doped nanoceria electrolyte membranes for IT-SOFC applications. *Materials Science and Engineering: A* 527(16-17): 3645-3650.
- Nurhayati, S., Syarif, D.G. & Setiawan, A. 2013. Pengaruh suhu sinter terhadap karakteristik keramik calsia stabilized zirconia dengan penambahan natrium karbonat untuk elektrolit padat. *Indonesian Journal of Materials Science* 14(2): 99-102.
- Rahaman, M.N. 2013. *Sintering of Ceramics*. 1st ed. Boca Raton: CRC Press.
- Ramadhani, F., Hussain, M.A., Mokhlis, H. & Hajimolana, S. 2017. Optimization strategies for Solid Oxide Fuel Cell (SOFC) application: A literature survey. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 76: 460-484.
- Shaikh, S.P.S., Somalu, M.R. & Muchtar, A. 2016. Nanostructured Cu-CGO anodes fabricated using a microwave-assisted glycine-nitrate process. *Journal of Physics and Chemistry of Solids* 98: 91-99.
- Shamsudin, Z., Mesri, M., Hasan, R., Mustafa, Z., Mohamad Juoi, J., Kejuruteraan Pembuatan, F. & Kejuruteraan Mekanikal, F. 2020. Effect of sintering temperature on physical properties of sintered green glass ceramic composite (GCC). *Proceedings of Mechanical Engineering Research Day 2020*. pp. 89-91.
- Tahir, N.N.M., Baharuddin, N.A., Samat, A.A., Osman, N. & Somalu, M.R. 2021. A review on cathode materials for conventional and proton-conducting solid oxide fuel cells. *Journal of Alloys and Compounds* 894: 162458.
- Tang, Q. & Gong, J. 2013. Effect of porosity on the microhardness testing of brittle ceramics: A case study on the system of NiO-ZrO₂. *Ceramics International* 39(8): 8751-8759.
- Tekeli, S. & Gürü, M. 2007. Indentation fracture toughness and hardness of solid oxide fuel cell electrolyte material. *Key Engineering Materials* 336-338: 2418-2421.
- Toby, B.H. 2006. R factors in Rietveld analysis: How good is good enough? *Powder Diffraction* 21(1): 67-70.
- Wincewicz, K.C. & Cooper, J.S. 2005. Taxonomies of SOFC material and manufacturing alternatives. *Journal of Power Sources* 140(2): 280-296.
- Yu, X., Fan, J. & Xue, L. 2014. Performance optimization of SrFe_{0.95}Ti_{0.05}O_{3-δ} cathode for intermediate temperature SOFC. *Ceramics International* 40(8): 13627-13634.
- Yuan, X., Qu, X., Yin, H., Feng, Z., Tang, M., Yan, Z. & Tan, Z. 2021. Effects of sintering temperature on densification, microstructure and mechanical properties of Al-based alloy by high-velocity compaction. *Metals* 11(2): 218.

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