



UNIVERSIDADE FEDERAL DO CEARÁ
CENTRO DE TECNOLOGIA
DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA DE TELEINFORMÁTICA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA DE
TELEINFORMÁTICA

SAMUEL OLIVEIRA SATURNO

EFEITOS DA ADIÇÃO DE TiO_2 NAS PROPRIEDADES
ELÉTRICAS DA MATRIZ $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ E SUAS
APLICAÇÕES EM RESSOADORES DIELÉTRICOS
(BANDA C)

FORTALEZA – CE

2025

SAMUEL OLIVEIRA SATURNO

**EFEITOS DA ADIÇÃO DE TiO_2 NAS PROPRIEDADES
ELÉTRICAS DA MATRIZ $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ E SUAS
APLICAÇÕES EM RESSOADORES DIELÉTRICOS
(BANDA C)**

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia de Teleinformática da Universidade Federal do Ceará, como requisito parcial à obtenção do título de Doutor em Engenharia de Teleinformática. Área de concentração: Eletromagnetismo Aplicado

Orientador: Prof. Dr. Antônio Sérgio Bezerra Sombra

FORTALEZA – CE

2025

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação
Universidade Federal do Ceará
Sistema de Bibliotecas

Gerada automaticamente pelo módulo Catalog, mediante os dados fornecidos pelo(a) autor(a)

S1e SATURNO, SAMUEL OLIVEIRA.
EFEITOS DA ADIÇÃO DE TiO₂ NAS PROPRIEDADES ELÉTRICAS DA MATRIZ Sr₂TiSi₂O₈ E
SUAS APLICAÇÕES EM RESSOADORES DIELÉTRICOS (BANDA C) / SAMUEL OLIVEIRA
SATURNO. – 2025.
183 f. : il. color.

Tese (doutorado) – Universidade Federal do Ceará, Centro de Tecnologia, Programa de Pós-Graduação
em Engenharia de Teleinformática, Fortaleza, 2025.
Orientação: Profa. Dra. ANTÔNIO SÉRGIO BEZERRA SOMBRA.

1. Sr₂TiSi₂O₈. 2. micro-ondas. 3. radiofrequência. 4. DRA. 5. simulação numérica. I. Título.
CDD 621.38


SAMUEL OLIVERA SATURNO

**EFEITOS DA ADIÇÃO DE TiO₂ NAS PROPRIEDADES
ELÉTRICAS DA MATRIZ Sr₂TiSi₂O₈ E SUAS
APLICAÇÕES EM RESSOADORES DIELÉTRICOS
(BANDA C)**


Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia de Teleinformática da Universidade Federal do Ceará, como requisito parcial à obtenção do título de Doutor em Engenharia de Teleinformática.

Aprovada em 26/02/2025


BANCA EXAMINADORA

Documento assinado digitalmente
 **ANTONIO SERGIO BEZERRA SOMBRA**
Data: 27/02/2025 09:42:56-0300
Verifique em <https://validar.iti.gov.br>


ANTONIO SERGIO BEZERRA SOMBRA
UFC - Orientador

Documento assinado digitalmente
 **JOSE CLAUDIO DO NASCIMENTO**
Data: 27/02/2025 12:16:09-0300
Verifique em <https://validar.iti.gov.br>


JOSE CLAUDIO DO NASCIMENTO
UFC - Examinador Interno

Documento assinado digitalmente
 **JOSE EUCLIDES GOMES DA SILVA**
Data: 28/02/2025 18:37:44-0300
Verifique em <https://validar.iti.gov.br>


JOSE EUCLIDES GOMES DA SILVA
UFC - Examinador Externo ao Programa

Documento assinado digitalmente
 **BARTOLOMEU CRUZ VIANA NETO**
Data: 27/02/2025 18:58:47-0300
Verifique em <https://validar.iti.gov.br>

BARTOLOMEU CRUZ VIANA NETO
UFPI - Examinador Externo à Instituição

Documento assinado digitalmente
 **MARCELO LEITE LYRA**
Data: 28/02/2025 11:26:39-0300
Verifique em <https://validar.iti.gov.br>

MARCELO LEITE LYRA
UFAL - Examinador Externo à Instituição

Documento assinado digitalmente
 **PEDRO VALENTIM DOS SANTOS**
Data: 27/02/2025 21:12:40-0300
Verifique em <https://validar.iti.gov.br>

PEDRO VALENTIM DOS SANTOS
UFAL - Examinador Externo à Instituição

Agradecimentos

A jornada do aprendizado é desafiadora e fascinante. Tenho muitos nomes para agradecer, afinal de contas, se cheguei até este momento, significa que tive apoio. Agradeço ao meu bom Deus, que nunca me desamparou e sempre me fortaleceu nas árduas batalhas que travei ao longo desse percurso.

À minha querida mãe, Maria da Conceição Oliveira Saturno, que me nutriu e encaminhou nas idades mais tenras, enchendo-me de afeto e amor, bases fundamentais para minha vida.

Agradeço à minha família, que sempre esteve ao meu lado nos momentos mais difíceis da minha trajetória acadêmica, ensinando-me, com atos e palavras, que o mundo é um campo de oportunidades e que devemos lutar para conquistar o melhor que a vida tem a oferecer.

Meus sinceros agradecimentos ao Prof. Dr. Antônio Sérgio B. Sombra, pela orientação, paciência, dedicação, empatia e total apoio às atividades desenvolvidas ao longo desta pós-graduação, cedendo espaço no laboratório, apoio de professores e colegas para o desenvolvimento de novas pesquisas e me deixando confiante quanto ao meu espaço no laboratório LOCEM para que eu pudesse desenvolver minhas pesquisas.

Aos caros professores do Programa de Pós-Graduação em Engenharia de Teleinformática (PPGETI), pela contribuição e atenção dedicadas.

Aos professores participantes da banca examinadora, pelas valiosas colaborações e sugestões.

À família LOCEM, na pessoa de Antônio Jefferson Oliveira da Silva, Daniel Barros de Freitas, Diego da Mota Colares, Felipe Felix do Carmo, Francisco Alekson Chaves Nóbrega, Francisco Enilton Alves Nogueira, João Paulo Costa do Nascimento, Juscelino Chaves Sales, Marcelo Antônio Santos da Silva, Roterdan Fernandes Abreu, Sebastião Júnior Teixeira Vasconcelos, Samantha Alves Botelho e Tallison Oliveira Abreu. Sem a ajuda, colaboração, companheirismo, parceria e muita paciência de todos vocês, este trabalho seria impossível. Muito obrigado a todos.

À Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES) e ao Programa de Doutorado Acadêmico para Inovação (DAI), pelo apoio ao curso de pós-graduação em Engenharia de Teleinformática.

“Não importa o quanto
devagar você vá, desde que
não pare.”

Confúcio

Resumo

Neste trabalho, apresentamos o estudo das propriedades elétricas na região de radiofrequência (RF) ($f < 300\text{MHz}$) e micro-ondas (MW) ($300\text{ MHz} < 300\text{GHz}$) da matriz cerâmica $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ (STS) com adição de TiO_2 e suas aplicações em antenas ressoadoras dielétricas (DRA) e sistemas de telecomunicações. Realizamos análises de difração de raios X e microscopia eletrônica de varredura (MEV) para caracterização e determinação do material. Aplicamos técnicas de espectroscopia de impedância complexa (CIS) para investigação das propriedades elétricas da matriz e dos compósitos. Obtivemos valores elevados de permissividade dielétrica relativa (ϵ'_r) para STS20 ($\epsilon'_r = 2,8 \times 10^3$), STS15 ($\epsilon'_r = 2,2 \times 10^3$) e STS25 ($\epsilon'_r = 1,8 \times 10^3$) após a adição de TiO_2 . Utilizamos diagramas de Nyquist para mensurar as contribuições do grão e do contorno de grão na resposta elétrica das amostras em um circuito de associação R-CPE. As amostras apresentaram grãos e contornos de grão ($340\text{ }^\circ\text{C}$ a $460\text{ }^\circ\text{C}$) com diminuição da resistência com o aumento da temperatura. O coeficiente de temperatura de capacitância de (TCC), em baixas frequências, sofre uma influência maior com a temperatura. Na região de micro-ondas, a adição de TiO_2 melhora a performance dielétrica do material ao aumentar a permissividade dielétrica (ϵ_r) e reduzir as perdas dielétricas ($\tan\delta$) em concentrações moderadas, com valores de $\tan\delta = 1,75 \times 10^{-2}$ para STS e $\tan\delta = 2,02 \times 10^{-3}$ para STS20. O coeficiente de temperatura da frequência ressonante (τ_f) apresentou valor de $-22,30\text{ ppm}/^\circ\text{C}$. Na simulação numérica, os resultados foram excelentes, com diretividade de $5,79\text{ dBi}$, ganho de $4,38\text{ dBi}$ e eficiência de radiação de $72,15\%$ para STS, além de eficiência de $97,99\%$ para amostra STS25. Os resultados demonstram que as amostras podem operar em eletrônicos de banda C ($4\text{ GHz} < f < 8\text{ GHz}$), conforme definido pelo Instituto de Engenheiros Eletricistas e Eletrônicos (IEEE). Essa faixa é adequada para aplicações em dispositivos Wi-Fi de alta frequência, redes 5G e sistemas de radar meteorológico.

Palavras-chave: $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$, micro-ondas, radiofrequência, DRA, simulação numérica.

Abstract

In this work, we present the study of electric properties in the radiofrequency (RF) region ($f < 300$ MHz) and microwaves (MW) ($300 \text{ MHz} < f < 300 \text{ GHz}$) of the ceramic matrix $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ (STS) with the addition of TiO_2 and its applications in dielectric resonator antennas (DRA) and telecommunication systems. We conducted X-ray diffraction and scanning electron microscopy (SEM) analyses for material characterization and determination. Complex impedance spectroscopy (CIS) techniques were applied to investigate the electrical properties of the matrix and composites. High relative dielectric permittivity (ϵ_r) values were obtained for STS20 ($\epsilon_r = 2.8 \times 10^3$), STS15 ($\epsilon_r = 2.2 \times 10^3$), and STS25 ($\epsilon_r = 1.8 \times 10^3$) after the addition of TiO_2 . Nyquist diagrams were used to measure the contributions of grains and grain boundaries to the electrical response of the samples in an R-CPE circuit association. The samples exhibited grains and grain boundaries (340 °C to 460 °C) with decreasing resistance as temperature increased. The temperature coefficient of capacitance (TCC) at low frequencies was more influenced by temperature. In the microwave region, the addition of TiO_2 improved the dielectric performance of the material by increasing the dielectric permittivity (ϵ_r) and reducing the dielectric losses ($\tan\delta$) at moderate concentrations, with $\tan\delta$ values of 1.75×10^{-2} for STS and $\tan\delta = 2.02 \times 10^{-3}$ for STS20. The temperature coefficient of resonant frequency (τ_f) showed a value of -22.30 ppm/°C. In numerical simulations, the results were excellent, with a directivity of 5.79 dBi, a gain of 4.38 dBi, and a radiation efficiency of 72.15% for STS, as well as 97.99% efficiency for the STS25 sample. The results demonstrate that the samples can operate in C-band electronics ($4 \text{ GHz} < f < 8 \text{ GHz}$) as defined by the Institute of Electrical and Electronics Engineers (IEEE). This range is suitable for applications in high-frequency Wi-Fi devices, 5G networks, and weather radar systems.

Keywords: $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$, microwaves, radiofrequency, DRA, numerical simulation.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 – Antenas ressoadoras com cerâmicas avançadas em diversas geometrias...	23
Figura 2 – Representação esquemática do processo de moagem de alta energia em moinho planetário.....	25
Figura 3 – Esquema do processo de prensagem isostática para conformação de peças cerâmicas.....	27
Figura 4 – Etapas do processo de prensagem uniaxial de pós cerâmicos.....	27
Figura 5 – Estrutura da célula unitária da cerâmica $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ Sistema cristalino tetragonal não centro-simétrica.....	29
Figura 6 – Ilustração do capacitor com placas paralelas em meio vácuo.....	34
Figura 7 – Ilustração do capacitor com placas paralelas preenchido por um dielétrico.....	35
Figura 8 – Diagrama de um circuito RC em série.....	36
Figura 9 – Diagrama de um circuito RC em paralelo.....	37
Figura 10 – Diagrama de um circuito R-CPE em série.....	38
Figura 11 – Diagrama de um circuito R-CPE em paralelo.....	39
Figura 12 – Diagrama de Nyquist de um circuito RC em série com $R = 100\Omega$ e $C = 0,1\text{F}$	41
Figura 13 – Diagrama de Nyquist de um circuito RC em paralelo composto $R = 100\Omega$ e $C = 0,005\text{F}$	41
Figura 14 – Diagrama de Nyquist para o circuito R-CPE na faixa de frequência de 1mHz a 1MHz, com parâmetros $R = 10\Omega$, $q = 1\Omega^{-1}\text{s}^{0,5}$	42
Figura 15 – Diagrama de Nyquist para o circuito R-CPE com associação em paralelo na faixa de frequência de 1mHz a 1MHz, com parâmetros $R = 100\Omega$, $q = 0,01\Omega^{-1}\text{s}^{0,5}$ e $n = 1$	43
Figura 16 – Esquema da Difração de Raios X e Reflexão em Planos Cristalinos Paralelos.....	52
Figura 17 – Diagrama de antenas Omnidirecional.....	56
Figura 18 – Esquema ilustrativo do método de Hakki-Coleman e Courtney medido uma antena cilíndrica.....	63
Figura 19 – Montagem experimental para medição do coeficiente de temperatura de frequência ressonante (τ_f) com acoplamento térmico.....	67
Figura 20 – Ilustração do Método do Monopolo mensurando uma DRA cilíndrica...	69
Figura 21 – Amostras STS após processo de conformação na prensa uniaxial.....	71

Figura 22 – Refinamento Rietveld da matriz cerâmica $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$	75
Figura 23 – Micrografia da superfície da amostra STS com fator de ampliação de 10.000X.....	76
Figura 24 – Micrografia da superfície da amostra STS5 com fator de ampliação de 10.000X.....	76
Figura 25 – Micrografia da superfície da amostra STS10 com fator de ampliação de 10.000X.....	77
Figura 26 – Micrografia da superfície da amostra STS15 com fator de ampliação de 9.997X.....	77
Figura 27 – Micrografia da superfície da amostra STS20 com fator de ampliação de 10.000X.....	78
Figura 28 – Micrografia da superfície da amostra STS25 com fator de ampliação de 10.000X.....	79
Figura 29 – Permissividade dielétrica de $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ e compósitos em temperatura ambiente.....	80
Figura 30 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura e frequência fixa da matriz STS.....	83
Figura 31 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura e frequência fixa da amostra STS5.....	84
Figura 32 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura e frequência fixa da amostra STS10.....	84
Figura 33 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura e frequência fixa da amostra STS15.....	85
Figura 34 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura e frequência fixa da amostra STS20.....	86
Figura 35 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura e frequência fixa da amostra STS25.....	87
Figura 36 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura STS.....	89
Figura 37 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura STS5.....	90
Figura 38 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura STS10.....	90
Figura 39 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura STS15.....	91
Figura 40 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura STS20.....	92
Figura 41 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura STS25.....	94
Figura 42 – Espectro Z' com variação de temperatura STS.....	94

Figura 43 – Espectro Z' com variação de temperatura STS 5.....	95
Figura 44 – Espectro Z' com variação de temperatura STS 10.....	96
Figura 45 – Espectro Z' com variação de temperatura STS 15.....	96
Figura 46 – Espectro Z' com variação de temperatura STS 20.....	97
Figura 47 – Espectro Z' com variação de temperatura STS 25.....	97
Figura 48 – Espectro de impedância imaginária Z'' com variação de temperatura da matriz cerâmica STS.....	99
Figura 49 – Espectro de impedância imaginária Z'' com variação de temperatura da amostra STS 5.....	100
Figura 50 – Espectro de impedância imaginária Z'' com variação de temperatura da amostra STS 10.....	100
Figura 51 – Espectro de impedância imaginária Z'' com variação de temperatura da amostra STS 15.....	101
Figura 52 – Espectro de impedância imaginária Z'' com variação de temperatura da amostra STS 20.....	102
Figura 53 – Espectro de impedância imaginária Z'' com variação de temperatura da amostra STS 25.....	102
Figura 54 - Espectro $Z' * Z''$ em função da temperatura STS.....	104
Figura 55 - Espectro $Z' * Z''$ em função da temperatura STS 5.....	105
Figura 56 - Espectro $Z' * Z''$ em função da temperatura STS 10.....	106
Figura 57 - Espectro $Z' * Z''$ em função da temperatura STS 15.....	107
Figura 58 - Espectro $Z' * Z''$ em função da temperatura STS 20.....	107
Figura 59 - Espectro $Z' * Z''$ em função da temperatura STS 25.....	108
Figura 60 – Condutividade em função da frequência em diferentes temperaturas STS.....	116
Figura 61 – Condutividade em função da frequência em diferentes temperaturas STS 5.....	117
Figura 62 – Condutividade em função da frequência em diferentes temperaturas STS 10.....	117
Figura 63 – Condutividade em função da frequência em diferentes temperaturas STS 15.....	118
Figura 64 – Condutividade em função da frequência em diferentes temperaturas STS 20.....	119

Figura 65 – Condutividade em função da frequência em diferentes temperaturas STS 25.....	119
Figura 66 – Condutividade AC (σ_{AC}) em função da frequência angular em diferentes temperaturas da amostra STS, ajustada pela Lei de Jonscher.....	120
Figura 67 – Condutividade AC (σ_{AC}) em função da frequência angular em diferentes temperaturas da amostra STS5, ajustada pela Lei de Jonscher.....	122
Figura 68 – Condutividade AC (σ_{AC}) em função da frequência angular em diferentes temperaturas da amostra STS10, ajustada pela Lei de Jonscher.....	123
Figura 69 – Condutividade AC (σ_{AC}) em função da frequência angular em diferentes temperaturas da amostra STS15, ajustada pela Lei de Jonscher.....	125
Figura 70 – Condutividade AC (σ_{AC}) em função da frequência angular em diferentes temperaturas da amostra STS20, ajustada pela Lei de Jonscher.....	126
Figura 71 – Condutividade AC (σ_{AC}) em função da frequência angular em diferentes temperaturas da amostra STS25, ajustada pela Lei de Jonscher.....	127
Figura 72 - Energia de ativação obtida através da impedância imaginária (Z'') da amostra STS.....	130
Figura 73 - Energia de ativação obtida através da impedância imaginária (Z'') da amostra STS5.....	131
Figura 74 - Energia de ativação obtida através da impedância imaginária (Z'') da amostra STS10.....	132
Figura 75 - Energia de ativação obtida através da impedância imaginária (Z'') da amostra STS15.....	133
Figura 76 - Energia de ativação obtida através da impedância imaginária (Z'') da amostra STS20.....	134
Figura 77 - Energia de ativação obtida através da impedância imaginária (Z'') da amostra STS25.....	134
Figura 78 – Variação da energia de ativação (E_a) em relação as amostras.....	136
Figura 79 – Representação de concentração de TiO_2 pelo TCC das amostras STS.....	138
Figura 80 – variação da permissividade dielétrica (ϵ_r) e as perdas dielétricas ($tg \delta$) com concentração de TiO_2	139
Figura 81 – Variação do coeficiente de temperatura da frequência ressonante (τ_f) com a concentração de TiO_2	141

Figura 82 – Coeficiente de perda de retorno (S11) experimental e simulado para o material Sr ₂ TiSi ₂ O ₈ (STS).....	143
Figura 83 – Coeficiente de perda de retorno (S11) experimental e simulado para o material Sr ₂ TiSi ₂ O ₈ (STS5)	144
Figura 84 – Coeficiente de perda de retorno (S11) experimental e simulado para o material (STS10)	145
Figura 85 – Coeficiente de perda de retorno (S11) experimental e simulado para o material (STS15)	145
Figura 86 – Coeficiente de perda de retorno (S11) experimental e simulado para o material (STS20)	146
Figura 87 - Comportamento da impedância real $Z'(\Omega)$ experimental e simulado para as amostras STS, STS5, STS10, STS15 e STS20.....	148
Figura 88 - Comportamento da impedância imaginária $Z''(\Omega)$ experimental e simulado para as amostras STS, STS5, STS10, STS15 e STS20.....	149
Figura 89 - Carta de Smith experimental e simulada para a amostra STS.....	150
Figura 90 - Carta de Smith experimental e simulada para a amostra STS5.....	150
Figura 91 - Carta de Smith experimental e simulada para a amostra STS10.....	151
Figura 92 - Carta de Smith experimental e simulada para a amostra STS15.....	152
Figura 93 - Carta de Smith experimental e simulada para a amostra STS20.....	152
Figura 94 - Diagrama de radiação Ganho obtidos por meio de simulação numérica da matriz cerâmica STS.....	155
Figura 95 - Diagrama de radiação Ganho obtidos por meio de simulação numérica da amostra STS5.....	155
Figura 96 - Diagrama de radiação Ganho obtidos por meio de simulação numérica da amostra STS10.....	156
Figura 97 - Diagrama de radiação Ganho obtidos por meio de simulação numérica da amostra STS15.....	156
Figura 98 - Diagrama de radiação Ganho obtidos por meio de simulação numérica da amostra STS20.....	157
Figura 99 - Diagrama de radiação Ganho3D obtido para a antena monopolo da amostra STS.....	158
Figura 100 - Diagrama de radiação Ganho3D obtido para a antena monopolo da amostra STS5.....	158

Figura 101 - Diagrama de radiação Ganho3D obtido para a antena monopolo da amostra STS10.....	159
Figura 102 - Diagrama de radiação Ganho3D obtido para a antena monopolo da amostra STS15.....	160
Figura 103 - Diagrama de radiação Ganho3D obtido para a antena monopolo da amostra STS20.....	160

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 – Descrição dos tipos de diagramas de Nyquist para sistema eletroquímico.....	43
Tabela 2 – Parâmetros de Lattice e representação geométrica dos sistemas cristalinos.....	51
Tabela 3 – Valores de $\epsilon' r$ em diferentes frequências para STS e compósitos.....	81
Tabela 4 – Parâmetros da modelagem do circuito equivalente da amostra STS.....	109
Tabela 5 – Parâmetros da modelagem do circuito equivalente da amostra STS5.....	110
Tabela 6 – Parâmetros da modelagem do circuito equivalente da amostra STS10...	111
Tabela 7 – Parâmetros da modelagem do circuito equivalente da amostra STS15...	112
Tabela 8 – Parâmetros da modelagem do circuito equivalente da amostra STS20...	113
Tabela 9 – Parâmetros da modelagem do circuito equivalente da amostra STS25...	114
Tabela 10 – Parâmetros ajustados da Lei de Jonscher para o material STS em diferentes temperaturas.....	121
Tabela 11 – Parâmetros ajustados da Lei de Jonscher para o material STS 5 em diferentes temperaturas.....	122
Tabela 12 – Parâmetros ajustados da Lei de Jonscher para o material STS 10 em diferentes temperaturas.....	123
Tabela 13 – Parâmetros ajustados da Lei de Jonscher para o material STS 15 em diferentes temperaturas.....	125
Tabela 14 – Parâmetros ajustados da Lei de Jonscher para o material STS 20 em diferentes temperaturas.....	128
Tabela 15 – Parâmetros ajustados da Lei de Jonscher para o material STS 25 em diferentes temperaturas.....	128
Tabela 16 - Valores de TCC para $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ e compósitos em diferentes frequências.....	137
Tabela 17 – Propriedades dielétricas obtidas pelo método Hakki-Coleman para todas as amostras.....	139
Tabela 18 – Valores experimentais e simulados obtidos para frequência ressonante (fr), S11, e largura de banda (BW).....	142
Tabela 19 - Parâmetros operacionais do DRA determinados pela simulação no HFSS.....	153

LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

AC - Corrente alternada

BW - Do inglês bandwidth

CPE - Elemento de fase constante

DR - Ressonador dielétrico

DRX - Difração de Raios-X

Ea - Energia de ativação

HEM - Modo elétrico híbrido

HFSS - Do inglês High Frequency Structure Simulator

ICSD - Do inglês Inorganic crystal structure database

ICDD - Do inglês International Center for Diffraction Data

JCPDS – Do inglês Joint Committee for Powder Diffraction Studies

MO - Micro-ondas

RF - Radiofrequência

TCC - Coeficiente de Variação da Capacitância com a Temperatura

TE - Transversal Elétrico

TM - Transversal Magnético

VSWR - Relação de tensão de onda estacionária

LISTA DE SÍMBOLOS

C	Capacitância
C'	Porção real da Capacitância
C''	Porção imaginária da capacitância
P	Polarização
R	Resistência
R_{wp}	Fator R esperado no refinamento Rietveld
R_p	Erro residual do refinamento
Y	Admitância
Y^*	Admitância complexa
Y'	Porção real da admitância
Y''	Porção imaginária da admitância
V^*	Tensão complexa
V_0	Amplitude máxima da tensão
Z	Impedância
Z^*	Impedância complexa
Z'	Parte real da impedância
Z''	Parte imaginária da impedância
α_L	Coefficiente de expansão térmica linear
β_{inst}	Largura característica do instrumento de raio-X
ϵ	Permissividade dielétrica
ϵ_0	Permissividade dielétrica no vácuo
ϵ_s	Permissividade dielétrica estática em baixas frequências
ϵ_∞	Permissividade dielétrica estática em altas frequências
ϵ_c	Permissividade complexa
ϵ'	Porção real da permissividade
ϵ''	Porção imaginária da permissividade
σ	Condutividade
σ_{AC}	Condutividade em regime AC

τ	Tempo de relaxação
α_ϵ	Coeficiente de temperatura da permissividade
α_f	Coeficiente de temperatura da frequência de ressonância
λ	Comprimento de onda
$\text{tg } \delta$	Tangente de perdas dielétricas
χ^2	Do inglês Goodness of fit.
ω	Frequência angular
φ	Ângulo de fase

SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO	21
1.1 Desenvolvimento de cerâmicas avançadas em tecnologias emergentes	21
1.2 Motivação	22
1.3 Estrutura da Tese	23
2. OBJETIVOS	25
2.1 Objetivo Geral	25
2.2 Objetivos Específicos	25
3. FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA	26
3.1 Materiais cerâmicos	26
3.1.1 Classificação e Características Gerais	26
3.2 Método de Reação do Estado Sólido	28
3.2.1 Princípios Fundamentais da Síntese em Estado Sólido	29
3.3 Matriz Cerâmicas Investigadas	32
3.3.1 Silicato de titânio e estrôncio ($\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$)	32
3.3.2 Dióxido de Titânio (TiO_2)	33
3.4 Características dos Materiais	34
3.4.1 Propriedades Fundamentais nos dielétricos	34
3.4.2 Tipos de Polarização	34
3.4.3 Propriedades dos materiais dielétricos	35
3.5 Espectroscopia de Impedância	39
3.5.1 Introdução à espectroscopia de impedância	39
3.5.2 Modelagem de circuitos equivalentes	39
3.5.3 Representação no plano complexo	50
3.5.4 Mecanismos de Relaxação dielétrica	52
3.6 Estrutura Cristalográfica dos Materiais Cerâmicos	53
3.6.1 Breve histórica do surgimento da cristalográfica	53
3.6.2 Sistema cristalinos: Classificação geométrica e sua influência nas propriedades dos materiais	53
3.6.3 Difração de Raios X, Lei de Bragg e Análise Estrutural por Rietveld	55
3.6.4 Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV)	58
3.7 Antenas Ressonadoras Dielétricas (DRAs)	58
3.7.1 Breve história do surgimento da Antenas	58
3.7.2 Parâmetros fundamentais das antenas	60
3.7.2 Antenas Ressonadoras Dielétricas Cilíndricas	65

3.8 Micro-ondas.....	67
3.8.1 Método de Hakki-Coleman.	67
3.8.2 Medição do Coeficiente de Temperatura de Frequência Ressonante (τ_f).....	69
3.8.2 Método de Monopolo: Medição de Ressonadores Dielétricos.	72
4 MATERIAL E MÉTODOS.....	75
4.1 Matéria-prima: Preparação dos materiais cerâmicos.	75
4.2 Análise estrutural das Amostras.....	76
4.3 Análise em Radiofrequência (RF).....	77
4.4 Análise em Micro-ondas (MW).....	77
4.5 Simulações Numéricas.	78
5. RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	79
5.1 Difração de raios – X.....	79
5.2 Microscopia Eletrônica de varredura (MEV).....	79
5.3 - Análise em Radiofrequência	84
5.3.1 Permissividade em função da Temperatura em frequência de 1KHz.	87
5.3.2 Permissividade dielétrica	92
5.3.3 Impedância Real	97
5.3.4 Impedância imaginária	102
5.4 Análise do Diagrama de Nyquist.....	106
5.5 Condutividade	120
5.5.1 Análise de condutividade DC através da lei de potência de Jonscher's.....	124
5.5.2 Análise de energia de ativação (E_a)	133
5.6 TCC (Coeficiente de Temperatura de Capacitância)	140
5.7 Propriedades dielétricas de Micro-ondas.....	143
5.8 Simulação numérica de (DRA).....	145
5.8.1 Análise de Coeficiente de Reflexão (S_{11})	147
5.8.2 Análise do comportamento das impedâncias Real e Imaginária.	151
5.8.3 Análise da Carta de Smith	153
5.8.4 Análise de parâmetros de Radiação em 2D e 3D	157
6. CONCLUSÕES	165
7. PERSPECTIVAS FUTURAS	167
REFERÊNCIAS	168
8. PUBLICAÇÕES	177
❖ Publicação em periódicos.....	177
❖ Aplicação de Patentes:	177
❖ Outras Publicações:.....	178

❖ Trabalhos em Congressos:.....	178
9. ANEXOS	180
ANEXO A - DEPÓSITO DE PATENTE: CRESCIMENTO DA ESTABILIDADE TÉRMICA DA MATRIZ (Ba₂TiSi₂O₈) COM ADIÇÃO DE TiO₂ PARA OPERAÇÃO NA REGIÃO DE MICRO-ONDAS.....	180
ANEXO B – DEPÓSITO DE PATENTE: ALTA ESTABILIDADE TÉRMICA NA NOVA MATRIZ DIELÉTRICA Ba₂TiSi₂O₈ COM ADIÇÃO DE CaTiO₃ COM APLICAÇÕES NA REGIÃO DE MICRO-ONDAS.....	181

1. INTRODUÇÃO

1.1 Desenvolvimento de cerâmicas avançadas em tecnologias emergentes

A busca por materiais cerâmicos que apresentem propriedades físico-químicas desejáveis e sejam capazes de atender às demandas crescentes nas áreas de telecomunicações tem impulsionado estudos voltados para cerâmicas avançadas.

Esses materiais oferecem propriedades significativas ao mercado, possibilitando avanços em equipamentos eletrônicos e contribuindo para uma conectividade contínua e mais eficiente. Reconhecidos por serem isolantes elétricos, desempenham um papel crucial em dispositivos como capacitores e isoladores em circuitos eletrônicos, destacando-se pela sua importância na melhoria da eficiência e funcionalidade desses sistemas (Callister, 2018; Kumar et al., 2020).

Neste contexto, destacam-se as eletrocerâmicas por sua versatilidade, uma vez que apresentam propriedades dielétricas, ferroelétricas, piezoelétricas, piroelétricas, eletro-ópticas, de supercondutividade, magnéticas, mecânicas e de estabilidade química. Essas características tornam as eletrocerâmicas indispensáveis em áreas como telecomunicações, sistemas de energia sustentável, sensores de precisão, dispositivos médicos e sistemas eletrônicos avançados. Carter (2013) e Moulson & Herbert (2003) ressaltam que a capacidade desses materiais de combinar diferentes propriedades em uma única estrutura os posiciona na vanguarda da inovação tecnológica.

Uma das propriedades mais importantes abordadas em nosso estudo refere-se às cerâmicas dielétricas, materiais que se destacam por sua capacidade de operar na faixa de radiofrequência e micro-ondas. Esses materiais possuem uma alta constante dielétrica, característica que contribui significativamente para o armazenamento de energia elétrica em capacitores (Buchanan, 2000; Kim et al., 2016). Além disso, apresentam baixa perda dielétrica, um atributo essencial para aplicações que envolvem frequências elevadas, como em circuitos de micro-ondas (Sebastian, 2008; Carter, 2013).

As aplicações das cerâmicas dielétricas são amplas e diversificadas, abrangendo tecnologias de ponta como antenas ressoadoras dielétricas (DRAs), amplamente utilizadas em sistemas de comunicação sem fio. Também têm papel crucial em tecnologias de comunicação terrestre e via satélite, sistemas de posicionamento global (GPS) e na expansão da Internet das Coisas (IoT), que

dependem de dispositivos com alta eficiência e confiabilidade para atender às crescentes demandas de conectividade e transmissão de dados (Moulson & Herbert, 2003; Sebastian, 2017; Yin et al., 2021). Além disso, cerâmicas dielétricas com baixa constante dielétrica têm sido exploradas em aplicações emergentes, como a comunicação de quinta geração (5G), onde são fundamentais para otimizar a velocidade e frequência de transmissão (Park et al., 2020; Yin et al., 2021).

Essas propriedades fazem das cerâmicas dielétricas materiais indispensáveis em dispositivos eletrônicos modernos, contribuindo não apenas para o aprimoramento técnico, mas também para o desenvolvimento de sistemas mais eficientes e integrados, fundamentais para a evolução tecnológica em diversas áreas.

1.2 Motivação

A pesquisa em materiais avançados requer a exploração de compósitos com propriedades otimizadas para atender às crescentes demandas tecnológicas. Nesse contexto, o compósito $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ (STS), ou fresnoíta de estrôncio, destacou-se durante nosso levantamento bibliográfico devido às suas propriedades piezoelétricas, piroelétricas e estabilidade térmica, características que o tornam um material promissor para aplicações em dispositivos de alta precisão e ambientes extremos. Contudo, a busca por melhorias na performance do STS, especialmente em suas propriedades dielétricas e estabilidade térmica, motivou a adição de novos componentes à sua matriz cerâmica.

Entre os potenciais candidatos, o dióxido de titânio TiO_2 emergiu como uma escolha estratégica. Amplamente estudado, o TiO_2 é reconhecido por suas propriedades físicas excepcionais, como alta constante dielétrica, baixa tangente de perdas e coeficiente de temperatura ajustável, além de sua capacidade de atuar como semicondutor em estados específicos de oxidação. Esses atributos sugerem que sua adição ao STS poderia melhorar tanto as propriedades dielétricas quanto a estabilidade térmica do compósito, otimizando seu desempenho em aplicações tecnológicas avançadas.

Para investigar esses efeitos, realizamos a adição de TiO_2 à matriz cerâmica de STS em diferentes proporções estequiométricas, correspondendo a 5%, 10%, 15%, 20% e 25% em massa. Esses percentuais foram escolhidos para avaliar sistematicamente como a incorporação do TiO_2 influencia as propriedades estruturais, elétricas e térmicas do compósito, buscando identificar a concentração ideal que

maximize o desempenho do material. Este estudo representa um passo importante na exploração de novas formulações cerâmicas capazes de atender às exigências de dispositivos eletrônicos modernos e de alta eficiência.

1.3 Estrutura da Tese

A presente tese foi organizada de forma sistemática para apresentar, de maneira lógica e coesa, o desenvolvimento da pesquisa sobre materiais cerâmicos avançados, suas propriedades elétricas e aplicações em micro-ondas. A estrutura segue uma abordagem sequencial, permitindo a construção progressiva do conhecimento e a integração dos resultados experimentais com a fundamentação teórica.

No Capítulo 1 – Introdução, são discutidos o contexto e a relevância da pesquisa, destacando-se a importância dos materiais cerâmicos na tecnologia emergente. Além disso, apresenta-se a estrutura da tese e os objetivos do estudo.

No Capítulo 2 – Objetivos, são definidos os objetivos: geral e específicos da pesquisa, os quais direcionam o desenvolvimento do trabalho e a abordagem experimental adotada.

O Capítulo 3 – Fundamentação Teórica apresenta uma revisão detalhada dos conceitos e fenômenos essenciais para a compreensão dos materiais cerâmicos estudados. São abordados temas como síntese via reação do estado sólido, propriedades dielétricas, espectroscopia de impedância e técnicas de caracterização estrutural e elétrica. Também são introduzidos conceitos fundamentais sobre antenas ressoadoras dielétricas e suas aplicações.

O Capítulo 4 – Materiais e Métodos descreve os procedimentos experimentais adotados na preparação dos materiais cerâmicos, incluindo a síntese, o tratamento térmico e a caracterização estrutural. São detalhadas as técnicas empregadas para análise da microestrutura, propriedades elétricas e comportamento em radiofrequência e micro-ondas, além das simulações numéricas realizadas.

No Capítulo 5 – Resultados e Discussões, são apresentados e analisados os dados experimentais obtidos. A seção inicia-se com a caracterização estrutural por difração de raios X e microscopia eletrônica de varredura, seguida pela avaliação das propriedades dielétricas e espectroscopia de impedância. Além disso, são discutidas as análises de coeficiente de temperatura da capacitância e os resultados obtidos em simulações numéricas, correlacionando-os com as propriedades do material.

O Capítulo 6 – Conclusões sintetiza as principais descobertas da pesquisa, destacando os avanços alcançados e as possíveis aplicações dos materiais estudados. São também discutidas as limitações do estudo e sugestões para trabalhos futuros.

Por fim, a tese inclui referências bibliográficas, destacando os principais trabalhos utilizados na fundamentação teórica, além de publicações associadas ao desenvolvimento da pesquisa. Os anexos trazem informações complementares, como os depósitos de patentes relacionados às contribuições tecnológicas do estudo.

Essa estrutura visa garantir clareza e coerência na apresentação dos resultados, consolidando a pesquisa como uma contribuição relevante no campo dos materiais cerâmicos para aplicações em radiofrequência e micro-ondas.

2. OBJETIVOS

2.1 Objetivo Geral

Realizar a síntese e a caracterização estrutural e elétrica de materiais cerâmicos baseados na matriz $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ (STS) com diferentes adições de TiO_2 , com o objetivo de desenvolver novos compósitos com propriedades dielétricas aprimoradas para aplicações avançadas.

2.2 Objetivos Específicos

- ✓ Sintetizar a matriz cerâmica $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ utilizando o método de reação no estado sólido.
- ✓ Produzir novos compósitos cerâmicos com adições de 5%, 10%, 15%, 20% e 25% de TiO_2 em massa à matriz $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$.
- ✓ Identificar e caracterizar estruturalmente as fases cristalinas presentes nas amostras por meio de difração de raios X (XRD) e refinamento de Rietveld.
- ✓ Analisar as superfícies das amostras utilizando microscopia eletrônica de varredura (MEV) para avaliação morfológica e microestrutural.
- ✓ Investigar as propriedades elétricas, como condutividade, impedância, permissividade dielétrica e tangente de perdas, na região de radiofrequência, utilizando Espectroscopia de Impedância Complexa (EIC).
- ✓ Avaliar a estabilidade térmica dos compósitos, determinando o coeficiente de variação da capacitância com temperatura (TCC) em radiofrequência e o coeficiente de temperatura de frequência ressonante (τ_f) na faixa de micro-ondas.
- ✓ Examinar o desempenho dos compósitos como ressoadores dielétricos (DRs) por meio de medidas experimentais e simulações computacionais.

3. FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

3.1 Materiais cerâmicos

Os materiais cerâmicos são compostos inorgânicos, não metálicos, constituídos por elementos metálicos e não metálicos que apresentam ligações iônicas e/ou covalentes. Os estudos acerca de tais materiais têm se mostrado essenciais para possibilitar o desenvolvimento tecnológico e científico de forma direta e indiretamente em diversas áreas como por exemplo: Eletrônica e Telecomunicações, semicondutores e sensores, energias renováveis, construção civil, medicina e defesa e aeroespacial (SMITH, 1998).

As aplicações são diversas e estão relacionadas a multiplicidade de propriedades que esses materiais oferecer como: propriedades mecânicas, térmicas, elétricas, ópticas, químicas, magnéticas, biológicas, estruturais e de processamento dentre outras. O termo "cerâmica" é extraído do dialeto grego “keramikos”, que significa "material queimado", referindo-se ao processamento de tratamento térmico que estes materiais são submetidos para alcançar as propriedades desejadas e características para aplicações diversas (CALLISTER, 2018; MOULSON, 2003; ABREU, 2019; WILEY, 2003).

3.1.1 Classificação e Características Gerais

De acordo com Callister (2018), os materiais cerâmicos podem ser classificados em dois grandes grupos:

➤ **Cerâmicas Tradicionais:** Tais materiais são amplamente utilizados em aplicações simples e de baixo controle de qualidade na produção, onde as propriedades mecânicas (alta dureza, resistência ao desgaste, baixa tenacidade) são perscrutadas.

Sua principal matéria prima é à base de argila de composto químico silicato de alumínio hidratado ($\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ + aditivos), a sílica (SiO_2) e o feldspato ($\text{K}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 6\text{SiO}_2$) e podem ser encontrados por exemplo: telhas, tijolos, porcelanas e revestimentos dentre outros.

Esses materiais são comumente empregados na construção civil devido à sua durabilidade e praticidade.

➤ **Cerâmicas Avançadas:** As cerâmicas avançadas representam uma classe de materiais com propriedades específicas que as distinguem das cerâmicas tradicionais.

Sua fabricação é caracterizada por alta pureza, controle rigoroso da microestrutura e, em alguns casos, processos inovadores de síntese, como os utilizados na produção de óxidos de alumínio (Al_2O_3), carboneto de silício (SiC), óxido de zircônio (ZrO_2), óxido de titânio (TiO_2), óxido de magnésio (MgO), óxido de ítrio (Y_2O_3) e óxido de cério (CeO_2). Esses processos resultam em características otimizadas para atender a demandas tecnológicas específicas (figura 1), incluindo aplicações como catalisadores, dispositivos fotovoltaicos, revestimentos resistentes a altas temperaturas, materiais de alta refratariedade, condutores térmicos e elétricos, fosforescentes e materiais com estabilidade térmica (KAJFEZ; GUILLON, 1998; KINGERY, 1976; RICHERSON, 2005; HOLLEMAN, 2007; SCHUBERT, 1991).

Figura 1 – Antenas ressoadoras com cerâmicas avançadas em diversas geometrias



Fonte: LUK; LEUNG, 2003

Esses materiais compõem uma ampla gama de propriedades que as tornam indispensáveis em aplicações industriais e científicas. Dentre as características mais importantes, destacam-se a alta resistência mecânica, a estabilidade térmica, propriedades elétricas e ópticas versáteis e resistência química. Além disso, a flexibilidade na modificação de suas composições químicas permite ajustar essas propriedades de acordo com as necessidades específicas das aplicações (LUK; LEUNG, 2003).

A obtenção de cerâmicas pode ser realizada por diferentes métodos, cada um com características e aplicações específicas que variam de acordo com as propriedades desejadas para o material final. Entre os métodos mais utilizados estão a reação no estado sólido, coprecipitação, métodos baseados em precursores, sol-gel, spray-drying, freeze-drying, combustão e recristalização vítrea. Cada abordagem apresenta vantagens e limitações que influenciam na escolha do método mais adequado.

Por exemplo, o método de coprecipitação é amplamente usado para a produção de materiais de alta pureza e homogeneidade, uma vez que os precursores químicos são misturados em solução antes de serem precipitados (Richerson, 2005).

Já o método sol-gel destaca-se por sua capacidade de produzir materiais nanométricos com excelente controle da morfologia, sendo particularmente útil para revestimentos finos e cerâmicas avançadas (Holleman et al., 2007).

Técnicas como spray-drying e freeze-drying são utilizadas para preparar pós cerâmicos homogêneos e com boas propriedades de dispersão, enquanto a combustão se baseia em reações exotérmicas rápidas para sintetizar materiais em altas temperaturas.

No presente trabalho, optou-se pela síntese por reação no estado sólido, um método consolidado e amplamente empregado na produção de cerâmicas. Por essas razões, a reação no estado sólido será discutida em maiores detalhes ao longo deste trabalho, destacando sua aplicação e importância no contexto da síntese cerâmica.

3.2 Método de Reação do Estado Sólido

O método de reação no estado sólido é uma técnica amplamente utilizada na síntese de materiais cerâmicos, especialmente óxidos, ferritas, carbonatos e compostos policristalinos, devido à sua simplicidade e eficiência para produzir materiais de alta pureza e controle.

Este método baseia-se em reações químicas entre sólidos, nas quais os precursores, geralmente óxidos ou carbonatos, são misturados, moídos e submetidos a altas temperaturas para que as reações ocorram e a fase desejada se forme.

Segundo Kingery, Bowen e Uhlmann (1976), o processo começa com a mistura e moagem dos precursores em proporções estequiométricas, uma etapa crítica para assegurar a homogeneidade da reação e a formação de uma fase pura.

Essa etapa inicial é frequentemente acompanhada por técnicas como moagem de alta energia para aumentar a reatividade dos sólidos ao reduzir o tamanho das partículas e melhorar a área de contato entre os reagentes.

A sinterização, ou tratamento térmico, é a etapa central do método, na qual os sólidos reagem sob altas temperaturas, típicas entre 800 °C e 1500 °C, dependendo do material a ser sintetizado. Durante o aquecimento, ocorre a difusão atômica, que promove a formação de novos compostos. Conforme Richerson (2005), o controle da

temperatura e do tempo de aquecimento é essencial para evitar a formação de fases secundárias indesejadas e garantir a pureza da fase final.

Holleman et al. (2007) destacam que a eficiência do método está intrinsecamente ligada à reatividade dos precursores e à remoção completa de subprodutos gasosos, como CO_2 , que podem ser gerados pela decomposição térmica de carbonatos. O processo pode ser iterativo, exigindo ciclos de moagem e tratamento térmico para alcançar a formação completa da fase desejada.

Embora seja um método versátil, a reação no estado sólido apresenta limitações relacionadas à necessidade de altas temperaturas e tempos prolongados, o que pode levar ao crescimento exagerado dos grãos e à perda de controle sobre a microestrutura.

Para contornar essas dificuldades, avanços como a introdução de técnicas assistidas, como sinterização com micro-ondas ou reações mediadas por solventes, têm sido incorporados ao método tradicional (Schubert, 1991).

Assim, o método de reação no estado sólido permanece uma abordagem consolidada e eficaz na síntese de materiais cerâmicos, oferecendo uma combinação de simplicidade, robustez e controle composicional que o torna amplamente utilizado em aplicações industriais e científicas.

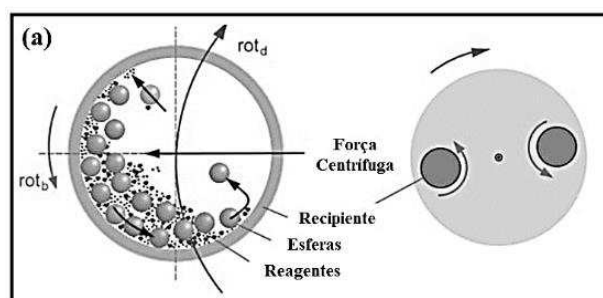
3.2.1 Princípios Fundamentais da Síntese em Estado Sólido

➤ Preparação e mistura dos reagentes:

Os reagentes sólidos, geralmente óxidos ou carbonatos, são selecionados com base em critérios rigorosos de pureza e reatividade química, fundamentais para assegurar a eficiência e o controle do processo de síntese.

A homogeneização dos materiais é realizada por meio de processos de moagem de alta energia representado na figura 2, que utilizam recipientes projetados para garantir um contato íntimo entre as partículas, otimizando a eficiência da reação química (Sebastian, 2008).

Figura 2 – Representação esquemática do processo de moagem de alta energia em moinho planetário.



Fonte: CARMO, 2021 (Adaptada)

Esses recipientes e as esferas podem ser fabricados com materiais específicos, como aço inoxidável, alumina (Al_2O_3), zircônia (ZrO_2), carboneto de tungstênio (WC), nitreto de silício (Si_3N_4) ou polímeros, como nylon, polietileno e teflon, dependendo das exigências químicas e mecânicas do sistema.

A utilização de esferas no processo de moagem é essencial, pois elas promovem a fragmentação eficiente das partículas e uma mistura homogênea, fatores cruciais para maximizar a reatividade do sistema os (KONG, 1999, 2000 e 2001; RICOTE, 2001).

➤ **Calcinação:**

Após a mistura, o material é submetido a um tratamento térmico em alta temperatura, onde ocorrem reações químicas e a formação de fases intermediárias.

Durante essa etapa, carbonatos são decompostos em óxidos e gases como CO_2 são liberados, resultando em um material com maior densidade e reatividade (Kao, 2004).

➤ **Moagem intermediária, conformação e sinterização:**

Após a calcinação, o material é submetido a uma nova etapa de moagem para reduzir aglomerados e melhorar sua homogeneidade. Esse processo é essencial para garantir a uniformidade do tamanho das partículas e, conseqüentemente, a eficiência nas etapas subsequentes. Em seguida, o pó é submetido à sinterização, na qual temperaturas ainda mais altas são aplicadas para densificar e consolidar o material.

Esse tratamento térmico promove a formação de ligações químicas e estruturais entre as partículas, resultando em propriedades estruturais e funcionais aprimoradas (Kajfez; Guillon, 1998).

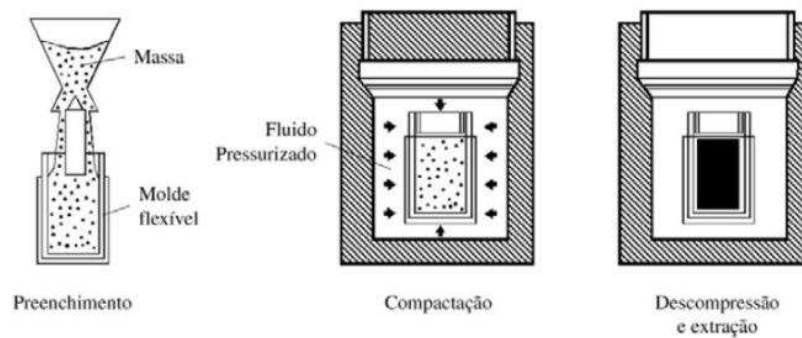
Após a obtenção do compósito, o material, geralmente caracterizado por um aspecto de pó fino e homogêneo, pode ser processado por dois métodos principais para a fabricação de peças cerâmicas: a técnica a seco e a técnica a úmida, dependendo das características desejadas para o produto final (Richerson, 2006).

Esses processos desempenham um papel fundamental na conformação da peça, influenciando diretamente suas propriedades mecânicas, estruturais e funcionais.

Na técnica a seco, o pó cerâmico é compactado em um molde por meio de prensagem uniaxial ou isostática (figura 3), utilizando altas pressões para formar um corpo com densidade controlada, também conhecido como corpo verde (figura 4). Segundo Richerson (2006), essa técnica é amplamente utilizada devido à sua

simplicidade e eficiência, sendo ideal para a produção de peças com geometria regular e baixa porosidade inicial. No entanto, a uniformidade da compactação pode ser um desafio em peças de grande dimensão, uma vez que variações na pressão podem ocasionar defeitos estruturais.

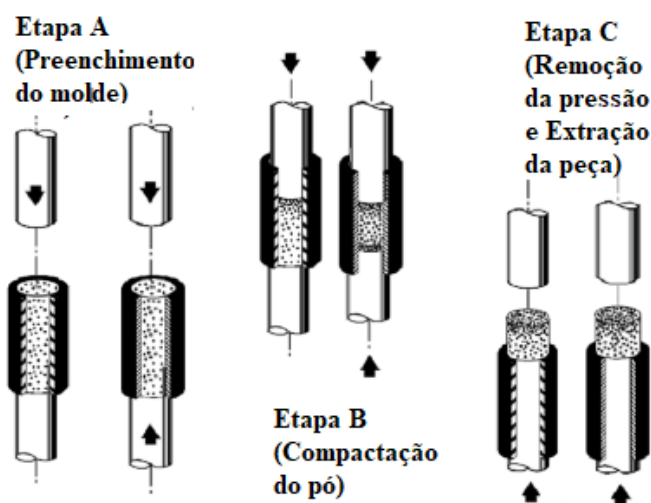
Figura 3 – Esquema do processo de prensagem isostática para conformação de peças cerâmicas.



Fonte: SANCHO, 2013 (Adaptada)

Por outro lado, na técnica a úmida, o pó inorgânico é disperso em um meio aquoso, polimérico ou solvente orgânico, formando uma suspensão ou pasta. Esse método é mais versátil, permitindo maior controle sobre a microestrutura e a homogeneidade do material. Conforme observado por Kingery, Bowen e Uhlmann (1976), a técnica a úmida pode englobar processos como colagem por fita (tape casting), moldagem por injeção ou fundição por gesso (slip casting), dependendo do tipo de matriz cerâmica e das propriedades almejadas. Além disso, a adição de aditivos como dispersantes, ligantes e plastificantes é fundamental para estabilizar a suspensão, melhorar a processabilidade e minimizar a formação de aglomerados, fatores críticos para a obtenção de peças homogêneas e sem defeitos.

Figura 4 – Etapas do processo de prensagem uniaxial de pós cerâmicos.



Fonte: RICHERSON, 2006 (Adaptada)

Após essas etapas iniciais, tanto na técnica a seco quanto na úmida, as peças conformadas, os corpos verdes, passam por processos de secagem e sinterização. A secagem remove o meio dispersante ou solvente, enquanto a sinterização aumenta a densidade e promove a formação de ligações químicas e estruturais entre as partículas. Esses processos são essenciais para conferir ao material suas propriedades mecânicas e funcionais finais (Sebastian, 2008).

As técnicas de conformação desempenham um papel central no processamento de cerâmicas avançadas, permitindo a produção de materiais com propriedades específicas para aplicações em áreas como eletrônica, revestimentos resistentes e dispositivos estruturais de alta performance. Cada método, com suas particularidades, contribui para o avanço da tecnologia e inovação no desenvolvimento de novos materiais.

3.3 Matriz Cerâmicas Investigadas

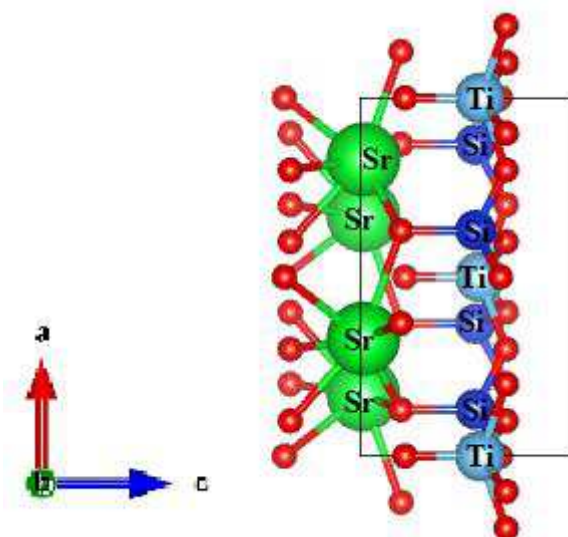
3.3.1 Silicato de titânio e estrôncio ($\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$).

O composto $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ (STS), visto na figura 5 é conhecido como fresnoíta de estrôncio, pertence ao grupo espacial P4bm e apresenta uma estrutura cristalina tetragonal. Essa estrutura é composta por camadas alternadas de octaedros de titânio (TiO_6) e tetraedros de silício (SiO_4), com íons de estrôncio (Sr^{2+}) ocupando posições intersticiais para manter o equilíbrio eletrostático (Esmacilzadeh, 2002; Sebastian, 2008).

A ausência de centros de simetria na estrutura cristalina confere ao STS propriedades piezoelétricas e piroelétricas, permitindo a geração de dipolos elétricos permanentes. Esses dipolos são fundamentais para as propriedades piezoelétricas intrínsecas do material, sem a necessidade de polarização prévia, como ocorre em materiais ferroelétricos (Dupla, 2020; Moulson & Herbert, 2003).

A organização cristalina da fresnoíta facilita a orientação preferencial dos dipolos elétricos ao longo dos planos cristalográficos (001), promovendo características piezoelétricas macroscópicas (Buchanan, 2000; Yin et al., 2021).

Figura 5 – Estrutura da célula unitária da cerâmica $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ Sistema cristalino tetragonal não centro-simétrica.



Fonte: Elaborado pelo próprio autor

Essa estrutura confere ao material alta estabilidade térmica, essencial para dispositivos que operam em altas temperaturas, como sensores de ondas acústicas de superfície (SAW), sensores de pressão e outros dispositivos avançados que demandam eficiência e confiabilidade em condições extremas (Carter, 2013; Sebastian, 2017; Kim et al., 2016).

3.3.2 Dióxido de Titânio (TiO_2).

O dióxido de titânio (TiO_2) tem sido extensivamente investigado desde a década de 1960, quando estudos pioneiros de Von Hippel (1961) demonstraram seu potencial em aplicações eletrônicas. Posteriormente, a utilização do rutilo como ressonador dielétrico (dielectric resonator, DR) foi explorada por Okaya e Barash (1962), enquanto suas propriedades dielétricas em micro-ondas foram descritas em detalhes por Cohn (1970). Na forma de rutilo, o TiO_2 é um material anisotrópico com

uma estrutura tetragonal composta por íons de oxigênio quase compactados e íons Ti^{4+} ocupando metade dos sítios octaédricos. Além disso, apresenta um gap óptico entre a banda de valência ($O2p$) e a banda de condução ($Ti3d$). Em condições normais, funciona como um isolante excepcional, mas em estados de oxidação específicos pode atuar como semicondutor (Buchanan, 2000; Carter, 2013).

O TiO_2 se destaca por suas propriedades dielétricas superiores, incluindo uma constante dielétrica relativa elevada ($\epsilon_r = 85,61$), baixa tangente de perdas ($\text{tg}\delta = 1,76 \times 10^{-4}$) e um coeficiente de temperatura de frequência ressonante positivo ($\tau_f = +364,97 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$) (Kim et al., 2016; Yin et al., 2021). Essas características tornam o material ideal para otimizar tanto as propriedades dielétricas quanto a estabilidade térmica de matrizes cerâmicas, como o $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$. Assim, a adição de dióxido de titânio em compósitos avançados é considerada uma estratégia promissora para melhorar o desempenho em aplicações de alta precisão e estabilidade térmica.

3.4 Características dos Materiais

3.4.1 Propriedades Fundamentais nos dielétricos

Os dielétricos são materiais isolantes que possuem a capacidade de sustentar um campo elétrico sem permitir uma condução significativa de corrente elétrica. Essa propriedade está diretamente relacionada à sua alta resistividade elétrica (ρ) e à baixa tangente de perdas dielétricas ($\tan\delta$), características que os tornam especialmente adequados para aplicações em dispositivos que operam em altas frequências (Kao, 2004; Moulson & Herbert, 2003).

Esses materiais desempenham duas funções principais em relação à energia: dissipação e armazenamento. A dissipação ocorre quando a energia elétrica é convertida em calor através do movimento de cargas, fenômeno conhecido como efeito Joule. Já o armazenamento de energia é resultado do deslocamento das cargas elétricas em resposta a um campo aplicado, com as cargas retornando às suas posições originais quando o campo é removido. Esse processo é denominado polarização dielétrica e é descrito pela permissividade dielétrica (ϵ'), que mede a capacidade do material de armazenar energia elétrica (Kittel, 1986).

3.4.2 Tipos de Polarização

Os processos de polarização de cargas ocorrem quando um material dielétrico é submetido a um campo elétrico, o que altera a orientação de seus dipolos, provocando

o alinhamento dos dipolos com o campo por um determinado período de tempo. Esse comportamento varia de acordo com o tipo de polarização, que pode ser classificado da seguinte forma:

- ❖ **Polarização Eletrônica:** Ocorre quando há deslocamento das nuvens eletrônicas nas camadas externas do núcleo atômico. Nesse processo, o campo elétrico induz a translação das nuvens eletrônicas ao redor das moléculas, causando a polarização do material (Kao, 2004).
- ❖ **Polarização Atômica ou Iônica:** Também chamada de polarização vibracional, ocorre devido às vibrações e distorções da rede cristalina. Nesse caso, os átomos são deslocados pelo campo elétrico de maneira simultânea, molécula por molécula, em materiais poliatômicos (Kao, 2004).
- ❖ **Polarização Orientacional:** Esse tipo de polarização acontece pela reorientação dos dipolos ao longo da direção do campo elétrico aplicado. Essa movimentação encontra resistência devido à inércia das moléculas vizinhas e à agitação térmica. É considerada uma interação intermolecular resultante de deformações inelásticas das partículas (Kao, 2004).
- ❖ **Polarização de Carga Espacial:** Refere-se ao movimento de cargas aprisionadas no interior do material. Esse processo resulta em uma distribuição distorcida do campo elétrico, causada pela formação de cargas espaciais, geralmente originadas pela injeção de portadores de carga (Mahato, 2011).

A investigação do comportamento dos materiais dielétricos nos leva a discutir sobre a permissividade relativa dielétrica, uma propriedade essencial para o entendimento dos fenômenos físico-químicos. Trata-se de uma grandeza física diretamente relacionada à frequência do campo alternado, à estrutura cristalina do material, bem como à pressão e temperatura às quais o material foi submetido (Kao, 2004).

3.4.3 Propriedades dos materiais dielétricos

a) Permissividade Relativa (ϵ_r):

Descreve fisicamente a capacidade de armazenamento de energia elétrica pelo material dielétrico na presença de um campo elétrico, quando imerso ao vácuo:

$$\epsilon_r = \frac{\epsilon}{\epsilon_0} \quad (1)$$

Onde ϵ é a permissividade do material e ϵ_0 a permissividade do vácuo ($8,85 \times 10^{-12}$ F/m) (Barsoum, 2003).

De acordo com Kittel (1986), a permissividade relativa é uma grandeza adimensional que reflete a interação entre o campo elétrico e os dipolos presentes no material. Valores mais elevados de (ϵ_r) indicam maior capacidade de armazenamento de energia além de corroborar para miniaturização do circuito elétrico, devido a permissividade ser inversamente proporcional ao quadrado do comprimento de onda no interior do material (Sebastian, 2008)

$$\epsilon_r = \left(\frac{\lambda_0}{\lambda_d} \right)^2 \quad 2$$

Como:

- λ_0 é o comprimento de onda no ar (no vácuo);
- λ_d é o comprimento de onda no dielétrico.

De modo geral, o valor da permissividade é relativo e depende da aplicação do material dielétrico, sua importância reside no fato de que ela influencia a velocidade de propagação da onda eletromagnética no meio, determinando a resposta dielétrica do material em diferentes frequências. Por exemplo, em sistemas de comunicação por rádio frequência (RF) e micro-ondas, um valor elevado de permissividade resulta em uma menor velocidade de propagação, o que pode ser vantajoso na miniaturização de componentes, como guias de onda e ressonadores. Quando a permissividade relativa é baixa, o material interfere minimamente no campo elétrico aplicado, permitindo que as ondas eletromagnéticas se propaguem com uma velocidade próxima àquela observada no vácuo. Isso é particularmente desejável em sistemas de alta frequência, como antenas, guias de onda e circuitos de micro-ondas. Em dispositivos de alta frequência, como linhas de transmissão e antenas, substratos com baixa permissividade minimizam as perdas de sinal e a distorção causada pela propagação da onda eletromagnética no meio (Brosseau, 2019).

Além disso, a permissividade relativa está intimamente ligada à constante de acoplamento eletromagnético, que afeta o desempenho de dispositivos piezoelétricos e eletro-ópticos. A sua dependência de fatores como frequência, temperatura e pressão torna o estudo detalhado dessa propriedade essencial no desenvolvimento de novos materiais avançados, como cerâmicas dielétricas e polímeros funcionais (Kao, 2004; Shannon, 2015).

b) Tangente de Perda ($\tan\delta$):

Relacionada as perdas dielétricas ou fator de dissipação como uma função da frequência (ω) internas do material e pode ser descrita pela relação:

$$\tan\delta = \frac{\varepsilon''(\omega)}{\varepsilon'(\omega)} \quad (3)$$

Onde ε' é a parte real (armazenamento de energia) dada em (F/m) e ε'' a parte imaginária (perdas) da permissividade com as unidades (F/m). Trata-se de uma grandeza adimensional que quantifica as perdas dielétricas em materiais de característica dielétricas (Kao, 2004). As perdas dielétricas no material é atribuída ao processo de dissipação de energia devido a diversos fatores como por exemplo: estrutura cristalina do material, física, química, relaxação dielétrica, condução térmica, ressonância, perdas não lineares dentre outros (Abreu, 2024).

c) Condutividade e Resistividade Elétrica (σ e ρ):

Apresentam-se com grandezas físicas inter-relacionadas que descrevem o comportamento da passagem da corrente elétrica em um condutor. A resistividade elétrica (ρ) é inversamente proporcional à condutividade elétrica (σ):

$$\rho = \frac{1}{\sigma} \quad (4)$$

Materiais com alta condutividade (como metais) possuem baixa resistividade, enquanto materiais isolantes (como dielétricos) têm alta resistividade (MOULSON & HERBERT, 2003).

d) Capacitância no Vácuo (C_0):

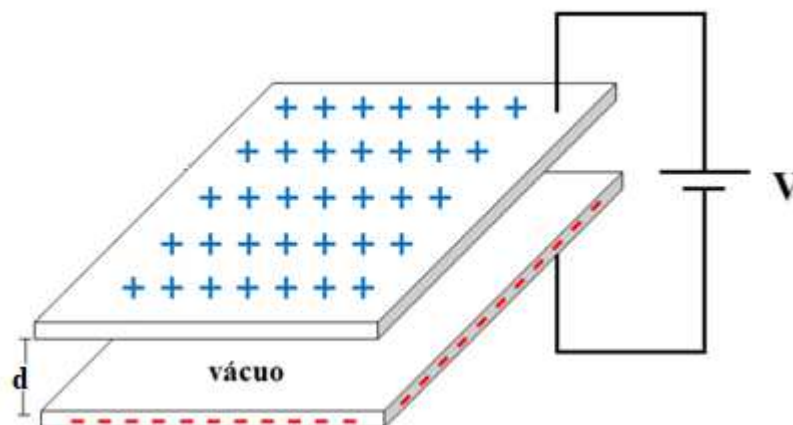
A capacitância de um capacitor é a medida de sua capacidade de armazenar carga elétrica em função da diferença de potencial aplicada entre suas placas.

Quando o espaço entre as placas de um capacitor é preenchido apenas por vácuo ou ar (considerado dielétrico com $\epsilon_r \approx 1$), a capacitância é calculada pela fórmula:

$$C_0 = \frac{\epsilon_0 \cdot A}{d} \quad (5)$$

Onde C_0 é a capacitância no vácuo, ϵ_0 é a permissividade elétrica do vácuo ($8,854 \times 10^{-12}$ F/m), A é a área das placas paralelas, e d é a distância entre elas. "A capacitância de um capacitor de placas paralelas é proporcional à área das placas e inversamente proporcional à distância entre elas (figura 6), parâmetros fundamentais para a otimização de dispositivos capacitivos" (Moulson & Herbert, 2003, p. 251).

Figura 6 – Ilustração do capacitor com placas paralelas em meio vácuo.



Fonte: Elaborado pelo autor, adaptado de (Abreu, 2024)

Quando o espaço entre as placas é preenchido com um material dielétrico, a capacitância aumenta devido à capacidade do dielétrico de armazenar energia elétrica adicional. Nesse caso, a capacitância é dada pela equação:

$$C_0 = \frac{\varepsilon \cdot A}{d} \quad (6)$$

A permissividade do material dielétrico (ε) é dada pelo produto da permissividade do vácuo (ε_0) e da permissividade relativa (ε_r) do material.

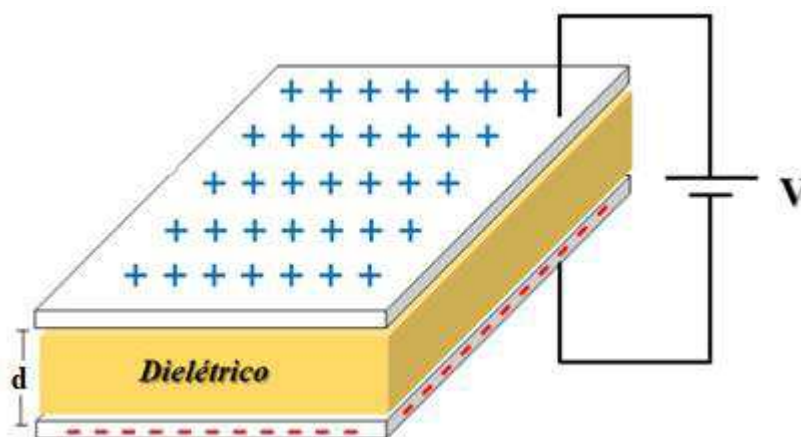
$$\varepsilon = \varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r \quad (7)$$

Efetuada as devidas substituições na fórmula, temos:

$$C = \frac{\varepsilon_0 \cdot \varepsilon_r \cdot A}{d} \quad (8)$$

Tal expressão indica que a presença de um dielétrico aumenta a capacitância em um fator igual à permissividade relativa (ε_r) do material. "Materiais dielétricos com alta permissividade relativa aumentam significativamente a capacidade de armazenamento de energia, tornando-os ideais para aplicações que demandam alta densidade de energia, como capacitores avançados" (Kao, 2004, p. 249).

Figura 7 – Ilustração do capacitor com placas paralelas preenchido por um dielétrico.



Fonte: Elaborado pelo autor, adaptado de (Abreu, 2024)

As afirmativas apontam que a capacidade de armazenamento de carga elétrica é, portanto, influenciada diretamente pela escolha do material dielétrico (figura 7).

A permissividade relativa com valores elevados nos materiais (cerâmicas ou polímeros), corrobora significativamente para aumentar a eficiência dos capacitores.

3.5 Espectroscopia de Impedância

3.5.1 Introdução à espectroscopia de impedância

A espectroscopia de impedância (EIS) vem do termo em inglês “*Electrochemical Impedance Spectroscopy*” e surgiu como uma técnica fundamental para estudo de comportamento e a caracterização de materiais e sistemas eletroquímicos durante o século XX. Atualmente a técnica é amplamente utilizada para caracterizar propriedades elétricas e dielétricas de materiais, especialmente cerâmicas e polímeros. Possibilitando a investigação de propriedades como condutividade elétrica, comportamento capacitivo e indutivo além de mecanismos de transporte de portadores de cargas. Segundo Barsoukov e Macdonald (2005), “a EIS combina modelagem matemática e experimental para decifrar fenômenos eletroquímicos e estruturais complexos”. São inúmeras suas aplicações e tem consonância com técnicas em estudos de materiais avançados. Logo a aplicação permite analisar processos relacionados à condução elétrica, polarização dielétrica e relaxação em uma ampla faixa de frequências, fornecendo informações sobre grãos, contornos de grão e interfaces do material (Macdonald, 1987).

3.5.2 Modelagem de circuitos equivalentes.

A modelagem de circuitos equivalentes é uma abordagem analítica que utiliza componentes elétricos ideais, como resistores, capacitores e indutores, para representar o comportamento elétrico de materiais e sistemas reais.

Em sistemas reais, nos deparamos com o comportamento de sistemas não ideais, causado por variações nas propriedades físico-químicas na interface do material, resultando em uma desordem nos mecanismos de relaxação. Para auxiliar na caracterização desses efeitos de relaxação, que ocorrem em níveis microestruturais e atômicos, surgiu a técnica de Espectroscopia de Impedância Complexa, conhecida em inglês como “*Complex Impedance Spectroscopy (CIS)*”, originada a partir das pesquisas de K. S. Cole e R. H. Cole (Moulson; Herbert, 2003).

A técnica (CIS) é empregada em diversas áreas, como ciência de materiais, eletroquímica e física, por permitir uma compreensão detalhada dos mecanismos de transporte de carga, reações interfaciais e relaxações dielétricas.

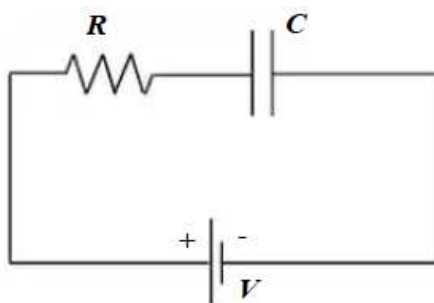
Segundo Barsoukov e Macdonald (2005), "a modelagem de circuitos equivalentes é essencial para traduzir os dados experimentais em informações físicas significativas, conectando fenômenos microscópicos a grandezas macroscópicas observáveis".

❖ Circuito RC em série.

Para realização da análise acerca da resposta elétrica em uma cerâmica é necessário a montagem de circuitos elétricos que contribuam na elucidação dos valores relativos ao comportamento elétrico da cerâmica.

Na figura abaixo temos a representação de circuito RC em série formado basicamente pela adição de um resistor (R) e um capacitor (C) em um circuito associados em série.

Figura 8 – Diagrama de um circuito RC em série.



Fonte: Elaborado pelo Autor

A impedância total $Z(\omega)$ pode ser calculada pela soma das impedâncias do circuito, observado que trata-se de uma associação das impedâncias do resistor (R) e do capacitor (C) quando os componentes estão em série.

$$Z(\omega) = R + C \quad (9)$$

$$Z(\omega) = R + \frac{1}{(j\omega C)} \quad (10)$$

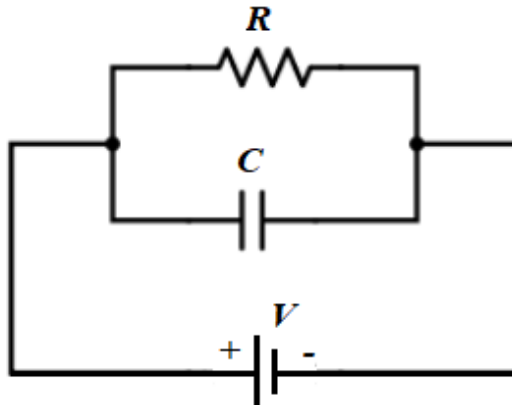
$$Z(\omega) = R + (j\omega C)^{-1} \quad (11)$$

$$\therefore Z(\omega) = R - j(\omega C)^{-1} \quad (12)$$

❖ Circuito RC em paralelo.

Para um sistema que apresenta um circuito RC composto por um resistor (R) e um capacitor (C) associados em paralelo, conforme ilustrado na Figura 9, esse tipo de circuito é amplamente empregado na modelagem de materiais dielétricos que exibem múltiplos mecanismos de relaxação ou combinam, simultaneamente, efeitos resistivos e capacitivos. Essa abordagem permite representar com precisão a resposta do sistema a diferentes frequências, sendo fundamental na análise de processos de relaxação dielétrica e transferência de carga em materiais complexos.

Figura 9 – Diagrama de um circuito RC em paralelo.



Fonte: Elaborado pelo Autor

Para determinar a impedância total de um circuito RC em paralelo, é necessário calcular a resistência equivalente do sistema, considerando a contribuição simultânea do resistor (R) e do capacitor (C) ao fluxo de corrente. Nesse tipo de circuito, a corrente total (I_{total}) é a soma da corrente que atravessa o resistor (I_R) e a corrente que passa pelo capacitor (I_C).

A relação entre a tensão aplicada (V) e a corrente total permite calcular a impedância total (Z_{total}) do circuito, conforme a equação abaixo:

$$\frac{1}{Z_{total}(\omega)} = \frac{1}{R} + j\omega C \quad (13)$$

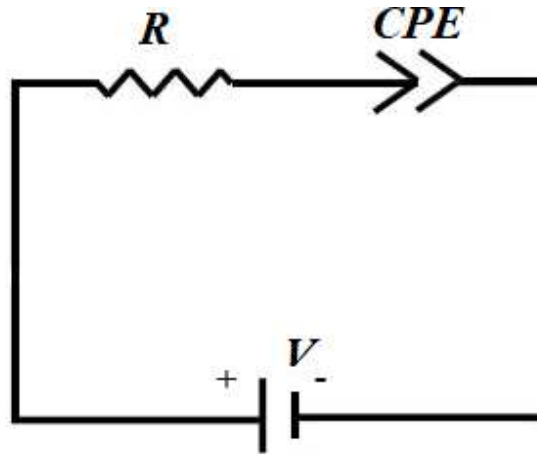
Onde:

- R é a resistência ôhmica;
- C é a capacitância;
- ω é a frequência angular;
- j é a unidade imaginária

❖ Circuito R-CPE em série.

O circuito composto por um resistor R em série com um Elemento de Fase Constante (CPE – “*Constant Phase Element*”) é utilizado em modelagem de sistemas dielétricos não ideais. O CPE é um componente que estende o comportamento de um capacitor ideal, permitindo representar fenômenos de dispersão relacionadas à heterogeneidade estrutural e imperfeições na interface eletrodo-eletrólito ou em materiais dielétricos.

Figura 10 – Diagrama de um circuito R-CPE em série.



Fonte: Elaborado pelo Autor

A impedância total do sistema é dada pela soma da impedância do resistor R e a impedância do CPE ($Z_{CPE}(\omega)$):

$$Z(\omega) = R + Z_{CPE}(\omega) = R + \frac{1}{q(j\omega)^{-n}} \quad (14)$$

Onde:

R é a resistência ôhmica;

Q é o fator de proporcionalidade do CPE, relacionado ao comportamento capacitivo do sistema;

n é o expoente de fase constante, com $(0 \leq n \leq 1)$;

j é a unidade imaginária ($j^2 = -1$);

(ω) é a frequência angular ($\omega = 2\pi f$).

Desenvolvendo a expressão em termos de sua parte real e imaginária, a impedância total pode ser expressa como:

$$Z(\omega) = R + \frac{1}{q\omega} \cos\left(\frac{n\pi}{2}\right) + j \frac{1}{q\omega} \sin\left(\frac{n\pi}{2}\right) \quad (15)$$

A equação mostra que a impedância total possui uma parte real (z') e uma parte imaginária (Z''), ambas dependentes da frequência e do parâmetro n . O valor de n determina o grau de dispersão da constante de tempo do sistema.

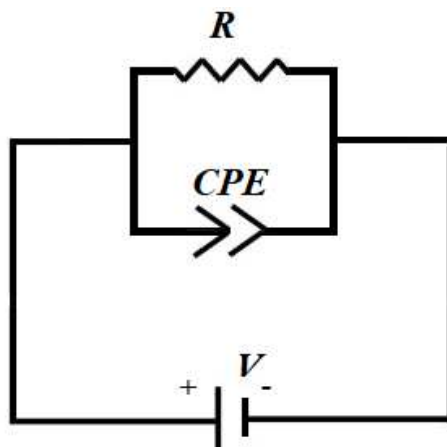
Para $n = 1$, o CPE se comporta como um capacitor ideal.

Para $n < 1$, o CPE representa um comportamento disperso, típico de sistemas heterogêneos.

❖ Circuito R-CPE em paralelo

Através do circuito abaixo figura 11, formado por resistor (R) e um Elemento de Fase Constante (CPE) conectado em paralelo, podemos obter o valor de impedância total (Z_{total}) do circuito R-CPE em paralelo pela somatória das admitâncias individuais dos componentes (R e CPE).

Figura 11 – Diagrama de um circuito R-CPE em paralelo.



Fonte: Elaborado pelo Autor

Cálculo da admitância total ($Y_{total}(\omega)$) em um circuito em R-CPE paralelo é obtido através da CPE ($Y_{CPE}(\omega)$):

$$Y_{CPE}(\omega) = q(j\omega)^n = q\omega^n \left(\cos\left(\frac{n\pi}{2}\right) + j\sin\left(\frac{n\pi}{2}\right) \right) \quad (15)$$

A admitância total do circuito é então expressa como:

$$Y_{total}(\omega) = \frac{1}{R} + Y_{CPE}(\omega) \quad (16)$$

Assim a impedância total ($Z(\omega)$) é obtida como o inverso da admitância total. Realizando um desenvolvimento algébrico, chegamos à forma final da impedância ($Z(\omega)$) separada em parte real e imaginária:

$$Z(\omega) = \frac{R + qR^2\omega^n \cos\left(\frac{n\pi}{2}\right)}{1 + 2qR\omega^n \cos\left(\frac{n\pi}{2}\right) + q^2R^2\omega^{2n}} - i \frac{qR^2\omega^n \sin\left(\frac{n\pi}{2}\right)}{1 + 2qR\omega^n \cos\left(\frac{n\pi}{2}\right) + q^2R^2\omega^{2n}} \quad (17)$$

Nesta forma, a impedância total é expressa em termos de sua parte real (Z') e parte imaginária (Z'') (Yuan, 2010; Abreu, 2024).

❖ Diagrama de Nyquist.

O diagrama de Nyquist é uma representação gráfica muito utilizada em espectroscopia de impedância para apresentar o comportamento elétrico de materiais e sistemas. Tal representação consta da relação entre a parte real (Z') eixo horizontal e a parte imaginária (Z'') eixo vertical da impedância, permitindo a visualização de processos físicos e químicos subjacentes, como transporte de carga, relaxações dielétricas e difusão. Segundo Barsoukov e Macdonald (2005), "o diagrama de Nyquist é um método eficiente para associar fenômenos elétricos a elementos ideais em circuitos equivalentes, facilitando a modelagem de sistemas complexos".

A impedância elétrica (Z) é definida pela relação entre a tensão (V) e a corrente elétrica (I) em um circuito sob excitação alternada. A equação é expressa como:

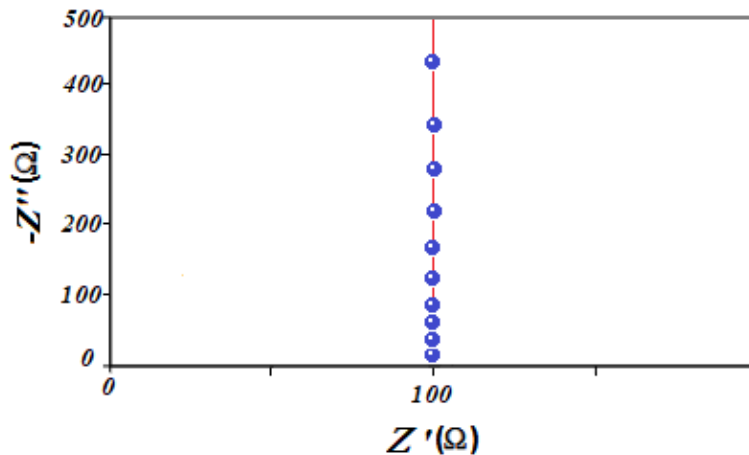
$$Z(\omega) = Z'(\omega) + jZ''(\omega) \quad (18)$$

Onde (Z') é a parte real (resistiva) e (Z''), a imaginária (reativa) e (ω) corresponde a frequência angular. Tal abordagem facilita o entendimento dos processos resistivos ou indutivos em materiais.

A representação gráfica de um circuito RC em série similar ao visto na figura 8 pode ser facilmente demonstrada com o diagrama de Nyquist como podemos observar na figura 1. Esse tipo de diagrama é tipicamente utilizado para expressar o

comportamento do material e caracterizar o sistema com relação a sua capacitância e/ou resistividade.

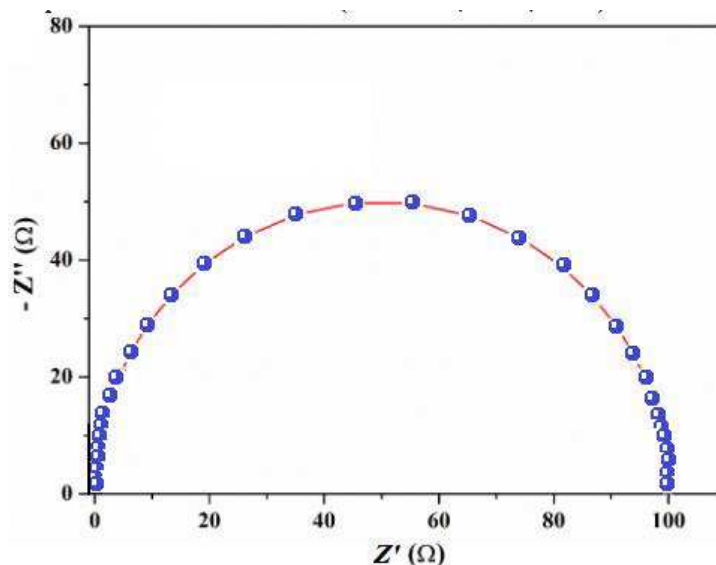
Figura 12 – Diagrama de Nyquist de um circuito RC em série com $R = 100\Omega$ e $C = 0,1F$.



Fonte – Elaborado pelo autor (Adaptado Yuan, 2010)

Para representação gráfica de circuito RC em paralelo figura 9 podemos utilizar o diagrama de Nyquist exibido na figura 13 para verificar o comportamento da relaxação dielétrica de um circuito com frequência de 1mHz a 1MHz composta por resistor ôhmico de 100Ω e capacitor de 0,005 Farad. A curva resultante para um circuito RC em paralelo é um semicírculo perfeito com diâmetro correspondendo a resistência R e a frequência característica ($\omega_{máx}$) coincidindo com o ponto onde a impedância imaginária atinge seu valor máximo, ou seja, o topo do semicírculo.

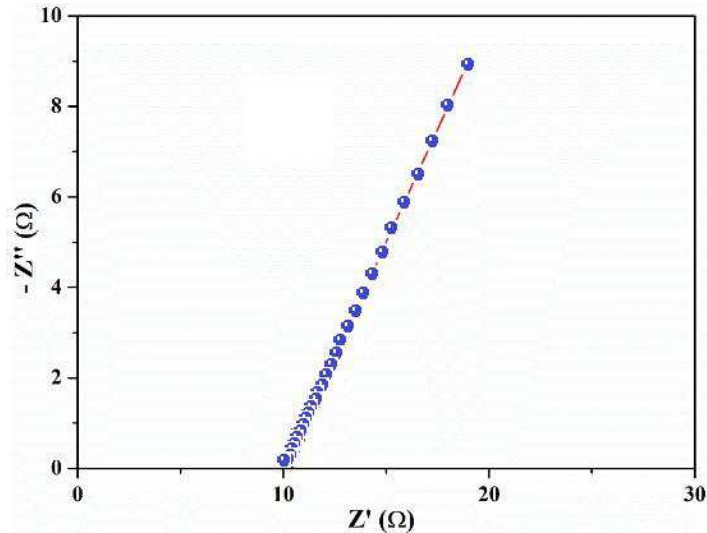
Figura 13 – Diagrama de Nyquist de um circuito RC em paralelo composto $R = 100\Omega$ e $C = 0,005F$.



Fonte – Elaborado pelo autor (Adaptado Yuan, 2010)

A Figura 13 apresenta o esquema de um circuito composto por um resistor (R) em série com um Elemento de Fase Constante (CPE). O modelo indicado para representar sistemas eletroquímicos e dielétricos que apresentam comportamento não ideal devido a fatores como irregularidades superficiais, heterogeneidade estrutural e dispersão de constantes de tempo.

Figura 14 – Diagrama de Nyquist para o circuito R-CPE na faixa de frequência de 1mHz a 1MHz, com parâmetros $R = 10 \, \Omega$, $q = 1 \Omega^{-1} s^{0,5}$

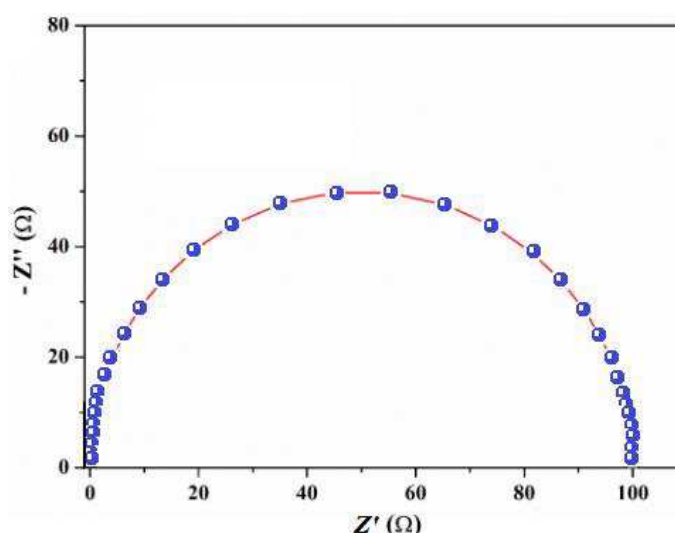


Fonte: Elaborado pelo autor (adaptado de YUAN, 2010)

A utilização do CPE torna possível o estudo do comportamento de um capacitor em um sistema não ideal, Este é tipicamente empregado em situações onde há fenômenos de relaxação dispersos ou interfaces irregulares (Yuan et al., 2010; Moliton, 2007).

Para representação gráfica (figura 13) do circuito R-CPE com associação de resistor e CPE em paralelo similar ao circuito apresentado na figura 11.

Figura 15 – Diagrama de Nyquist para o circuito R-CPE com associação em paralelo na faixa de frequência de 1mHz a 1MHz, com parâmetros $R = 100 \, \Omega$, $q = 0,01 \Omega^{-1} s^{0,5}$ e $n = 1$.

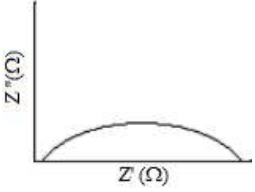
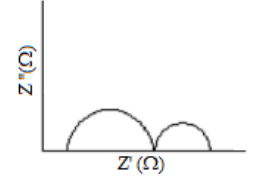
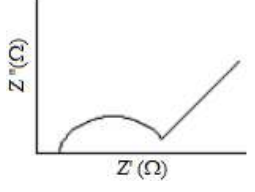


Fonte: Elaborado pelo autor (adaptado de YUAN, 2010)

Esse comportamento de semicírculo é típico de sistemas que são composto por efeitos resistivo e capacitivo com dispersão de constantes de tempo. O grau de achatamento é regulado diretamente pelo constante n , ou seja, o CPE representa um comportamento disperso, e o semicírculo aparece achatado devido à heterogeneidade do sistema (Yuan et al., 2010).

Tabela 1 – Descrição dos tipos de diagramas de Nyquist para sistema eletroquímico.

Tipos	Descrições	Diagramas
Semicírculo	Apresenta um diagrama característico de sistemas que possuem uma única constante de tempo associada à transferência de carga.	
Dois Semicírculos	Ocorre em processos distintos com constantes de tempo diferentes, como transferência de carga e polarização de eletrodos, aparecem dois semicírculos sobrepostos.	
Difusão de Warburg	Surgimento de uma linha inclinada após o semicírculo indica a presença de um fenômeno de difusão controlada, conhecido como impedância de Warburg.	

Semicírculo Achatado	Quando o semicírculo ideal é substituído por um arco “achatado” ou depressivo, devido à heterogeneidade do sistema ou à dispersão de constantes de tempo. Esse comportamento é modelado por um elemento constante de fase (CPE) em vez de um capacitor ideal.	
Duplo Semicírculo Achatado	Apresenta comportamento não ideal, onde os semicírculos são achatados. Isso reflete uma dispersão de constantes de tempo em múltiplos processos eletroquímicos.	
Semicírculo Achatado com Difusão de Warburg	Combinação do efeito de uma constante de fase não ideal com a difusão de Warburg, resultando em um semicírculo achatado seguido por uma linha inclinada em baixas frequências.	

Fonte: Elaborado pelo autor, Adaptado de Yuan, 2010.

O diagrama de Nyquist é a forma didática de apresentar a impedância experimental de um sistema. Na tabela 1 podemos interpretar que o tamanho do semicírculo indica a resistência de transferência de carga, enquanto a inclinação da linha de Warburg está relacionada à difusão dos íons no sistema. Observa-se que sistemas com múltiplas constantes de tempo exigem modelos mais complexos, compostos por múltiplos circuitos equivalentes, para interpretar corretamente os fenômenos físicos e químicos que ocorrem no sistema.

❖ Lei de Potência de Jonscher.

A Lei de Potência de Jonscher, também conhecida como Jonscher's Power Law, é um modelo utilizado para descrever a dependência da condutividade elétrica alternada (σ_{AC}) em função da frequência (f) em materiais dielétricos, cerâmicos e polímeros.

Essa lei permite compreender os mecanismos de transporte eletrônico e iônico em sistemas complexos, especialmente aqueles que apresentam dispersão significativa. Segundo Jonscher (1977), "a condutividade em sistemas dielétricos é

caracterizada por uma contribuição contínua da frequência, refletindo a interação entre diferentes mecanismos de transporte".

A dependência da condutividade alternada (σ_{AC}) com a frequência é descrita pela seguinte equação:

$$\sigma_{AC}(\omega) = \sigma_{DC} + A\omega^n, \quad (19)$$

Onde:

- σ_{AC} é a Condutividade elétrica alternada.
- σ_{DC} é a Condutividade em corrente contínua (DC).
- A é a Constante proporcional ao material, relacionado à mobilidade das cargas.
- ω é a Frequência angular $\omega = 2\pi f$.
- n é a Expoente de dispersão, que assume valores no intervalo $0 < n \leq 1$

A condutividade em corrente contínua (σ_{DC}) é um parâmetro fundamental na análise das propriedades elétricas de materiais, em especial sistemas dielétricos, cerâmicos e polímeros. Esse termo refere-se à parte da condutividade elétrica que é independente da frequência, ou seja, está associada ao transporte de carga em regime de corrente contínua (DC).

Podemos definir a condutividade elétrica DC através da relação:

$$\sigma = \frac{j}{E} \quad (20)$$

Onde:

- σ é a Condutividade elétrica (S/cm);
- j é a Densidade de corrente elétrica (A/cm²);
- E é a Campo elétrico aplicado (V/cm).

No caso da condutividade em DC, o valor de (σ_{DC}) reflete o transporte direto de portadores de carga, como íons ou elétrons, sem depender da frequência aplicada.

Quando incorporada a Lei de Potência de Jonscher, a condutividade total de um material (σ_{AC}) que descrita pela equação (*JPL*), a condutividade DC domina em baixas frequências com f tendendo a 0 ou quando não há variação temporal significativa do campo elétrico.

Em relação ao componente dispersiva ($A\omega^n$) descrito na lei de potência de Jonscher, é responsável por elucidar o comportamento dependente da frequência da condutividade alternada (σ_{AC}) em materiais dielétricos, cerâmicos e polímeros. Esse termo reflete os efeitos dispersivos de transporte de carga, como a interação entre portadores de carga e a matriz estrutural do material, além de mecanismos interfaciais

e heterogeneidades. Segundo Jonscher (1977), "a contribuição dispersiva é uma manifestação da dinâmica da resposta elétrica de sistemas complexos, dominada por fatores estruturais e cinéticos".

Os critérios para o expoente n indicam os parâmetros fundamentais para interpretação da componente dispersiva, variando de $0 < n \leq 1$. Ele determina o grau de dispersão e os mecanismos de transporte no sistema:

Quando $n = 1$: a contribuição dispersiva descreve um comportamento ideal capacitivo. Isso ocorre em sistemas homogêneos e bem cristalizados, onde os portadores de carga interagem uniformemente com o material. Segundo Barsoukov e Macdonald (2005), "o expoente $n = 1$ reflete a ausência de dispersão significativa no sistema".

Quando $0 < n < 1$: Valores de n menores que 1 indicam dispersão acentuada, características de sistemas heterogêneos. Onde tais matérias podem apresentar: Grão de tamanho diferentes, barreiras intergranulares e/ou interfaces complexas e presença de múltiplos tempos de relaxação. Nascimento et al. (2019) apontam que "valores menores de n estão associados à heterogeneidade estrutural e à distribuição desigual de portadores de carga".

Quando $n = 0,5$: Este valor é típico de processos de difusão dominados, como em sistemas caracterizados pela impedância de Warburg. Luo et al. (2023) ressaltam que "o expoente $n = 0,5$ reflete um transporte limitado por difusão, comum em materiais eletroquímicos e interfaces".

Quando $n = 0$: a componente dispersiva desaparece, indicando um sistema puramente resistivo, sem contribuições capacitivas ou dispersivas.

A constante A e o expoente n dependem fortemente da temperatura, microestrutura e composição do material. Zhu et al. (2020) destacaram que "materiais dopados com terras raras exibem n menores devido à introdução de defeitos estruturais e aumento da dispersão de carga". Assim, a análise do comportamento dispersivo permite correlacionar diretamente os fenômenos de transporte aos fatores estruturais do material.

3.5.3 Representação no plano complexo.

O plano complexo é uma ferramenta fundamental em várias áreas da física e engenharia, especialmente no estudo de materiais dielétricos, cerâmicos e polímeros. Ele permite a representação de números complexos, que são essenciais para descrever

fenômenos que envolvem comportamento dinâmico, como a resposta dielétrica e a condutividade elétrica desses materiais.

Um número complexo é geralmente representado na forma $z = a + bi$, onde a é a parte real e b é a parte imaginária, com i sendo a unidade imaginária $i^2 = -1$.

No plano complexo, a e b são coordenadas que posicionam o número em relação ao eixo real (Re) e ao eixo imaginário (Im).

A magnitude de z , dada por $|z| = \sqrt{a^2 + b^2}$, representa a distância do ponto z à origem. O ângulo θ , ou argumento do número complexo, é calculado como $\theta = \tan^{-1}\left(\frac{b}{a}\right)$. Essa representação polar é amplamente usada para descrever propriedades de materiais, como a permissividade complexa.

Materiais dielétricos, como cerâmicas avançadas e polímeros, exibem uma resposta complexa a campos elétricos alternados. Segundo Moliton (2007), grandezas dielétricas podem ser descritas no plano complexo, permitindo a separação de componentes reais e imaginários. Essa resposta é frequentemente expressa pela permissividade complexa (ε^*), definida como:

$$\varepsilon^* = \varepsilon' - j\varepsilon'' \quad (21)$$

Aqui, (ε') é a permissividade real, que mede a capacidade do material de armazenar energia elétrica, enquanto (ε'') representa as perdas dielétricas associadas à dissipação de energia no material. No plano complexo, (ε^*) pode ser representado como um vetor cuja magnitude e direção fornecem informações sobre o desempenho dielétrico do material.

No caso de cerâmicas, a estrutura cristalina influencia diretamente os valores de (ε^*) . Materiais com alta ordem cristalina apresentam menores perdas dielétricas, uma característica desejável em dispositivos de micro-ondas e radiofrequência. Já os polímeros dielétricos, sendo materiais amorfos, exibem maior dependência das condições externas, como temperatura e frequência do campo elétrico.

A tangente de perdas, definida na eq. (3) é outro parâmetro representado no plano complexo. Ela descreve a eficiência dielétrica, sendo usada para selecionar materiais em aplicações específicas. Conforme enfatizado por Silva et al. (2018), "a avaliação da tangente de perdas no plano complexo permite o ajuste preciso de materiais em sistemas de alta frequência."

3.5.4 Mecanismos de Relaxação dielétrica.

A relaxação dielétrica ocorre quando a polarização do material não é instantânea em resposta a um campo elétrico alternado, sendo controlada por mecanismos que envolvem cargas livres, dipolos permanentes e condutividade dielétrica (Moliton, 2007; Abreu et al., 2023; Sales et al., 2024).

O comportamento desse fenômeno pode ser analisado por meio de espectroscopia de impedância complexa, onde diagramas de Nyquist permitem distinguir os efeitos provenientes do grão e das bordas dos grãos (Abreu et al., 2024; Alekson et al., 2022), dentre os modelos de relaxação dielétrica existente apontamos os modelos de Debye e Havriliak-Negami como ferramentas indispensáveis para análise nos fenômenos de polarização dielétrica.

O modelo de Debye assume que o tempo de relaxação τ é único e constante para todo o material, sendo a expressão da permissividade relativa em função da frequência angular (ω) dada por:

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + j\omega\tau} \quad (22)$$

Onde (ε_s) é a permissividade em baixa frequência e (ε_∞) a permissividade em alta frequências (Abreu et al., 2024; Nobrega et al., 2022; Moliton, 2007).

O modelo de Havriliak-Negami apresenta uma alternativa generalizada ao de Debye, quando não é possível aplicar o modelo de Debye considerado que se trata de um modelo aplicado a um sistema de tempo de relaxação único e comportamento dielétrico definido no material. Surgi a necessidade de utilizar modelos derivados de Debye, ao qual consideramos como não-Debye: Cole-Cole, Cole-Davidson. Assim, o modelo de Havriliak-Negami introduz os parâmetros, α e β , que descrevem a dispersão e a assimetria do processo de relaxação:

$$\varepsilon^*(\omega) = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{(1 + (j\omega\tau)^{1-\alpha})^\beta} \quad (23)$$

Onde:

- ε^* é a permissividade relativa estática;
- ε_∞ é a permissividade relativa para altas frequências;
- ω é a frequência de oscilação angular;
- τ é o tempo de relaxação.

Com os parâmetros de dispersão e assimetrias limitados em $(0 < \alpha < 1)$ e $(0 < \beta < 1)$. Este modelo é frequentemente aplicado em materiais com comportamentos dielétricos complexos (Abreu et al., 2024; Nogueira et al., 2024; Sales et al., 2024).

3.6 Estrutura Cristalográfica dos Materiais Cerâmicos.

3.6.1 Breve histórica do surgimento da cristalografia.

A cristalografia teve início em meados do século XVII com as pesquisas de Johannes Kepler, que postulou propostas acerca da regularidade das formas cristalinas dos materiais, sucedido por René Just Haüy, que ficou conhecido como o “pai da cristalografia”, ao observar que cristais naturais, como o quartzo, apresentavam padrões geométricos recorrentes. Entretanto, os avanços significativos só ocorreram no início do século XX, com a descoberta da difração de raios X (DRX) por Max von Laue em 1912 e a posteriormente com as aplicações laboratoriais dos pesquisadores William Henry Bragg e William Lawrence Bragg, que a cristalografia se fundamentou como uma ferramenta científica indispensável na análise da estrutura atômica de sólidos cristalinos. A técnica de DRX tornou-se essencial para a determinação precisa da organização dos átomos em um cristal, abrindo uma nova era no entendimento dos materiais sólidos (Padilha, 1997; Callister & Rethwisch, 2010).

No campo de estudo das cerâmicas avançadas, a cristalografia e, em especial, a técnica de difração de raios X desempenham um papel crucial. De modo geral, as Cerâmicas avançadas são materiais que tem um destaque em relação obtenção de fases cristalinas cuidadosamente projetadas, no intuito de atingir as propriedades específicas desejadas, como alta resistência mecânica, estabilidade térmica e condutividade elétrica controlada. A aplicação da DRX torna possível a análise minuciosa da estrutura cristalina desses materiais, garantindo o desenvolvimento de cerâmicas com desempenho superior e aplicações tecnológicas críticas, como em dispositivos eletrônicos, biomateriais e componentes aeroespaciais (Callister & Rethwisch, 2010).

3.6.2 Sistema cristalinos: Classificação geométrica e sua influência nas propriedades dos materiais.

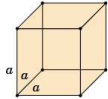
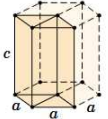
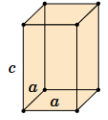

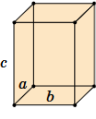
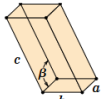
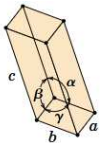
Os sistemas cristalinos configuram como o cerne da cristalografia e compete ao sistema, fornece ordem para diferenciar as maneiras pelas quais os átomos, íons ou moléculas se organizam em uma rede tridimensional periódica. Esses sistemas estão descritos na tabela 2, onde apresenta a classificação do sistema cristalino em sete tipos

principais, de acordo com as relações entre os eixos cristalográficos e os ângulos interaxiais: cúbico, hexagonal, tetragonal, romboédrico, ortorrômbico, monoclinico e triclinico (Callister & Rethwisch, 2010).

O sistema cúbico apresenta a maior simetria, com eixos de igual comprimento e ângulos de 90° . Esse tipo de estrutura é comum em metais como o ferro e materiais cerâmicos avançados com aplicações em dispositivos eletrônicos. Em seguida temos o sistema hexagonal caracteriza-se por eixos iguais no plano basal e um eixo perpendicular de diferente comprimento, formando um ângulo de 120° entre os eixos do plano basal, sendo comum em metais como o zinco e compostos cerâmicos (Moulson & Herbert, 2003).

Por sua vez temos o sistema tetragonal com sua similaridade ao sistema cúbico, mas com um eixo de comprimento diferente, enquanto o sistema romboédrico possui eixos iguais, mas com ângulos distintos de 90° , o que resulta em células unitárias inclinadas.

Tabela 2 – Parâmetros de rede e representação geométrica dos sistemas cristalinos

Sistema cristalino	Relações Axiais	Ângulos Interaxiais	Geometria da Célula Unitária
Cúbico	$a = b = c$	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	
Hexagonal	$a = b \neq c$	$\alpha = \beta = 90^\circ, \gamma = 120^\circ$	
Tetragonal	$a = b \neq c$	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	
Romboédrico	$a = b = c$	$\alpha = \beta = \gamma \neq 90^\circ$	
Ortorrômico	$a \neq b \neq c$	$\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	
Monoclínico	$a \neq b \neq c$	$\alpha = \gamma = 90^\circ \neq \beta$	
Triclínico	$a \neq b \neq c$	$\alpha \neq \beta \neq \gamma \neq 90^\circ$	

Fonte: CALLISTER,2009 (Adaptada)

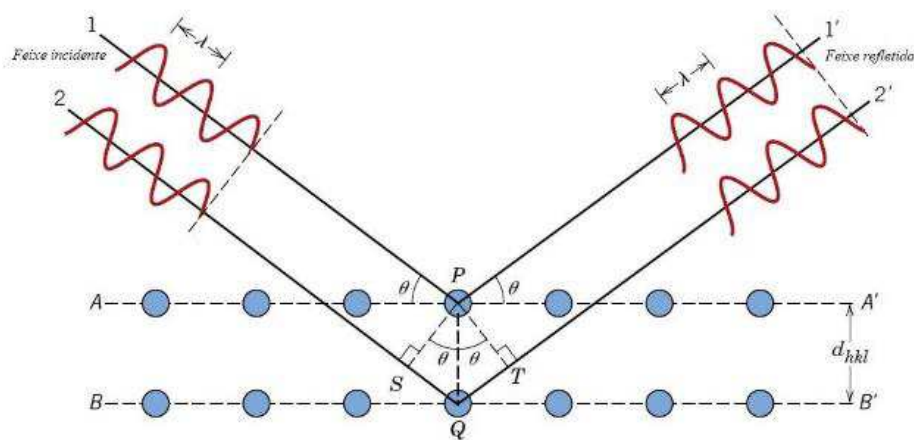
O sistema ortorrômico apresenta três eixos de comprimentos desiguais e ângulos de 90°. Os sistemas monoclínico e triclínico são os menos simétricos, com ângulos diferentes de 90°, e são frequentemente encontrados em cerâmicas avançadas com propriedades específicas para telecomunicações e aplicações em micro-ondas (Abreu et al., 2024).

Esses sistemas cristalinos influenciam diretamente as propriedades físicas dos materiais, como suas constantes dielétricas, condutividade térmica e mecânica. Por exemplo, em cerâmicas avançadas utilizadas na indústria de telecomunicações, a simetria e a periodicidade da estrutura cristalina desempenham um papel fundamental na definição de suas propriedades dielétricas e de perda, como demonstrado por Abreu et al. (2021), que estudaram compostos à base de YNbO4 e TiO2.

3.6.3 Difração de Raios X, Lei de Bragg e Análise Estrutural por Rietveld.

A técnica de difração de raios X (DRX) é uma ferramenta indispensável na determinação das estruturas cristalinas desses materiais com maior precisão, sendo essencial para a identificação das fases presentes e para a otimização de suas propriedades. Essa técnica é baseada na interação dos raios X com os átomos dispostos na rede cristalina (figura 16), produzindo padrões de difração característicos. O entendimento da difração de raios X e a aplicação da Lei de Bragg possibilitam a análise de parâmetros importantes, como o espaçamento entre planos cristalinos e a identificação das fases presentes no material.

Figura 16 – Esquema da Difração de Raios X e Reflexão em Planos Cristalinos Paralelos.



Fonte: CALLISTER, 2013.

Recentemente, trabalhos como os de Barros et al. (2024) demonstraram a aplicação da DRX em materiais cerâmicos avançados visando melhorar suas características dielétricas em dispositivos operando na faixa de micro-ondas.

A Lei de Bragg estabelece a condição para que ocorra interferência construtiva entre ondas de raios X refletidas por planos cristalinos paralelos. Quando o ângulo de incidência θ dos raios X em relação a um conjunto de planos cristalinos produz uma diferença de caminho igual a um múltiplo inteiro do comprimento de onda λ , a difração é observada. A equação que descreve essa condição é dada por:

$$n\lambda = 2d_{hkl}\sin\theta \quad (24)$$

Onde:

- n é Ordem da difração (geralmente $n = 1$);
- λ é o comprimento de onda da radiação incidente;
- d_{hkl} é o espaçamento interplanar entre os planos identificados pelos índices de Miller (hkl);

- θ é o ângulo de incidência e reflexão do feixe de raios x.

Através da expressão apresentada, torna-se possível a determinação do espaçamento interplanar e , adicionalmente, os parâmetros de rede de materiais cristalinos.

A caracterização da estrutura cristalina é obtida por meio da análise dos ângulos de difração observados, o que permite a identificação das distâncias interplanares associadas aos planos cristalinos específicos.

Os índices de Miller (hkl) são usados para descrever a orientação de planos cristalinos em uma rede. Eles são definidos como os recíprocos das interseções do plano com os eixos cristalográficos, expressos em termos de frações da dimensão da célula unitária.

O espaçamento interplanar d_{hkl} pode ser calculado a partir dos parâmetros de rede. Para um sistema cúbico simples, a relação é dada por:

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \quad (25)$$

Onde:

- a é parâmetro de rede da célula unitária;
- h , k e l são os índices de Miller.

Essa expressão é utilizada na análise estrutural de materiais cristalinos, em especial, em compostos metálicos e cerâmicas avançadas.

O método de Rietveld é uma técnica de refinamento de padrões de difração que permite extrair informações precisas sobre a estrutura cristalina a partir dos dados experimentais. Desenvolvido por Hugo Rietveld em 1969, esse método consiste em ajustar o padrão de difração experimental utilizando um modelo estrutural teórico, minimizando a diferença entre o padrão observado e o calculado.

A caracterização de materiais complexos através do refinamento de Rietveld, como cerâmicas avançadas, supercondutores e compostos semicondutores é essencial. Estudos recentes demonstram a eficácia do método de Rietveld na análise de compostos cerâmicos utilizados em dispositivos eletrônicos, como os relatados por Abreu et al. (2024), que utilizaram a difração de raios X e o refinamento de Rietveld para investigar a formação de fases em materiais dielétricos para telecomunicações.

3.6.4 Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV)

A Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV), também conhecida em inglês como “*Scanning Electron Microscopy*” (SEM), é uma técnica analítica indispensável o estudo da morfologia e composição de superfícies de materiais. Oferece alta resolução e capacidade de gerar imagens tridimensionais, a MEV se tornou uma ferramenta essencial em áreas como ciência dos materiais, nanotecnologia e biologia (Reimer, 1998; Zhou & Wang, 2007). Essa técnica permite a observação de microestruturas, defeitos e contornos de grão, fornecendo informações críticas sobre a formação de fases e a qualidade dos materiais analisados (Egerton, 2005; Suryanarayana & Norton, 2014).

No processo de varredura, um feixe de elétrons altamente colimado é gerado e direcionado sobre a superfície da amostra, interagindo com ela e gerando diversos sinais que podem ser captados por detectores específicos. Os principais sinais coletados são os elétrons secundários, que formam as imagens topográficas, e os elétrons retroespalhados, que contribuem com o contraste composicional devido à variação do número atômico local (Zhou & Wang, 2016). Além disso, a MEV pode ser equipada com detectores de raios X para realizar a Espectroscopia de Dispersão de Energia de Raios X (EDS), possibilitando a análise química elementar da amostra (Goldstein et al., 2018).

Embora a MEV não forneça diretamente informações sobre a estrutura cristalina, ela é rotineiramente atribuída aos estudos de cerâmicas avançadas, com uma combinação de técnicas como a difração de elétrons retroespalhados (EBSD).

O EBSD permite a definição das orientações cristalográficas e a análise de texturas, complementando as informações obtidas por difração de raios X (Schwartz et al., 2009; De Graef & Zaefferer, 2015).

A junção na abordagem dessas técnicas permite o estudo simultâneo da morfologia, composição química e orientação cristalina de materiais complexos, em especial o das cerâmicas avançadas e metais.

3.7 Antenas Ressoradoras Dielétricas (DRAs)

3.7.1 Breve história do surgimento da Antenas

Atualmente, as antenas desempenham um papel essencial no campo das telecomunicações, proporcionando benefícios significativos à sociedade. Graças a essas tecnologias, é possível usufruir de serviços modernos de comunicação que

seriam inviáveis sem a existência de mecanismos eficientes de transmissão e recepção de sinais eletromagnéticos. O surgimento das antenas tem começo por volta do XIX com as descobertas fundamentais no campo do eletromagnetismo. A primeira demonstração prática de ondas eletromagnéticas foi realizada por Heinrich Hertz em 1887. Hertz utilizou uma configuração de dipolos simples, que se tornaria o modelo básico para o desenvolvimento das antenas.

Esse experimento provou a existência das ondas eletromagnéticas previstas teoricamente por James Clerk Maxwell, abrindo caminho para a aplicação prática dessas ondas na comunicação (Balanis, 2005).

No início do século XX, com o avanço das tecnologias de rádio, Guglielmo Marconi desenvolveu transmissões de longa distância utilizando antenas de fio simples e torres de grande altura. Esse período foi marcado pelo desenvolvimento de antenas monopolo e dipolo, que passaram a ser amplamente utilizadas em sistemas de radiocomunicação (Petosa, 2007).

A partir da década de 1940, com o surgimento dos radares durante a Segunda Guerra Mundial, houve grande interesse em antenas direcionais, como antenas de refletor parabólico e de corneta. Essas antenas apresentavam alto ganho e capacidade de direcionar a radiação em feixes estreitos, o que era fundamental para aplicações militares e de navegação (Balanis, 2005).

Na década de 1970, com o avanço dos circuitos integrados, surgiram as antenas microstrip, que consistem em elementos metálicos planos montados sobre substratos dielétricos. Essas antenas têm como principais vantagens o baixo perfil e a facilidade de integração com circuitos eletrônicos, tornando-se populares em dispositivos portáteis e sistemas de comunicação via satélite (Petosa, 2007).

Nas últimas décadas do século XX, as antenas ressonadoras dielétricas (Dielectric Resonator Antennas - DRAs) começaram a ganhar atenção devido às suas características únicas, como alta eficiência e operação em bandas de frequência elevadas. Inicialmente usadas em circuitos de micro-ondas como ressonadores, foram adaptadas para funcionar como antenas ao remover o encapsulamento metálico, permitindo que o dielétrico irradiasse eficientemente (Petosa, 2007).

Mais recentemente, o desenvolvimento de antenas inteligentes e fractais abriu novas possibilidades na área de telecomunicações. Antenas inteligentes utilizam processamento digital para ajustar dinamicamente o padrão de radiação, enquanto as

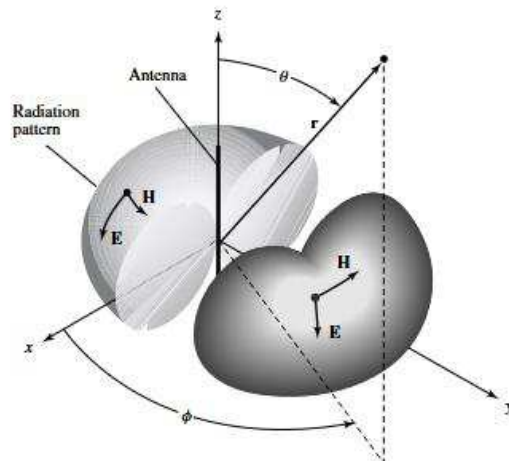
antenas fractais, baseadas em geometria auto-similar, permitem miniaturização e ampla largura de banda (Balanis, 2005).

3.7.2 Parâmetros fundamentais das antenas

❖ Diagrama de Radiação

O diagrama de radiação de uma antena, também conhecido como *radiation pattern*, é uma representação matemática ou gráfica das propriedades de radiação de uma antena em função das coordenadas espaciais. Em geral, esse diagrama é determinado na região de campo distante (*far-field region*), onde a distribuição de radiação da antena pode ser representada como função das direções angulares (Balanis, 2005).

Figura 17 – Diagrama de antenas Omnidirecional



Fonte: BALANIS, 2005

Na elaboração de projeto de caracterização de antenas o estudo do diagrama de radiação é fundamental, pois, é possível visualizar a concentração da energia irradiada em diferentes direções e avaliar a diretividade da antena. Em aplicações práticas, um diagrama de radiação altamente direcional é desejável em sistemas como radares e comunicação via satélite, enquanto em outras aplicações, como antenas omnidirecionais usadas em redes sem fio, espera-se uma radiação uniforme em todas as direções do plano horizontal (Balanis, 2005; Petosa, 2007)

❖ Densidade de Potência Radiada.

Trata-se de um parâmetro fundamental para a análise de antenas, pois descreve a quantidade de potência irradiada por unidade de área em uma direção específica. Ela

é definida como a potência que atravessa uma superfície esférica imaginária de raio r ao redor da antena, perpendicular à direção de propagação das ondas eletromagnéticas.

Esse parâmetro é particularmente importante na determinação da eficiência de radiação, diretividade e ganho da antena (Balanis, 2005).

A densidade de potência radiada (P_r) é definida como a quantidade de potência irradiada por unidade de área em uma direção específica. É expressa como:

$$P_r = \frac{P_t}{4\pi r^2} \quad (26)$$

Onde P_t é a potência total irradiada e r é a distância da antena ao ponto de observação (Balanis, 2005).

A equação 26 mostra que a densidade de potência descreve com o quadrado da distância ($\propto \frac{1}{r^2}$), ou seja, à medida que nos afastamos da antena, a potência irradiada por unidade de área diminui abruptamente.

❖ Intensidade de Radiação.

A intensidade de radiação (U) é a potência irradiada por unidade de ângulo sólido em uma determinada direção e está intimamente relacionada à densidade de potência radiada. A relação com a densidade de potência é dada por:

$$U = r^2 P_r \quad (27)$$

Essa relação indica que a intensidade de radiação é independente da distância, pois o fator r^2 compensa a diminuição da densidade de potência com o aumento da distância. Portanto, a intensidade de radiação depende apenas da direção relativa à antena.

A densidade de potência radiada (P_r) em regras gerais, é expressa em watts por metro quadrado (W/m^2). Em sistema de telecomunicações, em alguns casos, é importante considerar a densidade de potência recebida, que é utilizada para calcular o sinal captado por uma antena receptora.

❖ Diretividade.

Definida como a razão entre a intensidade de radiação na direção de máxima emissão e a intensidade de radiação média total. É expressa como:

$$D = \frac{U_{\max}}{P_t/4\pi} \quad (28)$$

A diretividade é um parâmetro importante na caracterização de antenas direcionais, como as DRAs (Petosa, 2007; Balanis, 2005).

A diretividade de uma antena é a medida de quão bem ela concentra a radiação em uma direção específica em comparação com uma antena isotrópica ideal (que radia igualmente em todas as direções). A diretividade em decibéis isotrópicos (D_{dBi}) é expressa por:

$$D_{dBi} = 10 \cdot \log_{10}(D_{linear}) \quad (29)$$

Onde:

D_{linear} é a diretividade em escala linear, que representa a relação entre a intensidade de radiação em uma direção específica e a intensidade média de radiação em todas as direções.

Uma diretividade alta é desejável em aplicações que requerem foco de energia em uma direção específica, como radares e comunicação de longo alcance (Balanis, 2005).

❖ Eficiência de Radiação.

As perdas de radiação em uma antena estão intrinsicamente associadas à eficiência total. Atribuímos tais perdas a fatores externos, como o descasamento de impedâncias entre a antena e a linha de transmissão, e a fatores internos, como perdas nos condutores ou materiais dielétricos. Dessa forma, nem toda a potência fornecida à antena é efetivamente irradiada, ou seja, a antena não consegue converter integralmente a potência recebida em radiação eletromagnética (Balanis, 2016).

A eficiência total pode ser expressa como:

$$e_t = e_c e_d e_e \quad (30)$$

Onde:

- e_t é a eficiência total,
- e_c é a eficiência condutiva, relacionada às perdas nos condutores,
- e_d é a eficiência dielétrica, associada às perdas no material dielétrico,
- e_r é a eficiência de reflexão e está relacionado ao sistema descasamento de impedância entre a antena e a linha de transmissão.

A eficiência de radiação (η) de uma antena é definida como a razão entre a potência efetivamente irradiada (P_{rad}) e a potência total fornecida à antena (P_{total}). Como podemos observado na expressão:

$$\eta = \frac{P_{rad}}{P_{total}} \quad (31)$$

Onde:

- P_{rad} é a potência efetivamente irradiada pela antena;
- P_{total} é a potência total fornecida pela antena.

A eficiência de radiação pode ser reduzida por perdas devido à resistência de condução e perdas dielétricas no material da antena. Em aplicações práticas, é importante projetar antenas com alta eficiência para minimizar a dissipação de energia e maximizar a potência irradiada (Balanis, 2005)

❖ Eficiência de Transmissão (T_{pwr}).

A eficiência de transmissão relaciona a potência irradiada com a potência total fornecida à antena. Ela é calculada como:

$$T_{pwr} = 1 - \Gamma_{pwr} \quad (32)$$

Onde:

$$\Gamma_{pwr} = |\Gamma|^2 \quad (33)$$

$|\Gamma|$ é o coeficiente de reflexão, que quantifica a potência refletida de volta para a fonte devido ao desajuste de impedância entre a antena e a linha de transmissão.

❖ Ganho.

O ganho de uma antena corresponde a razão entre a intensidade de radiação e a potência total de entrada. Assim o parâmetro apresenta uma singularidade com a diretividade, associado a eficiência da antena (Balanis, 2016):

$$Ganho = 4\pi \frac{\text{intensidade de radiação}}{\text{potência total de entrada}} = 4\pi \frac{U(\theta, \phi)}{P_{in}} \quad (34)$$

Onde:

- $U(\theta, \phi)$ é a intensidade de radiação em uma direção específica (θ, ϕ) .
- P_{in} é a potência total fornecida à antena.

O ganho (G) de uma antena está intrinsecamente relacionada à sua diretividade, mas também considera as perdas internas, como perdas condutivas e dielétricas, que afetam a eficiência total. Podemos expressar matematicamente a relação entre o ganho, a diretividade (D) e a eficiência de radiação (η) é definido como:

$$G = \eta \cdot D \quad (35)$$

Observando a equação 33 entendemos uma relação de proporcionalidade entre a diretividade, o ganho da antena que depende diretamente de sua eficiência de radiação. Ou seja, uma antena com eficiência ideal, garante que o ganho será igual à diretividade. No entanto, consideramos que perdas internas fazem com que o ganho seja sempre menor do que a diretividade (Petosa, 2007).

❖ **Relação de Onda Estacionária de Tensão (VSWR).**

A relação de onda estacionária de tensão (VSWR) mede o descasamento entre a antena e a linha de transmissão. Ela é calculada como:

$$VSWR = \frac{1 + |\Gamma|}{1 - |\Gamma|} \quad (34)$$

Um VSWR próximo de 1 indica um bom casamento de impedância, ou seja, é uma condição na qual a impedância da carga (Z_L) e a impedância da fonte ou linha de transmissão (Z_0) são iguais.

$$Z_L = Z_0 \quad (35)$$

Quando ocorre o casamento de impedância, minimizamos a potência refletida e maximizamos a transferência de energia do transmissor para a carga maximizando a eficiência de transmissão (Balanis, 2005).

❖ **Fator de Qualidade (Q).**

O fator de qualidade Q é uma medida que quantifica a eficiência de armazenamento de energia de um ressonador, como uma antena ressonadora dielétrica ou um circuito oscilante, em relação às perdas de energia. Ele é definido como a razão entre a energia máxima armazenada e a energia média dissipada por ciclo de operação. Matematicamente, o fator de qualidade é expresso como:

$$Q = 2\pi \frac{\text{energia máxima armazenada no ciclo}}{\text{energia média dissipada no ciclo}} \quad (36)$$

Essa relação indica que, quanto maior o fator Q , menor será a fração de energia dissipada em relação à energia armazenada, o que resulta em uma ressonância mais “pura” e com menor atenuação ao longo do tempo (Kajfez, 1998; Sebastian, 2008).

Além disso, o fator de qualidade Q elevado, em geral, apresenta menor largura de banda e maior estabilidade da frequência de ressonância o que pode ser desejável em certas aplicações onde a ressonância controlada (Petosa, 2007).

Em antenas ressoadoras dielétricas (DRAs), o fator de qualidade Q pode ser determinado com base na tangente de perda ($\tan\delta$), que descreve as perdas dielétricas do material. Nesse caso, o fator de qualidade é dado por:

$$Q = \frac{1}{\tan\delta} \quad (37)$$

Onde:

$\tan\delta$ é a tangente de perda do material dielétrico, que representa a razão entre a parte imaginária e a parte real da permissividade dielétrica do material.

Assim a equação (36) indica que quanto menor for a tangente de perda do material, maior será o fator de qualidade Q , indicando que o material apresenta menores perdas e, portanto, é capaz de armazenar mais energia sem dissipação significativa (Poole; Darwazeh, 2015).

3.7.2 Antenas Ressonadoras Dielétricas Cilíndricas.

As antenas ressonadoras dielétricas cilíndricas (Cylindrical Dielectric Resonator Antennas - DRAs) surgem como alternativas eficazes em sistemas de comunicação de alta frequência, devido às suas vantagens como alta eficiência, operação em bandas elevadas e facilidade de miniaturização. Essas características fazem das DRAs uma escolha ideal para aplicações em micro-ondas, dispositivos de radar e sistemas de comunicação via satélite, onde a precisão e a estabilidade da frequência de operação são cruciais (Petosa, 2007).

O formato cilíndrico das DRAs oferece flexibilidade adicional em comparação a outros formatos, como as DRAs hemisféricas e retangulares. Essa flexibilidade decorre da possibilidade de ajustar não apenas o raio (a) do cilindro, mas também sua altura (h), proporcionando maior controle sobre a frequência de ressonância e o fator de qualidade (Q) do ressonador. A relação de aspecto (h/a) é, portanto, um parâmetro fundamental, pois afeta diretamente a largura de banda e a eficiência de radiação da antena. A escolha adequada dessa relação permite projetar ressonadores que atendam tanto a aplicações que requerem alta seletividade quanto a aquelas que demandam maior largura de banda (Kajfez, 1998).

No interior do ressonador, os campos eletromagnéticos se distribuem de maneira específica, levando à formação de modos ressonantes distintos. Os modos ressonantes suportados por uma DRA cilíndrica são classificados como transversais elétricos (TE), transversais magnéticos (TM) e modos híbridos. Cada um desses modos

apresenta uma distribuição particular dos campos elétricos e magnéticos, o que influencia diretamente a polarização e o padrão de radiação da antena. Para aplicações práticas, os modos mais comuns são o $TM_{01\delta}$, $TE_{01\delta}$ e $HE_{11\delta}$, que apresentam características de radiação adequadas para comunicação em bandas de micro-ondas e milimétricas (Luk & Leung, 2003).

A análise matemática dos modos ressonantes em uma DRA cilíndrica é conduzida a partir das equações de Maxwell, que descrevem o comportamento dos campos eletromagnéticos no tempo e no espaço. Assumindo que os campos variam harmonicamente no tempo, as equações de Maxwell podem ser simplificadas e resolvidas para cada componente de campo. No caso do modo TM_{mnp} , onde não há componente de campo magnético ao longo do eixo z , a solução do campo elétrico axial é dada pela equação:

$$E_z(\rho, \phi, z) = j_m \left(\frac{X_{mn}}{a} \rho \right) (C_m \cos m\phi + D_m \sin m\phi) (A_g \cos \beta z) \quad (38)$$

Aqui, J_m é a função de Bessel de primeira espécie, X_{mn} representa o n -ésimo zero da função de Bessel, e a é o raio do ressonador. As constantes C_m e D_m são determinadas a partir das condições de contorno aplicadas às superfícies do ressonador. A frequência de ressonância para esse modo é obtida por:

$$f_r(TM_{mnp}) = \frac{1}{2\pi\sqrt{\mu\epsilon}} \left[\left(\frac{X_{mn}}{a} \right)^2 + \left(\frac{p\pi}{L} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (39)$$

Onde L representa a altura do ressonador, e ϵ e μ são, respectivamente, a permissividade dielétrica e a permeabilidade magnética do material utilizado.

A solução para os modos TE segue um procedimento similar, onde o campo elétrico ao longo do eixo z é nulo ($E_z = 0$), e a solução final é obtida para o campo magnético axial. A frequência de ressonância dos modos TE é expressa por:

$$f_r(TE_{mnp}) = \frac{1}{2\pi\sqrt{\mu\epsilon}} \left[\left(\frac{X'_{mn}}{a} \right)^2 + \left(\frac{p\pi}{L} \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (40)$$

Essas equações permitem calcular com precisão as frequências de operação de uma DRA cilíndrica, garantindo que ela seja projetada para operar na faixa de frequência desejada. A alta eficiência de radiação dessas antenas, combinada com a

possibilidade de ajuste fino de seus parâmetros geométricos e materiais, torna as DRAs cilíndricas especialmente atrativas para aplicações em ambientes onde o espaço é limitado e a eficiência energética é crítica (Sebastian, 2008).

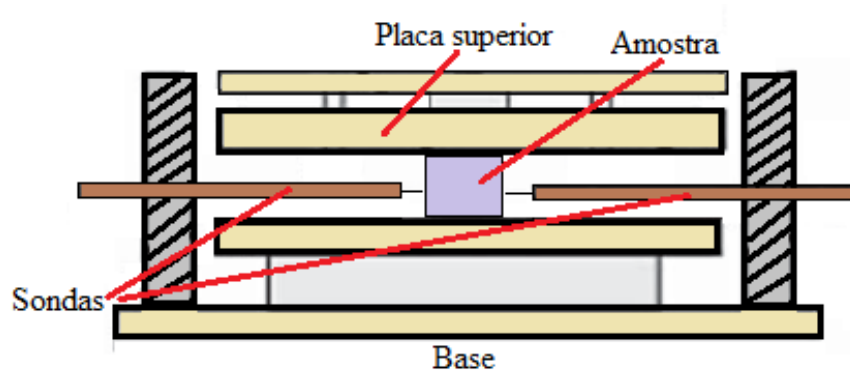
3.8 Micro-ondas.

3.8.1 Método de Hakki-Coleman.

O método de Hakki-Coleman foi desenvolvido com o objetivo de medir a permissividade dielétrica de materiais ressonadores dielétricos em altas frequências.

Esse método é bastante utilizado no meio acadêmico devido à sua simplicidade, precisão e fácil aplicação em amostras cilíndricas. Posteriormente, Courtney modificou o procedimento, introduzindo melhorias que permitiram expandir a faixa de frequências e aumentar a precisão das medições (Hakki & Coleman, 1960; Courtney, 1970).

Figura 18 – Esquema do método de Hakki-Coleman para medição de permissividade dielétrica, mostrando a configuração da amostra entre as placas condutoras e as sondas de acoplamento.



Fonte: Elaborado pelo próprio autor, Adaptado Sebastian, 2008.

O método consiste em inserir uma amostra cilíndrica de material dielétrico entre duas placas condutoras paralelas, geralmente revestidas de ouro ou cobre polido.

O objetivo é criar uma cavidade ressonante onde apenas o modo $TE_{01\delta}$ seja predominante, evitando a interferência de outros modos ressonantes.

A configuração experimental pode ser vista na Figura 18, onde o espaçamento entre as placas condutoras é ajustável para garantir o acoplamento correto do campo elétrico com a amostra.

A frequência ressonante é determinada quando o campo elétrico gerado atinge uma condição de ressonância dentro da amostra, permitindo calcular a permissividade

relativa (ϵ_r) do material com base na geometria do ressonador e na frequência ressonante obtida.

A permissividade relativa (ϵ_r) é calculada a partir da seguinte equação:

$$\alpha = \frac{nD}{\lambda_0} \left(\epsilon_r - \left(\frac{\lambda_0}{2L} \right)^2 \right)^{\frac{1}{2}} \quad (41)$$

Onde:

- D é o diâmetro da amostra.
- L é a altura da amostra.
- λ_0 é o comprimento de onda ressonante no vácuo.
- n é o índice de variação longitudinal do campo ao longo do eixo da amostra.

A partir de um gráfico de α versus β , é possível determinar a permissividade relativa ϵ_r utilizando uma interpolação gráfica ou resolução numérica.

❖ Fator de Qualidade (Q_L).

Além da permissividade, o método de Hakki-Coleman permite medir o fator de qualidade Q_L do ressonador. O fator Q_L é obtido a partir da largura de banda da curva ressonante observada no analisador de redes, conforme a equação:

$$Q_L = \frac{f_r}{\Delta f_{-3dB}} \quad (42)$$

Onde:

- f_r é a frequência ressonante.
- Δf_{-3dB} é a largura de banda medida a - 3 dB do pico da ressonância.

O fator Q_L representa o fator de qualidade carregado (loaded quality factor), que leva em consideração as perdas por acoplamento. O fator de qualidade descarregado (Q_0) pode ser calculado utilizando:

$$Q_0 = \frac{Q_L}{1 - \beta_c} \quad (43)$$

Onde β_c é a constante de acoplamento, obtida a partir do coeficiente de reflexão (S_{21}) medido experimentalmente (Courtney, 1970).

❖ Tangente de Perda ($\tan \delta$).

A tangente de perda do material pode ser determinada com base no fator de qualidade descarregado e na constante de acoplamento:

$$\tan \delta = \frac{A}{Q_0} \quad (44)$$

Onde A é um fator de correção que depende das perdas por condução nas placas metálicas e da resistividade superficial das mesmas.

A tangente de perda fornece uma medida direta da eficiência do material dielétrico, sendo essencial para aplicações em dispositivos de micro-ondas e ressonadores de alta frequência.

3.8.2 Medição do Coeficiente de Temperatura de Frequência Ressonante (τ_f).

Trata-se de uma análise de fundamental importância no estudo de antenas ressoadoras dielétrica, pois, a constante representa uma das principais propriedades exigidas para materiais utilizados neste seguimento. Teoricamente a constante indica o teor de estabilidade térmica da frequência ressonante.

Essa estabilidade é quantificada pelo coeficiente de temperatura de frequência ressonante (τ_f), que indica a variação relativa da frequência ressonante (f_r) com a temperatura. Para que um material seja considerado adequado para aplicações em micro-ondas, o valor de τ_f deve ser próximo de zero, minimizando as variações indesejadas na frequência devido a flutuações térmicas (Kajfez & Guillon, 1998; Sebastian, 2008).

❖ Derivação da Equação de τ_f .

A frequência ressonante de um ressonador preenchido com ar, operando no modo transversal eletromagnético (TEM), ocorre quando o comprimento da cavidade ressonante L satisfaz a condição:

$$\lambda = 2L \quad (45)$$

$$f = \frac{c}{2L} \quad (46)$$

Onde:

- c é a velocidade da luz no vácuo.
- L é o comprimento da cavidade.

Sabendo que, ao aumentar a temperatura (ΔT), o comprimento da cavidade (L) se expande devido ao coeficiente de dilatação linear do material (α_L), a frequência ressonante também sofrerá variação. Tomando a derivada de f em relação a L , temos:

$$\frac{df}{f} = -\frac{dL}{L} \quad (47)$$

E considerando a dilatação linear como:

$$\Delta L = \alpha_L \cdot L \cdot \Delta T \quad (48)$$

Segue que:

$$\frac{\Delta f}{f} = -\alpha_L \cdot \Delta T \quad (49)$$

Essa equação relaciona a variação relativa da frequência ressonante com a dilatação térmica do material.

❖ Influência da Permissividade Dielétrica.

Quando temos uma situação ideal e ao invés de imenso no ar, a cavidade for preenchida com um material dielétrico de permissividade elétrica ϵ_r , a frequência ressonante será dada por:

$$f = \frac{c}{2L\sqrt{\epsilon_r}} \quad (50)$$

A temperatura afeta diretamente a permissividade dielétrica do material. O coeficiente de temperatura da constante dielétrica (τ_ϵ) é definido como:

$$\frac{\Delta \epsilon_r}{\epsilon_r} = \tau_\epsilon \cdot \Delta T \quad (51)$$

Derivando a expressão de f em relação a ϵ_r :

$$\frac{df}{f} = -\frac{1}{2} \cdot \frac{d\epsilon_r}{\epsilon_r} \quad (52)$$

Substituindo $\left(\frac{d\epsilon_r}{\epsilon_r}\right) = (\tau_\epsilon \cdot \Delta T)$, obtemos:

$$\frac{\Delta f}{f} = -\frac{1}{2} \cdot \tau_\epsilon \cdot \Delta T \quad (53)$$

❖ Coeficiente de Temperatura de Frequência Ressonante (τ_f).

O coeficiente de temperatura de frequência ressonante é composto por dois fatores: a dilatação térmica do material (α_L) e a variação da permissividade dielétrica com a temperatura (τ_ϵ). Assim, τ_f é definido por:

$$\tau_f = -\alpha_L - \frac{1}{2} \tau_\epsilon \quad (54)$$

Essa equação indica que, para minimizar τ_f , o valor de τ_ϵ deve ser ajustado de forma a compensar o efeito da dilatação térmica. Em outras palavras, para que a frequência ressonante permaneça estável, é necessário que a soma dos efeitos térmicos na geometria e na permissividade do material seja nula ou próxima de zero (Sebastian, 2008).

❖ Métodos de Medição de τ_f .

A medição de τ_f é geralmente realizada utilizando um ressonador coaxial de meia onda preenchido com o material dielétrico em análise. A configuração experimental é mostrada na Figura 19, onde a amostra é colocada em um suporte metálico conectado a um analisador de redes. Durante o experimento, a temperatura da amostra é variada gradualmente, e a frequência ressonante é monitorada em função da temperatura.

A equação prática para o cálculo de τ_f é dada por:

$$\tau_f = \frac{1}{f_0} \cdot \frac{\Delta f}{\Delta T} \times 10^6 \text{ (ppm/}^\circ\text{C)} \quad (55)$$

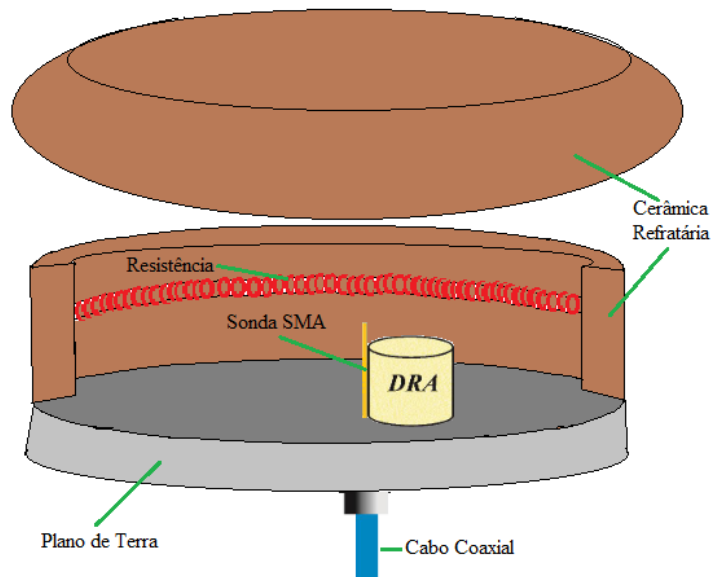
Onde:

f_0 é a frequência medida na temperatura inicial

Δf é a variação de frequência ao longo do intervalo de temperatura ΔT (Courtney, 1970; Petosa, 2007).

Esse método permite calcular τ_f com precisão da ordem de partes por milhão por grau Celsius (ppm/°C), sendo amplamente utilizado em pesquisas de materiais dielétricos avançados para aplicações de micro-ondas (Silva et al., 2012; Fernandes et al., 2017).

Figura 19 – Montagem experimental para medição do coeficiente de temperatura de frequência ressonante (τ_f) com acoplamento térmico.



Fonte: Elaborado pelo próprio autor, adaptado de Fernandes, 2012.

Neste estudo, a medição do coeficiente de temperatura de frequência ressonante (τ_f) foi realizada utilizando o método de Silva, Fernandes e Sombra (SFS), amplamente aceito devido à sua precisão na análise da estabilidade térmica de materiais dielétricos em frequências de micro-ondas.

Diferentemente de métodos que dependem da observação de múltiplos modos ressonantes, como o método de Courtney, o método de Hakki-Coleman foca na análise do modo fundamental, minimizando os efeitos de perda dielétrica que podem inibir a excitação de modos superiores (Hakki; Coleman, 1960; Courtney, 1970).

Essa abordagem permite obter valores mais confiáveis de τ_f , especialmente em materiais com baixas perdas dielétricas. O método aplicado neste trabalho envolveu a colocação do ressonador dielétrico entre placas condutoras e a medição da variação da frequência ressonante em função da temperatura, garantindo a precisão necessária para a avaliação da estabilidade térmica dos materiais em estudo. A Figura 19 apresenta o esquema experimental utilizado para a determinação de τ_f com o sistema descrito.

É desejável a obtenção de materiais com baixa tangente de perda e alta estabilidade térmica, como os compósitos dielétricos à base de titanato de cálcio e niobato de zinco, mostraram-se eficazes na obtenção de τ_f próximo de zero, garantindo a confiabilidade e precisão de dispositivos ressonantes em condições adversas (Abreu et al., 2023).

Esses resultados reforçam a importância do desenvolvimento de materiais avançados para aplicação em sistemas de comunicação, onde a estabilidade da frequência é essencial para o desempenho eficiente e a integridade do sinal (Silva et al., 2017).

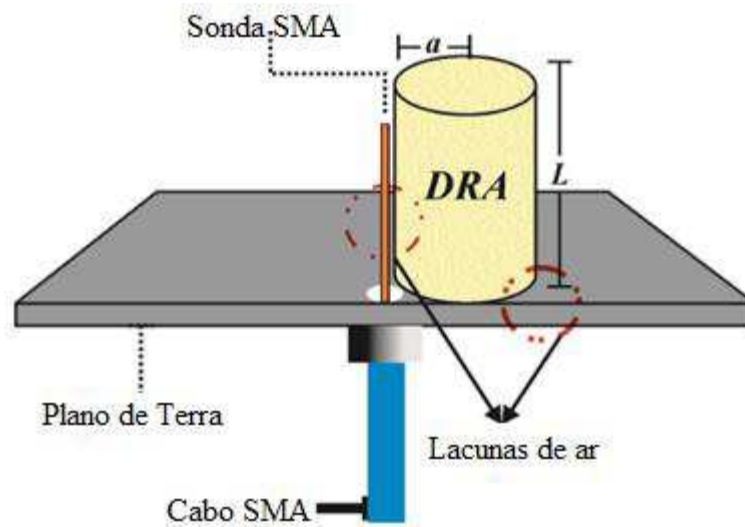
3.8.2 Método de Monopolo: Medição de Ressonadores Dielétricos.

O método de monopolo é uma técnica experimental que possibilita a caracterização de ressonadores dielétricos, especialmente antenas ressonadoras dielétricas (DRAs), com uma abordagem extremamente simples e eficiência.

A finalidade deste método é medir parâmetros fundamentais das DRAs, como a frequência de ressonância, o coeficiente de reflexão (S_{11}) e o fator de qualidade (Q).

Desenvolvido inicialmente por Long, McAllister e Shen (1983), o método de monopolo tem sido empregado e aperfeiçoado ao longo dos anos, destacando-se como uma solução prática para medições precisas em sistemas de micro-ondas (Petosa, 2007; Colares et al., 2021).

Figura 20 – Ilustração do Método do Monopolo mensurando uma DRA cilíndrica.



Fonte: Próprio autor, adaptada de Abreu, 2024.

A configuração experimental do método de monopolo ocorre inicialmente com a excitação da DRA através de uma sonda coaxial posicionada sob um plano condutor (Plano de Terra). A amostra dielétrica, com geometria cilíndrica, hemisférica ou retangular, é colocada sobre o plano terra, alinhada com a extremidade da sonda coaxial, conforme ilustrado na Figura 20. A sonda SMA serve como fonte de excitação, gerando campos eletromagnéticos que interagem com a DRA.

Durante o experimento, monitora-se o coeficiente de reflexão (S_{11}) utilizando um analisador de redes vetorial, sendo a frequência de ressonância identificada no ponto de menor S_{11} , onde ocorre o melhor acoplamento entre a sonda e a DRA (Abreu et al., 2020; Luk & Leung, 2003).

❖ Coeficiente de Reflexão (S_{11}).

O coeficiente de reflexão (S_{11}) é uma grandeza fundamental nas medições realizadas pelo método de monopolo, pois representa a fração da potência incidente na entrada da linha de transmissão que é refletida de volta para a fonte.

No contexto das antenas ressonadoras dielétricas (DRAs), o S_{11} fornece uma indicação direta da eficiência do acoplamento entre a sonda de excitação e a DRA.

Idealmente, um valor de S_{11} baixo indica que a maior parte da potência incidente foi absorvida pela DRA, resultando em uma eficiente excitação do modo ressonante (Petosa, 2007; Colares et al., 2021).

A frequência de ressonância (f_r) é identificada na curva de S_{11} como o ponto onde o coeficiente de reflexão atinge o mínimo, geralmente abaixo de -10 dB. Esse valor indica que menos de 10% da potência incidente é refletida, enquanto a maior parte é acoplada ao ressonador. Para ressonadores bem projetados e com mínimo de descasamento de impedâncias, o valor de S_{11} no ponto de ressonância pode atingir valores inferiores a -20 dB, o que indica excelente eficiência de acoplamento.

❖ Carta de Smith.

A utilização da carta de Smith é essencial na interpretação dos dados e na resolução de problemas relacionados à linha de transmissão e ao coeficiente de reflexão (S_{11}), obtidos a partir da característica das DRAs ao utilizar o método de monopolo.

Desenvolvida por Phillip H. Smith em 1939, trata-se de um gráfico polar que fornece uma visualização intuitiva do comportamento da impedância ao longo da linha de transmissão, sendo fundamental na análise de descasamento de impedâncias em sistemas de micro-ondas, incluindo medições realizadas com o método de monopolo (Pozar, 1998).

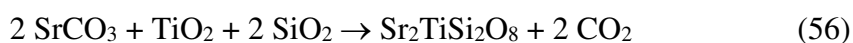
Ao aplicar a técnica do Monopolo em Antenas Ressonadoras Dielétricas (DRAs) é possível identificar a impedância normalizada ($z = Z/Z_0$) e, conseqüentemente, avaliar a eficiência do acoplamento entre a sonda SMA e a DRA. Em geral, quando a impedância de entrada da DRA (Z_{in}) é igual à impedância característica da linha de transmissão ($Z_0 = 50 \Omega$), o coeficiente de reflexão (S_{11}) atinge seu valor mínimo, indicando o melhor acoplamento possível.

Caso a curva de impedância na carta de Smith não passe pelo centro (ponto de impedância normalizada igual a 1), significa que há descasamento de impedâncias, resultando em perdas por reflexão. Nesse caso, ajustes no posicionamento da sonda e da amostra, bem como o uso de técnicas de correspondência de impedância podem ser necessários para otimizar o acoplamento (Luk & Leung, 2003; Abreu et al., 2020).

4 MATERIAL E MÉTODOS.

4.1 Matéria-prima: Preparação dos materiais cerâmicos.

A amostra de composição química $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ (STS) foi obtida através do método cerâmico de reação do estado sólido obedecendo as proporções estequiométricas estabelecidas pelo cálculo. Os precursores que constituem a síntese da matriz cerâmica são atribuídos de elevada pureza carbonato de estrôncio SrCO_3 (99,99%, Aldrich), Óxido de titânio TiO_2 (99,9%, Aldrich) e Óxido de silício (SiO_2) (99,9%, Aldrich). Para determinar com precisão os compósitos de nossa da matriz STS recorreremos a equação química:

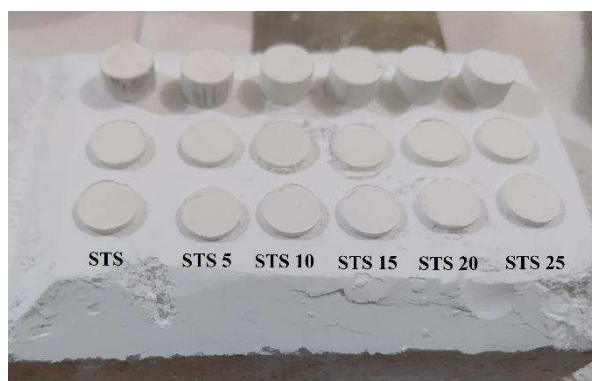


Os reagentes foram inicialmente pesados de acordo com a estequiometria definida pela equação 55. Após a pesagem os compósitos foram dispostos nos recipientes de polietileno “painéis”, juntamente com uma proporção calculada de esferas de Zircônia para em seguida ser submetidos ao processo de moagem em moinho planetário de alta energia *Fritsch Pulverisette5*, com uma programação de 4 horas com uma velocidade de rotação de 360 rpm e intervalos de 10 minutos a cada ciclo de operação.

O procedimento resultou em um pó com textura fina e homogênea de coloração esbranquiçada. O material foi calcinado em temperatura de 1200°C , partindo da temperatura ambiente com uma velocidade de $10^\circ\text{C}/\text{min}$ por 6 h, na calcinação foi empregado o forno convencional controlado (JUNG - LF0912). O produto obtido após o processo de calcinação foi analisado pela difração de Raios – X, o intuito é a confirmação da fase do material em estudo. Os resultados foram satisfatórios e obtivemos nossa fase de trabalho, para dar prosseguimento, realizamos a adição de óxido de Titânio na matriz pura nos percentuais (5%, 10%, 15%, 20% e 25%) e realizamos a maceração com o auxílio de almofariz e um pistilo, para tornar o compósito homogêneo e com granulação fina.

Cada amostra foi separada e com a utilização de um molde de metal, efetuado a compactação do pó aplicando uma pressão de 16,5 Mpa em uma prensa uniaxial durante 5 minutos, em seguida, as amostras foram extraídas um por um e posicionadas em um tijolo refratário com uma camada de alumina.

Figura 21 – Amostras STS após processo de conformação na prensa uniaxial.



Fonte: próprio autor

Na figura 21 apresenta a disposição das amostras antes do processo de sinterização em uma temperatura de 1300°C por 4 horas. Neste processo ocorre a redução da porosidade e eliminação de impureza, resultando em um material mais denso e resistente.

4.2 Análise estrutural das Amostras.

A caracterização estrutural das amostras foi conduzida por meio de difração de Raios X (XRD), utilizando o difratômetro Rigaku D/max-B equipado com monocromador de grafite e tubo de Cu (Cu-K α , 40 kV, 30 mA, $\lambda = 1,5404 \text{ \AA}$).

As medidas foram realizadas no intervalo angular (2θ) de 20° a 80°, em geometria Bragg-Brentano, com uma etapa de digitalização de 0,0013°.

A identificação das fases cristalinas foi efetuada com o auxílio dos bancos de dados *Inorganic Crystal Structure Database* (ICSD) e *Crystallography Open Database* (COD).

O refinamento estrutural, com base no método de Rietveld, foi realizado por meio do software GSAS (Toby; Von Dreele, 2013), com o objetivo de determinar os parâmetros de rede, a composição das fases presentes e a identificação de possíveis fases secundárias.

A análise da morfologia superficial das amostras foi realizada por microscopia eletrônica de varredura (MEV), utilizando o modelo Quanta 450 FEG-FEI, que apresenta resolução nominal de 1 nm.

O equipamento permite análises em condições de alto e baixo vácuo, com opção de estágio para aquecimento e resfriamento das amostras, além de oferecer capacidade de análise química semiquantitativa por EDS em áreas localizadas ou de varredura ampla.

4.3 Análise em Radiofrequência (RF).

A Espectroscopia de Impedância Complexa, realizamos a investigação do comportamento elétrico de materiais, possibilitando a obtenção de informações cruciais sobre os mecanismos de condução, a natureza elétrica dos materiais e suas propriedades estruturais (Barsoukov; Macdonald, 2018).

Através dessa técnica, foi possível medir as propriedades elétricas das amostras na região de radiofrequência, incluindo a impedância real e imaginária (Z' , Z''), a permissividade dielétrica relativa (ϵ'_r), o fator de perda dielétrica ($\tan\delta$), a capacitância (C') e a condutividade alternada (σ_{AC}).

As medições foram realizadas com o uso de um analisador de impedância Solartron SI 1260, operado via controle computadorizado, cobrindo uma faixa de frequências de 1 Hz a 10 MHz e variando a temperatura entre ambiente, 100 ° C e 460 ° C. As amostras, preparadas na forma de discos cerâmicos, tiveram suas superfícies cuidadosamente polidas e recobertas com tinta prata condutora, a fim de formar um capacitor adequado para as medições.

Após a aplicação da camada de prata, as amostras foram submetidas a um processo de secagem a 500 ° C por 2 horas, garantindo a aderência e uniformidade do das amostras (Barsoukov; Macdonald, 2018).

4.4 Análise em Micro-ondas (MW).

As propriedades dielétricas das amostras na faixa de frequência de micro-ondas foram determinadas utilizando o método Hakki–Coleman e o analisador de rede Agilent N5230C. O equipamento conta com dois cabos coaxiais conectados as respectivas “Sondas” de transmissão e recepção (Figura 18).

A partir dos dados obtidos nesta análise, é possível resolver a equação de campo (Courtney, 1970; Hakki; Coleman, 1960), derivada das equações de Maxwell e considerando as condições de contorno da DRA, permitindo assim a obtenção dos valores de permissividade dielétrica (ϵ_r), fator de perda dielétrica ($\tan\delta$) e fator de qualidade do material ($Q \times f$).

Por meio do método SFS, foi analisado o comportamento da estabilidade térmica das amostras. Nesse método, a DRA é excitada lateralmente por uma sonda SMA enquanto, simultaneamente, a temperatura é elevada por uma resistência elétrica localizada no interior do forno de cerâmica utilizado no experimento (Figura 19).

O parâmetro τ_f , que representa a variação da frequência de ressonância em função da temperatura, foi medido utilizando o modo $HE_{11\delta}$, conhecido por sua fácil detecção mesmo em materiais com alta perda dielétrica. Ressalta-se que um valor de τ_f próximo a zero é desejável para aplicações em dispositivos eletrônicos, como antenas ressonadoras dielétricas (Kajfez, 1998; Sebastian, 2008).

O estudo das amostras como antenas ressonadoras dielétricas (DRA) foi realizado com base na técnica proposta por Long, McAllister e Shen, empregando o analisador de rede Agilent N5230C.

Nessa configuração, as amostras foram excitadas por meio de uma sonda coaxial conectada ao plano de terra, construído com uma lâmina de cobre, através de um conector SMA de 50 Ω .

A DRA cilíndrica utilizada apresenta altura (h), raio (a) e uma sonda com altura (d) (Figura 18). Com essa configuração, foi possível determinar as frequências ressonantes e o fator de qualidade $Q \times f$ com elevada precisão, especialmente no modo dominante $HE_{11\delta}$, de acordo com as equações propostas na literatura (Luk; Leung, 2003; Petosa, 2007).

4.5 Simulações Numéricas.

A simulação numérica foi realizada utilizando o software HFSS® (*High Frequency Structure Simulator*), desenvolvido pela Ansoft, que permite a análise de campos eletromagnéticos e componentes de alta frequência, com base no método dos elementos finitos. O principal objetivo da simulação foi determinar os parâmetros de campo distante, indispensáveis para a validação da amostra cerâmica como uma DRA.

A partir das simulações, foram obtidos parâmetros fundamentais, como diretividade, ganho, eficiência da antena e o diagrama de radiação, entre outros.

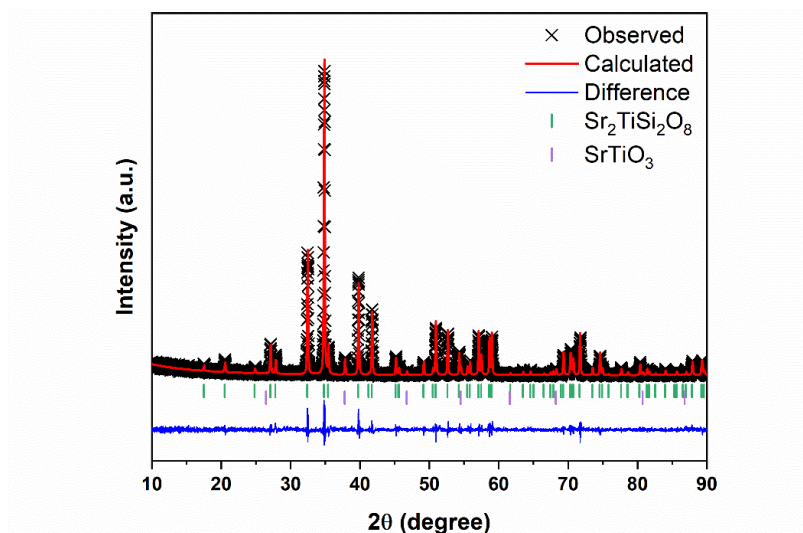
Adicionalmente, os resultados simulados foram comparados com os experimentais, abrangendo as curvas de perda de retorno (S_{11}), as impedâncias real e imaginária e a Carta de Smith, a fim de validar o desempenho eletromagnético das amostras.

5. RESULTADOS E DISCUSSÕES.

5.1 Difração de raios – X.

A análise da amostra $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ por difração de raios-X revelou resultados promissores. Utilizando a técnica de refinamento Rietveld, foi possível identificar o registro cristalográfico ICSD nº 290329 e confirmar que o material cristaliza em um sistema tetragonal, pertencente ao grupo espacial P4bm (número de grupo espacial 100).

Figura 22 – Refinamento Rietveld da matriz cerâmica $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$.



Fonte: Elaborado pelo próprio autor.

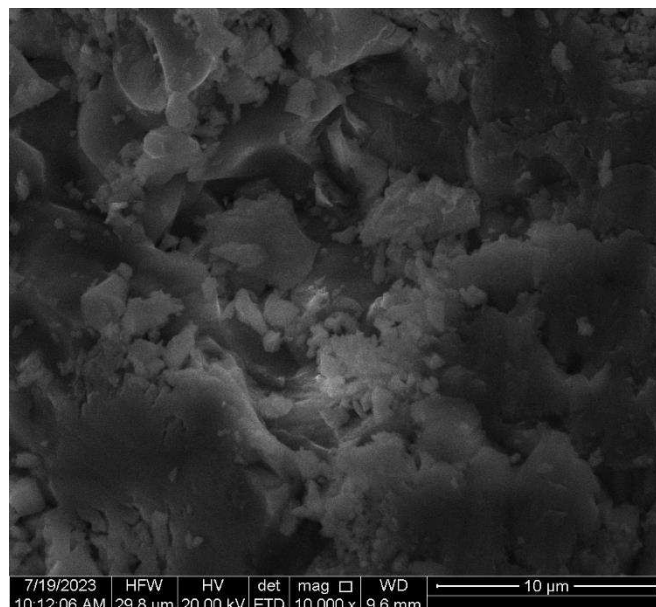
Os parâmetros de rede obtidos foram: ($a = b = 8,3200\text{\AA}$, $c = 5,0239\text{\AA}$ e $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$). Os parâmetros estatísticos obtidos no refinamento corresponde $\chi^2 = 1,021$, que indica um ajuste razoável entre o modelo teórico e os dados experimentais, $R_{wp} = 20,9\%$ é relativamente elevado, todavia, aceitável, podemos considerar o aparecimento de impureza na amostra com a fase de 2,7% em massa de SrTiO_3 (STO) e $R_{Bragg} = 9,95\%$ indicando uma boa qualidade no ajuste do refinamento para a fase dominante.

5.2 Microscopia Eletrônica de varredura (MEV).

As imagens obtidas por microscopia eletrônica de varredura (MEV) mostram as características morfológicas das amostras de $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ (STS) com diferentes concentrações de aditivo (0%, 5%, 10%, 15%, 20% e 25%). A análise morfológica é essencial para compreender a influência da adição de TiO_2 na estrutura das partículas e nas propriedades dielétricas das amostras. Essa análise serve como suporte para

estudos de propriedades de micro-ondas e comportamento dielétrico, uma vez que a microestrutura pode afetar a resposta elétrica e térmica dos materiais cerâmicos (Abreu et al., 2023).

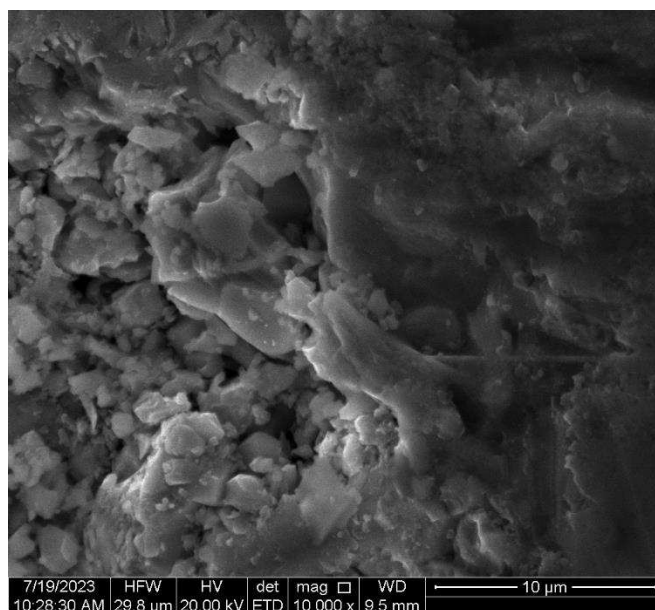
Figura 23 – Micrografia da superfície da amostra STS com fator de ampliação de 10.000X.



Fonte: Próprio autor.

Na amostra sem aditivo (STS), observa-se uma morfologia com partículas relativamente densas e aglomeradas, sem porosidade evidente. A superfície apresenta placas bem definidas, indicando uma estrutura cristalina compacta, característica de cerâmicas densas sem modificadores estruturais. A ausência de aditivos implica uma menor mobilidade dos portadores de carga nos contornos de grão, limitando a resposta dielétrica (Kumar et al., 2005).

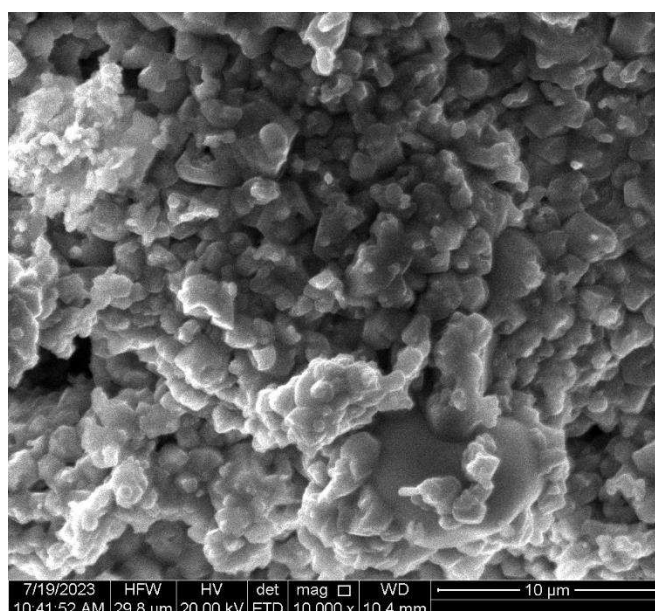
Figura 24 – Micrografia da superfície da amostra STS5 com fator de ampliação de 10.000X.



Fonte: Próprio autor.

Na amostra com 5% de TiO_2 (STS5), há uma leve dispersão e espaçamento entre as partículas, criando uma microestrutura mais porosa em comparação com o STS puro. Essa estrutura pode favorecer a polarização interfacial devido ao aumento das fronteiras de grão, o que contribui para uma melhoria na permissividade dielétrica em temperaturas elevadas (Sahoo et al., 2013).

Figura 25 – Micrografia da superfície da amostra STS10 com fator de ampliação de 10.000X.

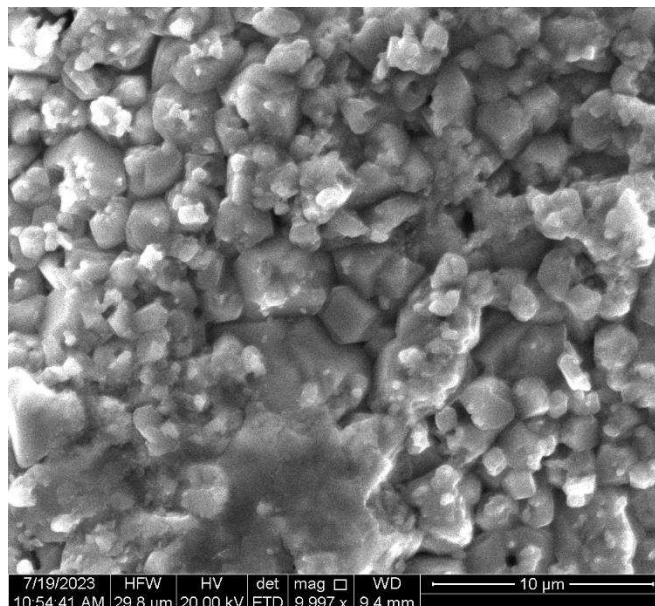


Fonte: Próprio autor.

Com a adição de 10% de TiO_2 , observa-se uma distribuição granular mais uniforme e um aumento na porosidade superficial. A estrutura microcristalina torna-se mais fina, o que pode indicar uma facilitação na condução de carga através dos

contornos de grão. Esse comportamento é associado a uma melhora significativa na resposta dielétrica do material em frequências de micro-ondas (Mahato et al., 2011).

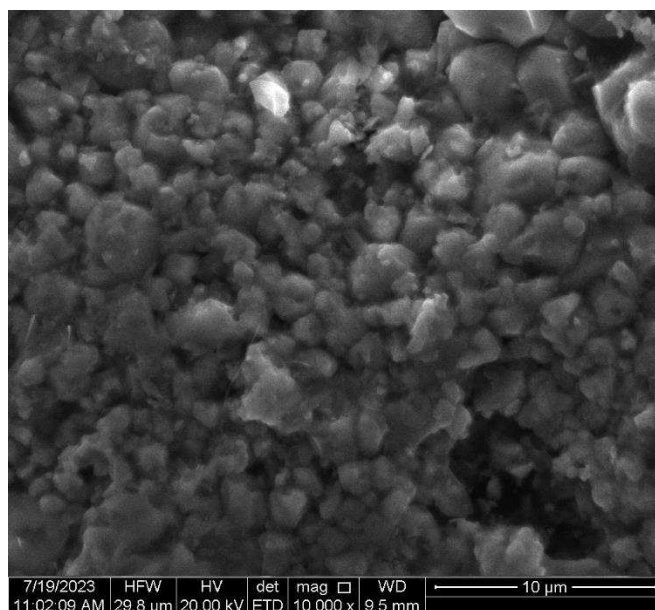
Figura 26 – Micrografia da superfície da amostra STS15 com fator de ampliação de 9.997X.



Fonte: Próprio autor.

A morfologia da amostra com 15% de TiO_2 apresenta grãos de tamanho reduzido e uma estrutura superficial bastante porosa. O aumento na quantidade de aditivo resulta em uma microestrutura mais granular e dispersa, promovendo uma condução elétrica mais eficiente através dos grãos, o que é vantajoso para aplicações em frequências elevadas, como em ressonadores dielétricos de micro-ondas (Abreu et al., 2024).

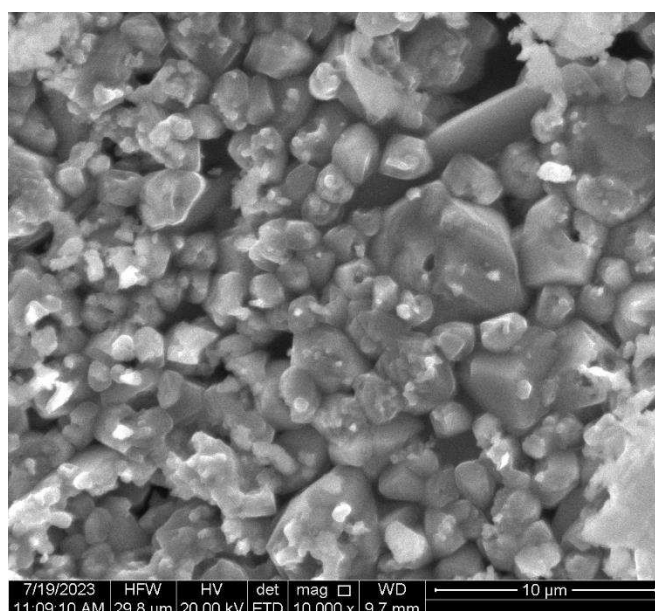
Figura 27 – Micrografia da superfície da amostra STS20 com fator de ampliação de 10.000X.



Fonte: Próprio autor.

Na amostra com 20% de TiO_2 , a porosidade continua elevada, com uma estrutura microcristalina que facilita a mobilidade de portadores de carga. A adição elevada de TiO_2 resulta em uma matriz com menor resistência interna, o que pode melhorar a estabilidade térmica do material em aplicações de alta frequência (Acharya e Choudhary, 2015).

Figura 28 – Micrografia da superfície da amostra STS25 com fator de ampliação de 10.000X.



Fonte: Próprio autor.

A última amostra, com 25% de TiO_2 , apresenta uma estrutura com grãos muito pequenos e bem distribuídos, com porosidade visível em toda a superfície. A alta concentração de TiO_2 causa uma modificação significativa na estrutura dos grãos,

proporcionando uma matriz altamente polarizável. Esse comportamento é desejável em materiais para aplicações de radiofrequência (RF) e micro-ondas devido à melhora na resposta dielétrica (Abreu et al., 2023).

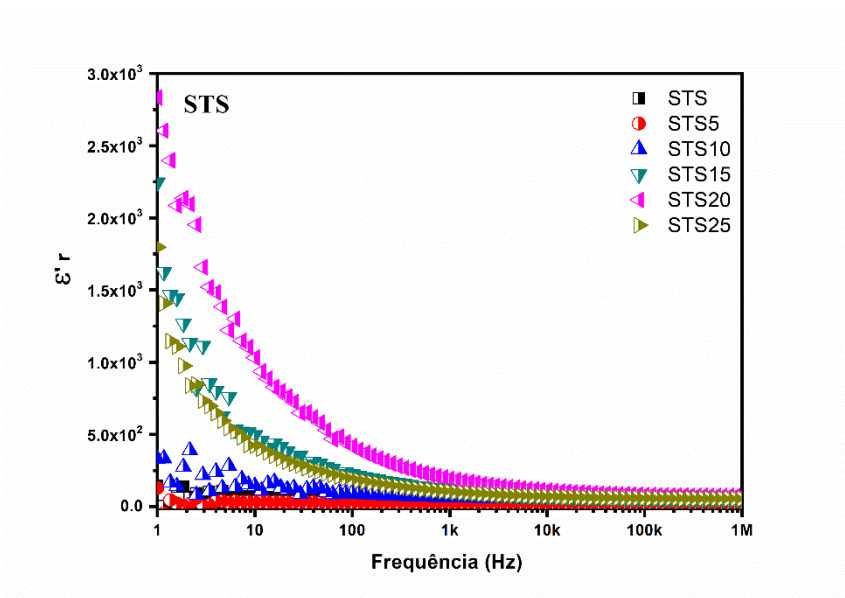
A análise das imagens de MEV das amostras de STS com diferentes adições de TiO_2 demonstra uma clara evolução na microestrutura, desde uma superfície compacta e densa (STS puro) até uma estrutura granular e altamente porosa (STS 25%). Essa modificação estrutural, promovida pela adição de TiO_2 , afeta diretamente as propriedades dielétricas e térmicas dos materiais, tornando-os mais adequados para aplicações em altas frequências. O aumento da porosidade e a redução do tamanho de grão favorecem a polarização e a estabilidade térmica, características essenciais para o desenvolvimento de dispositivos de comunicação avançada.

5.3 - Análise em Radiofrequência

Para investigar as propriedades dielétricas e elétricas da matriz cerâmica STS e seus compósitos, foi utilizada a Espectroscopia de Impedância, em uma faixa de frequência de 1 Hz a 1 MHz e com variações de temperatura entre 340 °C e 460 °C.

O modelo de Havriliak-Negami se mostrou o mais adequado para descrever o comportamento da constante dielétrica real (ϵ'_r) em função do aumento da frequência e da temperatura (Kao, 2004; Lvovich, 2012).

Figura 29 – Permissividade dielétrica de $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ e compósitos em temperatura ambiente.



Fonte: Próprio autor

A análise do gráfico mostra a variação da constante dielétrica real (ϵ'_r) em função da frequência para a matriz cerâmica STS e seus compósitos, identificados

como STS5, STS10, STS15, STS20 e STS25. Observa-se que, para todos os materiais, a constante dielétrica diminui com o aumento da frequência, uma característica comum em materiais dielétricos com comportamento dispersivo (KAO, 2004).

No início do espectro de frequências (próximo de 1 Hz), a constante dielétrica real apresenta valores elevados para todos os compósitos, sendo mais alta para STS20, seguido de STS15 e STS10. A matriz pura (STS) exibe o menor valor de ϵ'_r entre as amostras analisadas. Esse comportamento sugere que a presença de aditivos nos compósitos influencia diretamente a polarização do material, proporcionando maior capacidade de armazenamento de energia elétrica em baixas frequências (Lvovich, 2012).

Conforme a frequência aumenta, os valores de ϵ'_r caem rapidamente, tendendo a se estabilizar em frequências acima de 10 kHz para todos os compósitos e a matriz STS. Essa redução acentuada na constante dielétrica com o aumento da frequência é típica em modelos de relaxação dielétrica, onde a polarização dipolar não consegue acompanhar as rápidas oscilações do campo elétrico aplicado, levando a uma queda na resposta dielétrica (Moulson; Herbert, 2003).

Esse comportamento é compatível com o modelo de Havriliak-Negami, que é frequentemente utilizado para descrever sistemas com dispersão dielétrica ampla e complexa, como é o caso dos materiais estudados. Segundo este modelo, a resposta dielétrica diminui conforme o aumento da frequência, especialmente em sistemas onde diferentes mecanismos de polarização atuam em várias escalas de frequência (Kao, 2004; Lvovich, 2012).

Em suma, o gráfico revela que o aumento do teor de TiO_2 na matriz cerâmica STS resulta em um aumento da constante dielétrica em baixas frequências, o que pode ser vantajoso para aplicações que exigem alta permissividade. Contudo, em frequências mais altas, a resposta de todos os compósitos converge, indicando um limite de resposta dielétrica imposto pela incapacidade dos dipolos de acompanhar a frequência do campo aplicado (Moulson; Herbert, 2003).

Tabela 3 – Valores de ϵ'_r em diferentes frequências para STS e compósitos.

Samples	Frequency						
	1Hz	10Hz	100Hz	1KHz	10KHZ	100KHz	1MHz
STS	143,49	66,41	48,72	28,54	17,63	14,33	14,00
STS5	127,49	29,56	27,10	24,50	22,84	22,38	22,18
STS10	330,47	142,39	89,72	64,09	52,46	47,16	45,37
STS15	2243,79	493,55	222,78	116,45	72,67	56,77	52,43
STS20	2833,01	1031,31	417,13	191,84	109,91	80,10	72,39
STS25	1796,57	421,92	188,07	102,61	69,23	57,41	53,92

Fonte: Próprio autor

A tabela 3 apresentada mostra os valores de permissividade dielétrica (ϵ'_r) em função da frequência para a matriz cerâmica STS e seus compósitos (STS5, STS10, STS15, STS20 e STS25) em temperatura ambiente. Observa-se uma tendência geral de diminuição da permissividade com o aumento da frequência, um comportamento característico de materiais dielétricos dispersivos, onde a polarização dipolar se reduz à medida que a frequência aumenta (KAO, 2004; Lvovich, 2012).

A matriz STS, sem aditivos, apresenta valores de permissividade significativamente menores em comparação com os compósitos, variando de 143,49 a 14,00 na faixa de frequência de 1 Hz a 1 MHz. Esse comportamento sugere que a matriz pura possui menor capacidade de polarização em baixas frequências, provavelmente devido à ausência de componentes que aumentem a densidade de dipolos móveis (Moulson; Herbert, 2003).

A adição de componentes à matriz cerâmica resulta em um aumento expressivo da permissividade em baixas frequências, especialmente nos compósitos STS15 e STS20, com valores de 2243,79 e 2833,01, respectivamente, em 1Hz. Esses compósitos mostram-se mais eficientes em armazenar carga elétrica a baixas frequências, o que é vantajoso para aplicações que exigem alta permissividade (Lvovich, 2012). Esse efeito é atribuído ao aumento na densidade de dipolos proporcionado pelos aditivos, os quais contribuem para uma maior resposta de polarização em frequências menores (KAO, 2004).

Em todas as amostras, a permissividade dielétrica decresce rapidamente com o aumento da frequência. Por exemplo, para o compósito STS20, a permissividade passa de 2833,01 em 1 Hz para 72,39 em 1 MHz, indicando uma queda de mais de 97%. Este comportamento é compatível com o modelo de relaxação dielétrica, no qual os dipolos não conseguem acompanhar as rápidas variações do campo elétrico em altas frequências, resultando em uma queda da resposta dielétrica (Moulson; Herbert, 2003).

Em baixas frequências, os compósitos STS20 e STS25 apresentam os maiores valores de permissividade, seguidos por STS15, STS10 e STS5. No entanto, em altas frequências (acima de 100 kHz), todos os compósitos tendem a valores mais próximos, convergindo para uma faixa de 45 a 72, indicando uma limitação na resposta dielétrica independentemente da quantidade de aditivo. Esse comportamento sugere que a

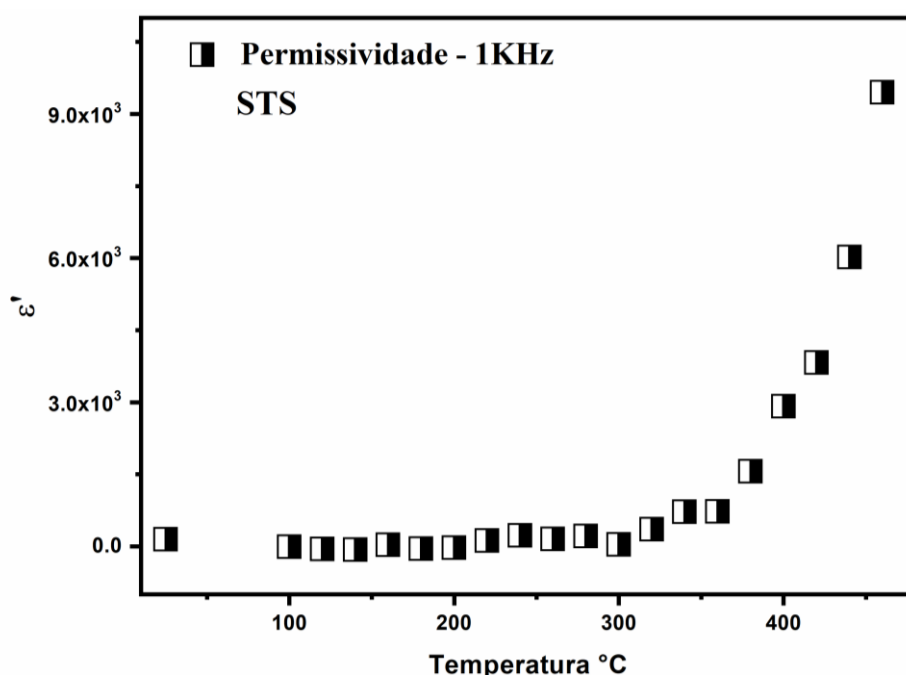
influência dos aditivos é mais significativa em baixas frequências, onde a polarização é mais efetiva (KAO, 2004).

Os dados apresentados reforçam que a adição de TiO_2 à matriz STS aumenta a permissividade dielétrica em baixas frequências, devido ao maior número de dipolos que contribuem para a polarização. No entanto, o efeito dos aditivos se torna menos pronunciado em altas frequências, onde a resposta dielétrica de todos os compósitos se aproxima de valores semelhantes. Este comportamento está de acordo com o modelo Havriliak-Negami, que é utilizado para descrever a resposta dielétrica complexa em materiais com dispersão ampla (Lvovich, 2012).

5.3.1 Permissividade em função da Temperatura em frequência de 1KHz.

As análises a seguir exibem a variação da permissividade dielétrica (ϵ') em função da temperatura para amostras de cerâmica STS, medidas a uma frequência fixa de 1 kHz. As amostras estudadas variam na composição de TiO_2 (de 0% a 25%) em massa. Observamos que, em todas as amostras, a permissividade permanece relativamente baixa em temperaturas mais baixas (abaixo de 200°C), e aumenta significativamente à medida que a temperatura se eleva acima desse ponto. Este comportamento de aumento exponencial da permissividade com a temperatura é típico de materiais dielétricos, especialmente em compósitos cerâmicos com comportamento de relaxação térmica (Acharya e Choudhary, 2015).

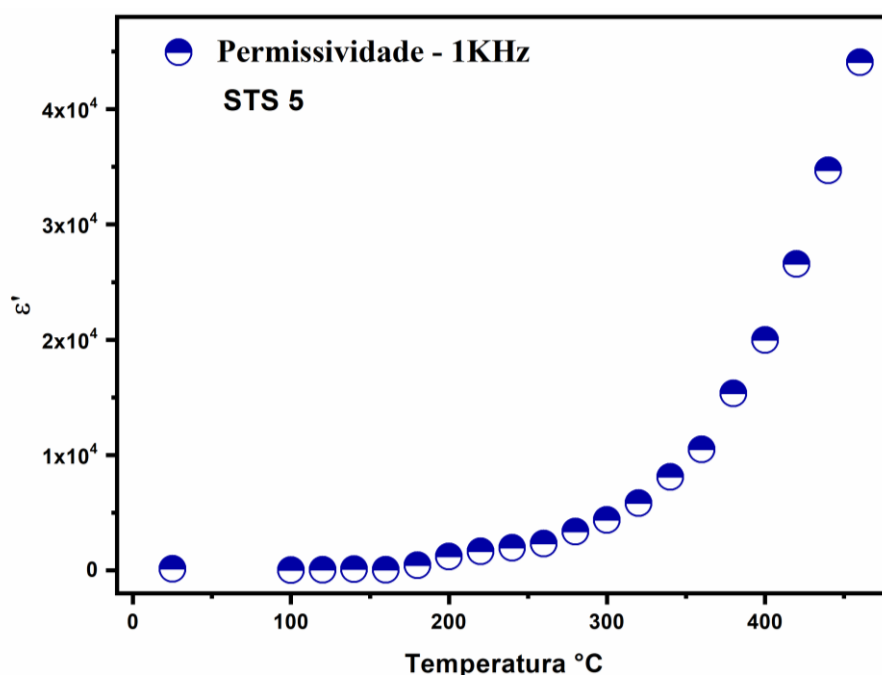
Figura 30 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura e frequência fixa da matriz STS.



Fonte: Próprio autor

Na amostra STS pura, a permissividade dielétrica apresenta valores relativamente baixos até aproximadamente 300°C, onde começa a aumentar, alcançando aproximadamente 9×10^3 a 450°C. Este aumento pode estar relacionado ao aumento da mobilidade dos dipolos em altas temperaturas, que é característico de materiais cerâmicos com barreiras de potencial nos contornos de grão (Kumar et al., 2005).

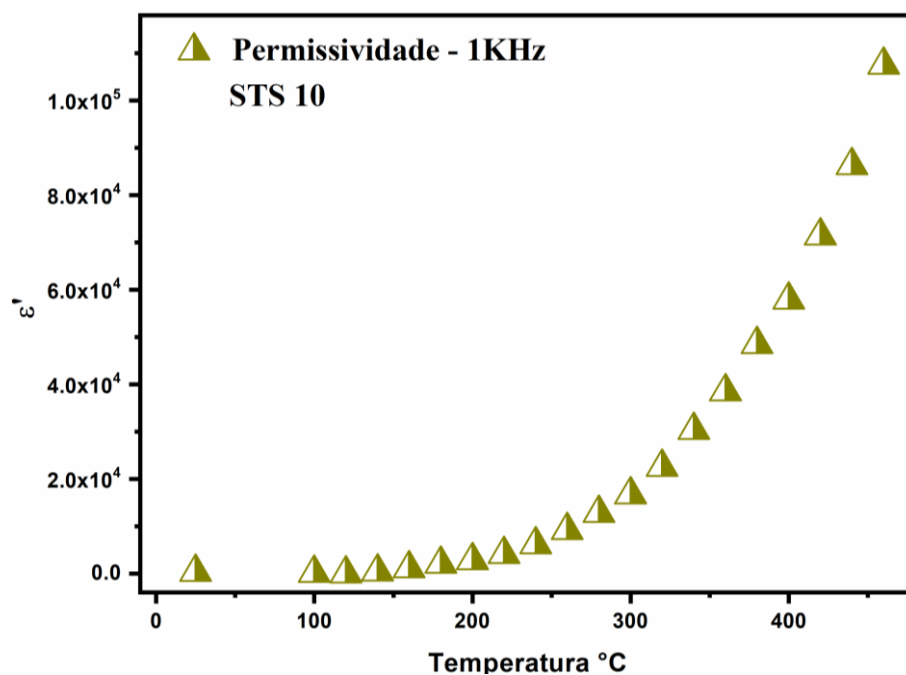
Figura 31 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura e frequência fixa da amostra STS5.



Fonte: Próprio autor

Com a adição de 5% de TiO_2 , a amostra STS5 exibe um comportamento semelhante ao da amostra pura, mas com um aumento mais acentuado da permissividade em temperaturas acima de 300°C, atingindo aproximadamente 4×10^4 a 450°C. Esse aumento indica que o aditivo pode estar reduzindo a resistência nos contornos de grão, permitindo maior polarização em altas temperaturas (Sahoo et al., 2013).

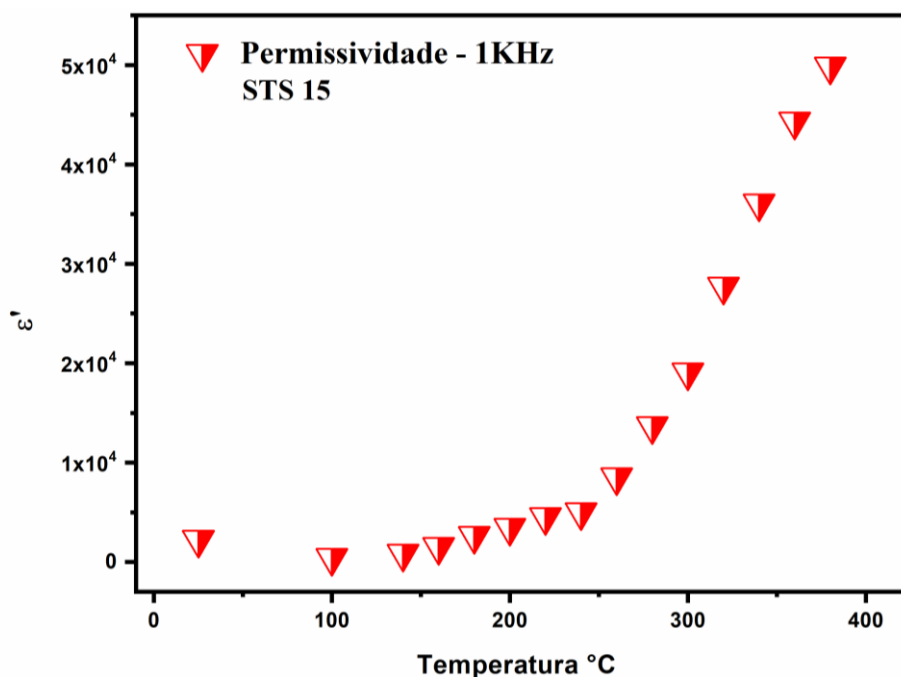
Figura 32 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura e frequência fixa da amostra STS10.



Fonte: Próprio autor

A amostra STS10 exibe um crescimento ainda mais acentuado na permissividade, que ultrapassa 10^5 a 450°C . Este comportamento sugere que a adição de 10% de aditivo aumenta a capacidade de polarização do material, potencialmente devido a uma maior mobilidade dos portadores de carga e uma menor resistência dielétrica (Mahato et al., 2011).

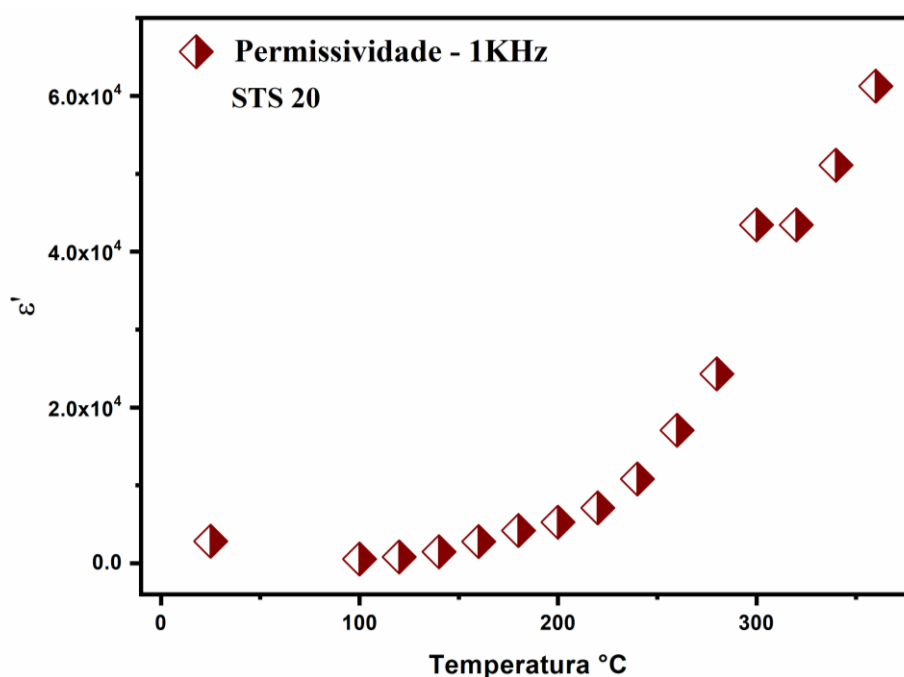
Figura 33 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura e frequência fixa da amostra STS15.



Fonte: Próprio autor

Com 15% de TiO_2 , a amostra STS15 apresenta um comportamento de crescimento contínuo da permissividade, chegando a 5×10^4 a 450°C . Essa tendência reforça a ideia de que o aditivo facilita a polarização, o que é benéfico para aplicações que exigem alta constante dielétrica em altas temperaturas (Abreu et al., 2023).

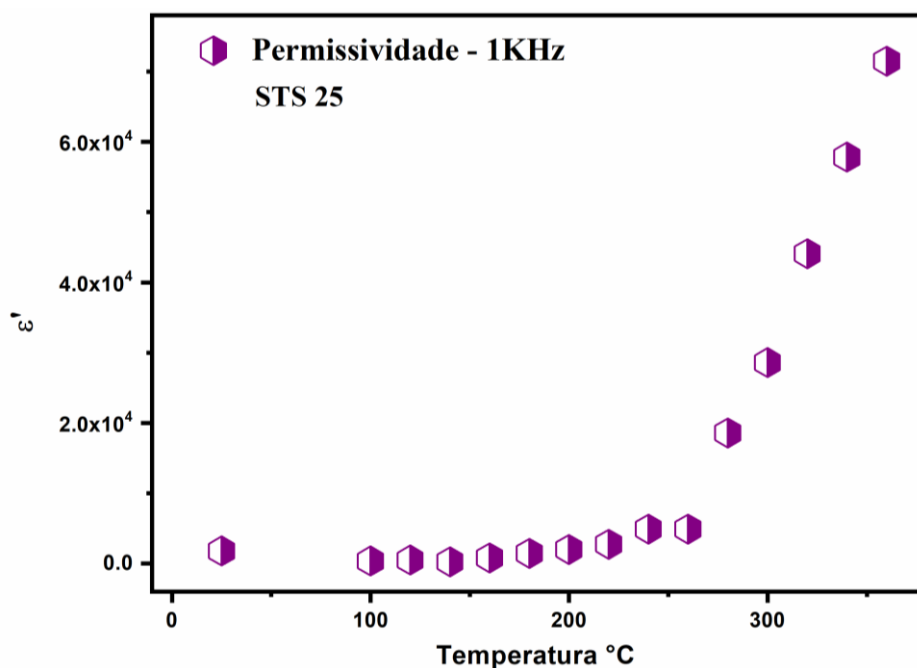
Figura 34 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura e frequência fixa da amostra STS20.



Fonte: Próprio autor

A amostra STS20 apresenta uma permissividade que atinge valores superiores a 6×10^4 a 460°C . Esse resultado indica uma melhoria adicional na polarização e sugere que o material se torna mais responsivo a temperaturas elevadas devido ao aumento de aditivos, promovendo uma maior condutividade dielétrica (Kumar et al., 2005).

Figura 35 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura e frequência fixa da amostra STS25.



Fonte: Próprio autor

Na amostra com 25% de aditivo, STS25, a permissividade atinge os valores mais altos, aproximadamente 6×10^4 a 460°C , evidenciando que o aumento da concentração de aditivos melhora significativamente a resposta dielétrica do material em altas temperaturas. Este comportamento é desejável para aplicações em que uma alta constante dielétrica é essencial em altas frequências (Acharya e Choudhary, 2015).

Em suma a análise da permissividade dielétrica nos materiais cerâmicos STS mais aditivos é fundamental para o desenvolvimento de dispositivos que operam em altas temperaturas e frequências, como ressonadores dielétricos e antenas de micro-ondas. A permissividade dielétrica representa a capacidade do material de polarizar-se em resposta a um campo elétrico aplicado, sendo altamente influenciada pela temperatura e pela presença dos aditivos. Observamos que em baixas temperaturas, a mobilidade dos dipolos é limitada, resultando em uma permissividade relativamente baixa. À medida que a temperatura aumenta, os dipolos ganham mobilidade, permitindo maior polarização e, consequentemente, um aumento na permissividade (Lvovich, 2012).

As amostras de STS com diferentes concentrações de aditivos (0% a 25%) mostram que a adição de TiO_2 reduz a resistência interna do material, facilitando a condução dielétrica. Este comportamento é benéfico para melhorar a eficiência de dispositivos de alta frequência, onde é necessária uma constante dielétrica elevada e estável sob condições de alta temperatura (Petosa, 2007).

5.3.2 Permissividade dielétrica

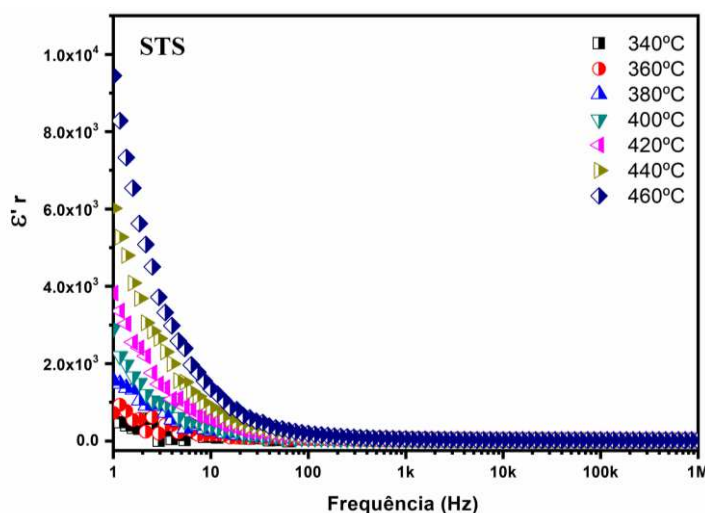
As figuras a seguir mostram a variação da permissividade dielétrica real (ϵ'_r) em função da frequência para a matriz cerâmica STS e as amostras com adição de TiO₂ nos percentuais de (5%, 10%, 15%, 20% e 25%) em massa e analisadas em diferentes temperaturas (de 340°C a 460°C). Observamos que a permissividade dielétrica diminui significativamente com o aumento da frequência em todas as temperaturas estudadas.

Esse comportamento é típico de materiais dielétricos dispersivos, onde a resposta de polarização dos dipolos se reduz em frequências mais altas (KAO, 2004).

Em temperaturas mais altas, como 460°C, a permissividade dielétrica inicial (próxima a 1 Hz) é substancialmente maior. Em contraste, em temperaturas mais baixas, como 340°C, os valores iniciais de ϵ'_r são menores. Isso sugere que o aumento da temperatura promove maior mobilidade das partículas carregadas e dos dipolos, resultando em uma maior polarização e, conseqüentemente, em uma maior permissividade dielétrica em baixas frequências (Lvovich, 2012).

Para todas as temperaturas, há uma queda acentuada na permissividade dielétrica conforme a frequência aumenta, especialmente nas frequências iniciais (abaixo de 1 kHz). Em frequências mais altas (acima de 10 kHz), a permissividade se estabiliza. Esse comportamento é explicado pela incapacidade dos dipolos de acompanhar a rápida variação do campo elétrico em altas frequências, uma característica comum de materiais dielétricos que seguem o modelo de relaxação dielétrica de Havriliak-Negami (KAO, 2004; Moulson e Herbert, 2003).

A diferença de permissividade entre as temperaturas é mais evidente em frequências baixas, indicando que a polarização dipolar é mais ativa em condições de baixa frequência e alta temperatura. Essa diferença diminui à medida que a frequência aumenta, até que as curvas de permissividade se aproximam em frequências próximas a 1 MHz. Esse comportamento é coerente com a teoria de que a contribuição da polarização térmica diminui em frequências mais altas, onde apenas polarizações eletrônicas e iônicas podem acompanhar as oscilações do campo (Petosa, 2007; Kajfez e Guillon, 1998).

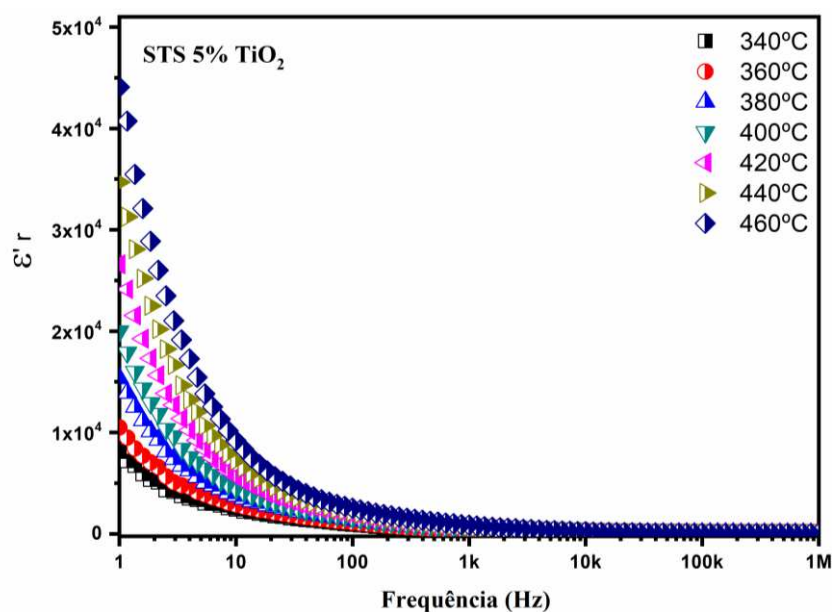
Figura 36 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura STS.

Fonte: Próprio autor

A análise do gráfico da figura 36 revela que a permissividade dielétrica da matriz STS é altamente dependente da temperatura em baixas frequências, onde temos 1Hz correspondendo aproximadamente a $7,15 \times 10^3$ em 340°C , para 1Hz equivale a $9,45 \times 10^3$ em 460°C .

Sugerimos que este material pode ser útil em aplicações que exigem alta constante dielétrica a temperaturas elevadas e baixas frequências. No entanto, a estabilização da permissividade em altas frequências indica que o material apresenta um limite de resposta dielétrica que independe da temperatura, o que é vantajoso para aplicações onde a estabilidade da permissividade em altas frequências é crítica (KAO, 2004; Petosa, 2007).

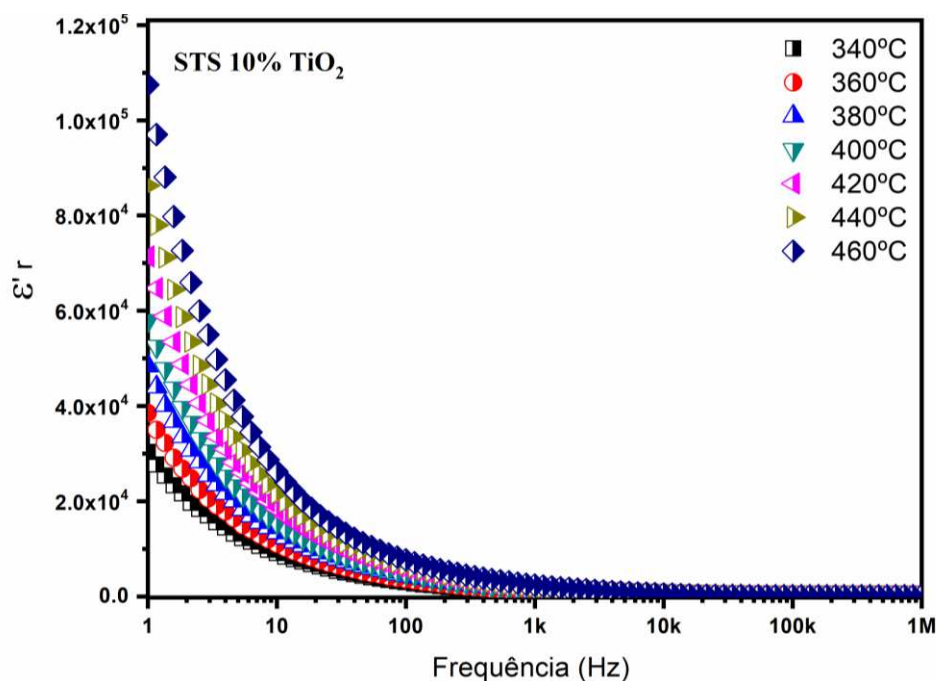
Figura 37 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura STS5.



Fonte: Próprio autor

Os dados de STS5 exibidos na Figura 37 confirmam que a temperatura e a frequência exercem uma influência significativa na permissividade dielétrica do material. Em baixas frequências, observa-se uma permissividade elevada, variando de $8,09 \times 10^3$ a 340° C (1 Hz) até $4,40 \times 10^4$ a 460° C (1 Hz). Esse comportamento pode ser vantajoso para aplicações que exigem alta constante dielétrica sob condições específicas. Em altas frequências, no entanto, a permissividade torna-se relativamente constante e independente da temperatura, o que é uma característica desejável para a estabilidade em aplicações de radiofrequência (KAJFEZ; GUILLON, 1998).

Figura 38 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura STS10.

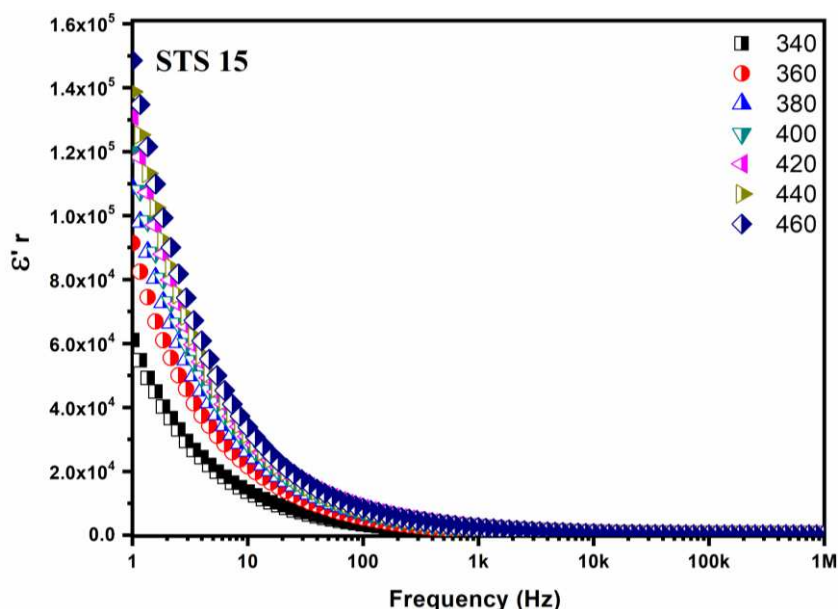


Fonte: Próprio autor

Na Figura 38 apresentada para o compósito STS10, é possível observar os valores máximos e mínimos da permissividade dielétrica real (ϵ'_r) em função da frequência para diferentes temperaturas (340° C a 460° C).

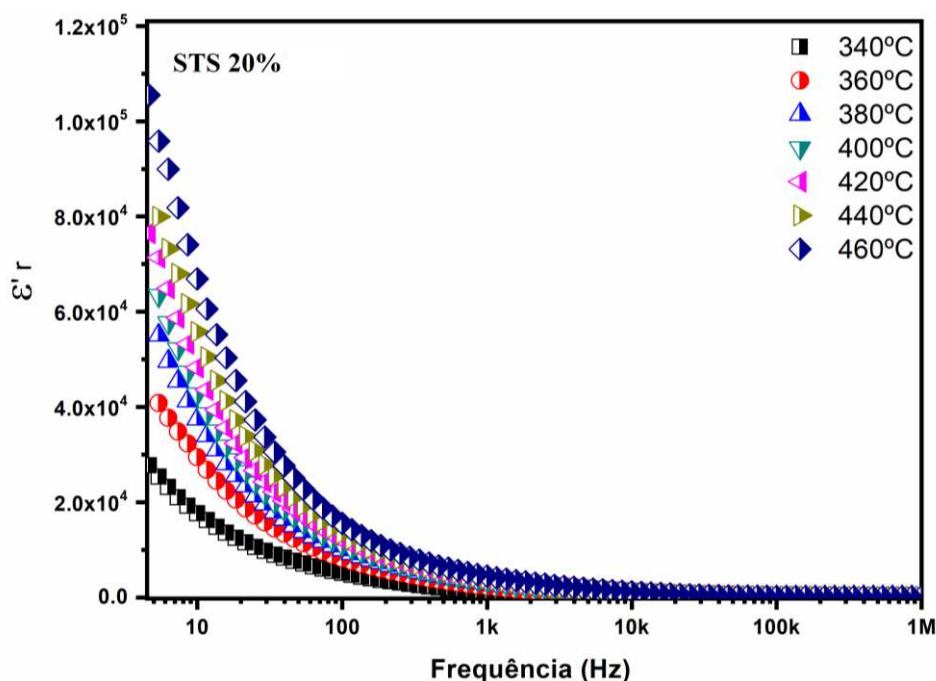
Observamos o valor máximo de permissividade dielétrica em cada curva de temperatura. Em 460°C, a permissividade dielétrica atinge aproximadamente $1,07 \times 10^5$, enquanto em 340°C, o valor máximo está em torno de $3,02 \times 10^4$. Esse comportamento, onde a permissividade dielétrica aumenta em temperaturas mais elevadas, está associado ao aumento da mobilidade dos dipolos, o que intensifica a polarização em baixas frequências (Lvovich, 2012; Moulson e Herbert, 2003).

Figura 39 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura STS15.



Fonte: Próprio autor

O valor máximo de permissividade dielétrica exibidos na figura 39 refere-se a amostra STS 15 e ocorre na frequência de 1 Hz. Em 340°C, o valor de ϵ'_r é aproximadamente $6,1 \times 10^4$, enquanto a 460°C atinge cerca de $1,48 \times 10^5$. Esse aumento da permissividade com a temperatura reflete a maior mobilidade dos dipolos e uma polarização mais efetiva em temperaturas mais elevadas, o que é vantajoso para aplicações que requerem alta constante dielétrica em baixas frequências (Lvovich, 2012).

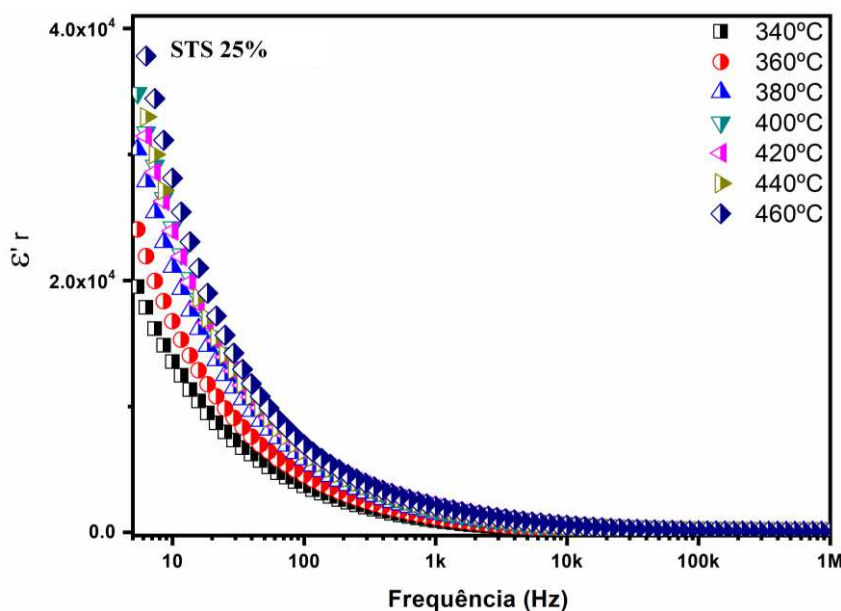
Figura 40 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura STS20.

Fonte: Próprio autor

A Figura 40 exibe a variação da permissividade dielétrica real (ϵ'_r) para o compósito STS20 em função da frequência e da temperatura, com valores que vão de 340°C a 460°C. Assim como em composições anteriores, a permissividade dielétrica diminui à medida que a frequência aumenta, um comportamento característico de materiais com relaxação dielétrica onde a polarização dipolar não consegue acompanhar as rápidas oscilações do campo elétrico em altas frequências (KAO, 2004).

Em 1 Hz, a permissividade dielétrica atinge valores máximos para cada temperatura. Em 340° C, o valor de ϵ'_r é aproximadamente $7,85 \times 10^4$, enquanto a 460° C alcança $1,05 \times 10^5$. Esse aumento significativo com a temperatura indica uma maior capacidade de polarização devido à mobilidade aumentada dos dipolos (Lvovich, 2012).

Figura 41 – Permissividade dielétrica com variação de temperatura STS25.



Fonte: Próprio autor

A Figura 41 exibe a variação da permissividade dielétrica real (ϵ'_r) do compósito STS25 em função da frequência, para diferentes temperaturas (de 340°C a 460°C). Observa-se uma tendência de queda na permissividade dielétrica com o aumento da frequência, comportamento típico de materiais dielétricos dispersivos, onde a polarização dipolar é limitada em altas frequências (KAO, 2004).

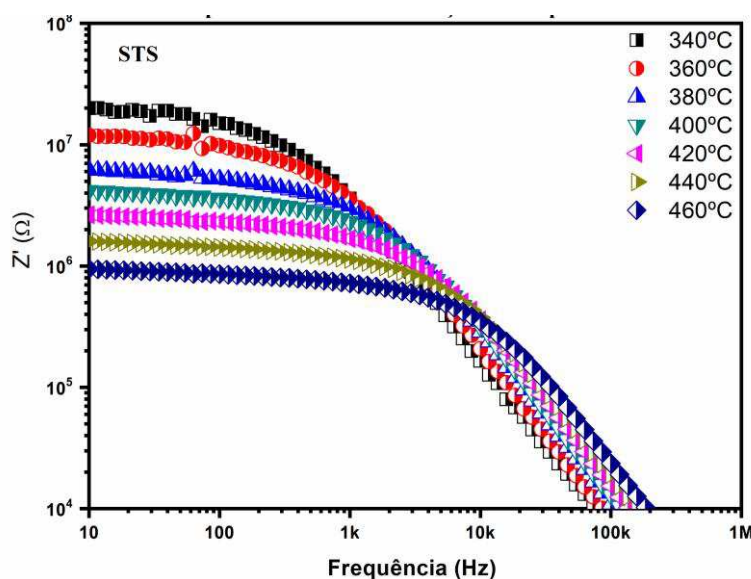
Na frequência de 1 Hz, a permissividade dielétrica atinge os valores máximos para cada faixa de temperatura. Em 340°C, ϵ'_r está em torno de $1,78 \times 10^4$, enquanto em 460°C atinge aproximadamente $3,78 \times 10^4$. Esse aumento com a temperatura indica que a mobilidade dos dipolos cresce em temperaturas mais altas, resultando em uma maior capacidade de polarização em baixas frequências (Lvovich, 2012).

5.3.3 Impedância Real

A matriz STS, juntamente com as amostras STS5, STS10, STS15, STS20 e STS25 exibem um comportamento consistente de redução de impedância real (Z') com o aumento da frequência, com valores de Z' mais altos em frequências baixas devido à influência dos contornos de grão, que agem como barreiras para os portadores de carga. À medida que a frequência aumenta, os portadores conseguem atravessar essas barreiras com maior facilidade, resultando em uma condutividade AC crescente. Esse efeito é mais evidente nas amostras com maior concentração de aditivos (STS20 e STS25), o que sugere que o aumento de aditivos melhora a mobilidade dos portadores de carga dentro dos grãos. Essas características são ideais para aplicações em

dispositivos de alta frequência que requerem estabilidade dielétrica e baixa impedância (Sahoo et al., 2013; Abreu et al., 2023).

Figura 42 – Espectro Z' com variação de temperatura STS.



Fonte: Próprio autor

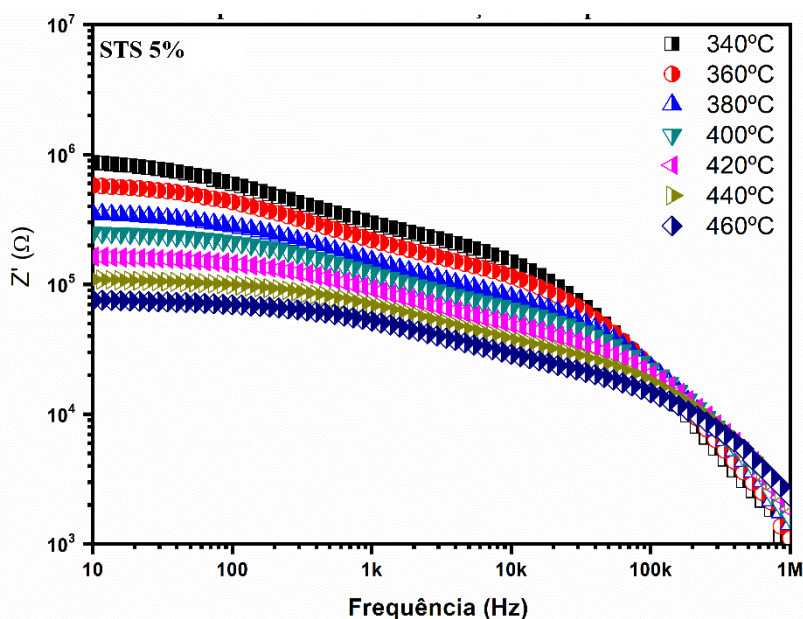
A Figura 42 apresenta o espectro de impedância real (Z') da matriz cerâmica STS em função da frequência, para diferentes temperaturas (de 340°C a 460°C). Observa-se que o valor de Z' diminui progressivamente com o aumento da frequência, comportamento típico de materiais cerâmicos com condução elétrica ativada termicamente, onde a resistência interna do material é influenciada pela temperatura e pela frequência (Acharya e Choudhary, 2015; Kumar et al., 2005)

Na faixa de frequência baixa (10 Hz - 1 kHz) os valores de Z' são altos, especialmente nas temperaturas mais baixas (340°C), onde Z' alcança valores próximos de $10^7 \Omega$. Esse comportamento ocorre porque, em frequências baixas, os portadores de carga encontram maior resistência nos contornos de grão do material, resultando em uma elevada impedância. Esse fenômeno está de acordo com os estudos que indicam que os contornos de grão atuam como barreiras de potencial, limitando a mobilidade dos portadores de carga (Mahato et al., 2011).

Em faixa de frequência intermediária (1 kHz - 100 kHz) Com o aumento da frequência, Z' começa a diminuir para todas as temperaturas, indicando um processo de relaxação onde a resistência devido aos contornos de grão é superada pela condução dentro dos grãos. Esse comportamento é característico de materiais com relaxação dielétrica, onde as barreiras dos contornos se tornam menos significativas em frequências mais altas (Sahoo et al., 2013).

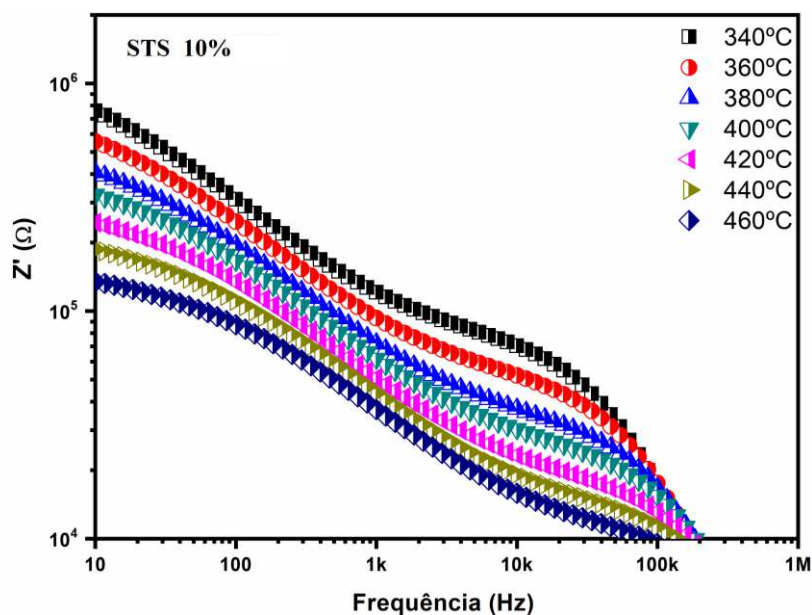
Na faixa de Frequência (acima de 100 kHz) as curvas de Z' para todas as temperaturas se aproximam e tendem a se fundir, atingindo valores próximos de $10^4 \Omega$. Essa fusão das curvas sugere que, em altas frequências, os portadores de carga conseguem atravessar os contornos de grão com maior facilidade, movendo-se pelo interior dos grãos, onde a resistência é menor. Esse fenômeno reflete um aumento na condutividade AC do material, como observado em estudos de cerâmicas de alta condutividade (Abreu et al., 2023).

Figura 43 – Espectro Z' com variação de temperatura STS 5.



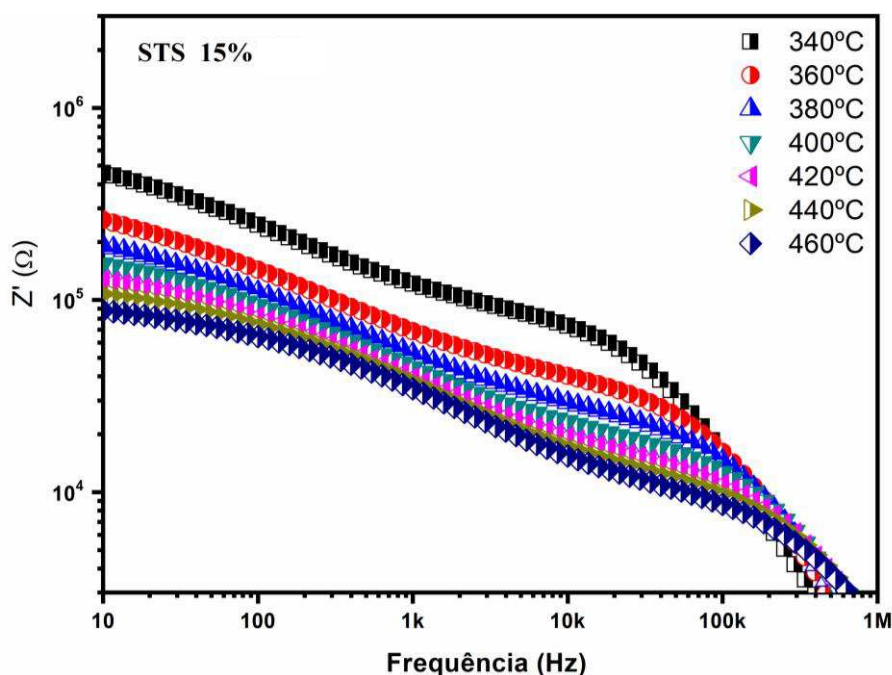
Fonte: Próprio autor

Na amostra STS5, observa-se que o valor de Z' diminui progressivamente com o aumento da frequência para todas as temperaturas, variando entre 340°C e 460°C. Em frequências baixas, Z' apresenta valores elevados, especialmente em temperaturas mais baixas, como 340°C, indicando uma maior resistência ao fluxo de carga devido aos contornos de grão. Este comportamento é característico de materiais dielétricos com elevada resistência em frequências baixas, uma vez que os contornos de grão atuam como barreiras para os portadores de carga (Acharya e Choudhary, 2015; Mahato et al., 2011).

Figura 44 – Espectro Z' com variação de temperatura STS 10.

Fonte: Próprio autor

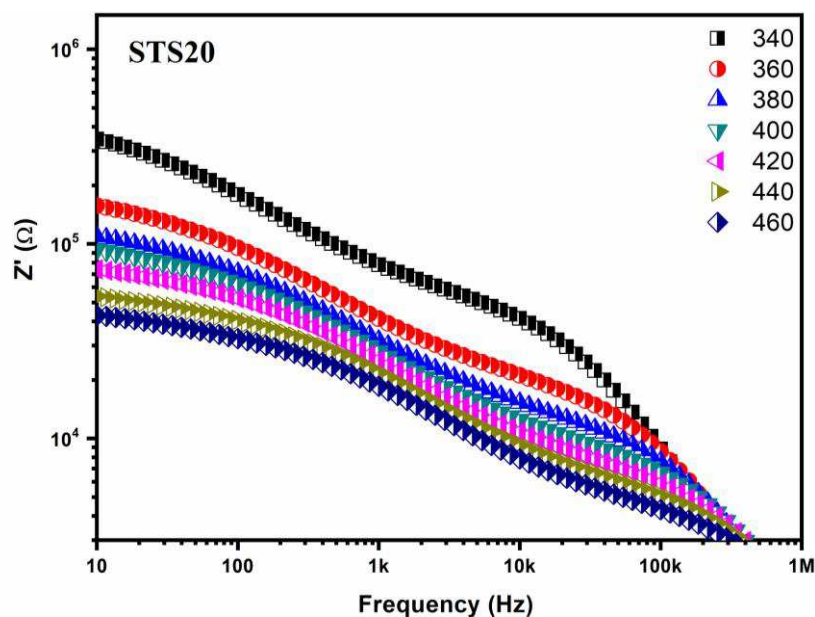
A amostra STS10 exibe um comportamento semelhante, com Z' decrescendo à medida que a frequência aumenta. No entanto, observa-se que os valores de Z' para cada temperatura são ligeiramente menores do que na amostra STS5, sugerindo uma menor resistência interna do material, possivelmente devido a um aumento na mobilidade dos portadores de carga. Esse decréscimo gradual de Z' com o aumento da frequência está associado ao aumento da condutividade AC do material (Sahoo et al., 2013).

Figura 45 – Espectro Z' com variação de temperatura STS 15.

Fonte: Próprio autor

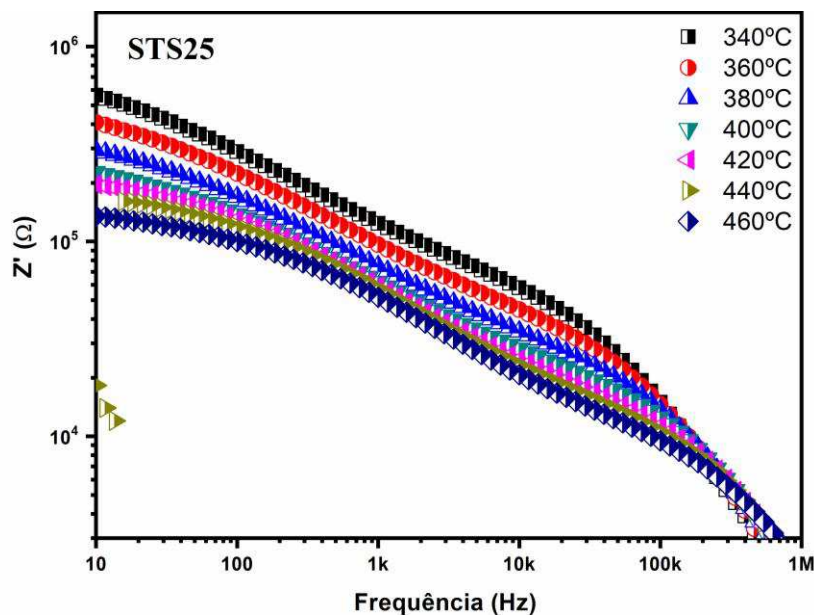
Em STS15, os valores de Z' continuam a decrescer com a frequência, mas de maneira mais acentuada em frequências superiores a 10 kHz. A variação de Z' com a temperatura é menos pronunciada do que nas amostras anteriores, o que pode indicar uma maior homogeneidade na estrutura dos grãos internos, promovendo uma condução mais uniforme em todas as temperaturas analisadas (Kumar et al., 2005).

Figura 46 – Espectro Z' com variação de temperatura STS 20.



Fonte: Próprio autor

A amostra STS20 apresenta uma diminuição ainda mais marcada de Z' com o aumento da frequência, com valores significativamente mais baixos em todas as temperaturas comparado às amostras anteriores. Isso sugere que o aumento da porcentagem de aditivo no compósito melhora a condução elétrica, reduzindo a resistência devido aos contornos de grão. Este efeito é vantajoso para aplicações que exigem materiais com baixa resistência em faixas de alta frequência (Abreu et al., 2023).

Figura 47 – Espectro Z' com variação de temperatura STS 25.

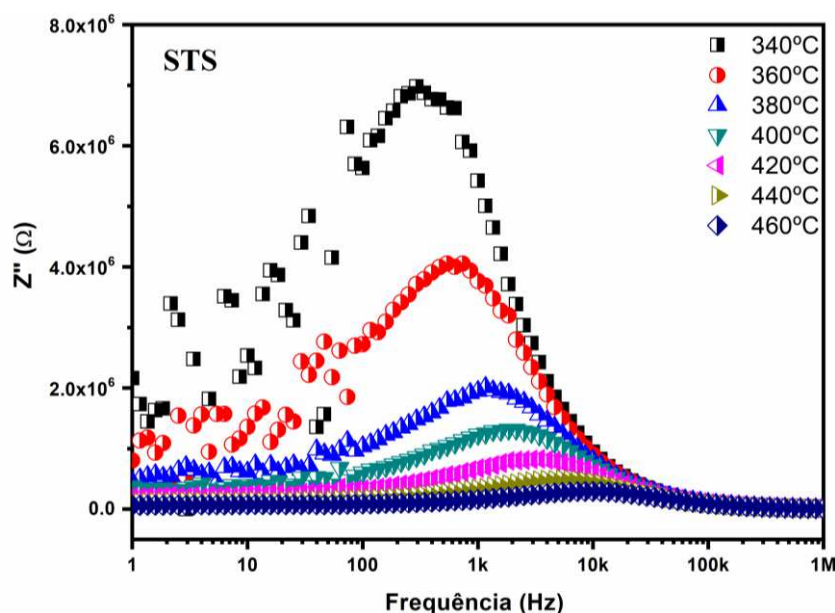
Fonte: Próprio autor

A amostra STS25 mantém o comportamento de decréscimo de Z' com o aumento da frequência, sendo que as curvas de impedância em diferentes temperaturas se tornam ainda mais próximas, especialmente em frequências acima de 10 kHz. Este comportamento sugere que o material possui uma resistência interna muito baixa e que os portadores de carga podem se mover livremente através dos grãos em temperaturas elevadas, o que indica alta condutividade AC (Acharya e Choudhary, 2015).

5.3.4 Impedância imaginária

As amostras de cerâmica STS com diferentes concentrações de aditivos TiO_2 em (0%, 5%, 10%, 15%, 20% e 25%) foram analisadas em termos de sua impedância imaginária (Z'') em função da frequência e da temperatura. Observa-se que, em baixas frequências, o valor de Z'' é elevado para temperaturas mais baixas e diminui com o aumento da frequência e da temperatura, devido ao comportamento de relaxação dielétrica característico de materiais cerâmicos. A adição progressiva de aditivos resulta em uma diminuição nos picos de Z'' e em um deslocamento desses picos para frequências mais altas, indicando uma melhoria na condutividade AC e uma redução na resistência dos contornos de grão. Esse comportamento sugere que os compósitos com maior concentração de aditivos, como STS20 e STS25, apresentam propriedades ideais para aplicações que exigem estabilidade dielétrica e alta condutividade em condições de alta frequência e temperatura (Kumar et al., 2005; Sahoo et al., 2013; Abreu et al., 2023).

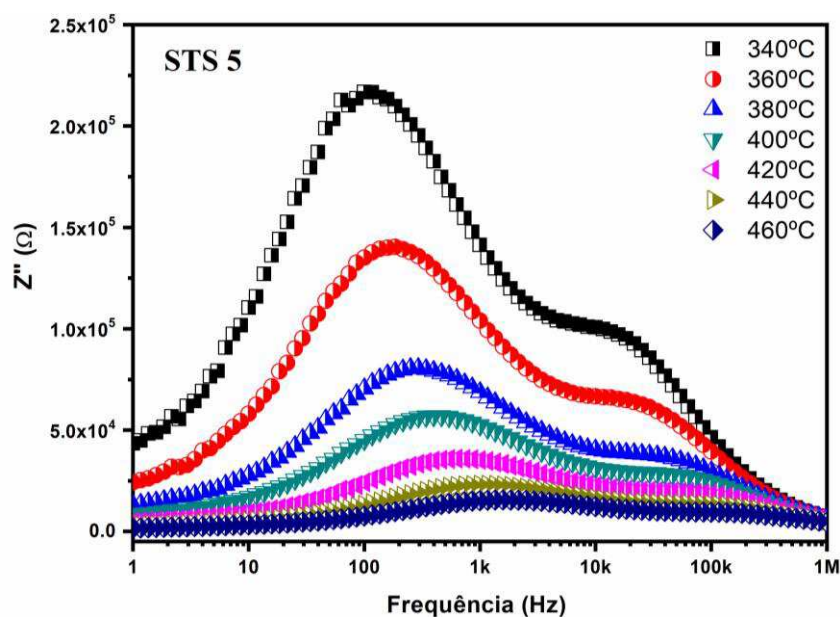
Figura 48 – Espectro de impedância imaginária Z'' com variação de temperatura da matriz cerâmica STS.



Fonte: Próprio autor

Na amostra de STS pura, observa-se que a impedância imaginária (Z'') exibe um pico pronunciado na faixa de 100 Hz a 10 KHz, com o valor de Z'' diminuindo progressivamente em frequências mais altas. O pico mais alto ocorre na temperatura mais baixa (340°C), enquanto, com o aumento da temperatura, o valor máximo de Z'' reduz-se e o pico desloca-se para frequências mais altas, indicando um comportamento de relaxação térmica característico de materiais cerâmicos (Acharya e Choudhary, 2015; Mahato et al., 2011).

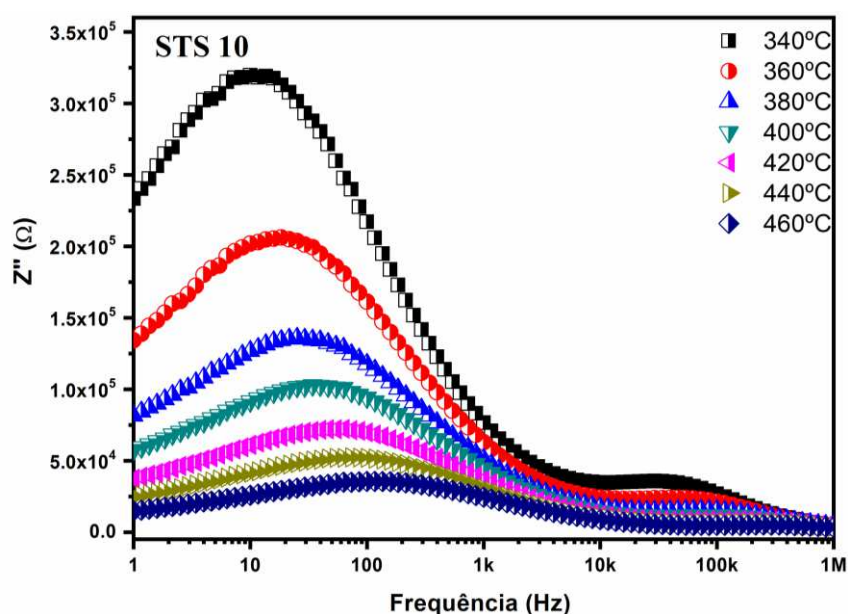
Figura 49 – Espectro de impedância imaginária Z'' com variação de temperatura da amostra STS 5.



Fonte: Próprio autor

Para a amostra STS5, o comportamento é semelhante ao da amostra pura, mas com uma redução mais acentuada dos valores de Z'' com o aumento da temperatura. Isso indica que a adição de 5% de TiO_2 altera a estrutura de grãos do material, facilitando a condução elétrica em temperaturas mais altas e diminuindo a resistência dos contornos de grão em baixas frequências (Kumar et al., 2005).

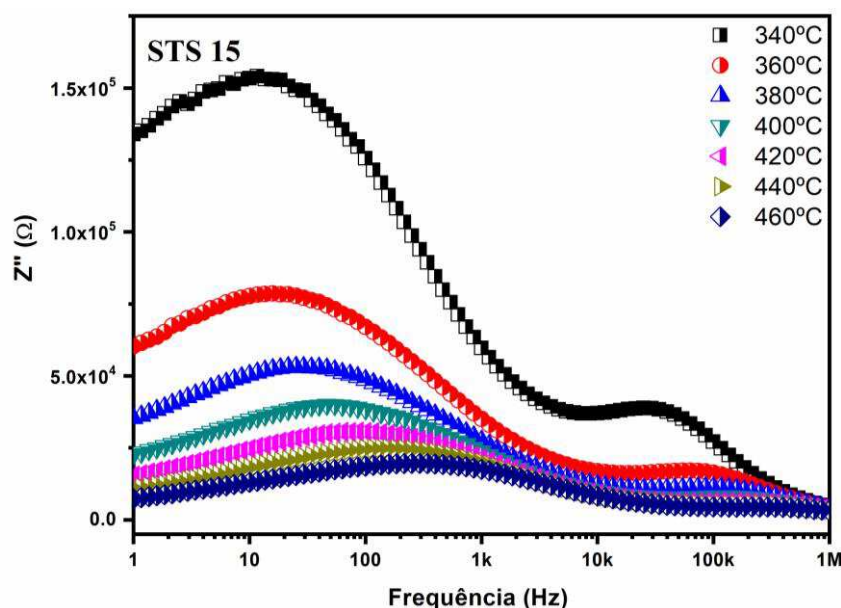
Figura 50 – Espectro de impedância imaginária Z'' com variação de temperatura da amostra STS 10.



Fonte: Próprio autor

A amostra STS10 apresenta picos de Z'' menos pronunciados e deslocados para frequências mais altas em comparação com as amostras anteriores. Esse comportamento sugere uma maior mobilidade dos portadores de carga e uma menor resistência nos contornos de grão devido ao aumento da concentração de aditivos, que contribui para uma condutividade AC mais elevada (Sahoo et al., 2013).

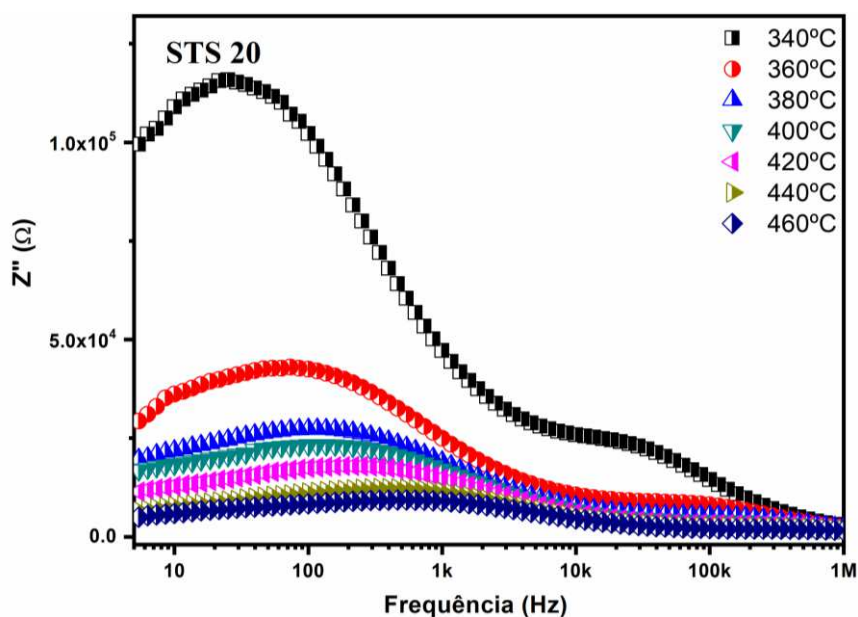
Figura 51 – Espectro de impedância imaginária Z'' com variação de temperatura da amostra STS 15.



Fonte: Próprio autor

Na amostra STS15, o valor de Z'' continua a diminuir com o aumento da frequência e da temperatura. O pico de Z'' para cada temperatura é visivelmente menor do que nas amostras de STS5 e STS10, indicando que o material se torna mais condutivo com a adição de 15% de TiO_2 . Esse comportamento está de acordo com a teoria de relaxação dielétrica, onde a energia térmica promove a movimentação de cargas nos grãos internos (Abreu et al., 2023).

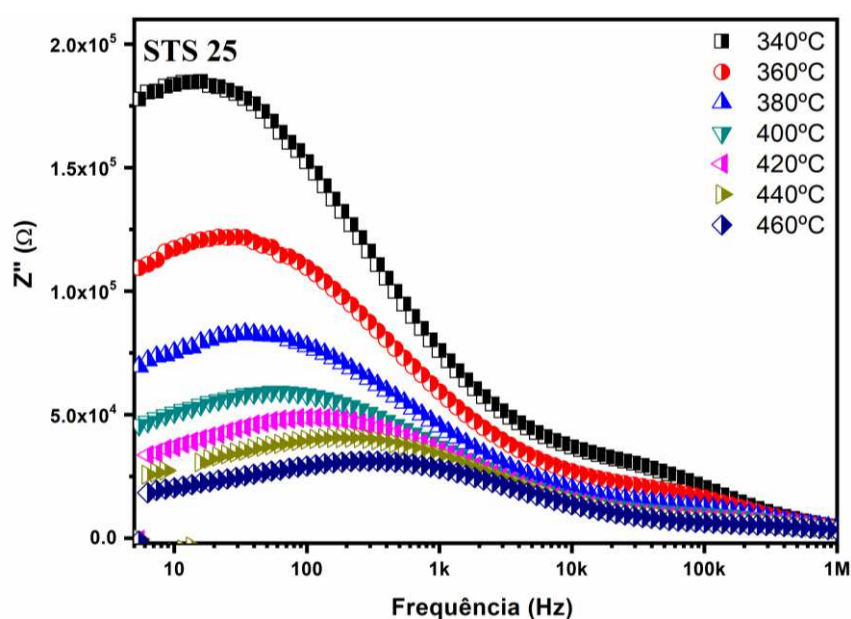
Figura 52 – Espectro de impedância imaginária Z'' com variação de temperatura da amostra STS 20.



Fonte: Próprio autor

A amostra STS20 exibe um deslocamento ainda mais acentuado dos picos de Z'' para frequências mais altas e uma redução significativa nos valores máximos de Z'' . Esse padrão confirma o efeito dos aditivos em reduzir a resistência dos contornos de grão e melhorar a mobilidade dos portadores de carga no interior dos grãos. Em altas temperaturas, o material mostra uma resposta praticamente linear, o que sugere alta estabilidade dielétrica (Acharya e Choudhary, 2015).

Figura 53 – Espectro de impedância imaginária Z'' com variação de temperatura da amostra STS 25.



Fonte: Próprio autor

A amostra STS25 apresenta os menores valores de Z'' em comparação com todas as outras amostras, com picos ainda mais deslocados para frequências mais altas. Isso indica que a adição de 25% de aditivo maximiza a condutividade AC do material, tornando-o altamente eficiente para aplicações que requerem estabilidade em altas frequências e temperaturas elevadas (Mahato et al., 2011).

5.4 Análise do Diagrama de Nyquist

O diagrama de Nyquist foi utilizado para investigar os efeitos dos grãos, contornos de grãos, bem como a influência dos eletrodos nas amostras analisadas.

A modelagem dos circuitos equivalentes para cada amostra foi composta por resistores (R) e elementos de fase constante (CPE). Optou-se pela inserção do CPE nos circuitos devido à sua versatilidade e multifuncionalidade, já que os materiais analisados não apresentam comportamento de capacitância pura, como observado em sistemas ideais do tipo Debye.

O CPE é capaz de modelar de forma eficaz as respostas de sistemas heterogêneos, uma vez que ele pode assumir diferentes papéis, como de resistor, capacitor ou indutor, dependendo do valor do fator n ($n = 0, 1, -1$, respectivamente).

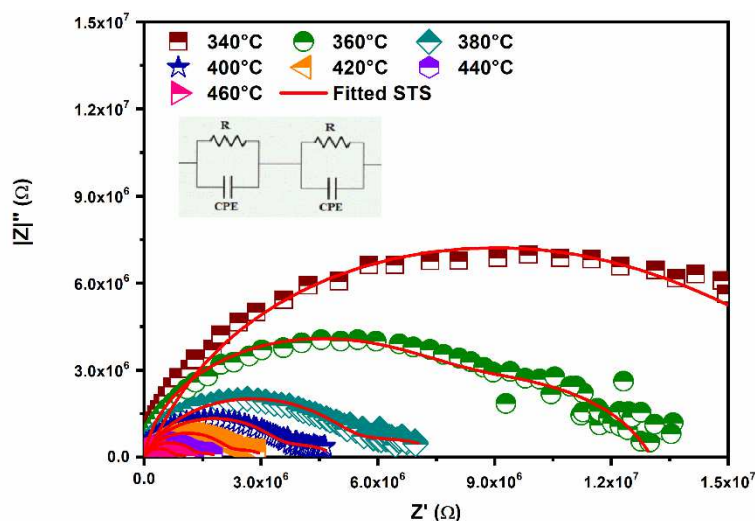
Essa característica torna o CPE uma ferramenta essencial para descrever o comportamento dispersivo das propriedades elétricas em materiais com irregularidades estruturais e contornos de grãos, permitindo uma melhor adaptação ao comportamento real observado nos experimentos. (Yuan et al., 2010, p. 142).

A Espectroscopia de Impedância Eletroquímica (EIS) foi aplicada nos experimentos apresentados nas figuras (54 a 59) para a caracterização dos processos de transferência de carga e resistência dos materiais em estudo. O software utilizado para essa análise foi essencial para a aquisição e interpretação dos dados experimentais. A modelagem dos diagramas de Nyquist foram obtidos, através do ajuste de circuitos equivalentes compostos por elementos como resistores, capacitores e elementos de fase constante (CPE).

Através do software foi possível decompor a resposta de impedância em nossas amostras, e subtrair dados acerca dos fenômenos complexos, como a resistência associada aos grãos e contornos de grãos, bem como a dispersão de frequências.

De modo geral, o software ajustou os dados experimentais com precisão, permitindo uma análise detalhada do comportamento dos materiais em diferentes temperaturas, conforme mostrado nos diagramas abaixo.

Figura 54 - Espectro $Z' * Z''$ em função da temperatura STS.



Fonte: próprio autor

O gráfico apresentado na figura 54 exibe o diagrama de Nyquist da amostra STS, o estudo de impedância eletroquímica, além de exprimir o comportamento resistivo e capacitivo do material. O eixo X (Z') representa a parte real da impedância e o eixo Y ($|Z''|$) representa a parte imaginária.

A variação de temperatura ocorre entre 340°C até 460°C, nesta faixa podemos observar o surgimento de semicírculos típicos de um sistema que envolvem o processo de relaxação, indicando transporte de carga ou transferência de íons.

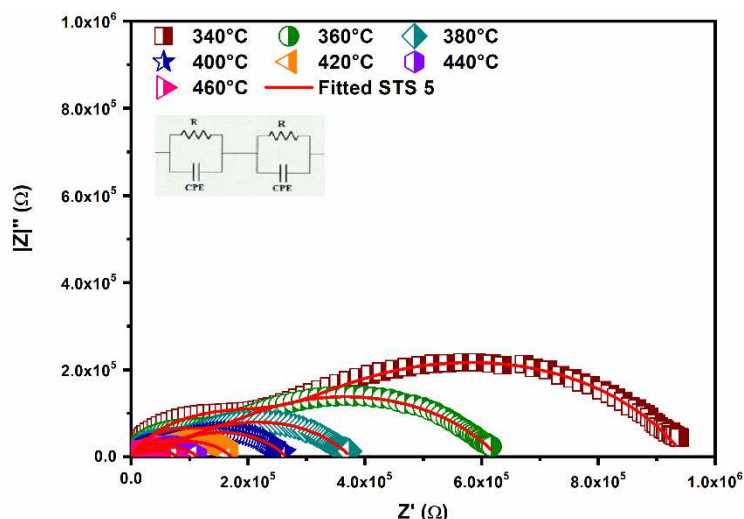
À medida que a temperatura aumenta, notamos um deslocamento dos semicírculos para direita e para baixo, o comportamento pode indicar uma redução na impedância global do sistema.

Além disso observamos uma diminuição na resistência de transferência de carga. Tal comportamento não-linear aponta para uma relação direta da temperatura com a resistividade dos grãos e nos contornos de grãos como relatado por Moulson & Herbert (2003).

Notamos um achatamento dos semicírculos em temperaturas mais altas (420 – 460 °C) indica um comportamento não-Debye, evidenciado pela dispersão nos tempos de relaxação do sistema. Esse comportamento é típico de sistemas que apresentam heterogeneidades na estrutura interna, como variações no tamanho dos grãos ou contornos de grãos, que afetam o processo de relaxação.

Para realizar a modelagem e obter a resposta dielétricas, adicionamos um circuito equivalente incluindo resistores, capacitores, ou elementos de fase constante (CPE) para ajustar a dispersão no processo de relaxação. Lvovich (2012) aponta que esses elementos são cruciais para descrever sistemas não ideais, permitindo ajustar a resposta capacitiva dispersa do material.

Observamos que o aumento da temperatura melhora significativamente a condução no material, reduzindo a resistência à transferência de carga. Entretanto, a amostra apresenta um comportamento não ideal em altas temperaturas, evidenciado pelo surgimento de semicírculos achatados.

Figura 55 - Espectro $Z' * Z''$ em função da temperatura STS 5.

Fonte: próprio autor

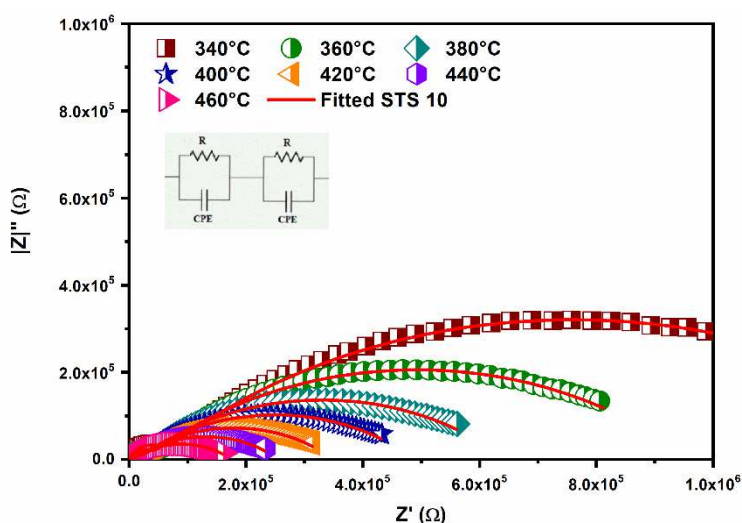
Na figura 55 apresentamos o comportamento da amostra STS 5. Podemos verificar uma leve diminuição na resistividade em comparação com a amostra anterior.

Notamos que o aumento da temperatura influenciou no tamanho dos semicírculos, ou seja, houve uma diminuição dos semicírculos a medida que aumentamos a temperatura, além disso tivemos o surgimento de mais de um semicírculo no diagrama e uma achatamento dos semicírculos. Esse comportamento é típico dos materiais cerâmicos, em que o transporte de carga é altamente dependente da temperatura, como apontado por Yuan et al.(2010, p.142).

Referente ao achatamento do semicírculo, podemos considerar o comportamento da amostra sendo não-Debye, indicando que o material não segue uma distribuição uniforme de tempo de relaxação.

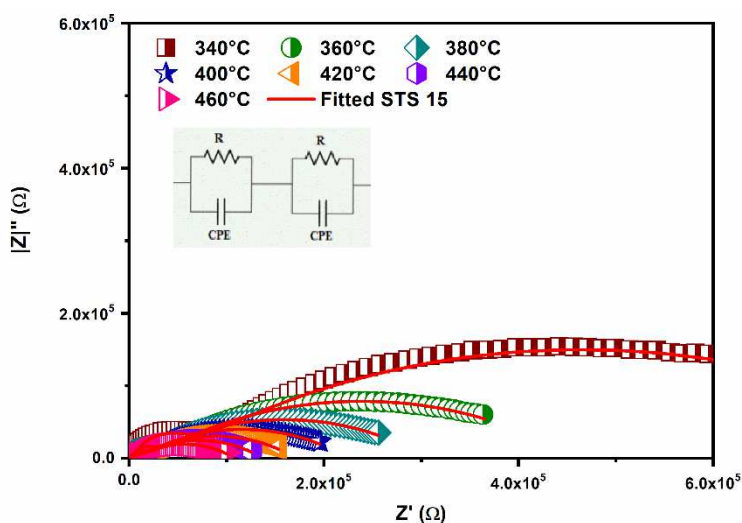
A ocorrência se deve a microestruturas complexas, onde os contornos de grão e as variações no tamanho do grão influenciam a resposta capacitiva e resistiva do material. Em relação a modelagem utilizamos um circuito equivalente simples com resistor e CPE para quantificar o comportamento não ideal observado.

Segundo Barsoukov & Macdonald (2018), o uso de circuitos equivalentes permite decompor a resposta de impedância e associar diferentes elementos a fenômenos como a resistência de transferência de carga, a capacitância de dupla camada e a dispersão causada pelos contornos de grãos.

Figura 56 - Espectro $Z' * Z''$ em função da temperatura STS 10.

Fonte: próprio autor

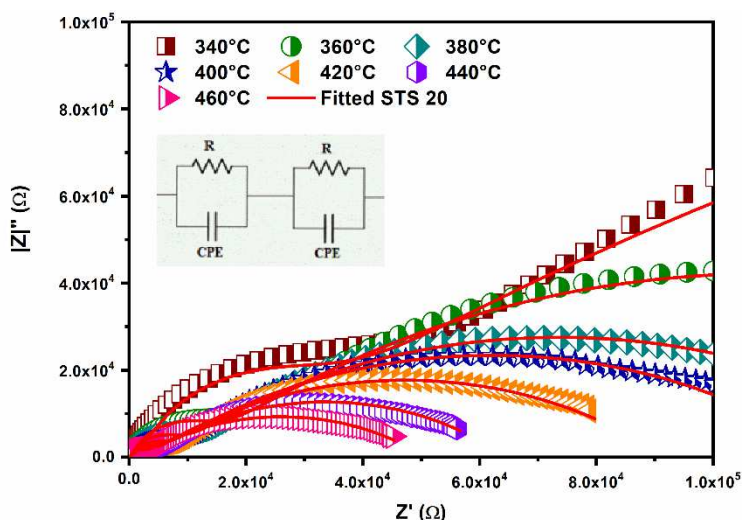
Os espectros exibidos na figura 56 pertencem a amostra STS 10, e são similares aos observados nos gráficos anterior, todavia, com um leve aumento da resistividade do sistema. Em tese, o comportamento é semelhante ao dos gráficos anteriores, no que refere-se a diminuição da resistividade perante o aumento da temperatura. Podemos verificar que em temperaturas altas, como 460°C, os semicírculos são menores e mais estreitos, uma indicação que a resistência à transferência de carga ou resistência associada aos contornos de grão é menor. A amostra apresenta um comportamento não-Debye, devido a dispersão no tempos de relaxação. A heterogeneidade microestrutural característico das amostras apontam para necessidade de incluir elementos de Fase Constante (CPE) no circuito equivalente para possibilitar a modelagem do sistema Lvovich (2012).

Figura 57 - Espectro $Z' * Z''$ em função da temperatura STS 15.

Fonte: próprio autor

O Diagrama de Nyquist exibido na figura 57 exibe a relação entre a temperatura e a condutividade do material, obedecendo o mesmo padrão das amostras anteriores, onde indica que o aumento da temperatura influencia diretamente na diminuição na resistência do sistema. O comportamento dispersivo observado, típico de um sistema não-Debye, para determinar os grão e contorno de grão foi utilizado um circuito equivalente apropriado, que incluía CPE.

Figura 58 - Espectro $Z' * Z''$ em função da temperatura STS 20.



Fonte: próprio autor

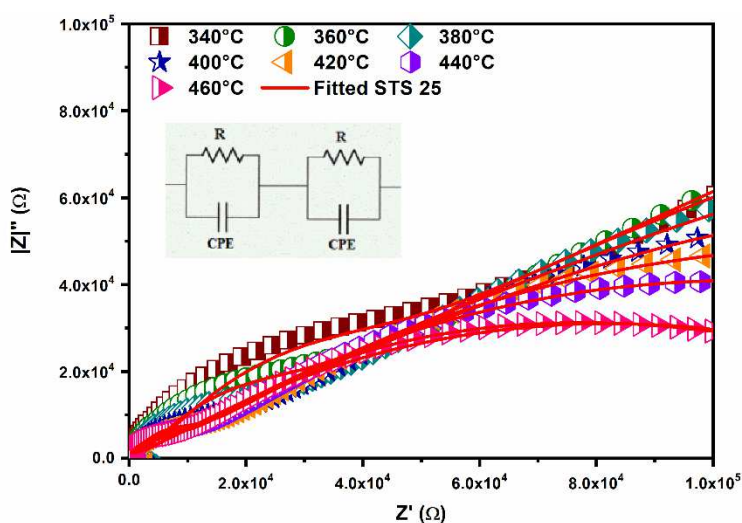
O comportamento eletroquímico da amostra STS 20 descrito na figura 58 apresenta uma diminuição nos valores de impedância à medida que a temperatura aumenta, é notório a redução da altura e a compressão dos semicírculos no eixo Z' .

Tal comportamento é explicado por Yuan et al. (2010), o aumento da temperatura reduz a resistência de transferência de carga, facilitando a condução iônica através dos contornos de grãos. Esse comportamento é típico de materiais cujas propriedades de condução melhoram com o aumento da temperatura, elevando o crescimento da mobilidade dos portadores de carga.

Observamos que em baixas temperaturas (340° e 360°C) os semicírculos indicam maior resistência à transferência de carga e os efeitos de contorno de grãos são responsáveis pelo fenômeno. Nas temperaturas mais elevadas (440° e 460°C) ocorre um achatamento dos semicírculos e deslocamento para direita do gráfico, indicando a diminuição da resistência, consequentemente elevando a mobilidade dos portadores de carga pelo material. Essa é uma característica de materiais cerâmicos e policristalinos, que tendem a ter uma maior facilidade ao transporte de carga em relação a microestrutura da amostra Moulson & Herbert (2003).

Por fim, o comportamento não ideal da amostra, caracterizado pela dispersão dos tempos de relaxação indicando um sistema não-Debye, onde é comum observar materiais com microestruturas heterogêneas, a resposta capacitiva é influenciada pela distribuição de tamanhos de grãos e pela presença de contornos de grãos. Para realizar a modelagem do sistema foi atribuído o elemento de fase constante (CPE) no intuito de modelar a dispersão de frequências e ajustar o comportamento eletroquímico com maior precisão (Lvovich, 2012).

Figura 59 - Espectro $Z' * Z''$ em função da temperatura STS 25.



Fonte: próprio autor

No Diagrama de Nyquist mostrado na figura 59, apresenta a amostra STS 25 tendo como destaque a redução da resistência à transferência de cargas pelo material intimamente relacionado ao aumento da temperatura, fator que corrobora na melhora da condução iônica.

O comportamento não ideal da amostra é similar aos dados apresentados anteriores e indica um sistema não-Debye. Para realizar a modelagem utilizamos a modelagem de sistema integrado com elementos de fase e constante (CPE) para tornar possível a modelagem das dispersões e da não uniformidade de tempos de relaxação.

Tabela 4 – Parâmetros da modelagem do circuito equivalente da amostra STS

Temperatura	STS					
	$R_g (\Omega)$	Grão $P_g (F)$	n_g	$R_{gb} (\Omega)$	Contorno de Grão $P_{gb} (F)$	n_{gb}
340 °C	$1,40 \times 10^7$	$5,86 \times 10^{-11}$	0,91124	$9,94 \times 10^6$	$9,05 \times 10^{-9}$	0,50975
360 °C	$7,18 \times 10^6$	$3,52 \times 10^{-11}$	0,95945	$5,85 \times 10^6$	$1,70 \times 10^{-9}$	0,76044
380 °C	$4,97 \times 10^6$	$1,42 \times 10^{-10}$	0,81959	$2,93 \times 10^{10}$	$6,74 \times 10^{-4}$	0,45943
400 °C	$3,22 \times 10^6$	$1,37 \times 10^{-10}$	0,83062	$1,79 \times 10^6$	$6,35 \times 10^{-8}$	0,48544
420 °C	$2,00 \times 10^6$	$1,42 \times 10^{-10}$	0,83375	$1,15 \times 10^6$	$9,97 \times 10^{-8}$	0,46664
440 °C	$1,22 \times 10^6$	$1,60 \times 10^{-10}$	0,83023	$6,94 \times 10^5$	$1,79 \times 10^{-7}$	0,44392
460 °C	$3,90 \times 10^5$	$2,98 \times 10^{-7}$	0,42679	$7,17 \times 10^5$	$1,59 \times 10^{-6}$	0,83666

Fonte: Elaborado pelo autor

A tabela 4 apresenta os resultados obtidos através da modelagem do circuito equivalente da amostra STS, tendo como resistências (R_g e R_{gb}), capacitâncias (P_g e P_{gb}) e fatores de fase constante (n_g e n_{gb}) nas temperaturas de 340°C a 460° C.

Os dados obtidos mostram a relação direta entre o comportamento da impedância e as propriedades térmicas e estruturais da amostra. Observamos uma redução consistente nas resistências (R_g e R_{gb}) ao elevar as temperaturas, apontando uma melhoria na mobilidade dos portadores de carga, conforme descrito por Yuan et al. (2010).

A resistência dos grãos (R_g) tem início em $1,40 \times 10^7 \Omega$ com 340°C, caindo para $3,90 \times 10^5 \Omega$ ao atingir 460°C, indicando uma diminuição das barreiras internas em temperaturas elevadas. Seguindo a mesma tendência, os valores de contorno de grão (R_{gb}), exibindo uma redução nas barreiras de potencial entre os grãos em altas temperaturas.

A capacitância associada aos grãos (P_g) aumenta com a temperatura, saindo de $5,86 \times 10^{-11} F$ a 340° C e chegando a $2,98 \times 10^{-7} F$ em 460° C. Este aumento representa maior polarização interna, à medida que a temperatura facilita o alinhamento dos dipolos internos e a movimentação de íons. Lvovich (2012) sugere que a capacidade de armazenamento de energia e a resposta capacitiva aumentam em materiais com contornos de grãos dispersivos em função da temperatura.

Semelhantemente a capacitância dos contornos de grãos (P_{gb}) mostra um aumento moderado, o que Abreu (2024) associa à contribuição dos contornos de grãos como barreiras capacitivas em cerâmicas dielétricas, intensificando o efeito da temperatura na resposta de impedância.

Os valores de n , expõem a dispersão do comportamento capacitivo da amostra, indicando uma relação inversamente proporcional a temperatura que pode ser

observado no fator associado aos grãos (n_g), que passa de 0,91124 em 340°C para 0,42679 em 460°C. Essa variação reforça o comportamento não-Debye do material, característico de sistemas com distribuição heterogênea de tempos de relaxação, conforme também descrito por Barsoukov & Macdonald (2018).

Tabela 5 – Parâmetros da modelagem do circuito equivalente da amostra STS5

Temperatura	STS5					
	R_g (Ω)	Grão P_g (F)	n_g	R_{gb} (Ω)	Contorno de Grão P_{gb} (F)	n_{gb}
340 °C	$2,48 \times 10^5$	$1,36 \times 10^{-9}$	0,71894	$7,00 \times 10^5$	$1,75 \times 10^{-8}$	0,68585
360 °C	$1,14 \times 10^5$	$3,09 \times 10^{-10}$	0,85005	$5,14 \times 10^5$	$2,48 \times 10^{-8}$	0,6211
380 °C	$6,24 \times 10^4$	$2,95 \times 10^{-10}$	0,86247	$3,14 \times 10^5$	$3,64 \times 10^{-8}$	0,59476
400 °C	$4,82 \times 10^4$	$3,32 \times 10^{-10}$	0,85518	$2,18 \times 10^5$	$4,07 \times 10^{-8}$	0,59839
420 °C	$3,22 \times 10^4$	$3,27 \times 10^{-10}$	0,86103	$1,39 \times 10^5$	$5,16 \times 10^{-8}$	0,58875
440 °C	$1,94 \times 10^4$	$2,01 \times 10^{-10}$	0,90495	$9,43 \times 10^4$	$7,18 \times 10^{-8}$	0,56065
460 °C	$1,40 \times 10^4$	$2,94 \times 10^{-10}$	0,88147	$6,44 \times 10^4$	$8,86 \times 10^{-8}$	0,55655

Fonte: Elaborado pelo autor

A tabela 5 apresenta os parâmetros de impedância para a amostra STS5 em diferentes temperaturas, variando de 340°C a 460°C. Os parâmetros (R_g) e (R_{gb}) analisados indicam um declínio nos valores com aumento da temperatura. Essa tendência sugere que a barreira de ativação para a condução dentro dos grãos se torna menos ativa em altas temperaturas, reforçando a aplicação desses materiais em ambientes que requerem alta condutividade.

A capacitância dos grãos (P_g) aumenta com a temperatura refletindo uma maior capacidade de polarização, o que é fundamental para a resposta dielétrica do material.

A elevação da capacitância aponta um material resposta rapidamente do material à aplicação de um campo elétrico, aumentando a energia armazenada. Em sistemas dielétricos, como apontado por Moulson & Herbert (2003), o aumento de (P_g) é bastante relevante em cerâmicas que apresentam relaxação dispersiva em função da temperatura.

Semelhantemente a capacitância do grão (P_g) o contorno de grão (P_{gb}) também mostra um aumento em temperaturas elevadas, sugerindo que os contornos de grão atuam com barreiras capacitivas que, com o aumento da temperatura perdem sua efetividade. Esse comportamento reforça as observações de Abreu (2024) de que, em materiais policristalinos, os contornos de grãos afetam significativamente a resposta dielétrica global do material.

Os valores de fatores de fase constante (n_g e n_{gb}) variam em função da temperatura, indicando a não idealidade do comportamento capacitivo do material. Observamos que, para temperaturas altas, (n_g e n_{gb}) se aproxima de 1, apontado que a resposta capacitiva não se adapta bem em baixas temperaturas. Este tipo de análise é valiosa para otimizar o design de materiais dielétricos em aplicações avançadas, como em antenas ressonadoras dielétricas (Luk et al., 2003).

Tabela 6 – Parâmetros da modelagem do circuito equivalente da amostra STS10

Temperatura	STS10					
	R_g (Ω)	Grão P_g (F)	n_g	R_{gb} (Ω)	Contorno de Grão P_{gb} (F)	n_{gb}
340 °C	$4,39 \times 10^4$	$6,67 \times 10^{-11}$	0,9825	$1,43 \times 10^6$	$7,69 \times 10^{-8}$	0,53652
360 °C	$2,90 \times 10^4$	$6,58 \times 10^{-11}$	0,9756	$9,27 \times 10^5$	$9,56 \times 10^{-8}$	0,53145
380 °C	$1,78 \times 10^4$	$6,50 \times 10^{-11}$	0,95625	$6,25 \times 10^5$	$1,21 \times 10^{-7}$	0,52374
400 °C	$1,32 \times 10^4$	$6,47 \times 10^{-11}$	0,88723	$4,74 \times 10^5$	$1,41 \times 10^{-7}$	0,51867
420 °C	$8,83 \times 10^3$	$6,45 \times 10^{-11}$	0,97828	$3,40 \times 10^5$	$1,75 \times 10^{-7}$	0,51102
440 °C	$6,79 \times 10^3$	$6,43 \times 10^{-11}$	0,94453	$2,48 \times 10^5$	$2,10 \times 10^{-7}$	0,50581
460 °C	$5,28 \times 10^3$	$6,45 \times 10^{-11}$	0,95662	$1,69 \times 10^5$	$2,58 \times 10^{-7}$	0,49975

Fonte: Elaborado pelo autor

A tabela 6 exibe os parâmetros elétricos para a amostra STS10 em função da temperatura (340° C a 460° C), incluindo as resistências (R_g e R_{gb}), capacitância (P_g e P_{gb}), e o fator de fase constante (n_g e n_{gb}) tanto para os grãos como para o contorno de grão. Observamos uma redução significativa em R_g e R_{gb} com o aumento da temperatura. As resistências R_g diminui de $4,39 \times 10^4 \Omega$ a 340° C para $5,28 \times 10^3 \Omega$ a 460° C. Entendemos que a diminuição nos valores de R_g indicam um aumento da mobilidade iônica em temperaturas elevadas, o que facilita o transporte de cargas através dos grãos.

Notamos que R_{gb} seguiu a mesma tendência de redução $1,43 \times 10^6 \Omega$ a 340° C para $1,69 \times 10^5 \Omega$ a 460° C. Esse comportamento aponta que as características do contorno de grão de barreiras capacitivas e resistivas, perdem parte de sua resistência ao transporte de cargas quando temos temperatura altas, como indicado por Yuan et al. (2010).

A capacitância dos grãos (P_g) se mantiveram praticamente constante ao longo das análises de variação de temperatura, com pequenas alterações. Os sistemas dielétricos que apresentam essas características indicam que os grãos apresentam uma estrutura interna estável, mesmo que o material seja submetido a mudanças na condutividade, Segundo Moulson & Herbert (2003), a capacitância constante sugere

uma resposta homogênea dos grãos às variações térmicas, característica importante em materiais cerâmicos.

A capacitância dos contornos de grãos (P_{gb}), contudo, exibe um aumento gradual, indicando uma capacidade de armazenar carga maior nos contornos à medida que a temperatura aumenta. Tal tendência pode estar relacionada à polarização nos contornos de grãos, que é intensificada em altas temperaturas, conforme destacado por Lvovich (2012).

O fator de fase constante n_g , associado ao grão, mostram valores próximos de 1 em todas as temperaturas, um forte indicativo de um comportamento quase ideal, o que sugere que o sistema é capacitivo e pouco dispersivo no interior dos grãos. Em compensação, o valor de n_{gb} , associado aos contornos de grãos, se mantém abaixo de 0,6, sugerindo uma resposta dispersiva e comportamento não ideal. Podemos entender essa diferença entre n_g e n_{gb} um indicativo que os contornos de grãos têm uma resposta mais complexa e dispersiva devido às heterogeneidades estruturais, como discutido por Barsoukov & Macdonald (2018).

Tabela 7 – Parâmetros da modelagem do circuito equivalente da amostra STS15

Temperatura	STS15					
	Grão	Contorno de Grão				
	$R_g (\Omega)$	$P_g (F)$	n_g	$R_{gb} (\Omega)$	$P_{gb} (F)$	n_{gb}
340 °C	$4,09 \times 10^4$	$9,80 \times 10^{-11}$	0,97562	$8,47 \times 10^5$	$2,05 \times 10^{-7}$	0,43279
360 °C	$2,05 \times 10^4$	$8,57 \times 10^{-11}$	0,95246	$4,36 \times 10^5$	$3,11 \times 10^{-7}$	0,44069
380 °C	$1,40 \times 10^4$	$7,98 \times 10^{-11}$	0,91268	$2,91 \times 10^5$	$3,62 \times 10^{-7}$	0,44751
400 °C	$9,82 \times 10^3$	$7,78 \times 10^{-11}$	0,92694	$2,14 \times 10^5$	$3,76 \times 10^{-7}$	0,45429
420 °C	$7,18 \times 10^3$	$7,95 \times 10^{-11}$	0,92548	$1,63 \times 10^5$	$3,87 \times 10^{-7}$	0,45642
440 °C	$5,25 \times 10^3$	$8,13 \times 10^{-11}$	0,89522	$1,32 \times 10^5$	$3,74 \times 10^{-7}$	0,45819
460 °C	$3,82 \times 10^3$	$9,22 \times 10^{-11}$	0,92462	$1,04 \times 10^5$	$3,95 \times 10^{-7}$	0,45344

Fonte: Elaborado pelo autor

Na tabela 7 observamos uma diminuição significativa de (R_g e R_{gb}) com o aumento da temperatura. A resistência dos grãos na temperatura de 340° C equivale a $4,09 \times 10^4 \Omega$ em 460° C o valor corresponde a $3,82 \times 10^3 \Omega$. Indica uma melhor condução iônica com o aquecimento da amostra, diminuindo as barreiras internas para o transporte de carga. Esse comportamento é consistente com os encontrados por Abreu (2024), que aponta para uma redução nas resistências internas de materiais cerâmicos com o aumento da temperatura. A resistência dos contornos de grãos (R_{gb}) seguem uma tendência semelhante, onde a redução de $8,47 \times 10^5 \Omega$ em 340° C para $1,04 \times 10^5 \Omega$ em 460° C. Como observado por Moulson & Herbert (2003), a presença de

contornos de grãos gera barreiras resistivas que se tornam menos influentes à medida que a temperatura aumenta, facilitando a condução através das interfaces do material.

A capacitância dos grãos (P_g) apresenta uma leve variação com o aumento da temperatura, um indicativo de polarização moderada do material dentro dos grãos. Em temperaturas elevadas a estabilidade de P_g pode sugerir uma estrutura interna relativamente uniforme nos grãos, capaz de interagir ao campo elétrico sem grandes variações. Entretanto, a capacitância dos contornos de grãos (P_{gb}) aumenta de forma acentuada, indo de $2,05 \times 10^{-7}$ F a 340° C para $3,95 \times 10^{-7}$ F a 460° C. Esse aumento aponta que os contornos de grãos acumulam mais carga em temperaturas mais altas, o que pode ser atribuído a uma maior polarização interfacial. Luk et al. (2003) atribui que esse fenômeno é comum em materiais policristalinos, onde os contornos de grãos funcionam como barreiras capacitivas que respondem à temperatura.

O fator de fase constante n_g apresenta valores próximos de 1, indicando uma resposta quase ideal para a capacitância dos grãos, o que sugere um comportamento capacitivo com pouca dispersão dentro dos grãos. Essa característica é frequentemente associada a sistemas homogêneos, onde a distribuição de tempos de relaxação é mais uniforme. Para n_{gb} , que representa o contorno de grãos, os valores se mantêm em torno de 0,45, revelando uma resposta dispersiva e não ideal. Este valor menor de n_{gb} indica uma maior heterogeneidade nos contornos de grãos, característica de sistemas não-Debye com distribuição ampla de tempos de relaxação. Barsoukov & Macdonald (2018) explicam que a resposta dispersiva e o comportamento não ideal são típicos em materiais que possuem uma microestrutura complexa com interfaces que agem como barreiras para a condução.

Tabela 8 – Parâmetros da modelagem do circuito equivalente da amostra STS20

Temperatura	STS20					
	Grão	Contorno de Grão				
	$R_g (\Omega)$	$P_g (F)$	n_g	$R_{gb} (\Omega)$	$P_{gb} (F)$	n_{gb}
340 °C	$2,01 \times 10^4$	$2,14 \times 10^{-10}$	0,97584	$5,34 \times 10^5$	$1,79 \times 10^{-7}$	0,48186
360 °C	$1,06 \times 10^4$	$2,09 \times 10^{-10}$	0,97177	$1,98 \times 10^5$	$2,42 \times 10^{-7}$	0,51287
380 °C	$5,87 \times 10^3$	$1,38 \times 10^{-10}$	0,96833	$1,36 \times 10^5$	$3,41 \times 10^{-7}$	0,49126
400 °C	$3,94 \times 10^3$	$1,26 \times 10^{-10}$	0,89522	$1,16 \times 10^5$	$3,84 \times 10^{-7}$	0,48687
420 °C	$2,93 \times 10^3$	$1,24 \times 10^{-10}$	0,89036	$8,85 \times 10^4$	$4,19 \times 10^{-7}$	0,48409
440 °C	$2,95 \times 10^3$	$1,11 \times 10^{-10}$	0,92856	$6,14 \times 10^4$	$4,38 \times 10^{-7}$	0,4991
460 °C	$1,61 \times 10^3$	$1,23 \times 10^{-10}$	0,89573	$4,90 \times 10^4$	$6,52 \times 10^{-7}$	0,46068

Fonte: Elaborado pelo autor

A tabela 8 exibe os parâmetros elétricos para a amostra STS20 em função da temperatura, com medições de 340°C a 460°C. Os parâmetros analisados incluem as resistências (R_g e R_{gb}), as capacitâncias (P_g e P_{gb}), e os fatores de fase constante (n_g e n_{gb}) para os grãos e os contornos de grãos. Estes dados são fundamentais para entender o comportamento de condução e a resposta capacitiva do material em função da temperatura. A resistência dos grãos (R_g) mostra uma tendência de queda com o aumento da temperatura, reduzindo de $2,01 \times 10^4 \Omega$ a 340° C para $1,61 \times 10^3 \Omega$ a 460° C. Essa redução indica uma melhoria na mobilidade dos portadores de carga com o aumento da temperatura, o que favorece a condução elétrica.

A resistência dos contornos de grãos (R_{gb}) também segue a mesma tendência, passando de $5,34 \times 10^5 \Omega$ a 340° C para $4,90 \times 10^4 \Omega$ a 460° C. Moulson & Herbert (2003) discutem que os contornos de grãos frequentemente agem como barreiras resistivas, que se tornam menos significativas com o aumento da temperatura, promovendo uma condutividade mais uniforme em toda a matriz.

A capacitância dos grãos (P_g) se mantém relativamente estável, se mantém relativamente estável, com pequenas variações, indicando que a polarização dos grãos não é altamente afetada pelo aumento da temperatura. Este comportamento sugere uma resposta capacitiva homogênea no interior dos grãos, como observado por Yuan et al. (2010). O fator de fase constante (n_g) dos grãos apresenta valores próximos de 1 em todas as temperaturas, indicando que os grãos se comportam de forma quase ideal e têm uma resposta capacitiva menos dispersiva. Esse comportamento é típico de sistemas homogêneos, onde a polarização é estável e a resposta eletroquímica é uniforme, conforme descrito por Lvovich (2012).

O fator (n_{gb}), referente aos contornos de grãos, é menor, variando em torno de 0,48 a 0,51, o que sugere uma resposta não ideal e dispersiva nos contornos. Este comportamento dispersivo é característico de sistemas não-Debye, onde a distribuição dos tempos de relaxação não é uniforme devido às heterogeneidades estruturais.

Tabela 9 – Parâmetros da modelagem do circuito equivalente da amostra STS25

Temperatura	STS25					
	Grão	Contorno de Grão				
	$R_g (\Omega)$	$P_g (F)$	n_g	$R_{gb} (\Omega)$	$P_{gb} (F)$	n_{gb}
340 °C	$1,61 \times 10^4$	$2,62 \times 10^{-10}$	0,92677	$1,03 \times 10^6$	$1,44 \times 10^{-7}$	0,43867
360 °C	$2,70 \times 10^4$	$7,08 \times 10^{-8}$	0,99921	$7,01 \times 10^5$	$2,38 \times 10^{-7}$	0,39688
380 °C	$3,05 \times 10^4$	$1,43 \times 10^{-7}$	0,86112	$4,60 \times 10^5$	$3,26 \times 10^{-7}$	0,39023
400 °C	$3,34 \times 10^4$	$1,52 \times 10^{-7}$	0,80155	$3,16 \times 10^5$	$4,16 \times 10^{-7}$	0,38457
420 °C	$6,15 \times 10^3$	$1,12 \times 10^{-10}$	0,92874	$2,45 \times 10^5$	$1,80 \times 10^{-7}$	0,48522
440 °C	$5,00 \times 10^3$	$1,09 \times 10^{-10}$	0,89955	$2,01 \times 10^5$	$1,64 \times 10^{-7}$	0,49382
460 °C	$2,69 \times 10^3$	$1,49 \times 10^{-10}$	0,87452	$1,59 \times 10^5$	$2,04 \times 10^{-7}$	0,47319

Fonte: Elaborado pelo autor

A tabela 9 apresenta os parâmetros elétricos da amostra STS25 para diferentes temperaturas, que variam de 340° C a 460° C. Esses parâmetros incluem as resistências (R_g e R_{gb}), as capacitâncias (P_g e P_{gb}), e os fatores de fase constante (n_g e n_{gb}) para os grãos e os contornos de grãos. Estes dados permitem entender a resposta eletroquímica do material em diferentes condições térmicas, com foco na condução e na polarização em grãos e contornos.

A resistência dos contornos (R_g) diminui consideravelmente com o aumento da temperatura, partindo de $1,61 \times 10^4 \Omega$ a 340° C e caindo para $2,69 \times 10^3 \Omega$ a 460° C.

Esta tendência é uma característica das amostras estudadas e reflete uma melhora na mobilidade dos portadores de carga em altas temperaturas, conforme descrito por Abreu (2024), que afirma que o aumento térmico reduz as barreiras internas e facilita a condução.

A resistência dos contornos de grãos (R_{gb}) segue uma tendência semelhante, diminuindo de $1,03 \times 10^6 \Omega$ a 340° C e caindo para $1,59 \times 10^5 \Omega$ a 460° C. Essa redução indica que os contornos de grãos, que atuam como barreiras para a condução, tornam-se menos efetivos com o aquecimento, promovendo uma condução mais uniforme entre os grãos, como observado por Moulson & Herbert (2003).

A capacitância dos contornos de grãos (P_g) apresentam uma leve variação com o aumento da temperatura, sugerindo uma resposta estável em termos de polarização interna. A capacitância dos contornos de grão (P_{gb}) por sua vez, mostra um aumento mais acentuado, sugerindo que os contornos de grãos acumulam mais carga conforme a temperatura aumenta. Esse comportamento reflete uma maior polarização interfacial nos contornos de grãos em altas temperaturas, o que é comum em materiais policristalinos onde os contornos agem como barreiras capacitivas, conforme descrito por Luk et al. (2003).

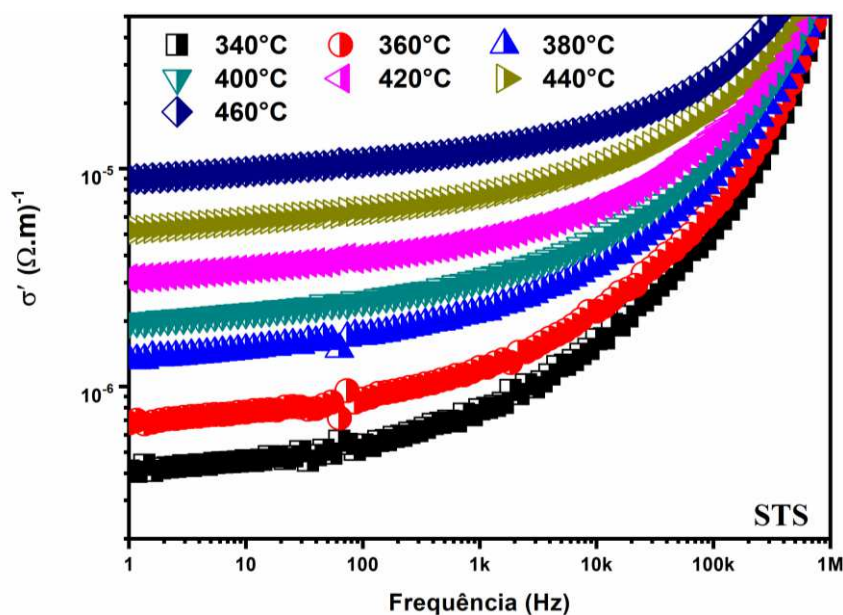
O fator de fase constante (n_g) permanece relativamente próximo de 1, indicando um comportamento quase ideal nos grãos, o que sugere baixa dispersão e uma resposta capacitiva homogênea. Esse comportamento é esperado em materiais com estruturas internas uniformes, onde o efeito da temperatura na polarização é mínimo, como discutido por Barsoukov & Macdonald (2018).

O fator (n_{gb}) associado aos contornos de grãos, apresenta valores menores (variando entre 0,38 e 0,49), indicando uma resposta mais dispersiva e não ideal. Esse comportamento é característico de sistemas não-Debye, onde há uma distribuição ampla de tempos de relaxação nos contornos, devido à presença de heterogeneidades.

5.5 Condutividade

A análise de materiais dielétricos em função da condutividade elétrica, especialmente com a variação de temperatura e frequência, é fundamental para a aplicação em dispositivos de alta frequência, como ressonadores dielétricos e capacitores de alta densidade. Cerâmicas como $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ (STS) com diferentes composições de aditivos de TiO_2 são estudadas para entender como essas variáveis influenciam o comportamento elétrico do material. A condutividade elétrica, representada pela sigla σ' , desempenha um papel importante em determinar a eficiência desses materiais em frequências elevadas, onde a estabilidade térmica e a capacidade de minimizar perdas são essenciais para o desempenho dos dispositivos (Kumar et al., 2005).

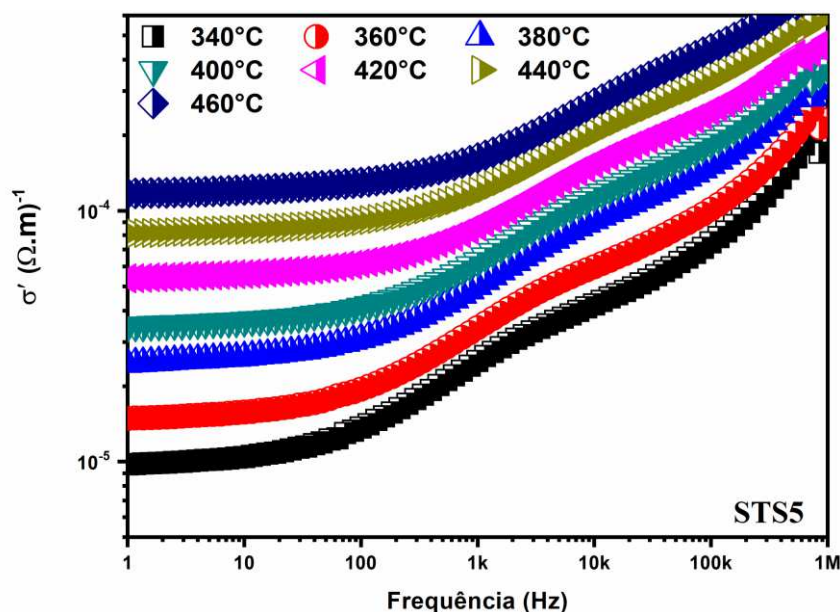
O estudo da condutividade em função da temperatura permite avaliar a ativação térmica e a condução dos portadores de carga nas interfaces e no interior dos grãos. Essa condutividade AC (alternating current) é sensível a frequências e temperaturas variadas, refletindo a resposta dielétrica do material. Esse fenômeno pode ser observado pela dispersão dos valores de σ' nas diferentes amostras e nas respectivas temperaturas, conforme mostrado nas figuras, onde uma tendência de aumento da condutividade é observada com o aumento da frequência e temperatura (Acharya e Choudhary, 2015).

Figura 60 – Condutividade em função da frequência em diferentes temperaturas STS.

Fonte: Próprio Autor.

Para a amostra STS pura, observa-se que a condutividade elétrica é relativamente baixa em temperaturas menores (340°C e 360°C) e em frequências baixas (abaixo de 1 kHz). Com o aumento da temperatura, ocorre uma elevação gradual na condutividade, indicando a presença de uma condução térmica moderada.

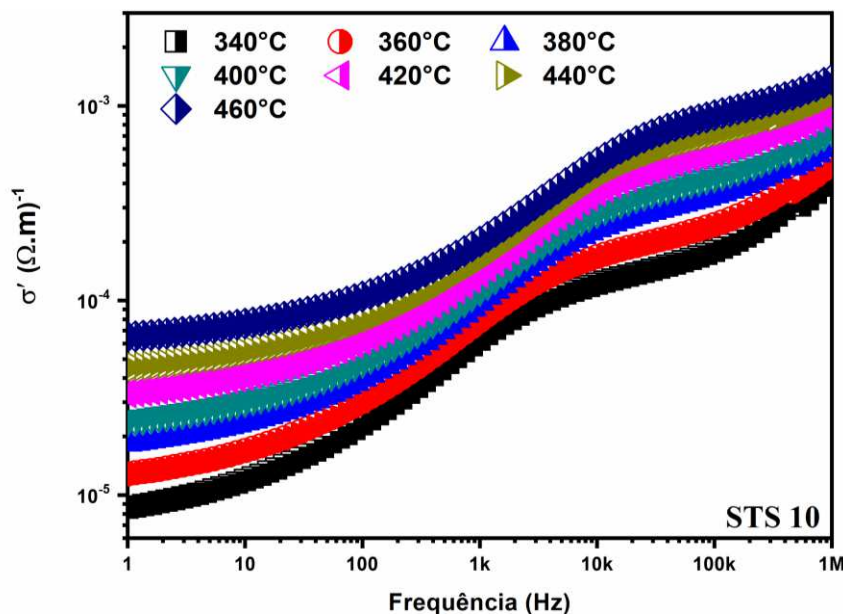
Em frequências elevadas, a condutividade se torna mais significativa, o que sugere uma contribuição crescente das interfaces dos grãos para a condução (Mahato et al., 2011).

Figura 61 – Condutividade em função da frequência em diferentes temperaturas STS 5.

Fonte: Próprio Autor.

A adição de 5% de TiO_2 na amostra de STS resulta em um aumento perceptível na condutividade elétrica ao longo das temperaturas e frequências analisadas. A maior condutividade sugere uma redução na resistência interna do material devido ao aditivo, o que é desejável em dispositivos que requerem baixa perda em alta frequência. Essa propriedade torna a amostra promissora para aplicações que exigem estabilidade dielétrica em condições de alta temperatura (Sahoo et al., 2013).

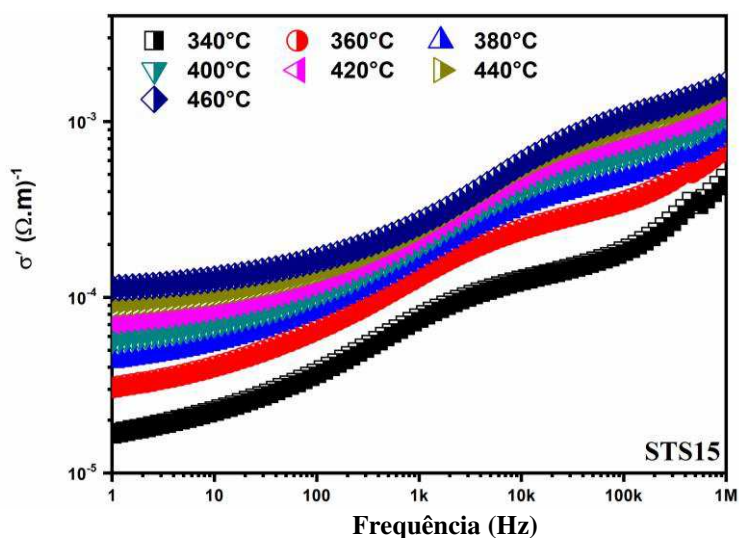
Figura 62 – Condutividade em função da frequência em diferentes temperaturas STS 10.



Fonte: Próprio Autor.

Na amostra STS10, a condutividade elétrica é maior do que nas amostras com menor teor de TiO_2 . A distribuição uniforme da condutividade ao longo das temperaturas sugere que a adição de 10% de TiO_2 é eficaz para melhorar a resposta elétrica do material em todo o espectro de frequência. Esse comportamento pode ser atribuído à melhor conectividade entre os grãos, facilitando a condução de carga (Abreu et al., 2023).

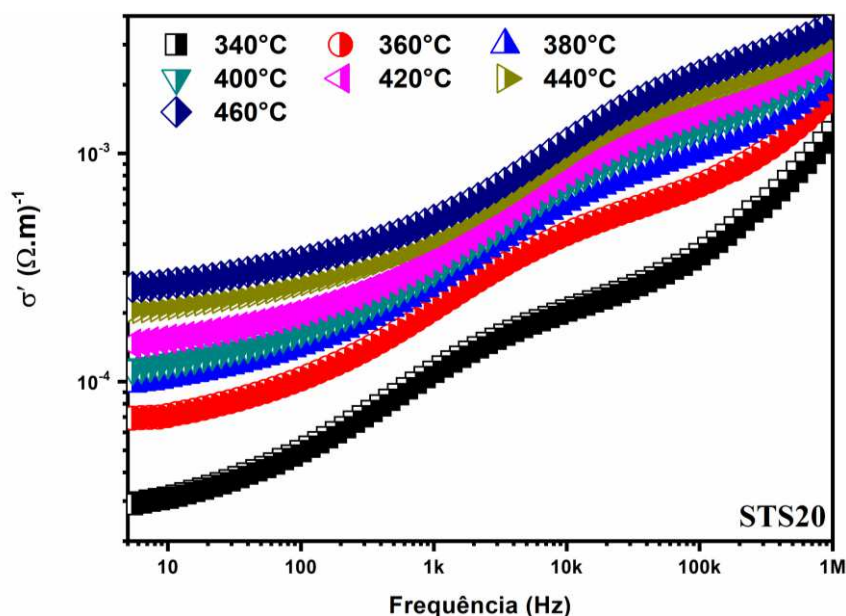
Figura 63 – Condutividade em função da frequência em diferentes temperaturas STS 15.



Fonte: Próprio Autor.

A condutividade da amostra STS15 apresenta uma curva mais acentuada em frequências elevadas, indicando uma resposta elétrica ainda mais eficiente com a adição de TiO₂. Esse resultado sugere que a quantidade de aditivo maximiza a polarização e reduz as perdas internas, o que é vantajoso para dispositivos de alta potência (Acharya e Choudhary, 2015).

Figura 64 – Condutividade em função da frequência em diferentes temperaturas STS 20.

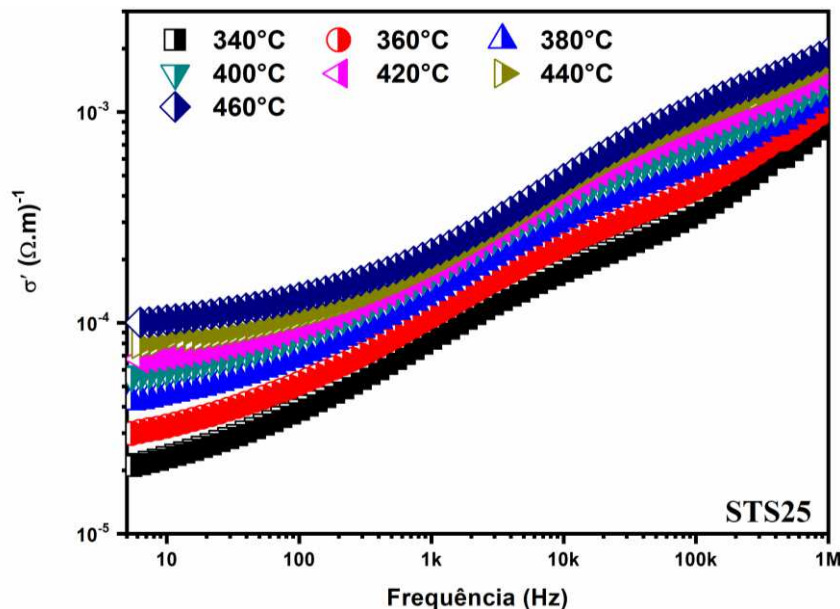


Fonte: Próprio Autor.

A adição de 20% de TiO₂ continua a aumentar a condutividade, embora com uma curva menos acentuada do que a STS15. Isso indica que o efeito do aditivo na condutividade alcança um patamar, onde a estrutura do material já está suficientemente

otimizada para condução elétrica. Esse equilíbrio entre condutividade e estabilidade térmica é essencial para a durabilidade dos materiais em condições operacionais (Abreu et al., 2024).

Figura 65 – Condutividade em função da frequência em diferentes temperaturas STS 25.



Fonte: Próprio Autor.

Por fim, a amostra STS25 exibe a maior condutividade entre as amostras analisadas, particularmente em frequências altas. Esse aumento expressivo é uma evidência de que a estrutura do material, com alta concentração de TiO_2 , permite uma condução elétrica eficiente, minimizando a resistência nos contornos dos grãos. Essa característica torna o STS25 uma das amostras mais indicadas para aplicação em dispositivos de micro-ondas, onde são requeridas baixas perdas e alta estabilidade dielétrica (Abreu et al., 2023).

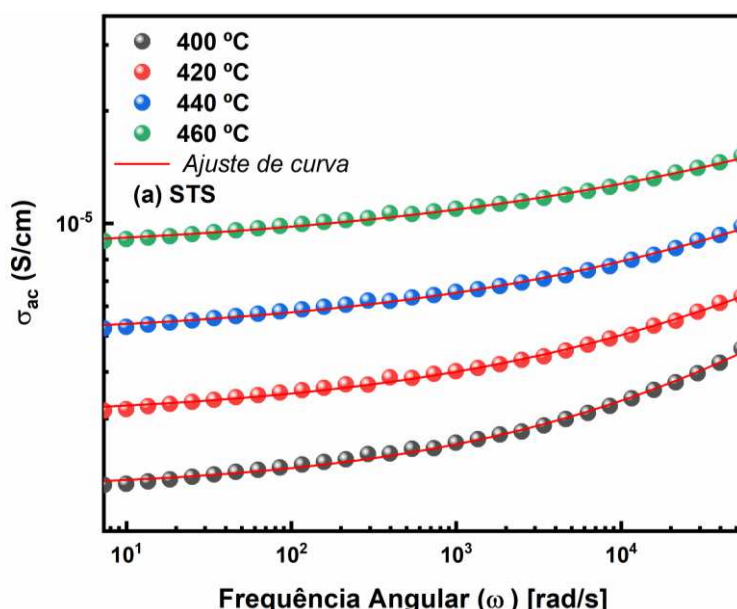
A análise das diferentes composições de STS com adição de TiO_2 demonstra que a variação da condutividade elétrica com a frequência e a temperatura é altamente dependente da concentração do aditivo. Com o aumento do teor de TiO_2 , as amostras mostram uma maior resposta condutiva, especialmente em altas frequências e temperaturas. Esse comportamento evidencia o potencial dessas cerâmicas para aplicações em sistemas de comunicação avançados, onde a estabilidade e a baixa perda dielétrica são fundamentais para a eficiência do dispositivo.

5.5.1 Análise de condutividade DC através da lei de potência de Jonscher's

O comportamento de condução elétrica do titanossilicato de estrôncio (STS) e dopantes foi analisado com base na Lei de Jonscher, que descreve a condutividade

elétrica em materiais dielétricos como a soma de duas contribuições principais: a condutividade DC (σ_{DC}), dominante em baixas frequências, e um termo dependente da frequência angular ($A\omega^n$), relevante em altas frequências (MOULSON; HERBERT, 2003). A relação é expressa como: ($\sigma(\omega) = \sigma_{DC} + A\omega^n$) onde σ_{DC} é constante e o termo $A\omega^n$ descreve processos dinâmicos associados à relaxação dielétrica e ao transporte de carga por hopping eletrônico. Em materiais cerâmicos como STS observado na figura 64, o aumento da temperatura resulta em maior mobilidade de portadores de carga, o que explica o aumento na condutividade total (σ_{AC}) com a temperatura (CHENG et al., 2004).

Figura 66 – Condutividade AC (σ_{AC}) em função da frequência angular em diferentes temperaturas da amostra STS, ajustada pela Lei de Jonscher.



Fonte: Elaborado pelo autor

Na figura 66 apresentamos o comportamento da condutividade AC (σ_{ac}) da amostra STS, podemos observar um aumento da (σ_{ac}) com a frequência para todas as temperaturas avaliadas. Este comportamento é característico de materiais dielétricos e resulta de contribuições de relaxações dipolares e condução iônica, como discutido por Jonscher (1999) e outros autores em estudos de materiais cerâmicos e dielétricos (KAO, 2004; ABREU et al., 2023).

Os ajustes da Lei de Jonscher resultaram nos parâmetros condutividade DC (σ_{DC}) apresenta um aumento significativo com a temperatura, indicando maior contribuição de portadores de carga em temperaturas elevadas. Verificando na tabela

10, (σ_{DC}) aumenta de $1,93 \times 10^{-6} \text{ S/cm}^3$ a $8,27 \times 10^{-6} \text{ S/cm}^3$ ao longo do intervalo de temperatura.

Tabela 10 – Parâmetros ajustados da Lei de Jonscher para o material STS em diferentes temperaturas.

STS				
Temperatura	$\sigma_{DC} \text{ (S/cm}^3\text{)}$	A	n	R ²
400 °C	$1,93 \times 10^{-6}$	$5,49 \times 10^{-8}$	0,3532	0,99758
420 °C	$3,01 \times 10^{-6}$	$1,23 \times 10^{-7}$	0,30366	0,99707
440 °C	$4,93 \times 10^{-6}$	$2,40 \times 10^{-7}$	0,27347	0,99669
460 °C	$8,27 \times 10^{-6}$	$5,16 \times 10^{-7}$	0,23469	0,99678

Fonte: Elaborado pelo autor

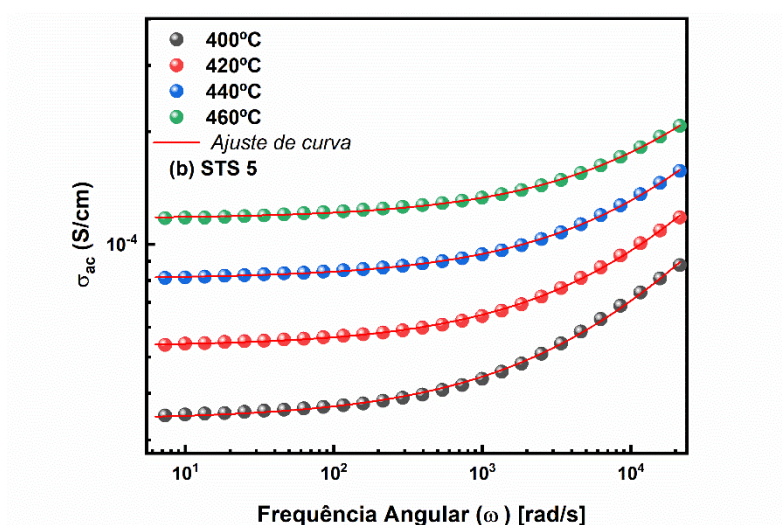
Esse comportamento é esperado e está relacionado à ativação térmica de portadores de carga, conforme descrito por Abreu et al. (2023) e Kao (2004).

O coeficiente A , associado à magnitude da condutividade dependente de ω , também aumenta com a temperatura, evidenciando o impacto da mobilidade iônica nos mecanismos de condução (FUNKE, 1993; JONSCHER, 1999).

O expoente n , que define a dependência da condutividade com a frequência ($\sigma_{ac} \propto \omega^n$), diminui com o aumento da temperatura.

A redução de n reflete a dominância da condutividade DC em altas temperaturas, um fenômeno amplamente relatado por Funke (1993) e Jonscher (1999).

Figura 67 – Condutividade AC (σ_{AC}) em função da frequência angular em diferentes temperaturas da amostra STS5, ajustada pela Lei de Jonscher.



Fonte: Elaborado pelo autor

Os dados apresentados na Figura 67 e na Tabela STS 5 demonstram o comportamento da condutividade elétrica alternada (σ_{ac}) para a amostra STS5, ajustados pela Lei de Jonscher. O modelo descreve adequadamente o aumento de σ_{ac} com a frequência angular (ω) e sua dependência da temperatura.

Tabela 11 – Parâmetros ajustados da Lei de Jonscher para o material STS 5 em diferentes temperaturas.

STS 5				
Temperatura	σ_{DC} (S/cm ³)	A	n	R ²
400 °C	$3,40 \times 10^{-5}$	$2,30 \times 10^{-7}$	0.55023	0.99882
420 °C	$5,34 \times 10^{-5}$	$2,22 \times 10^{-7}$	0.57098	0.99933
440 °C	$8,09 \times 10^{-5}$	$2,55 \times 10^{-7}$	0.5729	0.99966
460 °C	$1,17 \times 10^{-4}$	$3,27 \times 10^{-7}$	0.56371	0.99956

Fonte: Elaborado pelo autor

Os valores de σ_{DC} aumentam sistematicamente com a elevação da temperatura, variando de $3,40 \times 10^{-5}$ S/cm³ a $1,17 \times 10^{-4}$ S/cm³ entre 400 °C e 460 °C tabela 11.

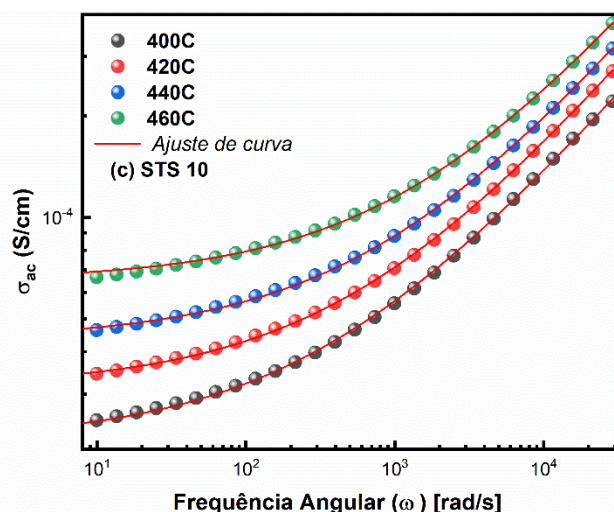
Este comportamento é explicado pela maior mobilidade dos portadores de carga em temperaturas elevadas, devido à redução das barreiras de potencial, como relatado por Jonscher (1999) e Abreu et al. (2023). Estudos prévios de materiais dielétricos e cerâmicos também confirmam esse comportamento, destacando sua origem em processos térmicos ativados (CAO et al., 2016; KAO, 2004).

O parâmetro A, relacionado à condutividade dependente de frequência, apresenta um aumento significativo com a temperatura, passando de $2,30 \times 10^{-7}$ para $3,27 \times 10^{-7}$. Essa variação reflete uma maior contribuição da resposta dielétrica devido à polarização dipolar e à condução de íons em temperaturas mais altas (LUNKENHEIMER et al., 2002; FUNKE, 1993).

O expoente n , que define a dependência da condutividade com a frequência ($\sigma_{ac} \propto \omega^n$), mantém valores na faixa de 0,55 a 0,57, indicando uma resposta dielétrica fortemente dispersiva. Este comportamento é característico de sistemas com relaxações não-Debye e foi amplamente descrito por Funke (1993) e Havriliak e Negami (1967).

Os coeficientes R^2 , todos acima de 0,998, validam a alta qualidade dos ajustes realizados. A precisão nos valores obtidos sugere que a Lei de Jonscher é adequada para descrever o comportamento dielétrico e condutivo da amostra STS5, corroborando análises feitas por Cao et al. (2016) e Sutar et al. (2014).

Figura 68 – Condutividade AC (σ_{AC}) em função da frequência angular em diferentes temperaturas da amostra STS10, ajustada pela Lei de Jonscher.



Fonte: Elaborado pelo autor

Na figura 68 mostram o comportamento da σ_{AC} . Podemos visualizar os valores da tabela 12 um aumento exponencial da σ_{DC} com a elevação da temperatura, variando de $2,18 \times 10^{-5}$ S/cm³ a $6,51 \times 10^{-5}$ S/cm³ entre 400 °C e 460 °C.

Este comportamento está alinhado com o aumento da mobilidade dos portadores de carga térmica em altas temperaturas, como discutido por Jonscher (1999) e Abreu et al. (2023).

Além disso, tal comportamento também é consistente com estudos de condutividade em materiais cerâmicos, como relatado por Funke (1993) e Lunkenheimer et al. (2002).

Tabela 12 – Parâmetros ajustados da Lei de Jonscher para o material STS 10 em diferentes temperaturas.

STS 10				
Temperatura	σ_{DC} (S/cm ³)	A	n	R ²
400 °C	$2,18 \times 10^{-5}$	$9,38 \times 10^{-7}$	0.52326	0.99964
420 °C	$3,15 \times 10^{-5}$	$9,78 \times 10^{-7}$	0.53626	0.99987
440 °C	$4,35 \times 10^{-5}$	$1,10 \times 10^{-6}$	0.53719	0.99991
460 °C	$6,51 \times 10^{-5}$	$1,16 \times 10^{-6}$	0.54413	0.99979

Fonte: Elaborado pelo autor

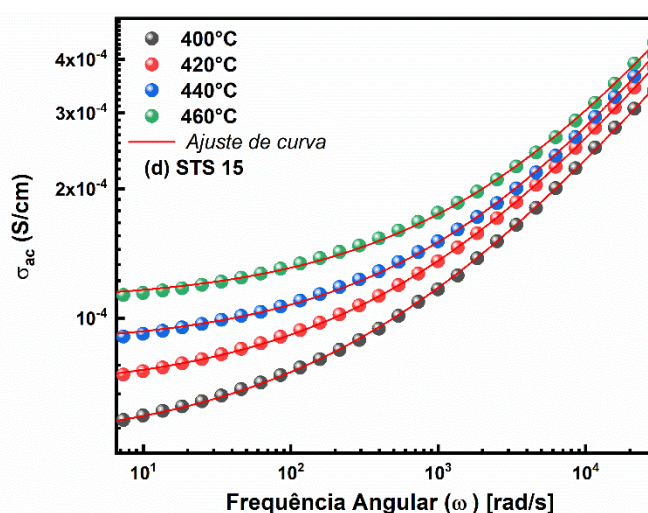
O parâmetro A, associado à condutividade dependente de frequência, também aumenta com a temperatura, indo de $9,38 \times 10^{-7}$ a $1,16 \times 10^{-6}$. Este incremento reflete o

maior grau de polarização e contribuições dispersivas de defeitos estruturais ativados termicamente, conforme apontado por Yin et al. (2021) e Cao et al. (2016).

O expoente n mantém valores na faixa de 0,523 a 0,544, indicando uma resposta dispersiva característica de materiais que não seguem o modelo de relaxação de Debye ideal. Esses valores sugerem que a condutividade é dominada por processos de transporte eletrônico e difusão de portadores de carga, como descrito por Havriliak e Negami (1967) e K.C. Kao (2004).

Os valores de R^2 , superiores a 0,999 para todas as temperaturas, validam a precisão dos ajustes realizados pela Lei de Jonscher. A excelente qualidade do ajuste reforça a aplicabilidade desse modelo para descrever o comportamento dielétrico e condutivo da amostra STS10, conforme destacado por Shen et al. (2008) e Wang et al. (2020).

Figura 69 – Condutividade AC (σ_{AC}) em função da frequência angular em diferentes temperaturas da amostra STS15, ajustada pela Lei de Jonscher.



Fonte: Elaborado pelo autor

Os dados apresentados na Figura 69 e na Tabela 13 indicam a evolução da condutividade elétrica AC (σ_{AC}) do material STS15 com a frequência angular, ajustados pela Lei de Jonscher. Observa-se que a condutividade segue um comportamento dependente da temperatura, onde o parâmetro σ_{DC} aumenta com o incremento da temperatura. Este comportamento é coerente com materiais de natureza dielétrica, nos quais a mobilidade dos portadores de carga tende a ser mais pronunciada em temperaturas elevadas, conforme descrito por Chen et al. (2004) e Sebastian (2008).

Tabela 13 – Parâmetros ajustados da Lei de Jonscher para o material STS 15 em diferentes temperaturas.

STS 15				
Temperatura	σ_{DC} (S/cm ³)	A	n	R ²
400 °C	$5,02 \times 10^{-5}$	$3,34 \times 10^{-6}$	0.43513	0.99977
420 °C	$6,74 \times 10^{-5}$	$3,00 \times 10^{-6}$	0.45330	0.99995
440 °C	$8,62 \times 10^{-5}$	$2,36 \times 10^{-6}$	0.47831	0.99986
460 °C	$1,09 \times 10^{-4}$	$2,47 \times 10^{-6}$	0.47458	0.99962

Fonte: Elaborado pelo autor

Os valores de σ_{DC} variam de $5,02 \times 10^{-5}$ S/cm³ a $1,09 \times 10^{-4}$ S/cm³, indicando um aumento progressivo com a temperatura. Este comportamento reforça a contribuição da ativação térmica para a condução elétrica, conforme também relatado por Moulson e Herbert (2003).

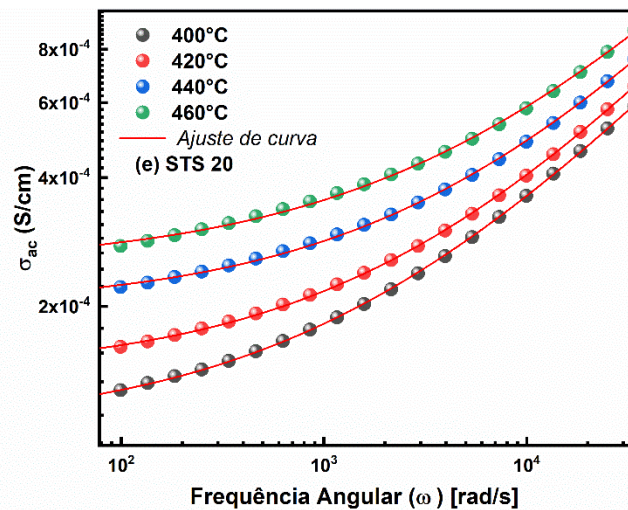
O coeficiente A, relacionado à amplitude da contribuição dependente da frequência, apresenta uma leve variação com a temperatura, com valores na ordem de 10^{-6} . A dependência de A com a temperatura sugere um fortalecimento das interações de relaxação dielétrica, conforme evidenciado por Funke (1993) e Jonscher (1999).

O expoente n, que caracteriza a dispersão da condutividade em altas frequências, mantém valores relativamente consistentes entre 0,43513 e 0,47831.

A estabilidade de n implica que o mecanismo de condução permanece semelhante em diferentes temperaturas, conforme discutido por Wang et al. (2019).

Os altos valores de R², próximos de 0,999, indicam um excelente ajuste dos dados experimentais ao modelo da Lei de Jonscher, validando a robustez do modelo aplicado para descrever os fenômenos dielétricos neste material.

Figura 70 – Condutividade AC (σ_{AC}) em função da frequência angular em diferentes temperaturas da amostra STS20, ajustada pela Lei de Jonscher.



Fonte: Elaborado pelo autor

Os dados apresentados na Figura 70 e na Tabela 14 ilustram a evolução da condutividade AC (σ_{AC}) em função da frequência angular (ω) para a amostra STS20, ajustada à Lei de Jonscher. A Lei de Jonscher é amplamente utilizada para modelar fenômenos dielétricos e condutivos em materiais cerâmicos e compósitos, sendo eficaz na descrição da resposta elétrica desses sistemas (JONSCHER, 1999; KAO, 2004).

Tabela 14 – Parâmetros ajustados da Lei de Jonscher para o material STS 20 em diferentes temperaturas.

STS 20				
Temperatura	σ_{DC} (S/cm ³)	A	n	R ²
400 °C	$1,04 \times 10^{-4}$	$2,17 \times 10^{-6}$	0.51910	0.99988
420 °C	$1,40 \times 10^{-4}$	$1,86 \times 10^{-6}$	0.53896	0.99989
440 °C	$2,00 \times 10^{-4}$	$2,13 \times 10^{-6}$	0.53314	0.99972
460 °C	$2,50 \times 10^{-4}$	$3,14 \times 10^{-6}$	0.50771	0.99938

Fonte: Elaborado pelo autor

Nota-se um aumento progressivo com a elevação da temperatura, indo de $1,04 \times 10^{-4}$ S/cm³ a $2,50 \times 10^{-4}$ S/cm³ entre 400 °C e 460 °C. Este comportamento confirma a dependência térmica característica dos mecanismos de condução elétrica em materiais semicondutores e cerâmicos dopados (SHEN et al., 2008; ABREU et al., 2023).

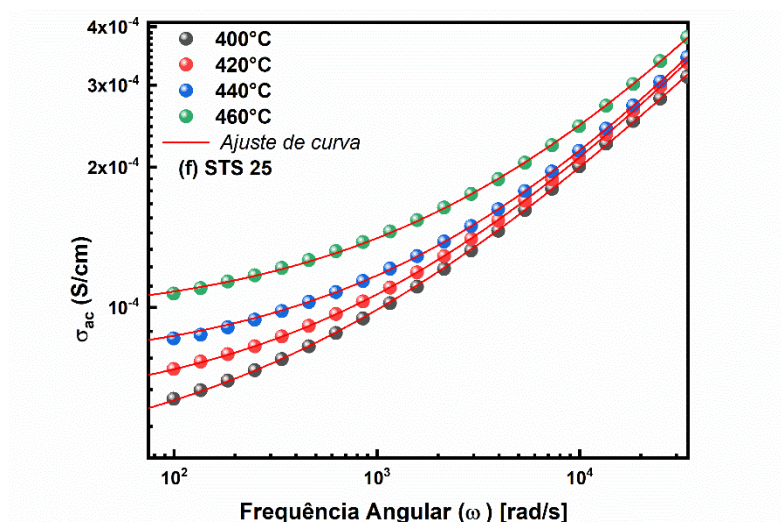
Relacionado às contribuições dispersivas na condutividade, o valor de A também cresce com o aumento da temperatura, destacando uma maior ativação dos

portadores de carga e, conseqüentemente, uma maior contribuição da condutividade AC em frequências elevadas (CHEN et al., 2004; SEBASTIAN, 2008).

O parâmetro n , que reflete a dispersão da condutividade, apresenta valores próximos de 0,5 para todas as temperaturas, indicando um comportamento de dispersão típico dos materiais dielétricos com relaxações múltiplas (HAVRILIAK; NEGAMI, 1967; JONSCHER, 1999).

Os ajustes exibem valores de R^2 próximos de 0,999 para todas as temperaturas, demonstrando a alta adequação do modelo da Lei de Jonscher para descrever os dados experimentais (BARSOYKOV; MACDONALD, 2018).

Figura 71 – Condutividade AC (σ_{AC}) em função da frequência angular em diferentes temperaturas da amostra STS25, ajustada pela Lei de Jonscher.



Fonte: Elaborado pelo autor

Para a análise da Figura 71 e Tabela 15, observa-se a variação da condutividade AC (σ_{AC}) com a frequência angular para a amostra STS25 em diferentes temperaturas, ajustada pela Lei de Jonscher. Os parâmetros ajustados da Lei de Jonscher para diferentes temperaturas estão representados na Tabela 6.5.6.

Tabela 15 – Parâmetros ajustados da Lei de Jonscher para o material STS 25 em diferentes temperaturas.

STS 25				
Temperatura	σ_{DC} (S/cm ³)	A	n	R ²
400 °C	$4,38 \times 10^{-5}$	$2,41 \times 10^{-6}$	0.45294	0.99987
420 °C	$5,83 \times 10^{-5}$	$1,57 \times 10^{-6}$	0.4965	0.99998
440 °C	$7,40 \times 10^{-5}$	$1,18 \times 10^{-6}$	0.5212	0.9998
460 °C	$9,37 \times 10^{-5}$	$1,39 \times 10^{-6}$	0.51026	0.99988

Fonte: Elaborado pelo autor

Os valores de σ_{DC} aumentam consistentemente com a elevação da temperatura de $4,38 \times 10^{-5} \text{ S/cm}^3$ a $9,37 \times 10^{-5} \text{ S/cm}^3$ entre 400°C e 460°C , indicando maior mobilidade dos portadores de carga devido ao aumento da energia térmica disponível no material. Este comportamento está em concordância com estudos prévios de condutividade dielétrica em materiais cerâmicos que apresentam transporte ativado termicamente (Kao,2004; Jonscher,1999).

O parâmetro A , que está relacionado ao efeito da polarização nos portadores de carga, apresenta uma variação não linear com o aumento da temperatura, o que reflete uma combinação de fatores estruturais e interações locais no material. Adicionalmente, o parâmetro n , que caracteriza o grau de dispersão da condutividade, mantém-se aproximadamente constante na faixa entre 0.45 e 0.52. Valores próximos de 0.5 para n são indicativos de sistemas com comportamento de relaxação valor é típico de processos de difusão dominados, como em sistemas caracterizados pela impedância de Warburg. Luo et al. (2023).

O coeficiente de determinação R^2 apresenta valores elevados para todas as temperaturas, superiores a 0.9997, reforçando a adequação da Lei de Jonscher para descrever o comportamento experimental observado, como discutido por (Negami,1967).

As amostras STS exibem propriedades elétricas ajustáveis por meio de variações de composição e temperatura, destacando-se como candidatos promissores para aplicações em dispositivos eletrocerâmicos, como capacitores e sensores dielétricos. A alta correlação dos dados experimentais com a Lei de Jonscher demonstra a viabilidade de modelar e prever o comportamento dessas amostras em diferentes condições operacionais. Em particular, as amostras STS20 e STS25 apresentaram características superiores para aplicações em altas temperaturas, enquanto STS e STS5 são mais adequadas para condições de baixa condutividade e estabilidade dielétrica.

5.5.2 Análise de energia de ativação (E_a)

O gráfico da figura 70 apresenta a relação entre o logaritmo natural da frequência ($\ln f$) e o inverso da temperatura ($1/T$) para a amostra STS. A energia de ativação (E_a) foi estimada como 1,09 eV, com os valores calculados a partir dos picos da frequência da impedância imaginária em função da temperatura. Esta análise busca

compreender os mecanismos associados à condução elétrica e comportamento térmico do material.

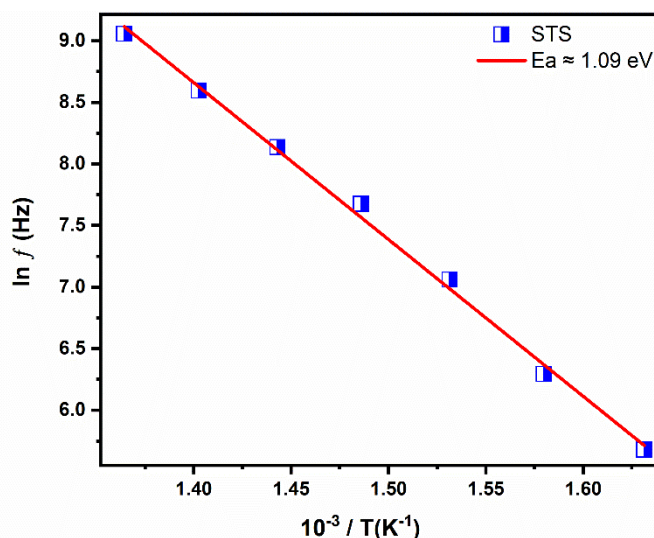
A energia de ativação encontrada na análise da amostra STS reflete a barreira de energia que deve ser superada para que os portadores de carga realizem a condução elétrica. Esse valor está em conformidade com o modelo de Arrhenius, descrito pela equação:

$$\ln(f) = \ln(f_0) - \frac{E_a}{k_B T} \quad (56)$$

Onde:

- f é a Condutividade elétrica (Hz);
- f_0 é a frequência pré-exponencial;
- E_a é a energia de ativação (eV);
- k_B : é a constante de Boltzmann ($8,617 \times 10^{-5}$ eV/K).
- T é a temperatura em Kelvin

Figura 72 - Energia de ativação obtida através da impedância imaginária (Z'') da amostra STS



Fonte: Próprio autor

A inclinação negativa da reta no gráfico indica que a frequência de relaxação térmica aumenta com o aumento da temperatura, conforme descrito por Kao (2004, p. 210). Isso caracteriza um mecanismo de transporte assistido termicamente.

A magnitude da energia de ativação sugere a predominância de mecanismos de hopping ou relaxação dipolar, onde os portadores de carga interagem com potenciais energéticos localizados. Esses processos são comuns em materiais dielétricos com defeitos cristalinos e interfaces de contorno de grão, como destacado por Funke (1993,

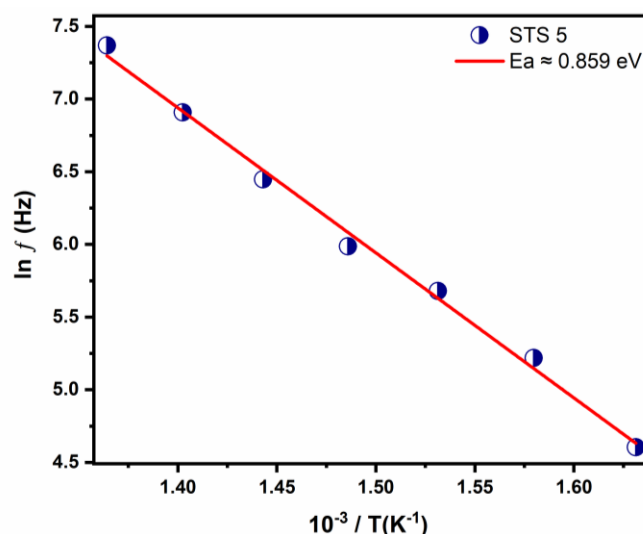
p. 118). A frequência do pico deslocando-se para maiores valores com o aumento da temperatura confirma a interação térmica no transporte de carga.

A energia de ativação relativamente alta (1,09 eV) indica que o material possui boa estabilidade térmica e baixa sensibilidade a flutuações de temperatura, tornando-o adequado para aplicações em dispositivos eletrônicos que operam em condições adversas.

A condução assistida por hopping observada pode estar associada à microestrutura do material, incluindo a densidade de defeitos, interfaces de grãos e grau de cristalinidade. Esses fatores são amplamente discutidos em materiais com propriedades dielétricas (Kao, 2004; Funke, 1993).

Materiais com energia de ativação na faixa obtida são frequentemente utilizados em sensores, capacitores e dispositivos de armazenamento de energia, devido à combinação de alta estabilidade térmica e comportamento dielétrico confiável.

Figura 73 - Energia de ativação obtida através da impedância imaginária (Z'') da amostra STS5



Fonte: Próprio autor

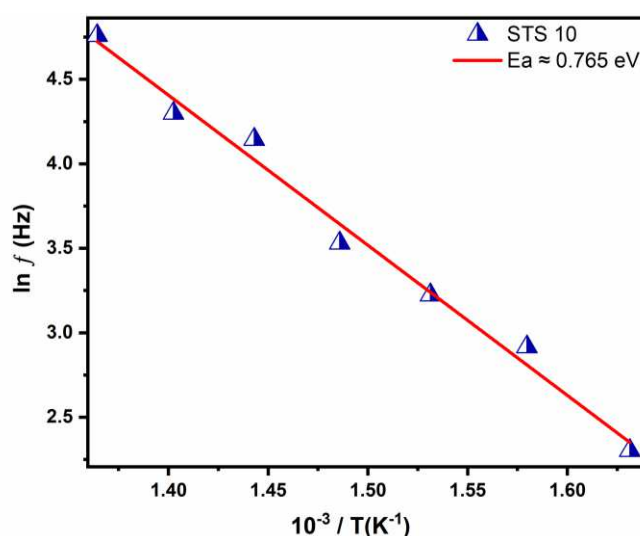
Os resultados mostram na figura 73 apontam uma energia de ativação de 0,859 eV é consistente com a literatura, indicando que o transporte de portadores de carga nas temperaturas avaliadas ocorre predominantemente por processos de hopping (salto) entre estados localizados. Esse mecanismo de condução, conforme discutido por Kao (2004, p. 124) e Funke (1993, p. 12), está associado à movimentação de íons

ou elétrons confinados em potenciais locais, sendo influenciado pela microestrutura do material, como os contornos de grãos e a presença de defeitos.

Além disso, o comportamento linear do gráfico confirma a aplicabilidade da relação de Arrhenius no intervalo de temperatura analisado, o que reforça a validade do modelo adotado para a descrição dos processos térmicos e dielétricos do material.

Estudos complementares, como os de Jonscher (1977, p. 15), também apontam que a resposta dielétrica em materiais cerâmicos é fortemente dependente da microestrutura e das condições de sinterização.

Figura 74 - Energia de ativação obtida através da impedância imaginária (Z'') da amostra STS10.



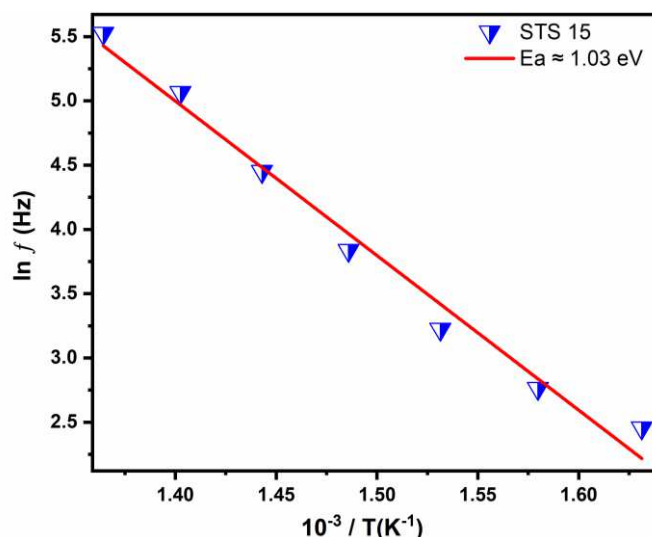
Fonte: Próprio autor

A figura 74 exibe o comportamento da amostra STS 10 com o valor de energia de ativação de 0,765 eV sugere que os processos de condução são dominados por mecanismos de hopping, que envolvem a movimentação de portadores de carga (como íons ou elétrons) entre estados localizados. Segundo Funke (1993, p. 12), esse mecanismo é típico em materiais dielétricos onde a microestrutura exerce papel significativo. Além disso, Kao (2004, p. 124) destaca que a energia de ativação pode variar com fatores como a presença de defeitos estruturais e o tamanho dos contornos de grão, ambos influentes na resposta dielétrica.

A menor energia de ativação em comparação com outras amostras pode estar relacionada à modificação estrutural ou à distribuição de defeitos, como apontado por Jonscher (1977, p. 15), que observa que propriedades dielétricas são altamente dependentes de fatores microestruturais.

Esses resultados reforçam que, para aplicações específicas, a otimização da composição e do processamento dos materiais é essencial para controlar suas propriedades térmicas e elétricas.

Figura 75 - Energia de ativação obtida através da impedância imaginária (Z'') da amostra STS15.



Fonte: Próprio autor

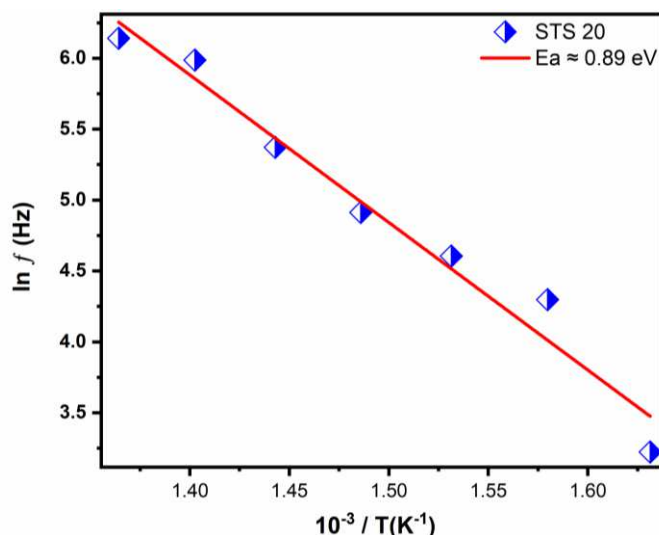
Na Figura 75 temos o valor da energia de ativação elevado, indica que a condução elétrica na amostra STS 15 é dominada por processos energéticos mais intensos, como o hopping de íons ou elétrons entre estados localizados. Funke (1993, p. 14) aponta que o mecanismo de hopping pode ser influenciado pela microestrutura do material, como a distribuição e o tamanho dos grãos e contornos, que alteram as barreiras de potencial. Além disso, conforme descrito por Jonscher (1977, p. 23), defeitos estruturais e a polarização em altos campos elétricos podem amplificar o comportamento dependente de temperatura.

A energia de ativação superior a 1,0 eV para a STS 15 também pode estar associada à maior densidade de defeitos estruturais ou à maior segregação nos contornos de grão, como destacado por Kao (2004, p. 135), que associa tais características a maiores barreiras para a condução de carga. A análise indica que a amostra STS 15 é mais suscetível a alterações térmicas, o que pode limitar sua aplicação em sistemas que requerem alta estabilidade dielétrica em temperaturas elevadas.

Essa maior energia de ativação, em comparação com outras amostras do mesmo conjunto, sugere que a STS 15 possui um comportamento diferenciado devido

à sua microestrutura e composição química específica. A relação direta entre os valores obtidos e a inclinação linear confirma a validade do modelo teórico e a influência de fatores como contornos de grão e heterogeneidades internas na condução.

Figura 76 - Energia de ativação obtida através da impedância imaginária (Z'') da amostra STS20



Fonte: Próprio autor

O valor de 0,89 eV para E_a indica que a condução elétrica na STS 20 verificada na figura 76 é moderadamente influenciada por barreiras energéticas associadas a processos de hopping. Funke (1993, p. 14),

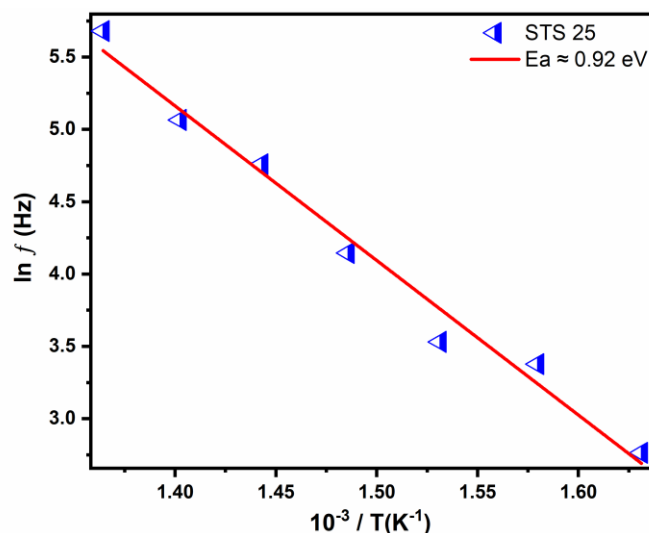
A presença de um valor intermediário de energia de ativação sugere que a STS 20 apresenta uma microestrutura relativamente equilibrada em termos de contornos de grão e distribuição de fases, como descrito por Kao (2004, p. 135). Entretanto, o valor também indica uma leve influência de processos de polarização dipolar e condutividade limitada por barreiras energéticas. A estabilidade observada nesse valor posiciona a STS 20 como potencialmente adequada para aplicações onde se exige uma resposta térmica moderada.

Além disso, Jonscher (1977, p. 23) ressalta que o comportamento dielétrico em materiais cerâmicos é altamente dependente da interação entre os grãos e os contornos de grão. Isso pode justificar a energia de ativação relativamente menor em comparação com amostras como a STS 15, que apresenta valores superiores a 1 eV.

A análise sugere que a STS 20 possui um bom desempenho térmico para frequências específicas e temperaturas moderadas, tornando-a uma candidata viável

para dispositivos que exigem baixa dissipação de energia e estabilidade razoável em ambientes variados.

Figura 77 - Energia de ativação obtida através da impedância imaginária (Z'') da amostra STS25.



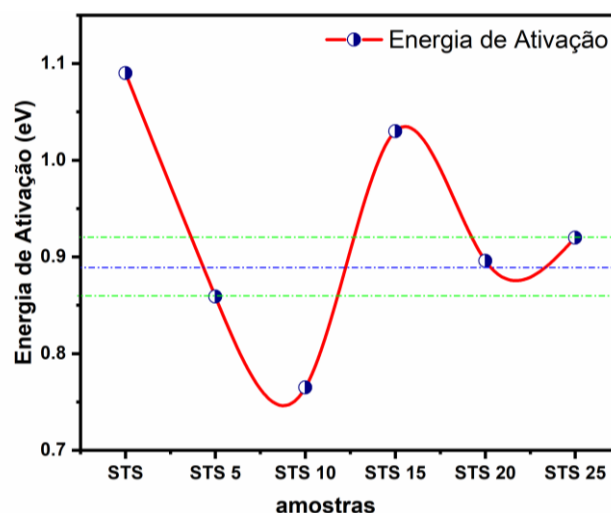
Fonte: Próprio autor

Na figura 77 apresenta valor de 0,92 eV para a energia de ativação para amostra STS 25 indica um mecanismo de transporte baseado no hopping de portadores de carga, conforme descrito por Funke (1993, p. 15). Como observado por Abreu et al. (2023a), a microestrutura desempenha um papel crucial na determinação das propriedades dielétricas de cerâmicas. No caso da STS 25, o valor intermediário de E_a sugere que a amostra possui baixa densidade de defeitos profundos e polarizações que possam restringir significativamente o transporte de carga.

Adicionalmente, a literatura destaca que valores de E_a inferiores a 1 eV são indicativos de uma boa estabilidade térmica e eficiência energética para aplicações eletrônicas (SILVA et al., 2012). Esses valores reforçam que a STS 25 é adequada para aplicações em dispositivos operando em condições moderadas de temperatura e frequência.

Ainda de acordo com Jonscher (1977, p. 24), a interação entre grãos e contornos de grão pode influenciar diretamente a energia de ativação, um fator que parece ser otimizado na STS 25. Comparada a outras amostras, como a STS 15 ($E_a \approx 1,03$ eV), que apresentam maior E_a devido a contribuições de processos dielétricos mais intensos, a STS 25 representa um equilíbrio entre estabilidade estrutural e eficiência funcional.

Figura 78 – Variação da energia de ativação (E_a) em relação as amostras.



Fonte: Próprio autor

A variação observada na energia de ativação entre as amostras pode ser atribuída a diferenças na composição química e no processamento dos materiais.

A maior E_a da STS sugere que os contornos de grão ou fases secundárias desempenham um papel mais significativo na condução elétrica. Por outro lado, o valor reduzido de E_a da STS 10 está alinhado com o modelo de condução por hopping, conforme descrito por Funke (1993).

Além disso, os valores de E_a são indicadores importantes para determinar as possíveis aplicações dos materiais. Amostras com menor E_a , como a STS 10, são mais adequadas para dispositivos operando em temperaturas mais baixas, enquanto aquelas com maior E_a , como STS e STS 15, podem ser mais estáveis em ambientes com variações térmicas significativas (SILVA et al., 2012).

5.6 TCC (Coeficiente de Temperatura de Capacitância)

Os resultados apresentados na Tabela 16 fornecem os valores do Coeficiente de Temperatura de Capacitância (TCC), destacando informações relevantes sobre o comportamento térmico e dielétrico das amostras analisadas (STS, STS5, STS10, STS15, STS20 e STS25) em diferentes frequências.

O TCC é uma métrica fundamental para avaliar a estabilidade térmica de materiais, pois reflete sua resposta a variações de temperatura. Valores positivos do TCC indicam maior estabilidade térmica, sugerindo que o material mantém suas propriedades capacitivas mesmo sob alterações de temperatura. Por outro lado, valores

negativos evidenciam uma maior sensibilidade térmica, o que pode comprometer o desempenho do material em aplicações específicas (Jonscher, 1977).

Tabela 16 - Valores de TCC normalizados da matriz cerâmica $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ e compósitos em diferentes frequências.

Frequência	TCC (ppm/°C)/1000					
	STS	STS5	STS10	STS15	STS20	STS25
10 Hz	-3,48	1,09	-3,79	-13,80	-10,12	-9,89
100 Hz	-5,65	0,86	-2,35	-8,11	-8,73	-8,02
1 kHz	-5,40	-0,01	-1,74	-6,47	-6,71	-5,56
10 kHz	-2,74	-0,23	-12,99	-4,21	-4,43	-3,12
100 kHz	-0,16	-0,16	-1,14	-2,46	-2,67	-1,87
1 MHz	0,20	-0,18	-1,07	-1,61	-1,92	-1,35

Fonte: Elaborado pelo próprio autor

Essa análise é essencial, principalmente para materiais destinados a dispositivos eletrônicos, onde a estabilidade térmica impacta diretamente a confiabilidade e eficiência do sistema. Como destacado por Kao (2004), materiais com estabilidade térmica superior tendem a ter menor dispersão dielétrica e são mais adequados para aplicações em frequências elevadas. Além disso, segundo Funke (1993), a sensibilidade térmica observada em materiais com TCC negativo pode ser atribuída a fenômenos de polarização nos contornos de grão, refletindo a interação entre estrutura cristalina e transporte eletrônico.

Portanto, o estudo detalhado dos valores de TCC não apenas permite a identificação das amostras mais estáveis, mas também fornece subsídios para o ajuste de sua composição e microestrutura, como evidenciado por Abreu et al. (2023) e Dupla (2024), que correlacionaram o TCC às propriedades dielétricas e mecânicas de diferentes compósitos.

❖ **Baixa frequência (10 Hz):**

A maioria das amostras apresenta valores negativos de TCC, indicando alta sensibilidade térmica. Os valores mais negativos foram observados para as amostras STS (-3,48 ppm/°C) e STS15 (-13,80 ppm/°C), sugerindo maior instabilidade térmica nesta frequência.

Em contraste, a amostra STS5 (1,09 ppm/°C) apresenta um valor positivo, refletindo maior estabilidade térmica. Esse comportamento está associado a uma menor contribuição de polarizações interfaciais, como discutido por Jonscher (1977).

❖ Frequência intermediária (100 Hz e 1 kHz):

A amostra STS5 mantém-se como destaque em 100 Hz, com um pico positivo de 0,86 ppm/°C, indicando estabilidade e boa resposta térmica. No entanto, as amostras STS10 e STS15 apresentam valores negativos expressivos, -2,35 ppm/°C e -8,11 ppm/°C, respectivamente, sugerindo maior contribuição de defeitos ou contornos de grão.

Em 1 kHz, o comportamento geral mostra uma redução nos valores absolutos de TCC, mas amostras como STS10 permanecem instáveis com valores muito negativos, refletindo maior sensibilidade térmica em frequências intermediárias.

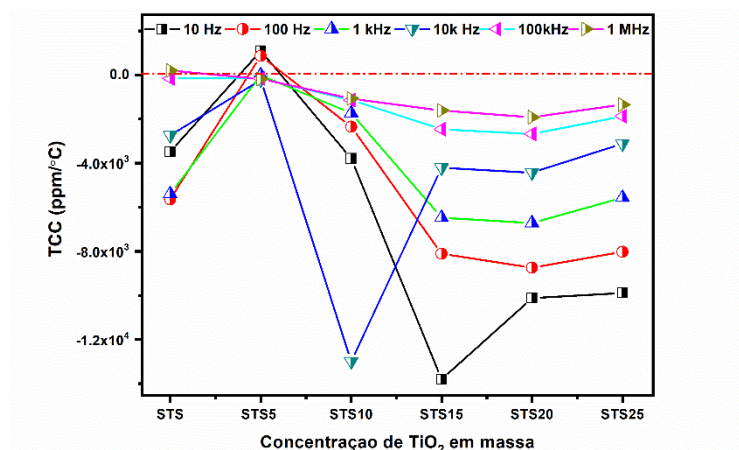
❖ Alta frequência (10 kHz, 100 kHz e 1 MHz):

Em 10 kHz, observa-se que a amostra STS5 (- 0,23 ppm/°C) mantém sua estabilidade relativa, enquanto STS15 (- 4,21 ppm/°C) apresenta instabilidade térmica acentuada.

Em frequências de 100 kHz e 1 MHz, a estabilidade térmica melhora para algumas amostras, como STS (- 0,16 ppm/°C em 100 kHz e 0,20 ppm/°C em 1 MHz). Isso sugere que as amostras STS e STS5 são mais adequadas para aplicações em altas frequências devido à menor sensibilidade térmica.

Por outro lado, amostras como STS15 continuam a apresentar valores negativos elevados em 100 kHz e 1 MHz, indicando sua limitação para sistemas de alta frequência.

Figura 79 – Representação de concentração de TiO₂ pelo TCC das amostras STS.



Fonte: Próprio autor

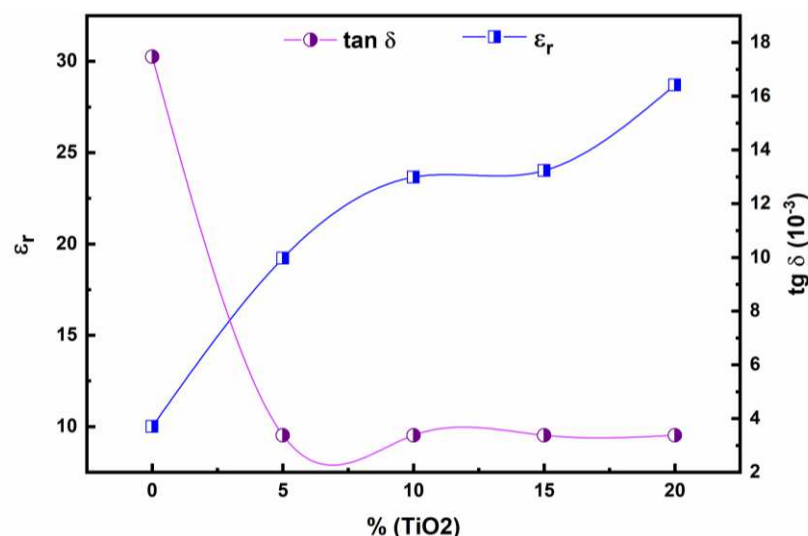
O gráfico da figura 79 reflete a influência da concentração de TiO₂ e da frequência aplicada sobre o comportamento térmico das amostras. A estabilidade

térmica das amostras é altamente dependente da frequência e da microestrutura, conforme relatado em estudos prévios (Abreu et al., 2023; Jonscher, 1977; Kao, 2004). Esses resultados fornecem informações valiosas para o desenvolvimento e otimização de materiais dielétricos para aplicações específicas em eletrônica.

5.7 Propriedades dielétricas de Micro-ondas

A análise das propriedades dielétricas da matriz cerâmica STS juntamente com amostras com adição de 5%, 10%, 15% e 20% de TiO_2 apresentadas na Tabela 17, revelam tendências significativas que impactam diretamente suas aplicações em dispositivos de micro-ondas. A tabela evidencia como as dimensões (D e H) respectivamente diâmetro e altura das amostras influenciam diretamente os parâmetros dielétricos, como a permissividade relativa (ϵ_r), o fator de perda dielétrica ($\tan\delta$), a frequência de ressonância (f), o fator de qualidade (Q) e o coeficiente de estabilidade térmica (τ_f).

Figura 80 – variação da permissividade dielétrica (ϵ_r) e as perdas dielétricas ($\tan\delta$) com concentração de TiO_2 .



Fonte: próprio autor.

Conforme a composição das amostras evolui de STS para STS20, observa-se na figura 80 um aumento progressivo na permissividade relativa (ϵ_r), indicando uma maior capacidade de armazenar energia elétrica em um campo eletromagnético.

Este comportamento, acompanhado por uma diminuição no fator de perda dielétrica ($\tan\delta$), indica que o material possui menores perdas energéticas durante a propagação de ondas eletromagnéticas.

Tabela 17 – Propriedades dielétricas obtidas pelo método Hakki-Coleman para todas as amostras.

Amostras	D (mm)	H (mm)	ϵ_r	$\text{tg } \delta$ (10^{-2})	f (GHz)	Q	τ_f (ppm/°C)
STS	14,90	8,97	10,00	$1,75 \times 10^{-2}$	7,94	53,65	-22,30
STS5	14,39	8,12	19,23	$7,67 \times 10^{-3}$	6,17	128,63	113,86
STS10	14,50	7,80	23,66	$6,35 \times 10^{-3}$	5,68	153,60	493,13
STS15	14,65	7,70	24,02	$3,38 \times 10^{-3}$	5,66	282,80	522,83
STS20	14,82	7,99	28,70	$2,02 \times 10^{-3}$	5,06	459,73	543,08

Fonte: Elaborado pelo Autor.

A frequência de ressonância (f) diminui com o aumento da permissividade relativa (ϵ_r), o que é coerente com o comportamento esperado para materiais com maior capacidade de armazenamento energético. Essa relação está associada ao aumento do tempo necessário para o estabelecimento de uma ressonância no material, característica crucial para aplicações em filtros de micro-ondas e ressonadores.

O fator de qualidade (Q) é um dos parâmetros mais importantes na avaliação de materiais para aplicações em ressonadores e filtros.

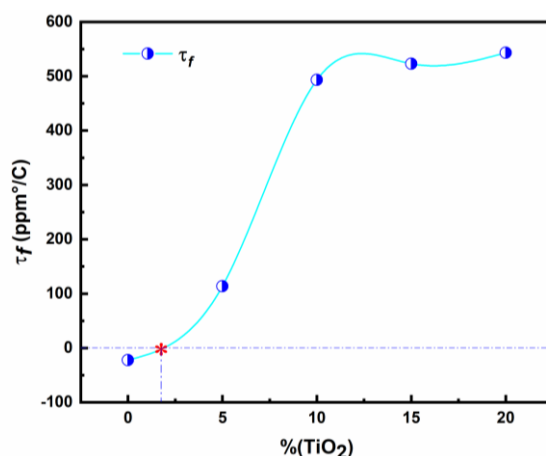
Observa-se que Q aumenta significativamente em amostras com maior (ϵ_r) Tabela 17, especialmente em STS15 e STS20, onde valores acima de 280 e 450, respectivamente, indicam alta eficiência energética. Esse comportamento reforça as observações de Silva, Oliveira e Sombra (2019), que destacam a importância do controle de sinterização para otimizar propriedades dielétricas. Este comportamento faz dessas amostras excelentes candidatas para aplicações em dispositivos que demandam estabilidade e baixa perda energética.

A análise do coeficiente de temperatura de frequência ressonante (τ_f) demonstra que a amostra STS é a única a apresentar valor negativo ($\tau_f = -22,30$ ppm/°C), enquanto, STS5 apresenta um $\tau_f = 113,86$ ppm/°C, positivo (Tabela 17).

Esses resultados indicam que o ponto em que o $\tau_f = 0$ ocorre em uma concentração entre 0 e 5% de TiO_2 em massa na matriz STS. Um coeficiente de temperatura igual a zero ($\tau_f = 0$) é vital para garantir a estabilidade operacional de dispositivos dielétricos em diversas aplicações tecnológicas. Ele elimina flutuações de frequência devido à temperatura, melhora a eficiência e simplifica o design de sistemas avançados de telecomunicação e micro-ondas. Por isso, é um objetivo central no desenvolvimento de novos materiais dielétricos (Sebastian, 2008; Abreu et al., 2023).

Em contrapartida, as demais amostras apresentam valores positivos e crescentes de τ_f , sugerindo uma maior estabilidade térmica nas composições com maior concentração de TiO_2 . Esse comportamento destaca a relevância do controle de aditivos, como discutido por Silva, Oliveira e Sombra (2019), no aprimoramento das propriedades térmicas e dielétricas de cerâmicas avançadas.

Figura 81 – Variação do coeficiente de temperatura da frequência ressonante (τ_f) com a concentração de TiO_2 .



Fonte: próprio autor.

Esses resultados demonstram a relevância do estudo das propriedades dielétricas para o desenvolvimento de novos materiais aplicados à tecnologia de micro-ondas. A aplicação do método Hakki-Coleman permitiu uma caracterização precisa dessas propriedades, destacando o impacto de cada parâmetro dielétrico na eficiência e estabilidade de dispositivos eletrônicos avançados.

5.8 Simulação numérica de (DRA)

As medidas de parâmetros eletromagnéticos, como frequência ressonante (f_r), coeficiente de retorno (S_{11}) e largura de banda (BW), são essenciais para o desenvolvimento e a avaliação de dispositivos de micro-ondas. Esses parâmetros permitem compreender e otimizar o comportamento de materiais cerâmicos em aplicações como antenas ressoadoras dielétricas (DRA), amplificadores e filtros.

A análise experimental, aliada à simulação numérica, é crucial para garantir precisão e previsibilidade no desempenho, possibilitando avanços na miniaturização e eficiência de componentes eletrônicos. Estudos recentes destacam a relevância de materiais cerâmicos, como o $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ (STS), que combinam propriedades dielétricas favoráveis com estabilidade térmica e alto desempenho, sendo promissores para

aplicações em telecomunicações e sistemas de radar (ABREU et al., 2023a; ABREU et al., 2023b).

A simulação numérica foi empregada para comparar os resultados experimentais e simulados referentes à perda de retorno (S_{11}), às componentes real e imaginária da impedância, bem como à Carta de Smith das amostras. Utilizando os dados experimentais obtidos através do monopolo (Long, Macllister e Shen) e os resultados das simulações numéricas pelo Software de simulação numérica, foi possível determinar os parâmetros de campo distante, como diretividade, ganho, coeficiente de reflexão de energia (Γ_{pwr}), coeficiente de transmissão de energia (T_{pwr}), razão de onda estacionária (VSWR), perda de retorno de reflexão (S_{11}) e eficiência de radiação (Eff) para todas as amostras analisadas. Esses parâmetros são essenciais para caracterizar os padrões de operação dos materiais como antenas ressonadoras dielétricas (DRA).

Os resultados apresentados na tabela 18, exibem os parâmetros dielétricos das amostras de $Sr_2TiSi_2O_8$ (STS) juntamente com as amostras com adições de TiO_2 .

Observa-se uma boa concordância entre os valores experimentais e simulados de f_r , com erro percentual inferior a 0,5%. Esse desempenho demonstra a adequação do material para aplicações em dispositivos de micro-ondas e radiofrequência (RF), conforme destacado por Abreu et al. (2023a) e Barros et al. (2024), que ressaltam as propriedades dielétricas promissoras de cerâmicas nesse domínio tecnológico (ABREU et al., 2023a; BARROS et al., 2024).

Tabela 18 – Valores experimentais e simulados obtidos para frequência ressonante (f_r), S_{11} , e largura de banda (BW).

Amostras	f_r			S_{11} (dB)			BW (MHz)			Eficiência de Radiação
	EXP	SIM	error (%)	EXP	SIM	error (%)	EXP	SIM	error (%)	
STS	5,032	5,015	0,34	-39,17	-32,32	17,49	630	701,25	11,31	75,15
STS5	4,069	4,067	0,05	-51,34	-50,94	0,78	629,06	701,25	11,48	91,17
STS10	3,774	3,772	0,05	-43,16	-43,63	1,09	175,63	181,25	3,20	92,30
STS15	3,932	3,931	0,03	-53,75	-53,59	0,30	185,94	175,00	5,88	96,26
STS20	3,563	3,566	0,08	-49,75	-50,75	2,01	138,76	132,50	4,51	97,99

Fonte: Elaborado pelo Autor.

O coeficiente de reflexão (S_{11}), que reflete a energia irradiada pela antena, apresenta valores experimentais próximos aos simulados, com desvios de até ± 2 dB.

Valores abaixo de -10 dB indicam um bom acoplamento de energia, essencial para eficiência em antenas ressonadoras dielétricas (DRA), conforme discutido por

Poole e Darwazeh (2016), que destacam a importância do S_{11} como métrica de desempenho (POOLE; DARWAZEH, 2016).

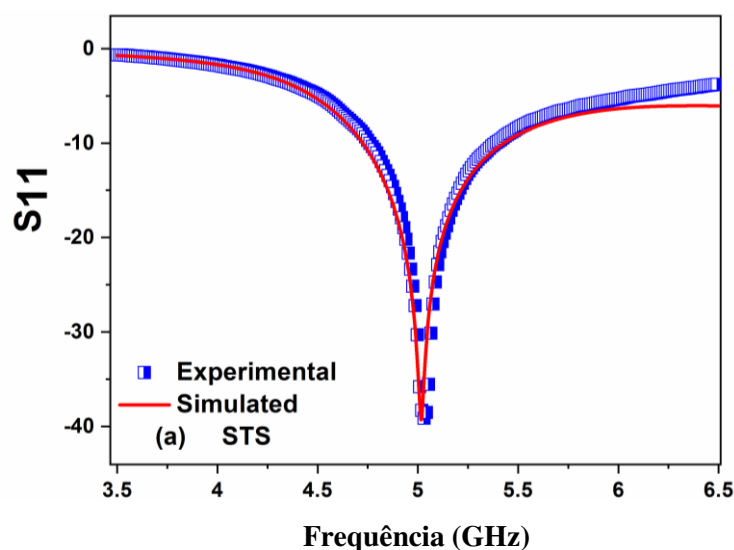
A análise da largura de banda mostra diferenças entre os resultados simulados e experimentais de até 12%, o que é considerado aceitável. Esses resultados sugerem que o material STS e adições são capazes de operar em uma ampla faixa de frequências, tornando-se adequado para telecomunicações e sistemas de radar, conforme descrito por Abreu et al. (2023a) e na obra *Microwave Materials and Applications* (SEBASTIAN; UBIC; JANTUNEN, 2017).

A eficiência de radiação, superior a 75%, reforça o potencial das cerâmicas STS para aplicação em DRAs. Estudos como os de Abreu et al. (2023a) e Barros et al. (2024) indicam que essas características tornam o material viável para uso prático em dispositivos de micro-ondas (ABREU et al., 2023a; BARROS et al., 2024).

Pequenas discrepâncias nos resultados de f_r , S_{11} e BW podem ser atribuídas a simplificações nas modelagens ou a características microestruturais que não foram completamente consideradas. Abreu et al. (2023b) e Poole e Darwazeh (2016) discutem a importância de ajustes baseados em circuitos equivalentes para melhorar a precisão em estudos envolvendo materiais cerâmicos (ABREU et al., 2023b; POOLE; DARWAZEH, 2016).

5.8.1 Análise de Coeficiente de Reflexão (S_{11})

Figura 82 – Coeficiente de Reflexão (S_{11}) experimental e simulado para o material $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ (STS).



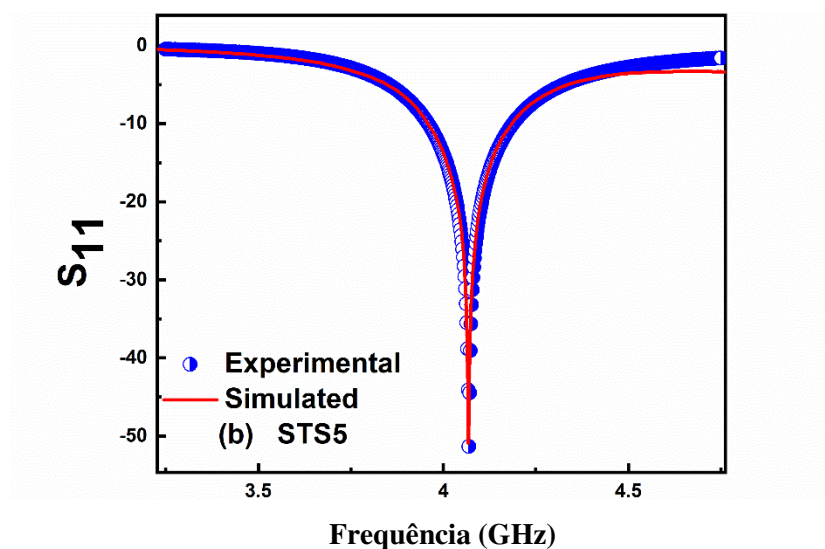
Fonte: Próprio autor.

A figura 82 apresenta o Coeficiente de Reflexão (S_{11}) para a amostra STS, à frequência ressonante (f_r), ocorre em 5,032 GHz (EXP) e 5,015 GHz (SIM), com um erro percentual muito baixo de 0,34%, evidenciando a precisão da modelagem numérica empregada (ABREU et al., 2023a). Esses resultados colocam a antena na Banda C (4 - 8 GHz), utilizada em sistemas de comunicação por satélite, radares meteorológicos e redes Wi-Fi de 5 GHz (SEBASTIAN et al., 2017).

A largura de banda operacional da antena, definida pela faixa onde $S_{11} < -10$ dB, é de 630 MHz (EXP) e 701,25 MHz (SIM), com erro de 11,31%.

A eficiência de radiação da amostra STS é de 75,15%, indicando que, embora eficiente, apresenta um desempenho inferior em comparação a outras amostras analisadas, como STS5 e STS10. Ainda assim, os resultados confirmam o potencial do material $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ para aplicações em sistemas de telecomunicações e dispositivos de micro-ondas (BARROS et al., 2024).

Figura 83 – Coeficiente de Reflexão (S_{11}) experimental e simulado para o material $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ (STS5).

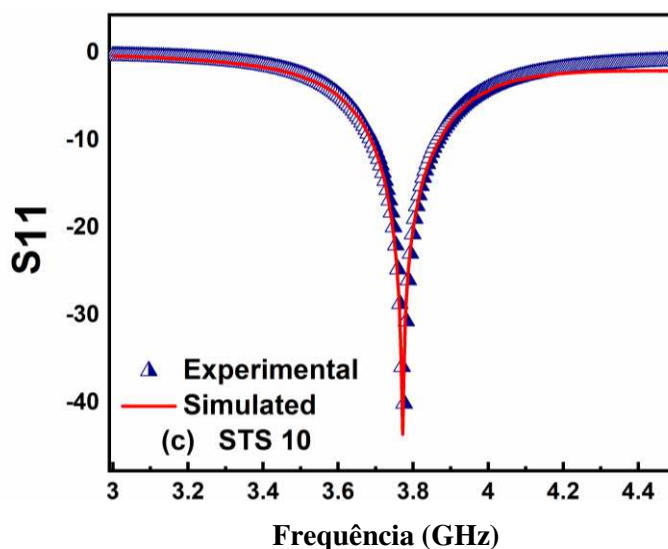


Fonte: Próprio autor.

A figura 83 apresenta o Coeficiente de Reflexão (S_{11}) em função da frequência para a amostra (STS5), observado em 4,069 GHz (EXP) e 4,067 GHz (SIM), com um erro percentual muito baixo de 0,05%, demonstrando excelente concordância entre os valores experimentais e simulados (ABREU et al., 2023b). Situada dentro da Banda C (4 - 8 GHz), amplamente utilizada em sistemas de comunicação por satélite e radares meteorológicos (SEBASTIAN et al., 2017).

Com base nos dados experimentais, a largura de banda operacional (S_{11}) é de 629,06 MHz, enquanto a simulação prevê uma largura de banda de 701,25 MHz, com um erro de 11,48%. A eficiência de radiação da antena STS5 é de 91,17%, indicando alto desempenho para aplicações práticas. Tais características tornam o material promissor para uso em dispositivos de micro-ondas e telecomunicações (BARROS et al., 2024).

Figura 84 – Coeficiente de Reflexão (S_{11}) experimental e simulado para o material (STS10).

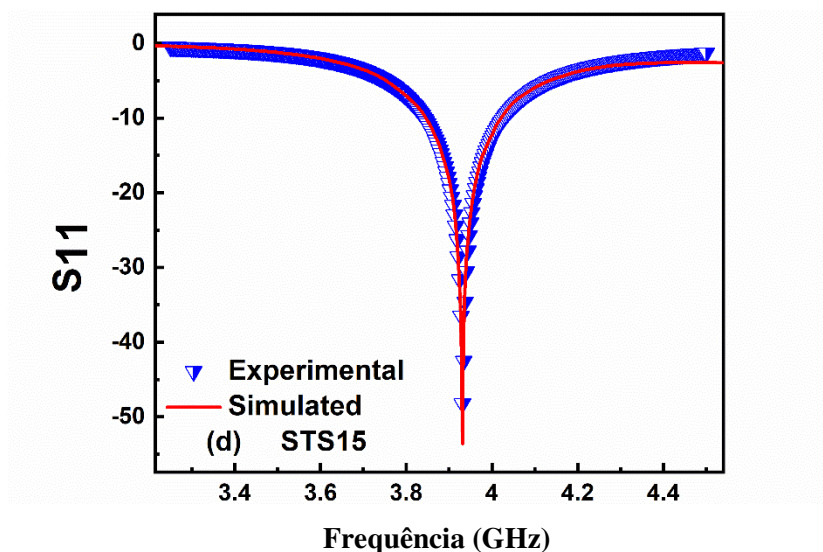


Fonte: Próprio autor.

A figura 84 apresenta o Coeficiente de Reflexão (S_{11}) em função da frequência para a amostra STS10, indica a frequência ressonante (f_r), ocorre em 3,8 GHz, demonstrando boa correspondência entre os dados experimentais e os resultados simulados. Essa concordância reflete a eficiência da modelagem numérica para prever o desempenho eletromagnético das antenas ressonadoras (POOLE; DARWAZEH, 2016).

A largura de banda operacional, definida pela variação da frequência ressonante quando S_{11} corresponde a -10 dB, aponta valores 175,63 MHz (EXP) e 181,25 MHz (SIM) com erro percentual de 3,2%. A banda de operação da antena é definida na Banda S. A Banda S, que abrange frequências entre 2 e 4 GHz, é amplamente empregada em diversas aplicações, como radares meteorológicos, comunicação por satélite e monitoramento de tráfego. Além disso, ela desempenha um papel crucial em áreas científicas e médicas, incluindo sistemas de radioastronomia e ressonância magnética, devido à sua alta eficiência e resistência a interferências externas (SEBASTIAN; UBIC; JANTUNEN, 2017).

Figura 85 – Coeficiente de Reflexão (S_{11}) experimental e simulado para o material (STS15).



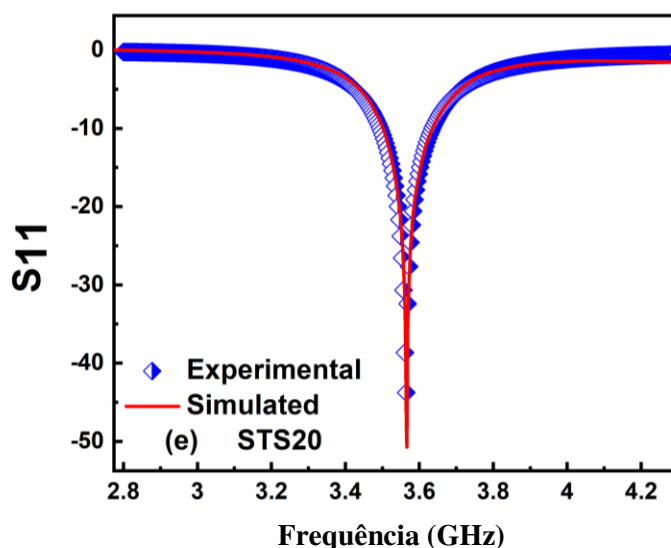
Fonte: Próprio autor.

A figura 85 apresenta o Coeficiente de Reflexão (S_{11}) para a amostra STS15, indica a frequência ressonante (f_r), ocorre em 3,931 GHz, com uma diferença mínima de 0,03% entre os dados experimentais e simulados. Essa excelente concordância válida a precisão da modelagem numérica utilizada para prever o comportamento eletromagnético da antena (ABREU et al., 2023a).

Com base na Tabela 18, a largura de banda operacional da amostra STS15, definida pela faixa de frequências onde (S_{11}) é inferior a -10 dB, é de 185,94 MHz (EXP) e 175 MHz (SIM), apresentando uma diferença de 5,88%. Esses valores indicam uma boa largura de banda, suficiente para aplicações em telecomunicações e radares dentro da Banda S, amplamente empregada em sistemas de comunicação por satélite e redes Wi-Fi de alta frequência (SEBASTIAN et al., 2017).

Além disso, a eficiência de radiação da antena STS15 é de 96,26%, conforme os dados experimentais, o que demonstra um desempenho superior e adequado para aplicações práticas (BARROS et al., 2024).

Figura 86 – Coeficiente de Reflexão (S_{11}) experimental e simulado para o material (STS20).



Fonte: Próprio autor.

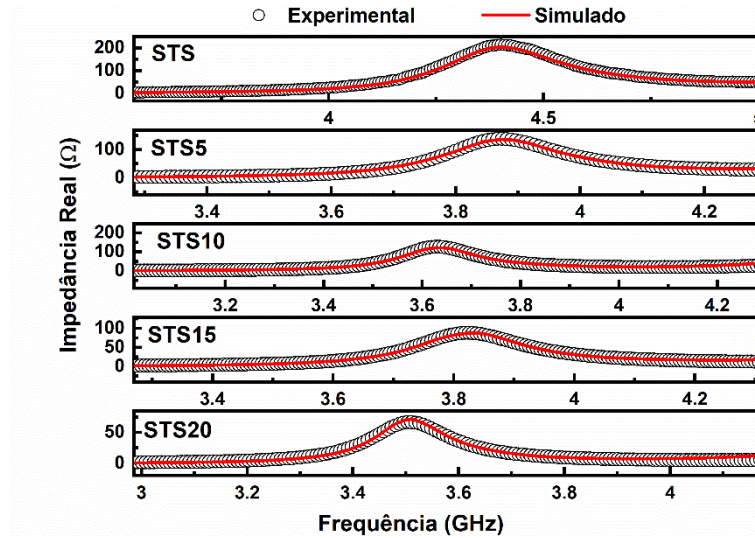
A figura 86 exibe o Coeficiente de Reflexão (S_{11}) em função da frequência para a amostra STS20, à frequência ressonante (f_r), está localizado em 3,563 GHz (EXP) e 3,566 GHz (SIM), com um erro de apenas 0,08%, indica operação na Banda S e demonstrando excelente concordância entre os valores experimentais e simulados. A Banda S é amplamente utilizada em aplicações como radares de curto alcance, comunicações de satélite específicas, sistemas de monitoramento de tráfego e dispositivos de micro-ondas de médio alcance (POOLE; DARWAZEH, 2016).

A largura de banda operacional da antena STS20, definida no intervalo de (S_{11}) igual a -10 dB, varia entre 138,76 MHz (EXP) e 132,50 MHz (SIM), apresentando uma diferença de 4,51%. Essa largura de banda é menor em comparação com outras amostras. A eficiência de radiação da antena STS20 atinge 97,99%, indicando alta eficiência e desempenho superior para dispositivos de micro-ondas e RF (BARROS et al., 2024).

5.8.2 Análise do comportamento das impedâncias Real e Imaginária.

Para investigar o acoplamento entre a linha de transmissão e a antena, foram analisados os espectros de impedância complexos $Z'(\Omega)$ e $Z''(\Omega)$, cujas componentes reais são apresentadas na figura 87. Os dados experimentais e simulados exibem uma boa concordância, confirmando o ajuste entre as impedâncias de entrada e saída das antenas (POOLE; DARWAZEH, 2016). Esse resultado é fundamental para garantir o máximo acoplamento de energia e a eficiência operacional das antenas ressonadoras dielétricas (BARROS et al., 2024).

Figura 87 - Comportamento da impedância real $Z'(\Omega)$ experimental e simulado para as amostras STS, STS5, STS10, STS15 e STS20.



Fonte: Próprio Autor

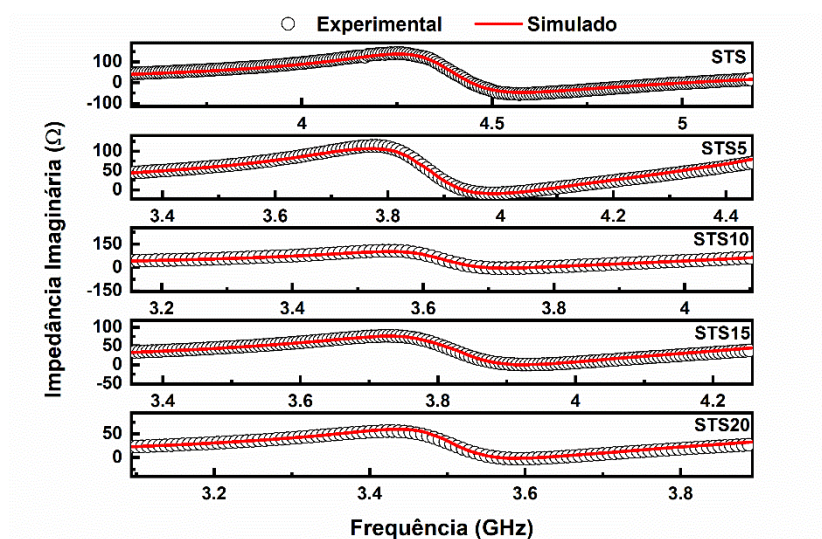
Ao avaliar o comportamento da impedância real, nota-se que todas as amostras apresentam um valor próximo a 50Ω no ponto de corte com o eixo real, o que indica uma boa correspondência de impedância com a linha de alimentação. Essa característica é essencial para minimizar perdas por reflexão e maximizar a transmissão de energia, conforme discutido por Sebastian et al. (2017).

A figura 88 apresenta o comportamento da impedância imaginária $Z''(\Omega)$ em função da frequência para as amostras STS, STS5, STS10, STS15 e STS20. Os dados experimentais e simulados exibem uma boa concordância em todas as frequências analisadas, indicando a precisão dos modelos numéricos utilizados para prever o comportamento eletromagnético das amostras (POOLE; DARWAZE, 2016).

A impedância imaginária da amostra STS apresenta uma variação leve, com um comportamento predominantemente indutivo na faixa de operação em torno de 5 GHz. Esse comportamento está associado ao ajuste das propriedades dielétricas do material para frequências mais altas (ABREU et al., 2023b).

As amostras STS5 e STS10 exibem transições claras entre comportamentos indutivo e capacitivo, próximas às respectivas frequências ressonantes. Esse padrão é uma característica comum em antenas ressonadoras dielétricas bem ajustadas, o que melhora a eficiência de acoplamento com a linha de alimentação (SEBASTIAN et al., 2017).

Figura 88 - Comportamento da impedância imaginária Z'' (Ω) experimental e simulado para as amostras STS, STS5, STS10, STS15 e STS20.



Fonte: Próprio Autor

Nas amostras STS15 e STS20 com maior concentração de TiO_2 , observa-se um aumento do caráter indutivo em frequências próximas da operação. Isso é consistente com a literatura, que destaca que materiais cerâmicos com maior densidade de titânio tendem a apresentar maior indutância em sistemas de alta frequência (BARROS et al., 2024).

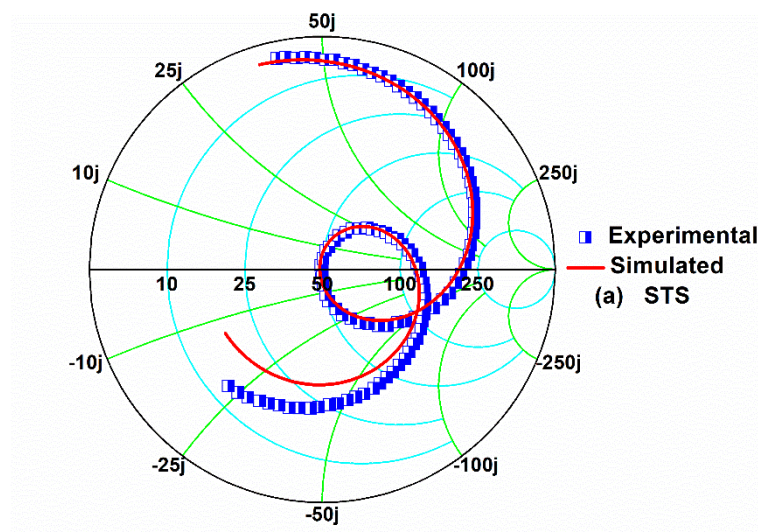
5.8.3 Análise da Carta de Smith

A Carta de Smith é uma ferramenta gráfica amplamente utilizada na análise de circuitos de radiofrequência (RF) e micro-ondas, permitindo a representação de impedâncias complexas ($Z = Z' + jZ''$) e admitâncias.

Criada em 1939 por Phillip Smith, essa representação facilita o estudo do comportamento de antenas e linhas de transmissão, especialmente em termos de correspondência de impedância e transição entre comportamento indutivo e capacitivo. De acordo com Poole e Darwazeh (2016), "a Carta de Smith fornece uma visão clara da relação entre o circuito e a linha de alimentação, ajudando a minimizar perdas por reflexão e a maximizar a transferência de potência".

Além disso, a Carta de Smith permite identificar rapidamente se um sistema está capacitivo ou indutivo, dependendo da posição dos pontos em relação ao eixo real. Conforme destacado por Sebastian et al. (2017), a capacidade de visualizar simultaneamente a magnitude e a fase da impedância a torna indispensável na análise e ajuste de antenas ressonadoras.

Figura 89 - Carta de Smith experimental e simulada para a amostra STS.

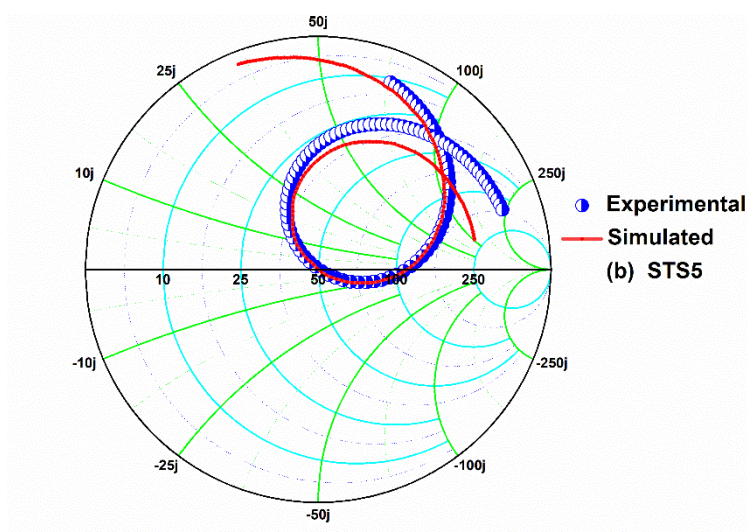


Fonte: Próprio Autor.

Na carta de Smith apresenta da figura 89 temos a amostra STS, podemos observar que o ponto de corte com o eixo real ocorre próximo a 50Ω , indicando um bom acoplamento entre a antena e a linha de alimentação. Essa característica é essencial para minimizar perdas por reflexão e garantir máxima eficiência de transmissão (SEBASTIAN et al., 2017).

À medida que a frequência varia, observa-se uma transição entre comportamento indutivo (curva acima do eixo real) e capacitivo (curva abaixo do eixo real). Essa transição é esperada em antenas ressonadoras dielétricas bem ajustadas e está diretamente relacionada às propriedades materiais do $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ (ABREU et al., 2023b).

Figura 90 - Carta de Smith experimental e simulada para a amostra STS5.

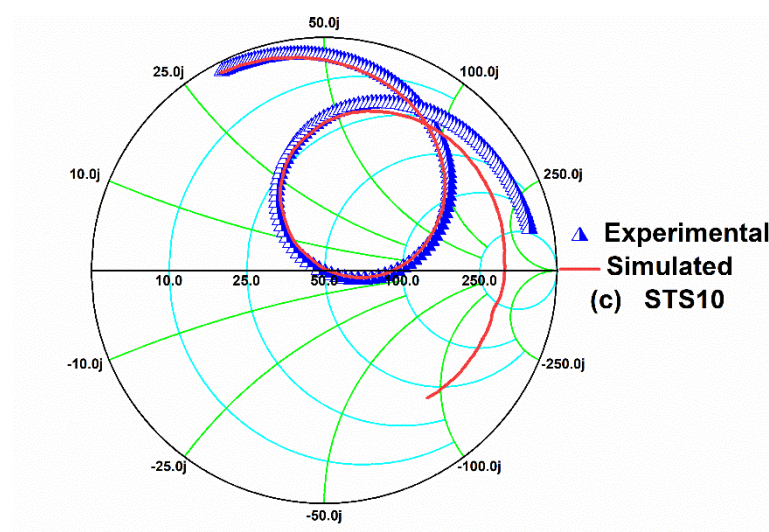


Fonte: Próprio Autor.

A figura 90 exibe a carta de Smith da amostra STS5, indicando o casamento de impedância em 50Ω . Isso é crucial para minimizar perdas de energia por reflexão e maximizar a eficiência de transmissão (POOLE; DARWAZEH, 2016).

Observamos que para frequências abaixo da ressonância, a amostra apresenta caráter capacitivo, como indicado pelos dados localizados na região inferior da Carta de Smith. Em frequências acima da ressonância, a amostra apresenta caráter indutivo, com os dados posicionados acima do eixo real. Essa transição entre comportamentos capacitivo e indutivo é característica de antenas ressonadoras bem ajustadas (SEBASTIAN et al., 2017).

Figura 91 - Carta de Smith experimental e simulada para a amostra STS10.



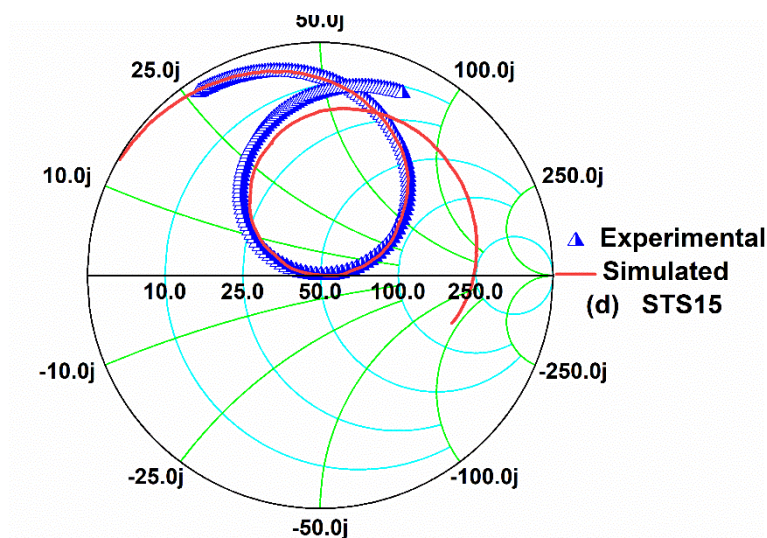
Fonte: Próprio Autor.

A Figura 91 apresenta a Carta de Smith para a amostra STS10, mostrando a curva cruzar o eixo real próximo a 50Ω , indicando um excelente acoplamento de impedância entre a antena e a linha de alimentação.

Para frequências abaixo da ressonância, os dados estão localizados abaixo do eixo real, indicando um comportamento capacitivo. Nas frequências acima da ressonância, os dados migram para a região acima do eixo real, indicando um comportamento indutivo.

A Figura 92 apresenta a Carta de Smith para a amostra STS15, evidenciando um acoplamento eficiente, com a curva cruzando o eixo real próximo a 50Ω , o que indica um bom casamento de impedância entre a antena e a linha de alimentação. Esse comportamento é crucial para minimizar perdas por reflexão e maximizar a eficiência de transmissão.

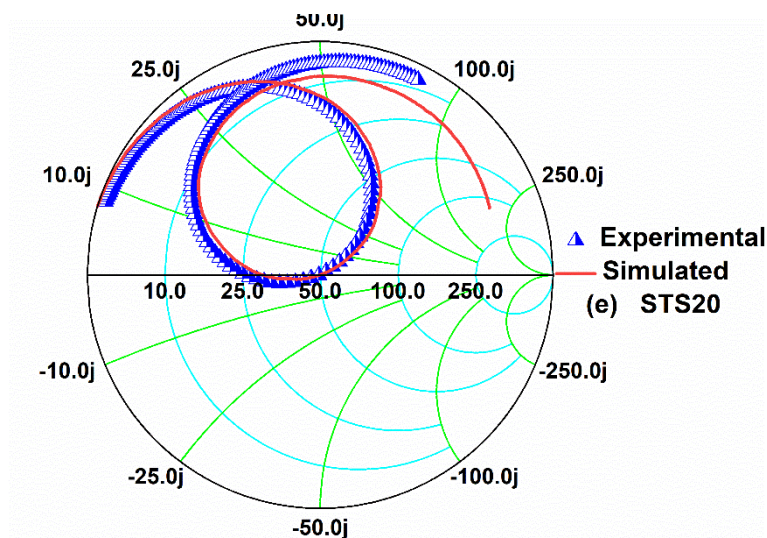
Figura 92 - Carta de Smith experimental e simulada para a amostra STS15.



Fonte: Próprio Autor.

Observa-se que a curva se posiciona predominantemente na parte superior ao eixo real, caracterizando um comportamento indutivo da amostra. Esse padrão é típico de antenas ressonadoras que operam em frequências de micro-ondas e reflete as propriedades específicas do material $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$, otimizadas para aplicações em sistemas de telecomunicações e radares.

Figura 93 - Carta de Smith experimental e simulada para a amostra STS20.



Fonte: Próprio Autor.

A Figura 93 apresenta a Carta de Smith para a amostra STS20, onde é possível observar um bom casamento de impedância próximo a 50Ω , indicando eficiência no acoplamento com a linha de alimentação.

A curva está predominantemente posicionada acima do eixo real, caracterizando um comportamento indutivo da amostra em grande parte da faixa de operação. Esses resultados refletem o bom desempenho da STS20 para aplicações em sistemas de telecomunicações e radares.

5.8.4 Análise de parâmetros de Radiação em 2D e 3D

Tabela 19 - Parâmetros operacionais do DRA determinados pela simulação no HFSS

Amostras	Direc (dBi)	Gain (dBi)	Γ	VSWR	Γ_{pwr}	T_{pwr}	Eff (%)
STS	5,80	4,38	$1,10 \times 10^{-2}$	1,02225	$1,21 \times 10^{-4}$	0,999879	72,15
STS5	4,67	4,26	$2,71 \times 10^{-3}$	1,07606	$7,35 \times 10^{-6}$	0,999993	91,17
STS10	4,17	3,83	$6,95 \times 10^{-3}$	1,02167	$4,83 \times 10^{-5}$	0,999952	92,27
STS15	4,42	4,26	$2,05 \times 10^{-3}$	1,01195	$4,22 \times 10^{-6}$	0,999996	96,26
STS20	3,88	3,79	$3,25 \times 10^{-3}$	1,02189	$1,06 \times 10^{-5}$	0,999989	97,99

Fonte: Elaborada pelo próprio autor.

A tabela 19 apresenta os parâmetros de desempenho das amostras STS, STS5, STS10, STS15 e STS20, considerando diretividade (Direc.), ganho (Gain), coeficiente de reflexão (Γ), razão de onda estacionária (VSWR), coeficientes de reflexão (Γ_{pwr}) e transmissão de potência (T_{pwr}), além da eficiência de radiação (Eff.).

A amostra STS apresenta a maior diretividade (5,79883 dBi) e ganho (4,3815 dBi), enquanto a STS20 apresenta os menores valores (3,880692 dBi e 3,7929 dBi, respectivamente). Esses parâmetros estão diretamente relacionados às propriedades intrínsecas do material e ao design das antenas. Segundo Balanis (2005), a diretividade é um parâmetro essencial para avaliar o desempenho de antenas, pois indica a capacidade de concentração de energia em uma direção específica.

Os valores de Γ são baixos para todas as amostras, indicando excelente casamento de impedância. A STS15 apresenta o menor coeficiente de reflexão ($\Gamma = 2,05 \times 10^{-3}$), que se reflete no melhor valor de VSWR = 1,012.

Esses resultados estão em conformidade com estudos que destacam que baixos valores de Γ minimizam as perdas por reflexão, melhorando a eficiência do sistema (POOLE; DARWAZEH, 2016).

Os coeficientes de reflexão de potência (Γ_{pwr}) são extremamente baixos ($4,22 \times 10^{-6}$ a $1,21 \times 10^{-4}$) para as amostras analisadas, enquanto os coeficientes de transmissão de potência (T_{pwr}) são praticamente iguais a 1. Isso significa que quase

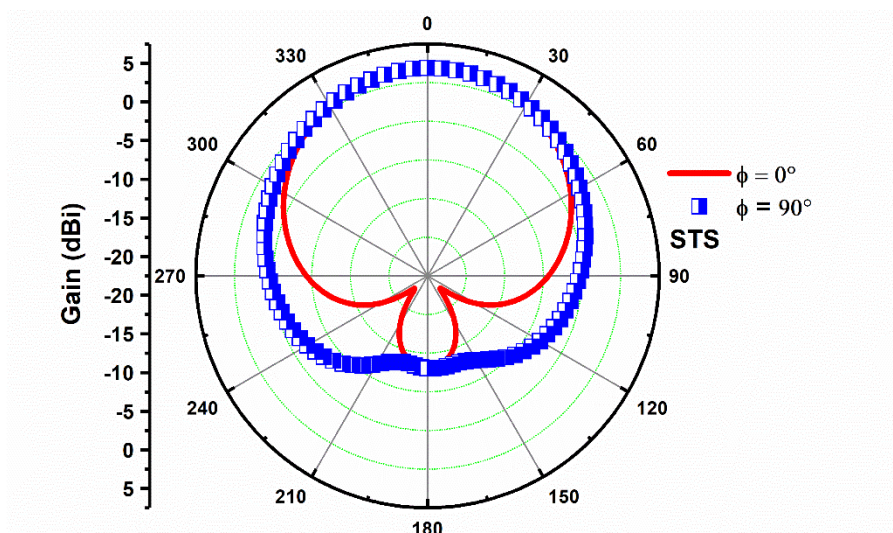
toda a potência incidente é transmitida para a antena, confirmando a alta eficiência do sistema. Sebastian et al. (2017) enfatizam que a transmissão ideal ocorre quando a impedância do sistema está bem casada.

A eficiência de radiação aumenta progressivamente das amostras STS (72,15%) para STS20 (97,99%). As amostras STS15 (96,26%) e STS20 apresentam os melhores desempenhos, tornando-as ideais para aplicações práticas em sistemas de telecomunicações e radares. De acordo com Balanis (2005), a eficiência de radiação é essencial para determinar a capacidade de uma antena de converter potência incidente em energia irradiada, impactando diretamente o desempenho em sistemas de telecomunicações e micro-ondas. Sebastian et al. (2017) reforçam que um alto nível de eficiência é fundamental para aplicações que exigem estabilidade e confiabilidade em altas frequências.

As Figuras 94 a 98 apresentam os diagramas de radiação em ganho (dBi) para as amostras cerâmicas STS, STS5, STS10, STS15 e STS20. Os gráficos ilustram os padrões de radiação nos planos $\phi = 0^\circ$ (em vermelho) e $\phi = 90^\circ$ (em azul), obtidos por simulação numérica.

As amostras apresentam padrões de radiação consistentes, com o plano $\phi = 0^\circ$ exibindo padrões direcionais caracterizados por lóbulos principais bem definidos. Por outro lado, o plano $\phi = 90^\circ$ apresenta uma distribuição mais uniforme, refletindo a simetria eletromagnética esperada em antenas ressonadoras dielétricas. O ganho máximo varia entre as amostras, sendo mais elevado nas amostras com maior eficiência de radiação, como STS15 e STS20. Além disso, todas as amostras demonstram comportamentos direcionais adequados para aplicações em telecomunicações e radares, onde a concentração de energia em uma direção específica é essencial para o desempenho eficiente.

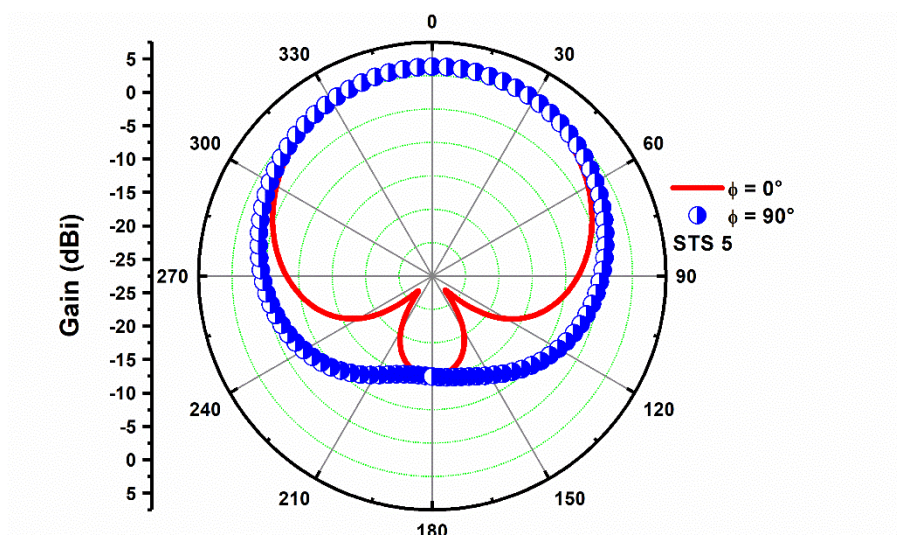
Figura 94 - Diagrama de Ganho obtidos por meio de simulação numérica da matriz cerâmica STS.



Fonte: Próprio Autor.

Na figura 94 temos a matriz cerâmica STS, que apresenta ganho máximo de aproximadamente 5 dBi no plano $\phi = 0^\circ$, indicando boa diretividade. Este padrão é característico de materiais cerâmicos ressonadores que minimizam perdas de radiação (BALANIS, 2005).

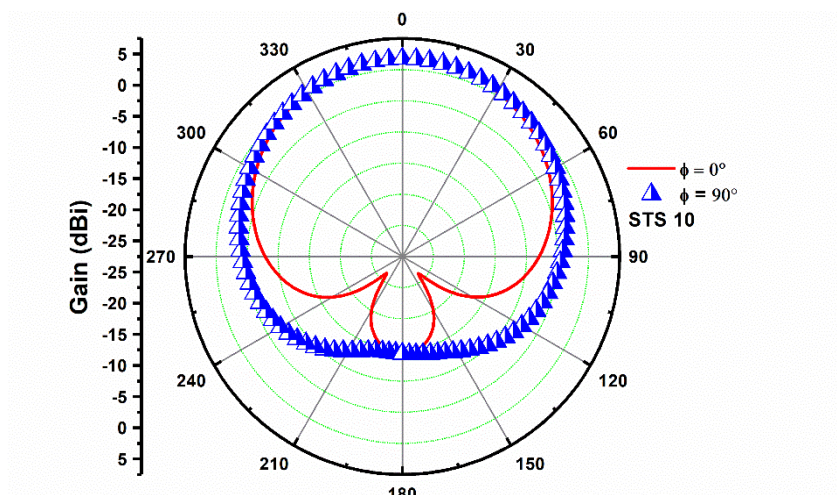
Figura 95 - Diagrama de Ganho obtidos por meio de simulação numérica da amostra STS5.



Fonte: Próprio Autor.

Na figura 95 observa-se o comportamento de radiação da amostra STS5, apresentando o ganho no plano $\phi = 0^\circ$ é semelhante ao da STS, mas apresenta maior estabilidade no plano $\phi = 90^\circ$. A eficiência de radiação mais alta nesta amostra é consistente com os valores observados anteriormente (SEBASTIAN et al., 2017).

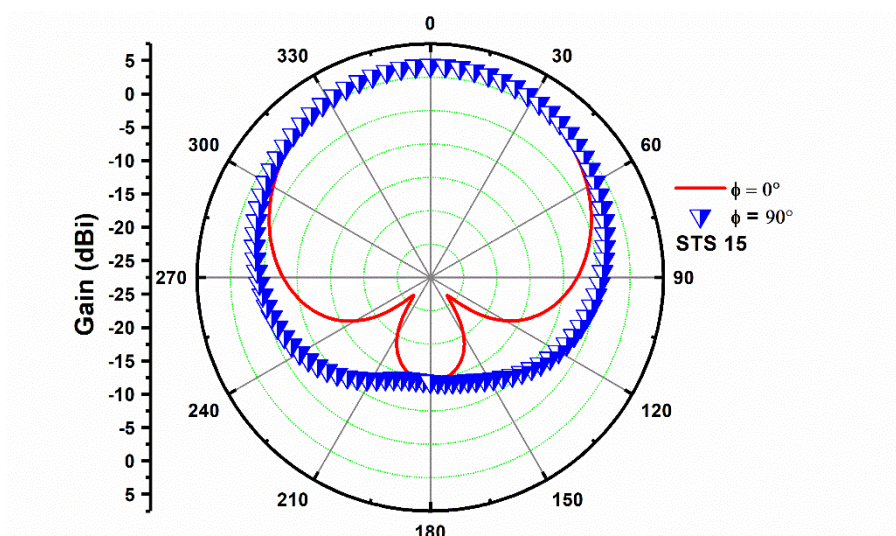
Figura 96 - Diagrama de Ganho obtidos por meio de simulação numérica da amostra STS10.



Fonte: Próprio Autor.

Na figura 96 apresenta a amostra STS10 com ganho reduzido em comparação às anteriores, mas mantém padrões direcionais estáveis. Segundo Sebastian et al. (2017), a redução do ganho pode ser atribuída às variações na microestrutura do material, influenciando as perdas dielétricas.

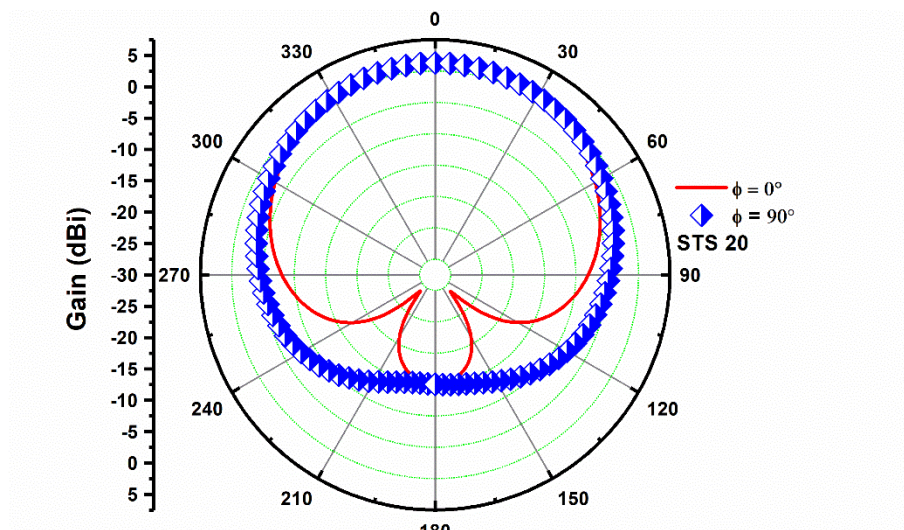
Figura 97 - Diagrama de Ganho obtidos por meio de simulação numérica da amostra STS15.



Fonte: Próprio Autor.

Na figura 97 apresenta a amostra STS15 destaca-se pelo equilíbrio entre ganho elevado e estabilidade em ambos os planos. O padrão é simétrico e consistente com alta eficiência de radiação ($E_{ff} > 96\%$), conforme indicado por Balanis (2005).

Figura 98 - Diagrama de Ganho obtidos por meio de simulação numérica da amostra STS20.



Fonte: Próprio Autor.

A figura 98 exibe o comportamento da amostra STS20, apresenta comportamento similar ao da STS15, com ganho ligeiramente inferior, mas ainda adequado para aplicações práticas. A simetria dos lóbulos reforça a eficiência do material em sistemas de micro-ondas (SEBASTIAN et al., 2017).

As figuras 99 a 103 apresentam os diagramas de ganho tridimensionais (3D) obtidos por meio de simulações numéricas do monopolo das antenas baseadas nas amostras STS, STS5, STS10, STS15 e STS20. Os gráficos ilustram o ganho total (dB (GainTotal)) em diferentes direções do espaço, evidenciando a diretividade e o desempenho radiativo de cada amostra.

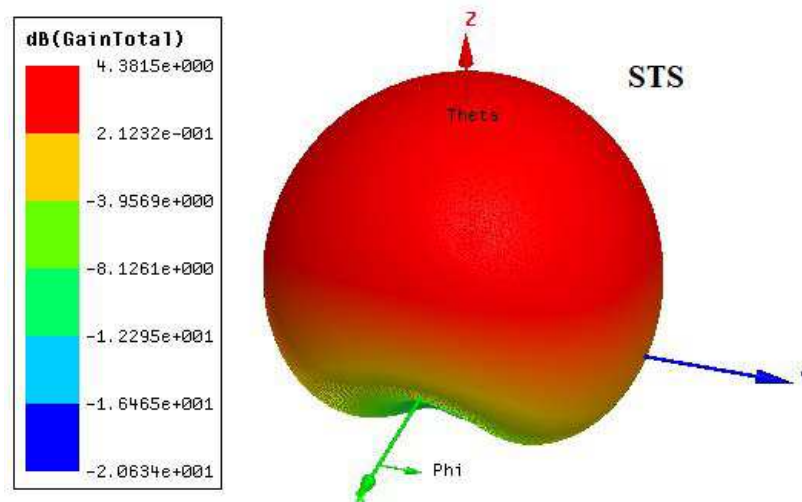
As amostras analisadas apresentam padrões de radiação aproximadamente esféricos, o que indica um comportamento omnidirecional característico de antenas monopolo. Esse padrão é evidenciado pela maior concentração de energia irradiada na região superior ($\theta = 0^\circ$), confirmando a eficiência do design para aplicações onde a radiação uniforme em várias direções é desejável.

O ganho máximo em $\theta = 0^\circ$ varia entre as amostras, sendo mais elevado nas antenas baseadas nas amostras STS (4.38 dBi) e STS5 (4.26 dBi). Por outro lado, a amostra STS20 apresenta o menor ganho, alcançando 3.79 dBi. Essas variações podem ser atribuídas às propriedades dielétricas específicas de cada material, que influenciam diretamente o desempenho radiativo.

A eficiência de radiação, que reflete a capacidade de uma antena de converter potência incidente em energia irradiada, destaca-se em amostras como STS15 e STS20. Apesar de exibirem ganhos máximos mais baixos, essas amostras possuem altos índices de eficiência, tornando-as adequadas para aplicações específicas em

frequências de micro-ondas, onde a estabilidade e a uniformidade do padrão de radiação são essenciais.

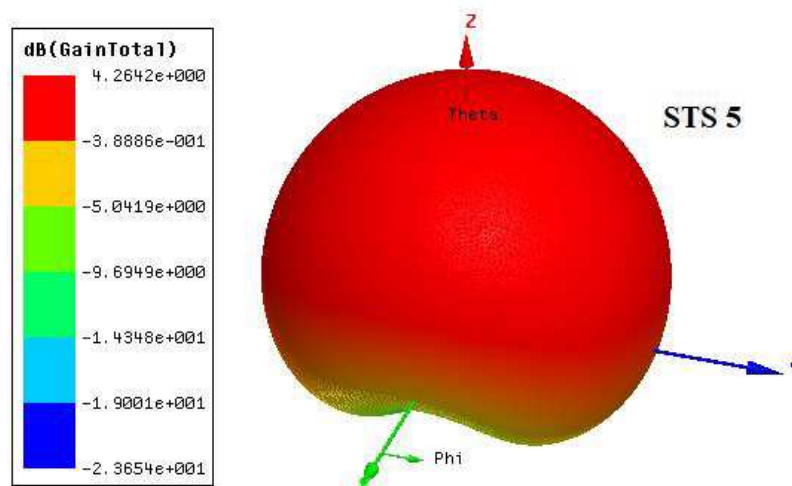
Figura 99 - Diagrama de Ganho 3D obtido para a antena monopolo da amostra STS.



Fonte: Próprio Autor.

A figura 99 amostra STS, apresenta o maior ganho máximo (4.38dBi), com boa simetria ao redor do eixo z. Este comportamento é consistente com a alta eficiência de radiação previamente calculada.

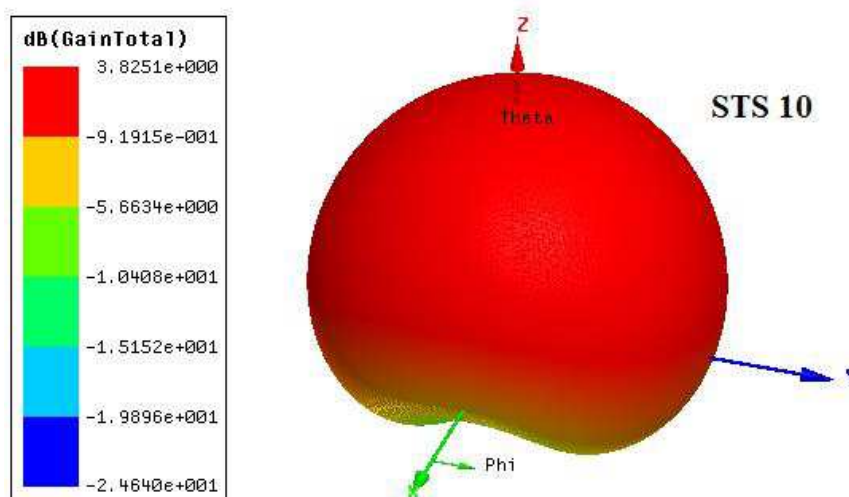
Figura 100 - Diagrama de Ganho 3D obtido para a antena monopolo da amostra STS5.



Fonte: Próprio Autor.

A figura 100 amostra STS5 que apresenta comportamento similar à STS, mas com ligeira redução no ganho máximo (4.26dBi). A distribuição homogênea ao longo do eixo z reflete o comportamento típico de monopolos em faixas de micro-ondas (BALANIS, 2005).

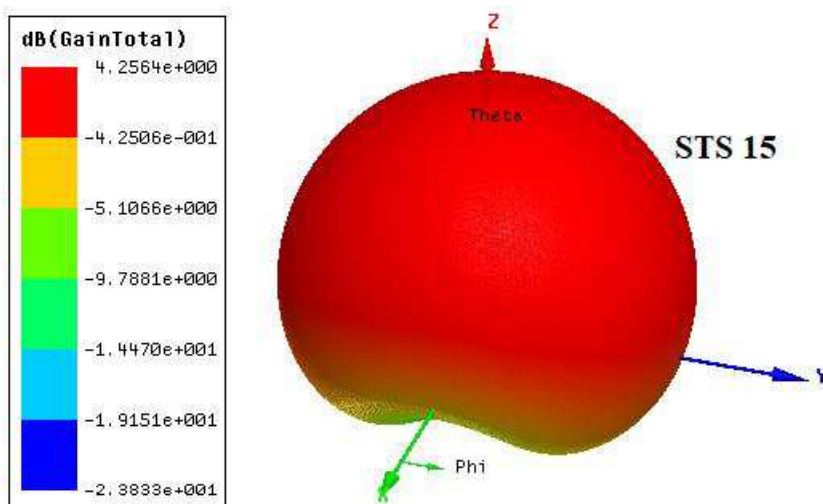
Figura 101 - Diagrama de Ganho 3D obtido para a antena monopolo da amostra STS10.



Fonte: Próprio Autor.

A figura 101 amostra STS10 exibe o ganho máximo (3.82dBi) é inferior ao das amostras anteriores, mas mantém a simetria do padrão de radiação. Sebastian et al. (2017) destacam que o aumento da concentração de TiO_2 pode influenciar as perdas dielétricas, reduzindo o ganho.

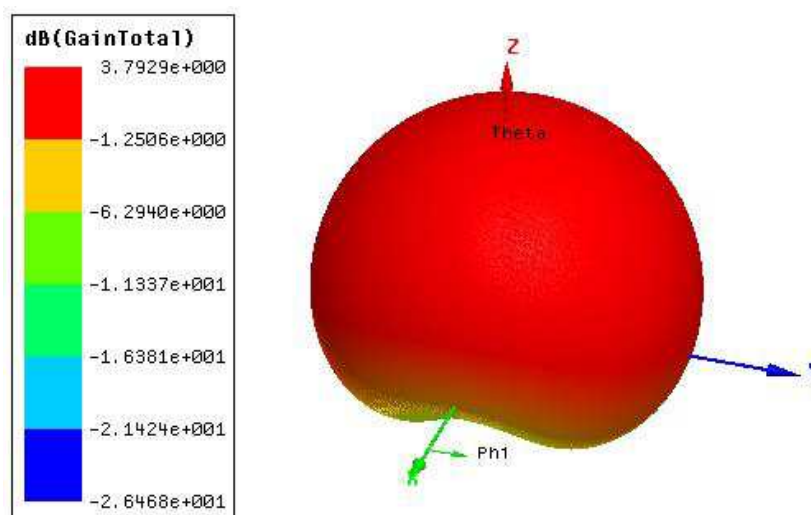
Figura 102 - Diagrama de Ganho 3D obtido para a antena monopolo da amostra STS15.



Fonte: Próprio Autor.

A figura 102 amostra STS15, apresenta ganho máximo de 4.25dBi com alta eficiência de radiação. Este equilíbrio entre ganho e eficiência é ideal para aplicações em telecomunicações e radares.

Figura 103 - Diagrama de Ganho 3D obtido para a antena monopolo da amostra STS20.



Fonte: Próprio Autor.

A figura 103 amostra STS20, mostra o menor ganho (3.79dBi), mas mantém um padrão radiativo simétrico e eficiente, indicando que pode ser aplicada em sistemas onde a diretividade não seja um requisito crítico.

6. CONCLUSÕES

Foi realizada com sucesso a síntese da matriz cerâmica $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ com adições em massa de TiO_2 , conforme comprovado pela difração de raios X, que resultou na obtenção da fase cristalina com registro ICSD nº 290329, confirmando o grupo espacial P4bm e a rede cristalina tetragonal refinada pelo método de Rietveld.

A caracterização morfológica das amostras foi conduzida por meio de Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV), possibilitando a análise visual da densidade, dos aspectos cristalinos e da formação da estrutura cristalina, com fator de ampliação médio de 10.000X.

A investigação das propriedades elétricas da matriz cerâmica na região de radiofrequência foi realizada em uma faixa de frequência de 1 Hz a 1 MHz e com variações de temperatura entre 340 °C e 460 °C. O modelo de Havriliak-Negami foi aplicado nas análises por ser o mais adequado, devido à heterogeneidade das amostras. Dessa forma, foram obtidos valores de permissividade dielétrica (ϵ_r) tanto em temperatura ambiente quanto em condições de variação térmica. A amostra STS20 apresentou valores próximos a $\epsilon_r = 3,0 \times 10^3$ em 1 Hz e temperatura ambiente, enquanto a amostra pura de STS exibiu valores menores de ϵ_r , indicando que a adição de TiO_2 contribuiu para o aumento da permissividade.

A análise da permissividade em função da temperatura, com frequência fixa de 1 kHz, revelou que a resposta elétrica da amostra pura de STS ocorre a aproximadamente 300 °C, enquanto a amostra STS20 apresentou resposta ativada em torno de 100 °C.

Para estimar os efeitos dos grãos, contornos de grãos e eletrodos, utilizamos modelagem matemática baseada em circuitos equivalentes do tipo R-CPE e interpretamos os resultados com auxílio do diagrama de Nyquist. Observou-se que o comportamento dos grãos em todas as amostras está associado à distorção da capacitância, provocada pelo acúmulo ou distribuição de portadores de carga, bem como pela rugosidade da superfície do eletrodo. Por sua vez, os contornos de grão exibiram efeitos de difusão com desvios em relação à segunda lei de Fick. De maneira geral, constatou-se uma diminuição nos valores de resistência do grão (R_g) e do contorno de grão (R_{gb}) com o aumento da temperatura. Além disso, os fatores de fase constante (n_g) apresentaram valores próximos ao ideal, ou seja, próximos de 1,

enquanto os fatores de contorno de grão (n_{gb}) mostraram valores em torno de 0,5, indicando uma resposta mais dispersiva e não ideal.

Realizou-se um estudo abrangente sobre a condutividade das amostras, aplicando a lei de potência de Jonscher para investigar o comportamento da condutividade DC e sua relação com a relaxação dielétrica.

A energia de ativação (E_a) de todas as amostras foi analisada, e observou-se uma variação dos valores em função da concentração de TiO_2 . A amostra STS apresentou o maior valor de energia de ativação, 1,1 eV, enquanto a amostra STS20 apresentou o menor valor, 0,6 eV, evidenciando a influência da concentração de TiO_2 nesse parâmetro.

As propriedades na região de micro-ondas foram avaliadas tanto na matriz pura quanto nas amostras com adição de TiO_2 , utilizando o método de Hakki-Coleman, que permitiu determinar a permissividade dielétrica (ϵ_r), a tangente de perdas dielétricas ($\tan\delta$), a frequência ressonante, além do fator de qualidade Q.

Por fim, realizamos a modelagem matemática utilizando o software HFSS, onde foram coletados valores de diretividade, ganho e eficiência de radiação. Também foi realizada uma comparação entre os resultados experimentais e os valores obtidos por simulação, demonstrando a consistência dos resultados e a adequação do modelo proposto.

7. PERSPECTIVAS

1. Produzir novos compósitos cerâmicos a partir da adição de CaTiO_3 (CTO) em massa à matriz $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ (STS), visando melhorar suas propriedades dielétricas e eletromagnéticas.
2. Obter e confirmar as fases cristalinas dos compósitos por meio de Difração de Raios-X, Espectroscopia Raman e Microscopia Eletrônica de Varredura (MEV), garantindo a qualidade estrutural e morfológica das amostras.
3. Analisar as propriedades dielétricas dos compósitos STS-CTO na região de radiofrequência e micro-ondas, com o objetivo de otimizar os parâmetros de permissividade dielétrica relativa (ϵ_r), tangente de perdas dielétricas ($\tan\delta$) e coeficiente de temperatura da frequência ressonante (τ_f).
4. Estudar o desempenho dos compósitos como antena ressoadora dielétrica (DRA), realizando medidas experimentais e simulações computacionais para verificar a eficiência, ganho e diretividade.
5. Sintetizar a matriz cerâmica $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ (STS) via reação no estado sólido e dopá-la com íons de terras raras (STS: $\text{Pr}^{3+}/\text{Er}^{3+}/\text{Yb}^{3+}$) para explorar o potencial das propriedades luminescentes do material.
6. Identificar e determinar as aplicações ópticas do compósito BTS dopado, com foco na luminescência por upconversion e na luminescência de longa vida (LLP), visando possíveis usos em dispositivos optoeletrônicos e sensores ópticos avançados.

REFERÊNCIAS

ABBOTT, E. E.; MANN, M.; KOLIS, J. W. Hydrothermal synthesis of compounds in the fersite mineral family ($\text{Ba}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$). *Journal of Solid State Chemistry*, v. 184, n. 5, p. 1257–1262, 2011.

ABREU, R. F. et al. Microwave Dielectric Properties Study of the La_2O_3 Additions on the $\text{SrBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9$ Matrix. *Journal of Electronic Materials*, v. 48, n. 2, p. 1196–1206, 18 fev. 2019.

ABREU, R. F. et al. Dielectric characterisation and numerical investigation of $\text{SrBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9 - \text{Bi}_2\text{O}_3$ composites for applications in microwave range. *Journal of Electromagnetic Waves and Applications*, v. 34, n. 12, p. 1705–1718, 12 ago. 2020.

ABREU, R. F. et al. Evaluation of dielectric properties of the barium titanium silicate ($\text{Ba}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$) for microwave applications. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, v. 32, n. 6, p. 7034–7048, 15 mar. 2021.

ABREU, R. F. et al. Evaluation of the $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ ceramic matrix for radiofrequency and microwave applications. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, v. 34, n. 5, p. 457, 4 fev. 2023a.

ABREU, R. F. et al. Enhanced Microwave Dielectric Properties of the $\text{Ba}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ Ceramic by the Addition of TiO_2 . *Journal of Electronic Materials*, v. 52, n. 12, p. 8050–8064, 25 dez. 2023b.

ACHARYA, T.; CHOUDHARY, R. N. P. Dielectric behavior of manganese titanate in the paraelectric phase. *Applied Physics A: Materials Science and Processing*, 2015a.

ACHARYA, T.; CHOUDHARY, R. N. P. Structural, Ferroelectric, and Electrical Properties of NiTiO_3 Ceramic. *Journal of Electronic Materials*, 2015b.

ACHARYA, T.; CHOUDHARY, R. N. P. Development of ilmenite-type electronic

material CdTiO₃ for devices. IEEE Transactions on Dielectrics and Electrical Insulation, v. 22, n. 6, p. 3521–3528, dez. 2015c.

ACHARYA, T.; CHOUDHARY, R. N. P. Dielectric and electrical characteristics of La_{0.5}Na_{0.5}Ga_{0.5}V_{0.5}O₃. Physics Letters, Section A: General, Atomic and Solid State Physics, v. 380, n. 31–32, p. 2437–2444, 2016.

ALFORS, J. T. et al. Seven new barium minerals from eastern fresno county, California. [s.l.: s.n.]. v. 50

AZEVEDO, L. O. et al. Design and characterization study of LaFeO₃ and CaTiO₃ composites at microwave frequencies and their applications as dielectric resonator antennas. Ceramics International, v. 47, n. 23, p. 33232–33241, 2021.

BALANIS, C. A. Modern Antenna Handbook. [s.l.] Wiley, 2011.

BALANIS, C. A. ADVANCED ENGINEERING ELECTROMAGNETICS. 2. ed. [s.l.] John Wiley & Sons, Inc., 2012.

BALANIS, C. A. Antenna Theory: Analysis and Design. 4th. ed. [s.l.] Wiley, 2016.

BARBAR, S. K.; ROY, M. Structural and vibrational studies of Ca-doped Ba₂TiSi₂O₈ ceramics. Journal of Molecular Structure, v. 1024, p. 132–135, set. 2012.

BARSOUKOV, E.; MACDONALD, J. R. Impedance Spectroscopy. 3. ed. Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons, Inc., 2018.

BEHERA, B.; NAYAK, P.; CHOUDHARY, R. N. P. Impedance spectroscopy study of NaBa₂V₅O₁₅ ceramic. Journal of Alloys and Compounds, v. 436, n. 1–2, p. 226–232, 2007.

CAO, S. et al. The growth and thermal, electrical properties characterization of Ba₂TiSi₂O₈ piezoelectric crystal. Journal of Crystal Growth, v. 451, p. 207–213, out. 2016.

CHANG, K. RF and Microwave Wireless Systems. New York, USA: John Wiley & Sons, Inc., 2000.

CHEN, L. F. et al. Microwave Electronics: Measurement and Materials Characterization. [s.l.] Wiley, 2004.

COHN, S. B. Microwave Bandpass Filters Containing High-Q Dielectric Resonators. IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, v. 16, n. 4, p. 218–227, abr. 1968.

COLARES, D. DA M. et al. Improving the microwave dielectric properties of BiCu₃Ti₃FeO₁₂ with the addition of Bi₂O₃. Journal of Electromagnetic Waves and Applications, p. 1–11, 24 ago. 2021.

COURTNEY, W. E. Analysis and Evaluation of a Method of Measuring the Complex Permittivity and Permeability Microwave Insulators. IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, v. 18, n. 8, p. 476–485, ago. 1970.

DO NASCIMENTO, J. P. C. et al. Effect of (Pr-Yb) Co-doping on the Luminescence and Dielectric Behaviour of LaNbO₄ Ceramic. Journal of Electronic Materials, v. 49, n.10, p. 6016–6023, 27 out. 2020.

FUNKE, K. Jump relaxation in solid electrolytes. Progress in Solid State Chemistry, v.22, n. 2, p. 111–195, jan. 1993.

GUO, H. H. et al. Design of a High-Efficiency and -Gain Antenna Using Novel Low-Loss, Temperature-Stable Li₂Ti_{1-x}(Cu_{1/3}Nb_{2/3})_xO₃ Microwave Dielectric Ceramics.

ACS Applied Materials and Interfaces, v. 13, n. 1, p. 912–923, 2021.

HAKKI, B. W.; COLEMAN, P. D. A Dielectric Resonator Method of Measuring Inductive Capacities in the Millimeter Range. IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques, v. 8, n. 4, p. 402–410, jul. 1960.

HAMZAWY, E. M. A.; MORSI, R. M. M.; MARGHA, F. H. Dielectric properties of the sintered nano- and micro-sized fresnoite without/with strontium titanate phase. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, v. 26, n. 2, p. 1252–1258, 7 fev. 2015.

HAVRILIAK, S.; NEGAMI, S. A complex plane representation of dielectric and mechanical relaxation processes in some polymers. *Polymer*, v. 8, n. C, p. 161–210, jan.1967.

HAYDOURA, M. et al. Perovskite $(\text{Sr}_2\text{Ta}_2\text{O}_7)_{100-x}(\text{La}_2\text{Ti}_2\text{O}_7)_x$ ceramics: From dielectric characterization to dielectric resonator antenna applications. *Journal of Alloys and Compounds*, v. 872, p. 159728, 2021.

HUMERA, N. et al. Colossal dielectric constant and ferroelectric investigation of BaTiO_3 nano-ceramics. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 2020.

IDREES, M. et al. Origin of colossal dielectric response in LaFeO_3 . *Acta Materialia*, 2011. JIANG, C. et al. Thermal expansion and electro-elastic features of $\text{Ba}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ high temperature piezoelectric crystal. *Crystals*, v. 9, n. 1, 2019.

JIANG, C. et al. High-temperature Vibration Sensor Based on $\text{Ba}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ Piezoelectric Crystal with Ultra-Stable Sensing Performance up to 650 °C. *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, 2021.

JONSCHEER, A. K. Dielectric relaxation in solids. *Journal of Physics D: Applied Physics*, v. 32, n. 14, p. R57–R70, 21 jul. 1999.

KAJFEZ, D.; GUILLON, P. Dielectric Resonators. Second Edition. [s.l.] Noble Publishing Corporation Atlanta, 1998.

KAO, K. C. Dielectric Phenomena in Solids. [s.l.] Elsevier Science, 2004.

KARTHIK, C.; VARMA, K. B. R. Dielectric and AC conductivity behavior of $\text{BaBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9$ ceramics. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, v. 67, n. 12, p.

2437–2441, 2006.

KEYROUZ, S.; CARATELLI, D. Dielectric Resonator Antennas: Basic Concepts, Design Guidelines, and Recent Developments at Millimeter-Wave Frequencies. *International Journal of Antennas and Propagation*, v. 2016, p. 1–20, 2016.

KIANG, J.-F. *Novel Technologies for Microwave and Millimeter — Wave Applications*. Boston, MA: Springer US, 2004.

X. Wang, X. Li, S. Xu, H. Yu, J. Zhang, X. Zhang, Y. Cao, L. Cheng, J. Sun, B. Chen, *Optik* 238, 166524 (2021)

KISHK, A. A. et al. Effect of air gap on cylindrical dielectric resonator antenna operating in TM₀₁ mode. *Electronics Letters*, v. 30, n. 2, p. 97–98, 20 jan. 1994.

KUSHVAHA, D. K.; TIWARI, B.; ROUT, S. K. Enhancement of electrical energy storage ability by controlling grain size of polycrystalline BaNb₂O₆ for high density capacitor application. *Journal of Alloys and Compounds*, v. 829, p. 154573, jul. 2020.

LASIA, A. *Electrochemical impedance spectroscopy and its applications*. [s.l.: s.n.].

LIU, B. et al. Cold sintering assisted CaF₂ microwave dielectric ceramics for C-band antenna applications. *Journal of the European Ceramic Society*, v. 42, n. 13, p. 5698–5704, 2022.

LONG, S.; MCALLISTER, M.; LIANG SHEN. The resonant cylindrical dielectric cavity antenna. *IEEE Transactions on Antennas and Propagation*, v. 31, n. 3, p. 406–412, maio 1983.

LUNKENHEIMER, P. et al. Origin of apparent colossal dielectric constants. *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, 2002.

MAHATO, D. K.; DUTTA, A.; SINHA, T. P. Dielectric relaxation in double perovskite oxide, Ho₂CdTiO₆. *Bulletin of Materials Science*, 2011.

MOORE, P. B.; LOUISNATHAN, J. Fresnoite: Unusal Titanium Coordination. Science, v. 156, p. 1361–1362, 1967.

MOULSON, A. J.; HERBERT, J. M. Electroceramics: Materials, Properties , Applications. Chichester, UK: John Wiley & Sons, Ltd, 2003.

NOBREGA, F. A. C. et al. Influence of the addition of CaTiO_3 on the microwave dielectric properties of the BaMoO_4 matrix. Materials Chemistry and Physics, v. 289, n. May, p. 126478, set. 2022.

NUSSENZVEIG, H. M. Curso de Física Básica 3-Eletromagnetismo. [s.l.] Editora Edgard Blucher LTDA, 1997.

OKAYA, A.; BARASH, L. The Dielectric Microwave Resonator. Proceedings of the IRE, v. 50, n. 10, p. 2081–2092, out. 1962.

PANDEY, R. K. (ED.). Fundamentals of Electroceramics. Hoboken, NJ, USA: John Wiley & Sons, Inc., 2019.

PETOSA, A. Dielectric Resonator Antenna Handbook. Universidade de Michigan: Artech House, 2007.

POOLE, C.; DARWAZEH, I. Microwave Active Circuit Analysis and Design. 1st. ed. 142 [s.l.] Academic Press, 2015.

POZAR, D. M. Microwave Engineering. 4th. ed. [s.l.] Wiley, 2011.

PUROHIT, V.; PADHEE, R.; CHOUDHARY, R. N. P. Dielectric and impedance spectroscopy of $\text{Bi}(\text{Ca}_{0.5}\text{Ti}_{0.5})\text{O}_3$ ceramic. Ceramics International, v. 44, n. 4, p. 3993–3999, mar. 2018.

REITZ, J. R.; MILFORD, F. J.; CHRISTY, R. W. Fundamentos da Teoria Eletromagnética. [s.l.: s.n.].

- RIETVELD, H. M. Line profiles of neutron powder-diffraction peaks for structure refinement. *Acta Crystallographica*, v. 22, n. 1, p. 151–152, 1 jan. 1967.
- ROSE, A. et al. Analysis on the influence of ZnO addition on microwave dielectric properties of Li₂MgSiO₄ ceramics. *Bulletin of Materials Science*, v. 42, n. 6, p. 259, 9 dez. 2019.
- ROUT, J. et al. Structural, Dielectric, and Electrical Properties of BiFeWO₆ Ceramic. *Journal of Electronic Materials*, v. 43, n. 3, p. 732–739, 20 mar. 2014.
- SAHOO, S. et al. Frequency and temperature dependent electrical characteristics of CaTiO₃ nano-ceramic prepared by high-energy ball milling. *Journal of Advanced Ceramics*, v. 2, n. 3, p. 291–300, 2013.
- SAHU, M. et al. Investigations of thermophysico-chemical properties of Ba₂TiSi₂O₈(s) and Sr₂TiSi₂O₈(s). *Thermochimica Acta*, v. 663, p. 215–226, maio 2018.
- SEBASTIAN, M. T. *Dielectric Materials for Wireless Communication*. San Diego - USA: Elsevier Science, 2010.
- SHEN, C. et al. Optical properties of the fresnoite Ba₂TiSi₂O₈ single crystal. *Crystals*, 2017.
- SHI, Q. et al. Low temperature heat capacity study of Ba₂TiSi₂O₈ and Sr₂TiSi₂O₈. *The Journal of Chemical Thermodynamics*, v. 72, p. 77–84, maio 2014.
- SILVA, M. A. S.; FERNANDES, T. S. M.; SOMBRA, A. S. B. An alternative method for the measurement of the microwave temperature coefficient of resonant frequency (τ_f). *Journal of Applied Physics*, v. 112, n. 7, p. 074106, out. 2012.
- SILVA, M. A. S.; OLIVEIRA, R. G. M.; SOMBRA, A. S. B. Dielectric and microwave properties of common sintering aids for the manufacture of thermally stable ceramics. *Ceramics International*, v. 45, n. 16, p. 20446–20450, nov. 2019.

STUTZMAN, W. L.; THIELE, G. A. Antenna Theory and Design. 3a ed. [s.l.] Wiley, 2012.

SUN, J. et al. Colossal dielectric behavior and dielectric anomalies in Sr₂TiCrO₆ 143 ceramics. *Journal of Materials Science*, v. 54, n. 8, p. 6323–6331, 8 abr. 2019.

VADIM F. LVOVICHWILEY, A. J. Impedance Spectroscopy: Applications to Electrochemical and Dielectric Phenomena. [s.l.] John Wiley & Sons, Inc., 2012.

WANG, Y. et al. Colossal Permittivity Materials as Superior Dielectrics for Diverse Applications. *Advanced Functional Materials*, p. 1808118, 12 abr. 2019.

WANG, Z. et al. Effect of electric field on the microstructure and electrical properties of (In + Ta) co-doped TiO₂ colossal dielectric ceramics. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, v. 33, n. 9, p. 6283–6293, 31 mar. 2022.

WEBER, S. et al. Structural features of the A₂TiSi₂O₈ (A -Ba and Pb) compounds. *Journal of Advanced Dielectrics*, 2020.

WU, F. F. et al. Design of a Sub-6 GHz Dielectric Resonator Antenna with Novel Temperature-Stabilized (Sm_{1-x}Bix)NbO₄ (x = 0-0.15) Microwave Dielectric Ceramics.

ACS Applied Materials and Interfaces, v. 14, n. 5, p. 7030–7038, 2022.

WU, J.-M.; WANG, H.-W. Factors Affecting the Formation of Ba₂Ti₉O₂₀. *Journal of the American Ceramic Society*, v. 71, n. 10, p. 869–875, out. 1988.

YIN, C. et al. A low-firing melilite ceramic Ba₂CuGe₂O₇ and compositional modulation on microwave dielectric properties through Mg substitution. *Journal of Advanced Ceramics*, v. 10, n. 1, p. 108–119, 25 fev. 2021.

Y. Luo, D. Zhang, S. Xu, L. Li, L. Chen, H. Guo, *J. Lumin.* 257, 119780 (2023)

YUAN, X.-Z. et al. Electrochemical Impedance Spectroscopy in PEM Fuel Cells.

London: Springer London, 2010.

ZHENG, J. et al. Colossal dielectric response in erbium iron garnet ceramics. *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, v. 32, n. 1, p. 290–298, 27 jan. 2021

8. PUBLICAÇÕES

❖ Publicação em periódicos

1. ABREU, R. F.; NOBREGA, F. A. C.; DA M. COLARES, D.; **SATURNO, S. O.**; DO NASCIMENTO, J. P. C.; ABREU, T. O.; GHOSH, A.; DO CARMO, F. F.; SILVA, M. A. S.; SALES, A. J. M.; SILVA, R. S.; SOMBRA, A. S. B. **Evaluation of the $\text{Sr}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ ceramic matrix for radiofrequency and microwave applications.** Journal of Materials Science: Materials in Electronics, v. 34, p. 457, 2023.
2. ABREU, R. F.; **SATURNO, S. O.**; NOBREGA, F. A. C.; DA M. COLARES, D.; DO NASCIMENTO, J. P. C.; VASCONCELOS, S. J. T.; NOGUEIRA, F. E. A.; DE FREITAS, D. B.; DO CARMO, F. F.; GHOSH, A.; ABREU, T. O.; SILVA, M. A. S.; SILVA, R. S.; TRUKHANOV, S. V.; ZHOU, DI; SINGH, C.; SOMBRA, A. S. B. **Study of electrical properties with temperature variation by complex impedance spectroscopy (CIS) and effects on the $\text{Ba}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ - TiO_2 matrix.** Applied Physics A: Materials Science & Processing, v. 130, p. 138, 2024.

❖ Aplicação de Patentes:

1. SOMBRA, A. S. B.; ABREU, R. F.; DA M. COLARES, D.; ABREU, T. O.; NOBREGA, F. A. C.; **SATURNO, S. O.**; SILVA, F. R.; DO NASCIMENTO, J. P. C. Crescimento da estabilidade térmica da matriz ($\text{Ba}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$) com adição de TiO_2 para operação na região de micro-ondas. Patente de Invenção: Privilégio de Inovação. Número de registro: **BR10202101593**. Instituição de registro: INPI - Instituto Nacional da Propriedade Industrial, Brasil. Depósito: 12 ago. 2021.
2. SOMBRA, A. S. B.; ABREU, R. F.; NOBREGA, F. A. C.; **SATURNO, S. O.**; ABREU, T. O.; DA M. COLARES, D.; NOGUEIRA, F. E. A.; DO NASCIMENTO, J. P. C.; SILVA, M. A. S.; DO CARMO, F. F. ALTA ESTABILIDADE TÉRMICA NA NOVA MATRIZ DIELÉTRICA $\text{Ba}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ COM ADIÇÃO DE CaTiO_3 COM APLICAÇÕES NA REGIÃO DE MICRO-ONDAS. Patente de Invenção: Privilégio de Inovação. Número de registro: **BR10202300313**. Instituição de registro: INPI - Instituto Nacional da Propriedade Industrial, Brasil. Depósito: 17 fev. 2022.

❖ **Outras Publicações:**

1. ABREU, R. F.; SATURNO, S. O.; DA M. COLARES, D.; SILVA, F. R.; NOBREGA, F. A. C.; NOGUEIRA, F. E. A.; DO NASCIMENTO, J. P. C.; VASCONCELOS, S. J. T.; DO CARMO, F. F.; ABREU, T. O.; GHOSH, A.; SALES, J. C.; SILVA, R. S.; SALES, A. J. M.; SILVA, M. A. S.; SOMBRA, A. S. B. **Enhanced Microwave Dielectric Properties of the $\text{Ba}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ Ceramic by the Addition of TiO_2 .** Journal of Electronic Materials, v. 52, p. 8050-8064, 2023.
2. ABREU, R. F.; ABREU, T. O.; DA M. COLARES, D.; SATURNO, S. O.; DO NASCIMENTO, J. P. C.; NOBREGA, F. A. C.; GHOSH, A.; VASCONCELOS, S. J. T.; SALES, J. C.; DE ANDRADE, H. D.; JÚNIOR, I. S. QUEIROZ; SOMBRA, A. S. B. **Evaluation of dielectric properties of the barium titanium silicate ($\text{Ba}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$) for microwave applications.** Journal of Materials Science: Materials in Electronics, v. 32, p. 1573-482X, 2021.
3. ABREU, R. F.; SATURNO, S. O.; DO NASCIMENTO, J. P. C.; SANCHO, E. O.; DE MORAIS, J. E. V.; SALES, J. C.; GOUVEIA, D. X.; DE ANDRADE, H. D.; QUEIROZ JÚNIOR, I. S.; SOMBRA, A. S. B. **Dielectric characterisation and numerical investigation of $\text{SrBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9$ - Bi_2O_3 composites for applications in microwave range.** Journal of Electromagnetic Waves and Applications, v. 34, p. 1-14, 2020.
4. ABREU, Roterdan Fernandes; SILVA, Felipe Rodrigues; SATURNO, Samuel Oliveira; COLARES, Diego da Mota; ABREU, Tallison Oliveira; DO NASCIMENTO, João Paulo Costa; SANCHO OLIVEIRA, Emmanuelle de Oliveira; SALES, Juscelino Chaves; GOUVEIA, Daniel Xavier; SOMBRA, Antônio Sérgio Bezerra. **Effects of La_2O_3 and Bi_2O_3 additions on the microwave dielectric and antenna properties of $\text{SrBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9$ ceramic matrix.** Journal of Mechatronics Engineering, v. 4, p. 2-11, 2021.

❖ **Trabalhos em Congressos:**

1. ABREU, R. F.; DA M. COLARES, D.; SILVA, Felipe Rodrigues; ABREU, T. O.; SATURNO, S. O.; DO NASCIMENTO, J. P. C.; NOBREGA, F. A. C.; GHOSH, A.; SALES, Juscelino Chaves; GOUVEIA, D. X.; SILVA, R. S.; SOMBRA, A. S. B. **Numerical and experimental study of $\text{Ba}_2\text{TiSi}_2\text{O}_8$ ceramics for microwave engineering applications.** In: IX INTERNATIONAL SCIENTIFIC CONFERENCE,

- 2021, Minsk. Actual Problems of Solid State Physics. Minsk: A. Varaksin, 2021. v. 2, p. 223-225.
2. **SATURNO, S. O.**; SILVA, Felipe Rodrigues; COLARES, D. M.; ABREU, R. F.; ABREU, T. O.; DO NASCIMENTO, J. P. C.; NOBREGA, F. A. C.; VASCONCELOS, S. J. T.; SOMBRA, A. S. B. **Study of the microwave properties of the SBN composite with the addition of 45% by mass of CTO.** In: IX INTERNATIONAL SCIENTIFIC CONFERENCE, 2021, Minsk. Actual Problems of Solid State Physics. Minsk: A. Varaksin, 2021. v. 1, p. 37-42.
 3. **SATURNO, S.O.**; ABREU, R. F.; DO NASCIMENTO, J. P. C.; SANCHO, E. O.; SALES, J. C.; SOMBRA, A.S.B. **Preparação e investigação das propriedades estruturais e dielétricas da cerâmica $\text{SrBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9$ com adição do CaTiO_3 .** In: 64º Congresso Brasileiro de Cerâmica, 2020, Águas de Lindóia. Cerâmica Eletro-Eletrônica / Magnética, 2020.
 4. ABREU, R. F.; SILVA, F. R.; **SATURNO, S. O.**; DA M. COLARES, D.; ABREU, T. O.; DO NASCIMENTO, J. P. C.; SANCHO, E. O.; SALES, J. C.; GOUVEIA, D. X.; SOMBRA, A. S. B. **Estudo comparativo das propriedades dielétricas de $[\text{SrBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9 + 15\% (\text{La}_2\text{O}_3 \text{ ou } \text{Bi}_2\text{O}_3)]$ e suas aplicações como antena ressoadora dielétrica.** In: 8º WORKSHOP DE MICRO-ONDAS (WMO), 2020, Cubatão. Anais do Workshop de Micro-ondas, 2020.
 5. ABREU, R. F.; DA M. COLARES, D.; ABREU, T. O.; NOBREGA, F. A. C.; **SATURNO, S. O.**; VASCONCELOS, S. J. T.; DO NASCIMENTO, J. P. C.; DO CARMO, Felipe F.; SALES, J. C.; SOMBRA, A. S. B. **Dielectric characterization and numerical investigation of $\text{Ba}_2\text{Co}_2\text{Fe}_{12}\text{O}_{22}\text{-TiO}_2$ composites for applications in microwave range.** In: ENCONTRO DE OUTONO DA SBF 2020, 2020, Bonito, MS. Insulators and Dielectrics, 2020.
 6. ABREU, R. F.; **SATURNO, S. O.**; SANCHO, E. O.; GOUVEIA, D. X.; SOMBRA, A. S. B.; SALES, J. C. **Estudo e comparação das propriedades dielétricas das amostras de $(\text{SrBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9 + 3\% \text{ La}_2\text{O}_3)$ e $(\text{SrBi}_2\text{Nb}_2\text{O}_9 + 3\% \text{ Bi}_2\text{O}_3)$.** In: 63º CONGRESSO BRASILEIRO DE CERÂMICA (63 CBC), 2019, Bonito, MS. 63º Congresso Brasileiro de Cerâmica (63 CBC), 2019.

9. ANEXOS

ANEXO A - DEPÓSITO DE PATENTE: CRESCIMENTO DA ESTABILIDADE TÉRMICA DA MATRIZ (Ba₂TiSi₂O₈) COM ADIÇÃO DE TiO₂ PARA OPERAÇÃO NA REGIÃO DE MICRO-ONDAS



República Federativa do Brasil
Ministério do Desenvolvimento, Indústria,
Comércio e Serviços
Instituto Nacional da Propriedade Industrial



(21) BR 102021015932-4 A2

(22) Data do Depósito: 12/08/2021

(43) Data da Publicação Nacional:
22/02/2023

(54) Título: CRESCIMENTO DA ESTABILIDADE TÉRMICA DA MATRIZ (Ba₂TiSi₂O₈) COM ADIÇÃO DE TiO₂ PARA OPERAÇÃO NA REGIÃO DE MICRO-ONDAS

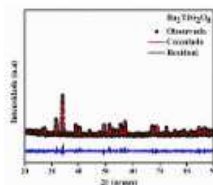
(51) Int. Cl.: C04B 35/16

(52) CPC: C04B 35/16; C04B 2235/3436; C04B 2235/3234; C04B 2235/9607

(71) Depositante(s): UNIVERSIDADE FEDERAL DO CEARÁ

(72) Inventor(es): ANTONIO SERGIO BEZERRA SOMBRA; ROTERDAN FERNANDES ABREU; DIEGO DA MOTA COLARES; TALLISON OLIVEIRA ABREU; FRANCISCO ALEKSON CHAVES NORRÊGA; ANTONIO JEFFERSON OLIVEIRA DA SILVA; SAMUEL OLIVEIRA SATURNO; FELIPE RODRIGUES DA SILVA; JOÃO PAULO COSTA DO NASCIMENTO; YGUATYARA DE LUNA MACHADO

(57) Resumo: CRESCIMENTO DA ESTABILIDADE TÉRMICA DA MATRIZ (Ba₂TiSi₂O₈) COM ADIÇÃO DE TiO PARA OPERAÇÃO NA REGIÃO DE MICRO-ONDAS. Algumas cerâmicas avançadas estão sendo utilizadas como dispositivos na região de micro-ondas, mas o problema é que a grande maioria destas não tem estabilidade térmica. No entanto, é necessário sintetizar um composto cerâmico que opere na região de micro-ondas e tenha estabilidade térmica. Para solucionar este problema, nesta invenção é apresentado um novo composto cerâmico, formado pela a matriz Ba₂TiSi₂O₈ com adição de óxido de titânio (TiO₂), que opere na região de micro-ondas e tenha estabilidade térmica. O composto cerâmico foi sintetizado pela reação do estado sólido, em que os reagentes precursores BaCO₃, SiO₂ e TiO₂ foram calcinados a 1100 °C por 4 horas, após a calcinação a difração de Raios-X caracterizou a formação da matriz Ba₂TiSi₂O₈. Confirmada a formação da fase, foram adicionados TiO₂ na matriz e formando peças cilíndricas que foram sinterizadas a 1200 °C por 4 horas. Após a síntese foram obtidos compostos formados pelo Ba₂TiSi₂O₈ e com adições de TiO₂ nas proporções de 10, 15, 20, 25, 30, 35 e 40%, que logo em seguida foram medidas sua estabilidade térmica. A estabilidade térmica foi obtida pelo método (...).



**ANEXO B – DEPÓSITO DE PATENTE: ALTA ESTABILIDADE TÉRMICA
NA NOVA MATRIZ DIELÉTRICA Ba₂TiSi₂O₈ COM ADIÇÃO DE CaTiO₃
COM APLICAÇÕES NA REGIÃO DE MICRO-ONDAS.**



**Pedido nacional de Invenção, Modelo de Utilidade, Certificado de
Adição de Invenção e entrada na fase nacional do PCT**

Número do Processo: BR 10 2023 003130 7

Dados do Depositante (71)

Depositante 1 de 1

Nome ou Razão Social: UNIVERSIDADE FEDERAL DO CEARÁ

Tipo de Pessoa: Pessoa Jurídica

CPF/CNPJ: 07272636000131

Nacionalidade: Brasileira

Qualificação Jurídica: Instituição de Ensino e Pesquisa

Endereço: Av da universidade, 2853 - Benfica

Cidade: Fortaleza

Estado: CE

CEP: 60710-780

País: Brasil

Telefone: (85) 3366-9434

Fax: (85) 3366-9941

Email: patentes@ufc.br

