

## اثر روش سنتز بر میکروساختار و خواص دی‌الکتریک پیزوسرامیک بدون سرب (K<sub>0.44</sub>Na<sub>0.52</sub>Li<sub>0.04</sub>)(Ta<sub>0.1</sub>Sb<sub>0.06</sub>Nb<sub>0.84</sub>)O<sub>3</sub>

محمدعلی بهره‌ور<sup>۱\*</sup>، مهدی دلشاد چرمهینی<sup>۱</sup>، محمدرضا رحیمی‌پور<sup>۱</sup>، هومان شکراللهی<sup>۲</sup>

<sup>۱</sup> پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج، ایران

<sup>۲</sup> دانشگاه صنعتی شیراز، شیراز، ایران

تاریخ ثبت اولیه: ۱۳۹۴/۰۱/۱۷، تاریخ دریافت نسخه اصلاح شده: ۱۳۹۴/۰۳/۰۶، تاریخ پذیرش قطعی: ۱۳۹۴/۰۴/۰۹

**چکیده** در این تحقیق پودرهای پیزوسرامیکی بدون سرب (K<sub>0.44</sub>Na<sub>0.52</sub>Li<sub>0.04</sub>)(Ta<sub>0.1</sub>Sb<sub>0.06</sub>Nb<sub>0.84</sub>)O<sub>3</sub> به دو روش سرامیکی سنتی و پوشش‌دهی کلوییدی آبی تهیه گردیدند. پودرهای سرامیکی سنتز شده پس از پرس شدن در دماهای مختلف پخت شدند. بر روی تمامی نمونه‌ها آزمون‌های اشعه ایکس (XRD)، میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) و اندازه‌گیری خواص دی‌الکتریک انجام شد. الگوی پراش اشعه ایکس نمونه‌های بالک ساخته شده از پودرهایی که با روش کلوییدی آبی سنتز شده بودند، تشکیل فاز خالص پروسکایت پیزوسرامیک بر پایه نایوبات سدیم-پتاسیم را نشان داد. آزمون اشعه ایکس نمونه‌های پخت شده که پودرهای اولیه آن با کمک روش سرامیکی سنتی تهیه شده بودند علاوه بر ساختار پروسکایت، تشکیل فاز ناخالصی با ساختار تتراگونال تنگستن-برنز را نیز نشان داد. تصاویر SEM نمونه‌های بالک پیزوسرامیکی تهیه شده از هر دو روش سرامیکی و کلوییدی آبی مورفولوژی مکعبی شکل دانه‌های نایوبات سدیم-پتاسیم را به وضوح نشان داد. ضریب دی‌الکتریک نمونه‌های تهیه شده به کمک روش سرامیکی سنتی بالاتر از قرص‌های ساخته شده به کمک روش کلوییدی آبی بوده در حالی که میزان اتلاف دی‌الکتریک برای نمونه‌های تهیه شده به روش کلوییدی آبی پایین‌تر بود.

**کلمات کلیدی:** ضریب دی‌الکتریک، روش کلوییدی آبی، نایوبات سدیم-پتاسیم، XRD و SEM.

## The Effect of Synthesis Route on the Microstructure and Dielectric Properties of Bulk (K<sub>0.44</sub>Na<sub>0.52</sub>Li<sub>0.04</sub>)(Ta<sub>0.1</sub>Sb<sub>0.06</sub>Nb<sub>0.84</sub>)O<sub>3</sub> Piezoceramics

Mohamad Ali Bahrevar<sup>1\*</sup>, Mehdi Delshad Chermahini<sup>1</sup>, Mohamad Reza Rahimpour<sup>1</sup> and Homan Shokrollahi<sup>2</sup>

<sup>1</sup> *Materials and Energy Research Center, Department of Semiconductors, Materials and Energy Research Center, Karaj, Iran*

<sup>2</sup> *Shiraz University of Technology, Department of Electroceramic, Shiraz Shiraz University of Technology Shiraz, Iran*

**Abstract** Lead free piezoceramics of the (K<sub>0.44</sub>Na<sub>0.52</sub>Li<sub>0.04</sub>)(Ta<sub>0.1</sub>Sb<sub>0.06</sub>Nb<sub>0.84</sub>)O<sub>3</sub> specimens powders were prepared using the conventional ceramic and aqueous colloidal coating approach. The microstructure and dielectric properties of sintered samples ceramics prepared by both techniques were investigated for comparison. The XRD patterns indicate the formation of pure perovskite phase for samples ceramic prepared by colloidal technique. An additional impurity phase

\*محمدعلی بهره‌ور

نشانی: کرج، پژوهشگاه مواد و انرژی

تلفن: ۰۹۱۲۱۰۵۵۴۹۳، دورنگار: ، پیام‌نگار: mabahrevar@gmail.com

\*عده دار مکاتبات

نشانی: کرج، مشکین دشت، پژوهشگاه مواد و انرژی، تلفن: ۰۹۱۲۱۰۵۵۴۹۳، دورنگار: ، پیام‌نگار: mabahrevar@gmail.com

with tungsten bronze structure was detected for sample ceramic synthesized by the conventional method. For both methods, the typical cube-like morphology of KNN-LST systems with the bimodal distribution was clearly obviously observed. The relative permittivity and loss factor of samples synthesized by aqueous colloidal coating approach were higher and lower than those obtained by conventional ceramic technique, respectively.

**Keywords:**— Dielectric properties, Aqueous colloidal coating approach, Potassium sodium niobate, XRD, SEM.

Archive of SID

## ۱- مقدمه

محیط مورد نظر می‌باشد استفاده از KNN محدود می‌شود. محققین به منظور رسیدن به خواص الکتریکی مناسب به دنبال کاهش دمای PPT به محدوده دمای محیط می‌باشند. یک راهکار برای این قضیه افزودن همزمان لیتیم، آنتیموان و تانتالیوم به ساختار KNN می‌باشد [۸]. یکی از مهم‌ترین ترکیباتی که پدیده PPT در دمای محیط از خود نشان داده است  $(K_{0.44}Na_{0.52}Li_{0.04})(Ta_{0.1}Sb_{0.06}Nb_{0.84})O_3$  می‌باشد که به صورت اختصار **KNN-LSTKNN-LNS** نوشته می‌شود.

مهم‌ترین نکات تکنیکی که در حین پرورده سنتز و پخت پودرهای سرامیکی برپایه نایوبات سدیم-پتاسیم به منظور رسیدن به قرص‌های با کیفیت و خواص الکتریکی بالا وجود دارد، دقت در عملیات مخلوط سازی اولیه و جلوگیری از تبخیر عناصر فرار موجود در سیستم (سدیم، پتاسیم و لیتیم) طی پخت در دماهای بالاتر از  $1000^{\circ}C$  می‌باشند [۹]. به منظور کاهش تبخیر عناصر فرار از افزودنی‌هایی مانند  $MnO_2$  و  $CuO$  استفاده می‌شود که با تشکیل فاز مذاب باعث کاهش دمای پخت و در نتیجه کاهش تبخیر عناصر فرار می‌شوند. برای بهبود عملیات مخلوط سازی می‌توان روش سنتز را اصلاح کرد.

در این پروژه پودرهای پیزوسرامیکی بدون سرب  $(K_{0.44}Na_{0.52}Li_{0.04})(Ta_{0.1}Sb_{0.06}Nb_{0.84})O_3$  به روش سرامیکی سنتی و پوشش‌دهی کلوییدی آبی تهیه شدند که عملیات مخلوط سازی در این دو روش کاملاً متفاوت می‌باشد. بنابراین بررسی‌های میکروساختاری و اندازه‌گیری‌های خواص دی‌الکتریکی نمونه‌های تهیه شده می‌تواند راهگشای رسیدن به نمونه‌های پیزوسرامیکی با کیفیت و خواص مطلوب باشد. علاوه بر این، بررسی وقوع پدیده PPT و تاثیر آن بر خواص دی‌الکتریکی ماده می‌تواند به سایر محققین کمک نماید. در مقایسه با کارهای انجام شده [۱۰] در گذشته روش کلوییدی آبی- که قبلاً کمتر به کار گرفته شده، برای سنتز پیزوسرامیک **KNN-LSTKNN-LNS** مورد استفاده قرار گرفت.

## ۲- نحوه آزمایش روش تحقیق

پودرهای اولیه  $Ta_2O_5$ ،  $Sb_2O_3$ ،  $Nb_2O_5$ ،  $K_2CO_3$ ،  $Na_2CO_3$  و  $Li_2CO_3$  تهیه شده از کمپانی آلد ریچ با خلوص بالا، به منظور سنتز پودر پیزوسرامیک برپایه نایوبات

مواد فروالکتریک بر پایه سرب به دلیل برخورداری از خواص الکترومکانیکی و پیزوالکتریکی فوق‌العاده، کاربردهای فراوانی در زمینه صنایع الکترونیک و مهندسی به عنوان مثال سنسورها و مبدل‌ها دارند [۱]. با این وجود به دلیل سمی بودن سرب تحقیقات بسیاری بر روی مواد پیزوسرامیکی بدون سرب در سراسر جهان در حال انجام می‌باشد [۲]. در بین سرامیک‌های سازگار با محیط زیست دو گروه تیتانات بیسموت-سدیم-پتاسیم  $Bi_{0.5}(Na_{1-x}K_x)_{0.5}TiO_3$  [۳] که به صورت اختصار BNKT نوشته می‌شود و نایوبات سدیم-پتاسیم  $K_xNa_{1-x}NbO_3$  [۴] که به طور مختصر KNN نوشته می‌شود، به علت دارا بودن خواص الکترومکانیکی و پیزوسرامیکی قابل رقابت با فروالکتریک‌های بر پایه سرب از اهمیت ویژه‌ای برخوردار هستند. مورد اخیر که محلول جامدی از نایوبات پتاسیم (یک ماده فروالکتریک) با ساختار پروسکایت ارتورومبیک و نایوبات سدیم (یک ماده آنتی فروالکتریک) با ساختار ارتورومبیک می‌باشد دارای خواص فروالکتریک مناسبی است [۵]. با افزودن ۲٪ مولی پتاسیم به فاز پروسکایت نایوبات سدیم محلول جامد حاصل از نظر ساختار تقارنی کریستالی و خواص فروالکتریکی مشابه فاز نایوبات پتاسیم می‌شود. در دمای محیط KNN با نسبت سدیم به پتاسیم برابر دارای ساختار ارتورومبیک با گروه تقارنی فضایی  $Amm2$  می‌باشد. با افزایش دما تا حدود  $220^{\circ}C$  ساختار پروسکایت ارتورومبیک طی یک استحاله فازی به پروسکایت تتراگونال با تقارن فضایی  $P4mm$  تبدیل می‌شود [۶]. این گروه تقارنی هم دارای خاصیت فروالکتریکی می‌باشد. چنانچه ماده در محدوده دمای استحاله قرار گیرد به طوری که همزمان دارای دو ساختار فروالکتریک پروسکایت تتراگونال و ارتورومبیک باشد، پدیده حاصل را استحاله فازی پلی‌مورفیک (polymorphic phase transition یا به صورت اختصار PPT) می‌نامند. در پدیده PPT به دلیل حضور همزمان دو ساختار

فروالکتریک خواص پیزوالکتریکی و فروالکتریکی ماده به شدت بهبود می‌یابد [۷]. از آنجایی که دمای PPT برای پیزوسرامیک KNN بالاتر از دمای محیط بوده می‌باشد با توجه به این نکته که در بیشتر مواقع کاربردهای در دمای

این مشکل از دولاپیکس (CE64) به عنوان پایداریکننده استفاده شد. به منظور تهیه هر ترکیب میزان مورد نیاز از کربنات سدیم، پتاسیم و لیتیوم به صورت جداگانه در آب دیونیزه شامل ۱٪ وزنی دولاپیکس (64 CE) اضافه گردیده شد و با کمک همزن مغناطیسی به مدت یک ساعت حل شدند. محلول‌های شفاف حاصل از مرحله قبل به یک بشر ریخته شده و به مدت ۵ دقیقه تحت عملیات همزدن مغناطیسی قرار گرفت. پس از آن پودرهای اکسیدی  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ،  $\text{Sb}_2\text{O}_3$ ،  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  به ترتیب به محلول شفاف در حال هم‌خوردن مرحله قبل اضافه شد و به مدت ۲۰ دقیقه مخلوط گردیدند. سپس این محلول شیری رنگ حاصل ۲۰ دقیقه تحت عملیات التراسونیک قرار گرفت و در پایان محلول حاصل به منظور مخلوط شدن کامل ذرات اکسیدی در محلول نمک به مدت ۹۰ ثانیه و در دو مرحله ۴۵ ثانیه‌ای تحت عملیات سونیکیت با کمک دستگاه Misonix Sonicator S-4000 ultrasonic processor (50 W, 20 kHz) قرار گرفت. بلافاصله بعد از عملیات سونیکیت محلول حاصل در آون با دمای  $180^\circ\text{C}$  به مدت ۱۰ ساعت برای خشک شدن و تشکیل پوشش کلوییدی قرار گرفت. داده شد. محصول مرحله قبل با کمک هاون عقیق خرد شده و آماده سنتز شد. مانند روش سرامیکی سنتی پودرهای مرحله قبل به مدت ۳ ساعت در دمای  $800^\circ\text{C}$  جهت به منظور سنتز پودر فرواکتریک  $\text{KNN-LSTKNL-NTS}$  کلسینه شدند.

در این مرحله پودر کلسینه شده در محیط آب دیونیزه با نسبت وزنی کلوله به پودر ۱:۱۰ و دور  $1800\text{-rpm}$  به منظور خرد شدن آگلومره‌های ناشی از فرایند کلسیناسیون آسیاب شدند. دوغاب حاصل خشک شد و با کمک هاون عقیق خرد شده، سپس پودر حاصل از الک با مش ۴۵ عبور داده و شد با استفاده از محلول حاوی PVA ۲٪ به عنوان بایندر گرانول شدند. پس از آن سپس نمونه‌هایی خام به صورت قرص‌هایی با قطر  $13\text{ mm}$  و ضخامت  $1\text{ mm}$  توسط پرس تک محوره با فشار  $150\text{ Mpa}$  تهیه شد و در پایان نمونه‌ها در دماهای مختلف بین  $1110^\circ\text{C}$  و  $1140^\circ\text{C}$  به مدت یک ساعت پخت شدند. دانسیته نمونه‌های تهیه شده با کمک روش ارشمیدس اندازه‌گیری گردیدند. جهت به منظور بررسی‌های فازی، میکروساختاری و مورفولوژیکی بر روی پودرهای کلسینه شده و نمونه‌های سیتر شده آنالیز XRD و SEM انجام شد.

سدیم-پتاسیم دوپ شده با انتیموان، لیتیوم و تانتالیوم به روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی استفاده شدند. برای سنتز پودر پیزوسرامیک  $\text{KNN-LSTKNL-NTS}$  از دو روش سرامیکی سنتی و پوشش‌دهی کلوییدی آبی استفاده شد که جزئیات هر روش به صورت زیر می‌باشد.

#### روش سرامیکی:

در ابتدا پودرهای مواد اولیه به خاطر این‌که جاذب رطوبت هوا هستند، در آون به مدت ۱۰ ساعت در دمای  $100^\circ\text{C}$  به منظور خشک شدن پودرها حرارت داده شدند و در توزین پودرهای مواد اولیه دقت لازم به عمل آمد. سپس پودرها به منظور رسیدن به استوکیومتری مورد نیاز و جلوگیری از جذب مجدد رطوبت که می‌تواند باعث بروز خطا در محاسبات شود، سریعاً وزن شدند. پودرهای مواد اولیه بعد از توزین در محیط اتانول با کمک آسیاب سیاره‌ای به منظور مخلوط شدن به مدت ۶ ساعت با نسبت وزنی کلوله به پودر پنج به یک و سرعت  $1400\text{ rpm}$  آسیاب می‌شوند. پس از خشک شدن دوغاب حاصل، پودرهای حاصل به مدت ۳ ساعت در دمای  $800^\circ\text{C}$  به منظور سنتز پودر فرواکتریک  $\text{KNN-LSTKNL-NTS}$  کلسینه شدند.

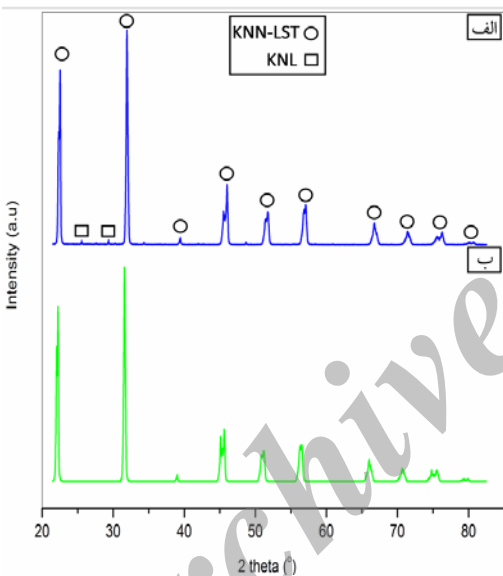
#### روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی:

در این روش نیز خشک کردن و توزین پودرها مانند روش سنتی می‌باشد. از آنجایی که پودرهای اولیه کربنات سدیم، پتاسیم و لیتیوم در محیط آب دیونیزه قابلیت حل شدن کامل دارند. روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی می‌تواند برای تولید این دسته از مواد بررسی شود. این روش شامل حل شدن ذرات نمک در آب و سپس توزیع ذرات اکسیدی در محلول حاصل می‌باشد. پس از آن با تبخیر آب حاصل در اثر حرارت دادن در آون پوششی کلوییدی، از ذرات ریز نمک حل شده بر روی پودرهای اکسیدی تشکیل می‌شود که می‌تواند به مخلوط شدن موثرتر نسبت به روش مخلوط کردن معمول منتهی شود. در نتیجه این امر به تشکیل فاز همگن فرواکتریک نایوبات سدیم-پتاسیم کمک می‌کند، اما مشکل این روش عدم توزیع مناسب ذرات اکسیدی  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ،  $\text{Sb}_2\text{O}_3$ ،  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  در محیط آب دیونیزه در مقایسه با اتانول می‌باشد. برای رفع

بر پایه نایوبات سدیم-پتاسیم می‌باشد [۱۱] به وضوح دیده می‌شود. اندازه دانه‌ها در روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی ریزتر از روش سنتی سرامیکی می‌باشد. اندازه دانه می‌تواند خواص دی‌الکتریک، پیزوالکتریک و فروالکتریک نمونه حاصل را تحت تاثیر قرار دهد.

### ۲-۳- بررسی فازی و ساختاری

در شکل (۲) الگوی تفرق اشعه ایکس (XRD) مربوط به نمونه پیزوالکتریک KNN-LST سنتز شده به کمک روش سنتی و پوشش‌دهی کلوییدی آبی سیتتر شده در دمای  $1130^{\circ}\text{C}$  به مدت  $1$  یک ساعت مشاهده می‌شود.



شکل ۲. نمودار XRD نمونه پیزوالکتریک KNN-LST پخت شده در دمای  $1130^{\circ}\text{C}$  از پودر سنتز شده به روش (الف) سنتی سرامیکی، (ب) پوشش‌دهی کلوییدی.

### همان‌طوری‌که همان‌طوریکه در شکل (۲) دیده می‌شود

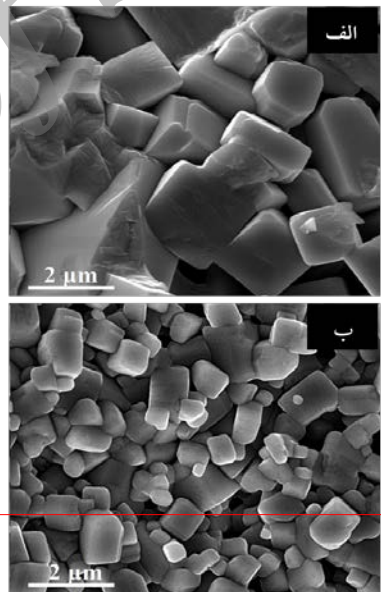
نمونه سنتز شده با کمک روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی حضور ساختار پروسکایت بر پایه نایوبات سدیم-پتاسیم با شماره کارت مرجع ۰۹۴۸-۰۷۱-۰۱ را به صورت تک‌فاز نشان می‌دهند و در محدوده دقت آنالیز XRD اثری از تشکیل فاز دوم ناخالصی مشاهده نمی‌شود. عدم مشاهده فاز دوم دلالت بر نفوذ کامل لیتیم، تانتالیوم و آنتیموان در شبکه پایه KNN

سطوح قرص‌های تهیه شده از مراحل قبل توسط چسب نقره پوشیده شدند. در دمای  $600^{\circ}\text{C}$  به مدت ۱۵ دقیقه جهت خشک شدن چسب نقره حرارت داده شدند. در پایان اندازه گیری‌های خواص دی‌الکتریک با کمک دستگاه (HP4291 Impedance Analyzer (Agilent, Palo Alto, CA) صورت گرفت. انجام شد.

### ۳- نتایج و بحث

#### ۱-۳- بررسی ریزساختاری و مورفولوژی

شکل (۱) تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) مربوط به نمونه پیزوالکتریک KNN-LST سنتز شده به کمک روش سنتی و پوشش‌دهی کلوییدی آبی سیتتر شده در دمای  $1130^{\circ}\text{C}$  به مدت  $1$  یک ساعت را نشان می‌دهد.



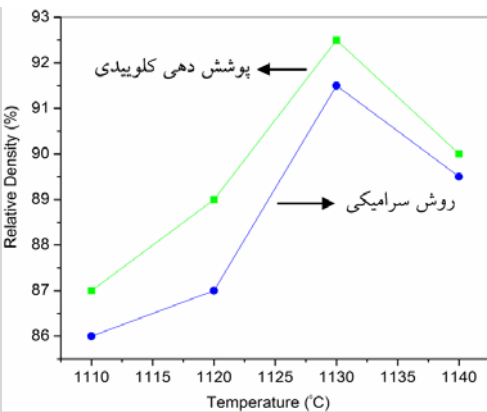
شکل ۱. تصاویر SEM نمونه پیزوالکتریک KNN-LST پخت شده در دمای  $1130^{\circ}\text{C}$  از پودر سنتز شده به روش (الف) سنتی سرامیکی، (ب) پوشش‌دهی کلوییدی.

همان‌طوری‌که همان‌طوریکه در شکل (۱) مشاهده می‌شود برای هر دو روش نمونه‌های پیزوسرامیک با ساختار فشرده و مورفولوژی مکعبی دانه‌ها که از مشخصه‌های پیزوسرامیک‌های

و تشکیل فاز KNN-LST دارد. بنابر نتایج حاصل از الگوی تفرق اشعه ایکس نمونه‌ها مشاهده می‌شود نشان می‌دهد که عملیات پخت با موفقیت انجام شده و فاز دوم در حین این عملیات تشکیل نشده است. در نمودار XRD نمونه سنتز شده به روش سرامیکی سنتی علاوه بر ساختار پروسکایت، پیک‌های مربوط به فاز دوم  $K_3LiNb_6O_{17}$  (که به صورت اختصار KLN نوشته می‌شود) در زوایای بین  $25^\circ$  تا  $30^\circ$  مشاهده دیده شدند. ژو و همکارانش [۱۲] نشان دادند که یکی از فازهای ناخالصی که معمولاً در حین پخت نمونه‌های فروالکتریک بر پایه نایوبات سدیم-پتاسیم تشکیل می‌شود فاز KLN با شماره کارت ۰۵۳۳-۳۶ و ساختار کریستالوگرافی موسوم به تنگستن-برنز تتراگونال (TTB) می‌باشد. این فاز یک اکسید شفاف با دمای انتقال فروالکتریک-پارالکتریک حدود  $420^\circ C$  است که تشکیل آن این فاز می‌تواند خواص دی‌الکتریک، پیزوالکتریک و فروالکتریک نمونه حاصل را تحت تاثیر قرار دهد. فاز KLN در اثر تبخیر اجزای فرار موجود در سیستم از جمله Na، K و Li تشکیل می‌شود. هرچند میزان تبخیر این اجزا در دماهای مختلف متفاوت گزارش شده است [۱۳]، در تمامی دماهای بالاتر از  $1000^\circ C$  میزان تبخیر سدیم به مراتب بالاتر از پتاسیم و لیتیم می‌باشد. بنابر این در مناطقی که از سدیم فقیر باشد احتمال تشکیل فاز دوم KLN وجود دارد. با کنترل مناسب پروسه پخت و همچنین مخلوط سازی مطلوب می‌توان از تشکیل این فاز جلوگیری کرد. بنابراین عدم تشکیل این فاز در روش پوشش دهی کلوییدی آبی دلالت بر مخلوط سازی موثرتر در این روش نسبت به روش سنتی سرامیکی دارد.

### ۳-۳ بررسی دانسیته نسبی

در شکل ۳-۳ (۳) دانسیته نسبی مربوط به نمونه‌های پیزوسرامیک KNL-NTS سنتز شده به کمک روش سرامیکی سنتی و پوشش دهی کلوییدی آبی برحسب دمای پخت ارزیابی شده است. همان‌طوری که در شکل ۳-۳ (۳) می‌بینیم برای هر دو روش با افزایش دمای پخت از  $1110^\circ C$  تا  $1130^\circ C$ ، دانسیته نمونه‌ها افزایش می‌یابد و سپس با افزایش بیشتر دما تا  $1140^\circ C$  میزان دانسیته کاهش می‌یابد. کاهش مقادیر دانسیته نسبی نمونه‌های پیزوالکتریک KNN-LST در دمای بالاتر از



شکل ۳. نمودار دانسیته نسبی نمونه‌های پیزوالکتریک KNN-LST برحسب دمای پخت.

از آنجایی که اندازه دانه می‌تواند خواص دی‌الکتریک، پیزوالکتریک و فروالکتریک نمونه حاصل را تحت تاثیر قرار دهد، انتظار می‌رود که نمونه‌های تهیه شده به کمک روش پوشش دهی کلوییدی آبی نسبت به روش سرامیکی سنتی، خواص دی‌الکتریک مناسب‌تری دارا باشند.

### ۳-۴ بررسی خواص دی‌الکتریکی

در جدول ۳-۴ (۱) مقادیر ضریب دی‌الکتریک و فاکتور اتلاف مربوط به نمونه‌های پیزوسرامیک KNN-LST سنتز شده به کمک روش پوشش دهی کلوییدی آبی و سرامیکی سنتی، پخت شده در دماهای  $1130^\circ C$  و  $1140^\circ C$  به مدت یک ساعت ارزیابی شده است.

جدول ۱. مقادیر ضریب دی‌الکتریک و فاکتور اتلاف در فرکانس ۱ kHz برای نمونه‌های پیزوالکتریک KNN-LST سنتز شده به روش کلوییدی آبی و سنتی سرامیکی پخت شده در دماهای مختلف.

نمونه	ضریب دی‌الکتریک	فاکتور اتلاف
روش کلوییدی، دمای پخت $1130^\circ C$	۱۷۶۰	۰/۰۲۹
روش کلوییدی، دمای پخت $1140^\circ C$	۱۳۹۵	۰/۰۸

سدیم-پتاسیم را به صورت تک‌فاز نشان می‌دهند. در نمونه سنتز شده به روش سرامیکی سنتی و سپس پخت شده علاوه بر ساختار پروسکایت، پیک‌های مربوط به فاز دوم  $K_3LiNb_6O_{17}$  نیز مشاهده شد. برای هر دو روش با افزایش دمای پخت از  $1110^\circ C$  تا  $1130^\circ C$ ، دانسیته نمونه‌ها افزایش یافته می‌یابد و سپس با افزایش بیشتر دما تا  $1140^\circ C$  میزان دانسیته کاهش می‌یابد.

علاوه بر این مقادیر دانسیته در تمامی دماهای پخت برای روش پوشش-دهی کلوییدی آبی بالاتر می‌باشد. مقادیر ضریب  $d_{33}$  الکتریک برای نمونه سنتز شده به کمک روش پوشش-دهی کلوییدی نسبت به روش سنتی سرامیکی بالاتر و فاکتور اتلاف پایین‌تر می‌باشد.

#### مراجع

- Hollenstein, E., Damjanovic, D., Setter, N., "Temperature stability of the piezoelectric properties of Li-modified KNN ceramics", *Journal of the European Ceramic Society*, 2007, 27, 4093-4097.
- Bomlai, P., Muensit, N., "Structural and electrical properties of  $Na_{0.47}K_{0.06}Li_{0.06}NbO_3$  lead-free piezoelectric ceramics modified by  $AgSbO_3$ ", *Ceramic International*, 2013, 39, S135-S138.
- Moosavi, A., Bahrevar, M. A., Aghaei, A. R., Ramos, "High-field electromechanical response of  $Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO_3-Bi_{0.5}K_{0.5}TiO_3$  across its morphotropic phase boundary", *Journal of Physics D: Applied Physics*, 47 055304 doi:10.1088/0022-3727/47/5/055304.
- Bernard, J., Wan, A. B., Rojac, T., "Low-temperature sintering of  $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$  ceramics", *Journal of the American Ceramic Society*, 2008, 91, 2409-2411.
- Zhengfa, L., Yongxiang, L., Jiwei, Z., "Grain growth and piezoelectric property of KNN-based lead-free ceramics", *Current Applied Physics*, 2011, 11, S2-S13.
- Feng, J., Li, J., Wang, K., Zhu, F., Cheng, L., "(K, Na)NbO<sub>3</sub>-Based Lead-Free Piezoceramics: Fundamental aspects, processing technologies, and remaining challenges", *Journal of the American Ceramic Society*, 2013, 96, 3677-3696.
- Wada, S., Yamashita, K., "Enhanced piezoelectric properties of barium titanate-potassium niobate nano-structured ceramics by MPB engineering", *Ceramic International*, 2013, 39, S97-S102.
- Wada, S., Yamashita, K., "Enhanced piezoelectric properties of barium titanate-potassium niobate nano-structured ceramics by MPB engineering", *Ceramic International*, 2013, 39, S97-S102.
- Xu, Z., Wu, L., Chu, Z. R., Zeng, H., "Enlarged polymorphic phase transition boundary and enhanced piezoelectricity in ternary component  $0.8Ba_{1-x}Ca_xTiO_3-0.1BaTi_{0.8}Zr_{0.2}O_3$

پخت $1140^\circ C$		
روش سنتی، دمای پخت $1130^\circ C$	۱۶۵۰	۰/۰۳۵
روش سنتی، دمای پخت $1140^\circ C$	۱۲۰۰	۰/۰۹

همان‌طوری که همان‌طوریکه مشاهده می‌شود مقادیر

ضریب  $d_{33}$  الکتریک در هر دو دمای پخت برای نمونه سنتز شده به کمک روش پوشش-دهی کلوییدی نسبت به روش سنتی سرامیکی بالاتر می‌باشد. همان‌گونه که در قسمت‌های قبل ذکر شد عواملی چون تشکیل فاز دوم ناخالصی و دانسیته نمونه‌ها می‌تواند بر خواص  $d_{33}$  الکتریک تاثیر گذار باشد [شیر و ۵]. بنابراین این بالاتر بودن ضریب  $d_{33}$  الکتریک نمونه سنتز شده به روش پوشش-دهی کلوییدی نسبت به روش سرامیکی می‌تواند به دلیل عدم تشکیل فاز KLN و همچنین بالاتر بودن دانسیته نمونه‌های تهیه شده با کمک روش پوشش-دهی کلوییدی باشد. از طرف دیگر فاکتور اتلاف برای نمونه‌های تهیه شده به هر دو روش تقریباً یکسان می‌باشد. علاوه بر این در هر دو روش سنتز با افزایش دمای پخت از  $1130^\circ C$  به  $1140^\circ C$  مقادیر ضریب  $d_{33}$  الکتریک کاهش یافته و فاکتور اتلاف نمونه‌ها افزایش می‌یابد. ضریب  $d_{33}$  الکتریک برای پیروسرامیک KNN-LST در بازه  $1570^\circ C$  تا  $1750^\circ C$  گزارش شده است [۱۰، ۱۱]. مقادیر ضریب  $d_{33}$  الکتریک در تحقیق حاضر برای روش پوشش-دهی کلوییدی آبی  $1760^\circ C$  گزارش شده که نشان‌دهنده موفقیت آمیز بودن روش مذکور در تولید پیروسرامیک KNN-LST می‌باشد.

#### ۴-۴- نتیجه گیری

در این تحقیق پودرهای پیروسرامیکی بدون سرب  $(K_{0.44}Na_{0.52}Li_{0.04})(Ta_{0.1}Sb_{0.06}Nb_{0.84})O_3$  به دو روش سرامیکی سنتی و پوشش-دهی کلوییدی آبی تهیه شدند. در هر دو روش نمونه‌های پیروسرامیک با ساختار فشرده و مورفولوژی مکعبی دانه‌ها که از مشخصه‌های پیروسرامیک‌های بر پایه نایوبات سدیم-پتاسیم می‌باشد، مشاهده گردیدند. نمونه سنتز شده با کمک روش پوشش-دهی کلوییدی آبی و سپس پخت شده حضور ساختار پروسکایت بر پایه نایوبات

- 0.1BaTi<sub>0.9</sub>Sn<sub>0.1</sub>O<sub>3</sub> ceramics", *Materials Letters*, 2013, 110, 80-82.
9. Wongsanmai, S., Ananta, S., Yimnirun, R., R. "Effect of Li addition on phase formation behavior and electrical properties of (K<sub>0.5</sub>Na<sub>0.5</sub>)NbO<sub>3</sub> lead free ceramics", *Ceramic International*, 2012, 39, 147-152.
10. Hagh, N. M., Kerman, K., Safari, A., A., "Dielectric and piezoelectric properties of Cu<sup>2+</sup>-doped alkali niobates", *Journal of the European Ceramic Society*, 2009, 29, 2325-2332.
11. Mgbemere, H. E., Herber, R. P., Gerold A. S., A. S., "Effect of MnO<sub>2</sub> on the dielectric and piezoelectric properties of alkaline niobate based lead free piezoelectric ceramics", *Journal of the European Ceramic Society*, 2009, 29, 1729-1733.
12. Qian, S., Kongjun, Z., Pang, X., "Phase transition, microstructure and dielectric properties of Li/Ta/Sbco-doped(K,Na)NbO<sub>3</sub> lead-free ceramics", *Ceramics International*, 2014, 40, 4389-4394.
14. Saito, Y., Takao, H., Tani, T., Nonoyama, T., Takatori, K., Homma, T., Nagaya, T., Nakamura, M., "Lead-free piezoceramics", *Nature*. 2004, 432 84-87.
13. Wang, K., (K, Na)NbO<sub>3</sub>-based lead-free piezoceramics: Phase transition, sintering and property enhancement", *Journal of Advanced Ceramics*, 2012, 1(1) 24-37.

Archive of SID