

اثر روش سنتز بر میکروساختار و خواص دیالکتریک پیزوسرامیک بدون سرب

(K_{0.44}Na_{0.52}Li_{0.04})(Ta_{0.1}Sb_{0.06}Nb_{0.84})O₃

محمدعلی بهرهور^{۱*}، مهدی دلشاد چرمینی^۱، محمد رضا رحیمی پور^۱، همان شکرالهی^۲

^۱پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج، ایران

^۲دانشگاه صنعتی شیراز، شیراز، ایران

تاریخ ثبت اولیه: ۱۷/۰۱/۱۳۹۴. تاریخ دریافت نسخه اصلاح شده: ۰۶/۰۳/۱۳۹۲. تاریخ پذیرش قطعی: ۰۶/۰۴/۱۳۹۴.

چکیده در این تحقیق پودرهای پیزوسرامیکی بدون سرب (K_{0.44}Na_{0.52}Li_{0.04})(Ta_{0.1}Sb_{0.06}Nb_{0.84})O₃) به دو روش سرامیکی سنتی و پوشش‌دهی کلوییدی آبی تهییه گردید. پودرهای سرامیکی سنتز شده پس از پرس شدن در دماهای مختلف پخت شدند. بر روی تمامی نمونه‌ها آزمون‌های اشعه ایکس (XRD)، میکروسکوب الکترونی روشی (SEM) و اندازه‌گیری خواص دیالکتریکی 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-پتانسیم را نشان داد. آزمون اشعه ایکس نمونه‌های پخت شده که پودرهای اولیه آن با کمک روش سرامیکی سنتی تهییه شده بودند علاوه بر ساختار پروسکایت، تشکیل فاز ناخالصی با ساختار تراگونال تنگستن-برنز را نیز نشان داد. تصاویر SEM نمونه‌های بالک پیزوسرامیکی تهییه شده از هر دو روش سرامیکی و کلوییدی آبی مورفوولوژی مکعبی شکل دانه‌های نایوبات سدیم پتانسیم را بوضوح نشان داد. ضریب دیالکتریک نمونه‌های تهییه شده به کمک روش سرامیکی سنتی بالاتر از فرچه‌های ساخته شده پایه تکیکی روش کلوییدی آبی بوده در حالی که میزان اختلاف دیالکتریک برای نمونه‌های تهییه شده به روش کلوییدی آبی پایین‌تر بود.

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

The Effect of Synthesis Route on the Microstructure and Dielectric Properties of Bulk (K_{0.44}.Na_{0.52}Li_{0.04})(Ta_{0.1}Sb_{0.06}Nb_{0.84})O₃ Piezoceramics

Mohamad Ali A. Bahrevar^{*1}, Mehdi Delshad Chermahini¹, Mohamad Reza R. Rahimipour¹ and Homan Shokrollahi²

¹ Materials and Energy Research Center, Department of Semiconductor, Materials and Energy Research Center, Karaj, Iran

² Shiraz University of Technology, Department of Electroceramic, Shiraz Shiraz University of Technology Shiraz, Iran

Abstract Lead free piezoceramics of the (K_{0.44}Na_{0.52}Li_{0.04})(Ta_{0.1}Sb_{0.06}Nb_{0.84})O₃ specimen powders were prepared using the conventional ceramic and aqueous colloidal coating approach. The microstructure and dielectric properties of sintered samples prepared by both techniques were investigated for comparison. The XRD patterns indicate the formation of pure perovskite phase for samples prepared by colloidal technique. An additional impurity phase

**محمدعلی بهرهور

نظامی، کرج، پژوهشگاه مواد و انرژی

تلفن: ۰۲۶۱۰۵۵۴۹۳، دورنگار: ۰۹۱۲۱۰۵۵۴۹۳، پامنگار: mabahrevar@gmail.com

*عهده دار مکاتبات

عنوانی: کرج، مشکین دشت، پژوهشگاه مواد و انرژی، تلفن: ۰۹۱۲۱۰۵۵۴۹۳، دورنگار: -، پامنگار: mabahrevar@gmail.com

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

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

Formatted: Not Highlight

محیط مورد نظر می‌باشد استفاده از KNN محدود می‌شود. محققین به منظور رسیدن به خواص الکتریکی مناسب به دنبال کاهش دمای PPT بدمودده^۵ دمای محیط^۶ بیاشتاده‌استند. یک راهکار برای این قضیه افزودن همراهان لیتیوم، آنتیمان و تانتالیوم به ساختار KNN می‌باشد [۸]. یکی از مهم‌ترین ترکیباتی که پدیده PPT در دمای محیط از خود نشان داده است^۷ $K_{0.44}Na_{0.52}Li_{0.04}(Ta_{0.1}Sb_{0.06}Nb_{0.84})O_3$ می‌باشد که به صورت اختصار KNN-LSTKNN-LNS^۸ نوشته می‌شود. مهم‌ترین نکات تکنیکی که در حین پروسه ستز و پخت پودرهای سرامیکی برایه نایوبات سدیم-پتاسیم به^۹ منظور رسیدن به قرص‌های با کیفیت و خواص الکتریکی بالا وجود دارد^{۱۰} دقت در عملیات مخلوط سازی اولیه و جلوگیری از تبخیر عناصر فرار موجود در سیستم (سدیم، پتاسیم و لیتیوم) طی پخت در دمای بالاتر از ۱۰۰۰^{۱۱} می‌باشد. [۶] به منظور کاهش تبخیر عناصر فرار از افزودنی‌هایی مانند^{۱۲} MnO_2 و CuO استفاده^{۱۳} شده^{۱۴} که با تشکیل فاز مذاب باعث کاهش دمای پخت و در نتیجه^{۱۵} کاهش تبخیر عناصر فرار^{۱۶} می‌شوند. برای بهبود عملیات مخلوط سازی می‌توان روش ستز را اصلاح کرد.

در این پژوهه پودرهای پیزوسرامیکی بدون سرب^{۱۷} به^{۱۸} روش^{۱۹} سرامیکی ستز و پوشش دهی کلریدی آبی تهه شدن^{۲۰} 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 براین، بررسی وقوع پدیده^{۲۱} PPT و تاثیر آن بر خواص دی‌الکتریکی ماده می‌تواند به سایر محققین کمک نماید. در مقایسه با کارهای انجام شده [۱۰] در گذشته روش کلریدی آبی^{۲۲}- که قبل اکتمبر^{۲۳} کار گرفته شده، برای ستز پیزوسرامیک KNN-LSTKNN-LNS^{۲۴} مورد استفاده قرار گرفت.

۲- نحوه آزمایش و شرح تحقیق

پودرهای اولیه^{۲۵} Ta_2O_5 ، Sb_2O_3 ، Nb_2O_5 ، Na_2Co_3 ، K_2Co_3 و Li_2Co_3 تهیه شده از کمپانی آلدریچ با خلوص بالا، به منظور ستز پودر پیزوسرامیک برپایه نایوبات

۱- مقدمه

مواد فروالکتریک بر پایه^{۲۶} سرب^{۲۷} 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^{۲۸} 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^{۲۹} زیست دو گروه تیتانات بیسموت-سدیم-پتاسیم ($Bi_{0.5}(Na_{1-x}K_x)_{0.5}TiO_3$)^{۳۰} که به^{۳۱} صورت اختصار BNKT^{۳۲} نوشته می‌شود و نایوبات سدیم-پتاسیم^{۳۳} $K_xNa_{1-x}NbO_3$ که به^{۳۴} طور مختصر KNN نوشته می‌شود) به‌علت 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 آتسی 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 فروالکتریک مشابه فاز نایوبات پتاسیم می‌شود. در دمای محیط KNN با نسبت سدیم به پتاسیم برابر دارای ساختار ارتورومبیک با گروه تقارنی فضایی^{۳۵} Amm2 می‌باشد. با افزایش دما تا حدود ۲۲۰ °C ساختار پروسکایت ارتورومبیک طی یک استحاله فازی به پروسکایت تتراگونال با تقارن فضایی^{۳۶} P4mm تبدیل می‌شود. [۶] این گروه تقارنی هم دارای خاصیت فروالکتریک می‌باشد. چنانچه ماده در محدوده دمای استحاله قرار گیرد به^{۳۷} طوری که همزمان دارای دو ساختار فروالکتریک پروسکایت تتراگونال و ارتورومبیک باشد^{۳۸}. پدیده حاصل را استحاله فازی پلی‌مورفیک (PPT) polymorphic phase transition^{۳۹} می‌نامند. در پدیده PPT به^{۴۰} 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^{۴۱} بوده^{۴۲} می‌باشد و با توجه به این نکته که در بیشتر مواقع کاربردهای در دمای

Formatted: Superscript

Formatted: Indent: Before: 0 cm, First line: 0.9 cm, Don't adjust space between Latin and Asian text

Formatted: Font: 10 pt

Formatted: Indent: First line: 0.9 cm, Don't adjust space between Latin and Asian text

این مشکل از دولاپیکس (CE64) به عنوان پایدارکننده 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) اخته 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 Nb_2O_5 و Sb_2O_3 و Ta_2O_5 به ترتیب به محلول شفاف در حال هم خوردن مرحله قبل اضافه شد و به مدت ۲۰ دقیقه مخلوط گردیده شد. 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. بلافضله بعد از عملیات سونیکیت محلول حاصل در آون با دمای 180°C به مدت ۱۰ ساعت برای خشک شدن و تشکیل پوشش کلوییدی قرار گرفت. داده شد. محصول مرحله قبل با کمک هاون عقیق خرد شد و آماده ستز شد. مانند روش سرامیکی سنتی پودرهای مرحله قبل به مدت ۳ ساعت در دمای 800°C جهت پخته ستز پودر فراکتريک کلسینیه شدند. **KNN-LSTKNL-NTS**

در این مرحله پودر کلسینیه شده در محیط آب دیونیزه با نسبت وزنی گلوله به پودر ۱۰:۱ و دور 180° rpm به منظور خرد شدن اگلomerه‌های ناشی از فرایند کلسینیسیون آسیاب شدند. دوغاب حاصل خشک شد و با کمک هاون عقیق خرد شده، سپس پودر حاصل از الک با مش 45° عبور داده و شده، سپس از آن نمونه‌هایی خام به صورت قرص‌هایی شدند. سپس از آن نمونه‌هایی خام به صورت 1 mm با قطر 13 mm و ضخامت 1 mm با فشار 150 MPa تهیه شد و در پایان نمونه‌ها در دماهای 1110°C و 1140°C به مدت یک ساعت پخت شدند. دانسیته نمونه‌های تهیه شده با کمک روش ارشمیدس اندازه گیری گردیده. جهت پخته بررسی مای فازی، میکروساختاری و مورفلوژیکی بر روی پودرهای کلسینیه شده و نمونه‌های سیتر شده آنالیز XRD و SEM انجام شد.

سدیم- پتاسیم دوب شده با انتیموان، لیتیم و تانتالیوم به روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی استفاده شدند. برای ستز پودر پیزوسرامیک **KNN-LSTKNN-LNS** 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 200°C به منظور خشک **شتموند پرمها** 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 خطأ در محاسبات شود) سریعاً وزن شدند. پودرها می‌توانند پودر پنچ به یک و سرعت 140 rpm آسیاب می‌شوند. پس از خشک شدن دوغاب حاصل، پودرهای **حائل** به مدت ۳ ساعت در دمای 800°C به منظور ستز پودر فراکتريک **KNN-LSTKNL-NTS** کلسینیه شدند.

روش پوشش دهی 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. سپس 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 موثر نسبت به روش مخلوط کردن معمول متوجه شود. نتیجه این امر به تشکیل فاز همگن فراکتريک نایوبات سدیم- پتاسیم کمک می‌کند، اما مشکل این روش عدم توزیع مناسب ذرات اکسیدی Nb_2O_5 ، Sb_2O_3 و Ta_2O_5 در محیط آب دیونیزه در مقایسه با اثانول می‌باشد. برای رفع

Formatted: Not Highlight

Formatted: Font: 12 pt, Complex Script Font 12 pt

Formatted: Font: 10 pt

Formatted: Not Highlight

Formatted: Indent: Before: 0.06 cm, First line: 0.9 cm, Don't adjust space between Latin and Asian text

Formatted: Superscript

Formatted: Superscript

Formatted: Not Highlight

Formatted: Superscript

Formatted: Font: 10 pt

Formatted: Superscript

Formatted: Font: 10 pt

Formatted: Font: 10 pt, Complex Script Font 10 pt

Formatted: Indent: Before: 0 cm, First line: 0.9 cm, Don't adjust space between Latin and Asian text

Formatted: Font: 10 pt, Complex Script Font 10 pt

Formatted: Font: 10 pt, Complex Script Font 10 pt

Formatted: Font: 10 pt, Not Highlight

Formatted: Not Highlight

Formatted: Not Highlight

Formatted: Superscript, Not Highlight

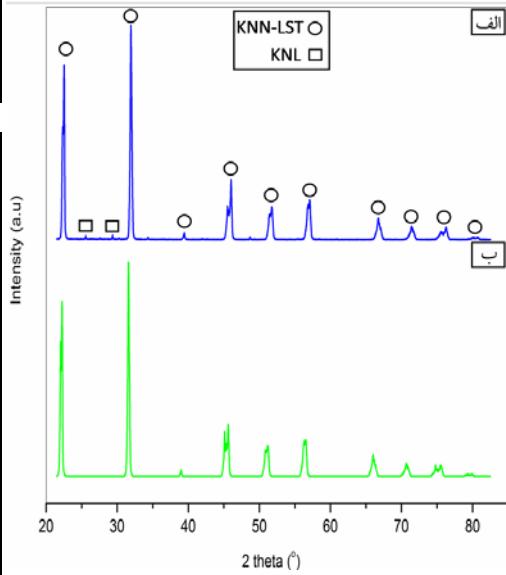
Formatted: Not Highlight

Formatted: Superscript, Not Highlight

Formatted: Not Highlight

بر پایه نایوبات سدیم- پتاسیم می‌باشد [۱۱] به وضوح دیده می‌شود. اندازه دانه‌ها در روش پوشش‌دهی کلوبیدی آبی ریزتر از روش سنتی سرامیکی می‌باشد. اندازه دانه می‌تواند خواص دیالکتریک، پیزوالکتریک و فرووالکتریک 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-KNL سنتز شده به کمک روش سنتی و پوشش‌دهی کلوبیدی آبی سیتر شده در دمای 1130°C به مدت ۴ ساعت مشاهده می‌شود.



شکل ۲. نمودار XRD نمونه پیزوالکتریک KNN-LST پخت شده در دمای 1130°C از پودر سنتز شده به روش (الف) سنتی سرامیکی، (ب) پوشش‌دهی کلوبیدی.

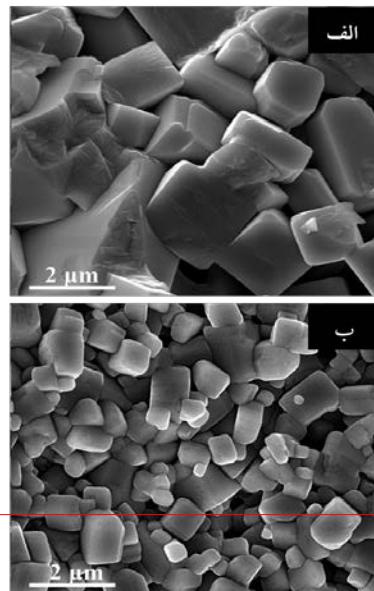
همان‌طوری که همان‌طوری که در شکل (۲) دیده می‌شود نمونه سنتز شده با کمک روش پوشش‌دهی کلوبیدی آبی حضور ساختار پروسکایت برپایه نایوبات سدیم- پتاسیم با شماره کارت مرجع ۰۱-۰۷۱۰۹۴۸ را به صورت تکفاز نشان می‌دهند و در محدوده دقت آنالیز XRD اثری از تشکیل فاز دوم ناخالصی مشاهده نمی‌شود. عدم مشاهده فاز دوم دلالت بر نفوذ کامل لیتیوم، تانتالیوم و آنتیموان در شبکه پایه KNN

سطح قرص‌های تهیه شده از مراحل قبل توسط چسب نقره پوشیده شدند در دمای 600°C به مدت ۱۵ دقیقه جهت خشک شدن چسب نقره حرارت داده شدند. در پایان اندازه گیری‌های خواص دیالکتریک با کمک دستگاه (impedance analyzer (Agilent, Palo Alto, CA)

گرفت. انجام شد.

۳- نتایج و بحث

۱-۳ بررسی ریزساختاری و مورفولوژی
شکل (۱) تصویر میکروسکوپ الکترونی دوپلی (SEM) مربوط به نمونه پیزوالکتریک KNN-LST سنتز شده به کمک روش سنتی و پوشش‌دهی کلوبیدی آبی سیتر شده در دمای 1130°C به مدت ۴ ساعت مشاهده می‌شود.



شکل ۱. تصاویر SEM نمونه پیزوالکتریک KNN-LST پخت شده در دمای 1130°C از پودر سنتز شده به روش (الف) سنتی سرامیکی، (ب) پوشش‌دهی کلوبیدی.

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

Formatted: Font: 12 pt, Bold, Complex Script
Font: B Lotus, 12 pt, Bold, Check spelling and grammar

Formatted: Not Highlight

Formatted: Not Highlight

Formatted: Superscript

Formatted: Font: 12 pt, Complex Script Font 12 pt

Formatted: Indent: First line: 0.9 cm, Don't adjust space between Latin and Asian text

Formatted: Font: 10 pt, Complex Script Font 10 pt

Formatted: Font: 10 pt, Complex Script Font 10 pt, Superscript

Formatted: Indent: First line: 0.9 cm, Don't adjust space between Latin and Asian text

Formatted: Superscript

Formatted: Right

Formatted: Centered

Formatted: Superscript

Formatted: Indent: First line: 0.9 cm, Don't adjust space between Latin and Asian text

Formatted: Centered, Don't adjust space between Latin and Asian text

Formatted: Superscript

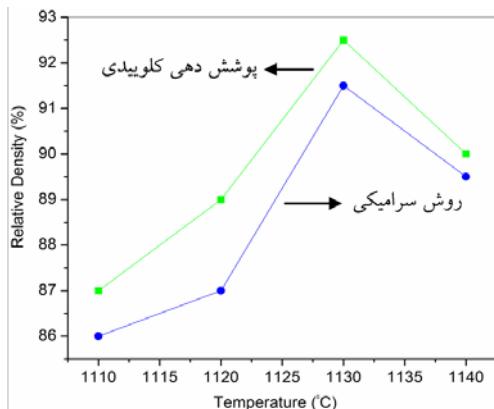
Formatted: Not Highlight

Formatted: Indent: First line: 0.9 cm

Formatted: Not Highlight

Formatted: Not Highlight

1130°C می‌تواند به دلیل تبخر اجزای فرار موجود در سیستم از جمله Na، K و Li در دماهای بالا باشد [۱۲]. علاوه بر این مقادیر دانسیته در تمامی دماهای پخت برای روش پوشش دهی کلوییدی آبی بالاتر می‌باشد.



شکل ۳. نمودار دانسیته نسبی نمونه‌های پیروالکتریک KNN-LST بر حسب دمای پخت

از آنجایی که اندازه دانه می‌تواند خواص دیالکتریک، پیروالکتریک 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.

۴-۳ بررسی خواص دیالکتریکی

در جدول ۴ مقادیر ضریب دیالکتریک و فاکتور اتلاف مربوط به نمونه‌های پیروسرامیک KNN-LST سنتز شده به کمک روش پوشش دهی کلوییدی آبی و سرامیکی سنتی، پخت شده در دماهای 1130°C و 1140°C به مدت ۲ ساعت ارایه شده است.

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

فاکتور اتلاف	ضریب دیالکتریک	نمونه
۰/۰۲۹	۱۷۶۰	روش کلوییدی، دمای 1130°C پخت
۰/۰۸	۱۳۹۵	روش کلوییدی، دمای

و تشکیل فاز KNN-LST دارد. بنابر نتایج حاصل از الگوی

تفرق اشعه ایکس نمونه‌ها مشاهده می‌شود [۱۲] 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، پیک-

های مربوط به فاز دوم $\text{K}_3\text{LiNb}_6\text{O}_{17}$ (که به صورت اختصار

KLN نوشته می‌شود) در زوایای بین 25° تا 30° می‌باشد [۱۲].

شدن، ژو و همکارانش [۱۲] نشان دادند که یکی از فازهای

ناخالصی که معمولاً در حین پخت نمونه‌های فروالکتریک بر

پایه نایوبات سدیم-پتانسیم تشکیل می‌شود فاز KLN با شماره کارت ۰۵۳۳-۳۶ و ساختار کریستالوگرافی موسوم به

تنگستن-برنز تراکونال (TTB) می‌باشد. این فاز یک اکسید شفاف با دمای انتقال 420°C است که تشکیل آن این فاز می‌تواند خواص دیالکتریک،

پیروالکتریک و فروالکتریک نمونه حاصل را تحت تاثیر قرار دهد. فاز KLN در اثر تبخر اجزای فرار موجود در سیستم از

جمله $\text{K}-\text{Na}-\text{Li}$ تشکیل می‌شود. هرچند میزان تبخر این اجزای در دماهای مختلف متفاوت گزارش شده است [۱۳]، در

تمامی دماهای بالاتر از 1000°C میزان تبخر سدیم به مراتب بالاتر از پتانسیم و لیتیوم 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.

در جدول ۱ مقادیر ضریب دیالکتریک و فاکتور اتلاف در فرکانس ۱ kHz برای نمونه‌های پیروالکتریک KNN-LST سنتز شده به کمک روش سرامیکی سنتی و پوشش دهی کلوییدی آبی بر حسب دمای پخت ارایه شده است. همان‌طوری که در شکل ۴ می‌بینیم برای هر دو

روش با افزایش دمای پخت از 1110°C تا 1130°C ، دانسیته

نمونه‌ها افزایش می‌یابد و سپس با افزایش بیشتر دما تا

1140°C میزان دانسیته کاهش می‌یابد. کاهش مقادیر دانسیته نسبی نمونه‌های پیروالکتریک KNN-LST در دمای بالاتر از

Formatted: Not Highlight

Formatted: Font: 12 pt, Complex Script Font 12 pt

Formatted: Superscript

Formatted: Superscript

Formatted: Superscript

Formatted: Superscript

Formatted: Centered

Formatted: Indent: First line: 0.9 cm

Formatted: Superscript

Formatted: Superscript

Formatted: Superscript

Formatted: Indent: First line: 0.9 cm, Don't adjust space between Latin and Asian text

Formatted: Superscript

Formatted: Superscript

Formatted: Indent: First line: 0.9 cm, Don't adjust space between Latin and Asian text

Formatted: Centered

Formatted: Superscript

Formatted: Superscript

Formatted Table

Formatted: Superscript

Formatted: Superscript

سدیم- پتانسیم را به صورت تکفاز نشان می‌دهد. 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°C تا 1130°C ، دانسیته نمونه‌ها افزایش یافته^۵ و سپس با افزایش بیشتر دما تا 1140°C میزان^۶ دانسیته کاهش می‌یابد.

علاوه بر این مقادیر دانسیته در تمامی دماهای پخت برای روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی بالاتر می‌باشد. مقادیر ضریب^۷ الکتریک برای نمونه سنتز شده به کمک روش پوشش‌دهی کلوییدی نسبت به روش 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 $\text{Na}_{0.47}\text{K}_{0.47}\text{Li}_{0.06}\text{NbO}_3$ 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 $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ - $\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TiO}_3$ 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 $\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3$ 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)NbO₃-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 nanostructured ceramics by MPB engineering", *Ceramic International*, 2013, 39, S97-S102.
- Wada, S., Yamashita, K., "Enhanced piezoelectric properties of barium titanate-potassium niobate nanostructured ceramics by MPB engineering", *Ceramic International*, 2013, 39, S97-S102.
- Li, W., Xu, Z., L.W., Chu, Z., R., Zeng, H., "Enlarged polymorphic phase transition boundary and enhanced piezoelectricity in ternary component $0.8\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TiO}_3-0.1\text{BaTi}_{0.8}\text{Zr}_{0.2}\text{O}_3$ "

$0/0.35$	1650	پخت 1140°C روش سنتی، دمای 1130°C پخت
$0/0.9$	1200	روش سنتی، دمای 1140°C پخت

همان طرزی که همانطوریکه مشاهده می‌شود مقادیر ضریب^۷ الکتریک در هر دو دمای پخت برای نمونه سنتز شده به کمک روش پوشش‌دهی کلوییدی نسبت به روش سرامیکی بالاتر می‌باشد. همان‌گونه که در قسمت‌های قبل ذکر شد عواملی چون تشکیل فاز دوم ناخالصی و دانسیته نمونه‌ها می‌تواند بر خواص دی‌الکتریک تاثیر گذارد باشد [۵ و ۶]. بنابراین^۷ بالاتر بودن ضریب دی‌الکتریک نمونه سنتز شده به روش پوشش‌دهی کلوییدی نسبت به روش سرامیکی می‌تواند به دلیل عدم تشکیل فاز KLN و همچنین بالاتر بودن دانسیته نمونه‌های تهیه شده با کمک روش پوشش‌دهی 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°C به 1140°C مقادیر ضریب دی‌الکتریک کاهش یافته و فاکتور اتلاف نمونه‌های افزایش می‌یابد. ضریب دی‌الکتریک برای پیزوسرامیک KNN-LST در بازه ۱۵۷۰ تا ۱۷۵۰ گزارش شده است [۱۰، ۱]. مقادیر ضریب دی‌الکتریک در تحقیق حاضر برای روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی 1760°C گزارش شده که نشان‌دهنده موفقیت آمیز بودن روش مذکور در تولید پیزوسرامیک KNN-LST می‌باشد.

۴- نتیجه گیری

در این تحقیق پودرهای پیزوسرامیکی بدون سرب سرامیکی سنتی و پوشش‌دهی کلوییدی آبی تهیه شدند. در هر دو روش نمونه‌های پیزوسرامیک با ساختار فشرده و مورفلوژی مکعبی دانه‌ها که از مشخصه‌های پیزوسرامیک‌های بر پایه نایوبات سدیم- پتانسیم می‌باشد، مشاهده گردیدند. نمونه سنتز شده با کمک روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی و سپس پخت شده حضور ساختار پروسکایت بر پایه نایوبات

Formatted: Font: 12 pt, Bold, Complex Script
Font: B Lotus, 12 pt, Bold, Check spelling and grammar

Formatted: Superscript

Formatted: Superscript

Formatted: Superscript

Formatted: Superscript

Formatted: Indent: First line: 0.9 cm, Don't adjust space between Latin and Asian text

Formatted: Indent: First line: 0.9 cm

Formatted: Font: 12 pt, Complex Script Font 12 pt

Formatted: Not Highlight

Formatted: Indent: Before: 0 cm, Hanging: 0.75 cm, Don't adjust space between Latin and Asian text

Formatted: Superscript

Formatted: Superscript

Formatted: Superscript

Formatted: Not Highlight

Formatted: Not Highlight

Formatted: Default Paragraph Font, Font: (Default) Courier New, 10 pt, Font color: Auto, Complex Script Font: Courier New, 10 pt

Formatted: Not Highlight

Formatted: Not Highlight

Formatted: Not Highlight

Formatted: Not Highlight

Formatted: Indent: First line: 0.9 cm, Don't adjust space between Latin and Asian text

Formatted: Tab stops: 0.75 cm, Left

- 0.1BaTi_{0.9}Sn_{0.1}O₃ ceramics”, *Materials Letters*, 2013, 110, 80-82.
9. Wongsaenmai, S., S., Ananta, S., S., Yimnirun, R., R. “Effect of Li addition on phase formation behavior and electrical properties of (K_{0.5}Na_{0.5})NbO₃ lead free ceramics”, *Ceramic International*, 2012, 39, 147-152.
10. Hagh, N.M., N.M., Kerman, K., K., Safari, A., A., “Dielectric and piezoelectric properties of Cu²⁺-doped alkali niobates”, *Journal of the European Ceramic Society*, 2009, 29, 2325-2332.
11. Mgbemere, H.E., H.E., Herber, R.P., R. P., Gerold, A.S., A.S., “Effect of MnO₂ 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., S., Kongjun, Z., Z., Pang, X., X., “Phase transition, microstructure and dielectric properties of Li/Ta/Sbco-doped(K,Na)NbO₃ lead-free ceramics”, *Ceramics International*, 2014, 40, 4389-4394.
13. Wang, K., K., “(K, Na)NbO₃-based lead-free piezoceramics: Phase transition, sintering and property enhancement”, *Journal of Advanced Ceramics*, 2012, 1(1) 24-37.
14. Saito, Y., Y., Takao, H., H., Tani, T., T., Nonoyama, T., T., Takatori, K., K., Homma, T., T., Nagaya, T., T., Nakamura, M., M., “Lead-free piezoceramics”, *Nature*, 2004, 432, 84-87.

Formatted: Not Highlight

Formatted: Font: 12 pt, Complex Script Font
12 pt

Formatted: Not Highlight

Formatted: Not Highlight