فصلنامه‌ی علمی پژوهشی

علم و مهندسی سرامیک

دوره‌ی ۹، شماره‌ی ۱، بهار ۱۳۹۹

بررسی تأثیر دوپنت‌های اکسید تیتانیوم و اکسید مولیبدن بر خواص پیزوسرامیک نیوبات سدیم پتاسیم

نوع مقاله: علمی پژوهشی

هاجر احمدی مقدم*

گروه مهندسی مواد، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه شهرکرد

* hajar.ahmadi@sku.ac.ir

اطلاعات مقاله:

دریافت: ۲ آذر ۱۳۹۸

پذیرش: ۱۸ دی ۱۳۹۸

کلید واژه:

نیوبات سدیم پتاسیم؛ اکسید تیتانیوم؛ اکسید مولیبدن؛ ضریب پیزوالکتریک؛ خواص دی الکتریک

چکیده:

پیزوسرامیک‌های نیوبات سدیم پتاسیم به عنوان پیزوالکتریک عاری از سرب به دلیل خواص مناسب مورد توجه هستند. در این تحقیق تأثیر دوپنت‌های اکسید تیتانیوم و اکسید مولیبدن بر رفتار چگالش، خواص پیزو الکتریک و دی‌الکتریک پیزوسرامیک نیوبات سدیم پتاسیم دوپ شده با لیتیم $(K_{0.5}Na_{0.5})_{0.94}Li_{0.06}NbO_3$, KNNL) بررسی گردید. به این منظور ترکیبات $(K_{0.5}Na_{0.5})_{0.94}Li_{0.06}Nb_{0.99}X_{0.01}O_3$ (KNNL-X, X= Mo, Ti) با روش حالت جامد سنتز شد. نتایج نشان داد که استفاده از این دوپنت‌ها منجر به بهبود چگالش سرامیک KNNL می‌گردد که می‌تواند به دلیل افزایش سرعت نفوذ ناشی از ایجاد عیب جای خالی اکسیژن باشد. کاهش در ضریب پیزوالکتریک KNNL در حضور دوپنت‌ها می‌تواند به سخت شدن رفتار پیروسرامیک به دلیل وجود جاهای خالی اکسیژن نسبت داده شود. افزایش در ثابت دی الکتریک و کاهش در تلفات دی الکتریک نمونه‌های دوپ شده را می‌توان ناشی از افزایش چگالی و کاهش تخلخل دانست. نمونه‌های KNNL-Mo کمترین مقادیر ضریب پیزوالکتریک و بیشترین مقادیر ثابت دی الکتریک را نشان دادند.

۱- مقدمه

زیرکونات تیتانات سرب ($PbTiO_3$–$PbZrO_3$, PZT) به عنوان مهم‌ترین پیزوسرامیک شناخته شده به دلیل خواص فروالکتریک عالی خود به صورت گسترده در دی الکتریک‌ها، مبدل‌ها و سنسورها استفاده می‌شوند. کاربرد پیزوسرامیک‌های بر پایه سرب به دلیل سمی بودن عنصر سرب و مضرات آن بر سلامتی و محیط زیست درحال محدود شدن از طرف سازمان‌های بین‌المللی می‌باشد. بنابراین در دهه‌های اخیر، تحقیقات گسترده‌ای برای معرفی مواد پیزوسرامیک‌های عاری از سرب برای جایگزین شدن به جای پیزوسرامیک‌های بر پایه سرب متمرکز شده است و ترکیباتی مانند تیتانات بیسموت و نیوبات‌های قلیایی معرفی شده‌اند [۳-۱]. در میان پیزوسرامیک‌های عاری از سرب، ترکیبات نیوبات سدیم پتاسیم ($(K_{0.5}Na_{0.5})NbO_3$, KNN) به دلیل خواص پیزوالکتریک

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-10-17]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1399.9.1.4.2]

عالی و هم چنین دمای کیوری نسبتا بالا بهترین گزینه می‌باشند. نیوبات سدیم پتاسیم محلول جامدی از نیوبات پتاسیم فروالکتریک و نیوبات سدیم آنتی فروالکتریک می‌باشد [۴،۵]. کاربرد این پیزوسرامیک به دلیل چگالش ضعیف آنها در طی تف جوشی و وابستگی زیاد خواص آنها به ترکیب استوکیومتریشان محدود می‌شود. دمای تف جوشی بالای پیزوسرامیک‌های KNN (بالای ۱۰۰۰°C) نه تنها منجر به تبخیر عناصر قلیایی و در نتیجه تغییر ترکیب استوکیومتری می‌گردد بلکه هم چنین باعث رشد دانه افراطی نیز می‌شود [۲، ۶].

دوپ کردن KNN با عناصر مختلف برای جانشینی در مکان‌های A و B ساختار پروسکایت آن (ABO_3) مورد بررسی قرار گرفته است [۱۱-۷]. دوپ کردن Li در مکان A نیوبات سدیم پتاسیم ($(K_{0.5}Na_{0.5})_{0.94}Li_{0.06}NbO_3$, KNNL-6) خواص پیزوالکتریک آن را بهبود می‌دهد [۵]. وندرل و همکارانش تاثیر عناصر گروه لانتانیدها را بر خواص پیزوسرامیک KNN ($(K_{0.5}Na_{0.5})_{1-3x}La_xNbO_3$, Ln=La, Pr, Nd, Sm and Eu) مورد بررسی قرار دادند. نتایج به دست آمده نشان داد که لانتانیوم منجر به افزایش ثابت دی الکتریک، کاهش دمای کیوری و کاهش اندازه دانه ریزساختار KNN می‌گردد و هم چنین مشخص شد که با کاهش شعاع یونی دوپنت لانتانیدها، خواص پیزوالکتریک سرامیک KNN بهبود می‌یابد [۱۲]. چاو و همکارانش نشان دادند با جایگزینی همزمان Ba در مکان A و Mg در مکان B ساختار پروسکایت نیوبات سدیم پتاسیم، ثابت دی‌الکتریک و پلاریزاسیون باقی مانده به دلیل ریزدانه شدن ریزساختار کاهش می‌یابد [۱۳]. خواص پیزوسرامیک $[(K_{0.5}Na_{0.5})_{1-2x}(Sr_{0.75}Ba_{0.25})_x]_{0.93}Li_{0.07}Nb_{0.93}Bi_{0.07}O_3$ با مقادیر متفاوت دوپنت Sr و Ba بررسی گردید و مقدار x=0.025 به عنوان مقدار بهینه با بیشترین مقادیر ضریب پیزوالکتریک و دی الکتریک معرفی گردید [۸].

وندرل و همکارانش گزارش دادند که استفاده از دوپنت TiO_2 در مقادیر کم منجر به بهبود چگالش و در نتیجه افزایش خواص پیزوالکتریک KNN می‌گردد [۱۴] و استفاده از دوپنت‌های سه ظرفیتی مانند لانتانیوم باعث ایجاد ریزی ساختار یکنواخت در پیزوسرامیک KNN می‌شود [۱۲]. بنابراین در تحقیق حاضر اکسید تیتانیوم و اکسید مولیبدن (سه ظرفیتی) به عنوان دوپنت انتخاب شدند و تاثیر این دوپنت‌ها بر خواص پیزوالکتریک و دی الکتریک پیزوسرامیک KNNL-6 مورد بررسی قرار گرفت. با توجه به جدول ۱ شعاعی یونی کاتیون‌ها، کاتیون‌ها Mo^{3+} و Ti^{4+} در مکان B ساختار پروسکایت نیوبات سدیم پتاسیم می‌توانند قرار بگیرند.

جدول ۱- شعاع یونی یون‌های اصلی و جایگزین در مکان‌های A و B ساختار KNN [۱۵].

یون	مکان A			مکان B		
	K^+	Na^+	Li^+	Nb^{5+}	Ti^{4+}	Mo^{3+}
شعاع یونی (pm)	۱۶۴	۱۳۹	۹۴	۶۴	۷۲/۵	۸۳

۲- فعالیت‌های تجربی

سرامیک‌های عاری از سرب حاوی یک درصد دوپنت با فرمول شیمیایی $(K_{0.5}Na_{0.5})_{0.94}Li_{0.06}Nb_{0.99}X_{0.01}O_3$ (KNNL-X, X= Mo, Ti) با روش حالت جامد سنتز گردید. کربنات سدیم (Na_2CO_3, 99.9% purity)، کربنات پتاسیم (K_2CO_3, 99.5% purity)، کربنات لیتیم (Na_2CO_3, 99.5% purity)، اکسید نیوبیوم (Nb_2O_5, 99.9% purity)، اکسید

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-10-17]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1399.9.1.4.2]

تیتانیوم (TiO_2, 99.9% purity) و اکسید مولیبدن (Mo_2O_3, 99.9% purity) با مارک مرک به عنوان مواد اولیه استفاده شدند. بعد از توزین مواد اولیه طبق ترکیب استوکیومتری، در آسیاب سیاره‌ای درون محفظه پلاستیکی فشرده با استفاده از گلوله‌های زیرکونیایی به قطر ۵ mm درون محیط ایزوپروپانول به مدت ۶ ساعت با سرعت ۳۰۰ دور بر دقیقه مخلوط گردیدند. دوغاب حاصل پس از خشک شدن در آون، در دمای ۸۵۰°C به مدت ۴ ساعت کلسینه شدند. بعد از کلسیناسیون به منظور کاهش اندازه ذرات و دست‌یابی به پودر مناسب برای پرس، پودر کلوخه حاصل از کلسیناسیون، تحت آسیاب سایشی در محیط ایزوپروپانول به مدت ۲ ساعت با سرعت ۴۰۰ دور بر دقیقه با نسبت وزنی گلوله های زیرکونیایی به پودر ۱۰ به ۱ قرار گرفت. پودر حاوی کمی رطوبت الکل حاصل، از الک مش ۱۰۰ برای گرانوله کردن عبور داده شد و برای یکنواختی رطوبت آن به مدت ۲۴ ساعت در ظرف دربسته نگهداری شد. نمونه‌های دیسکی شکل به قطر ۱۰mm و ضخامت ۲ mm با استفاده از روش پرس تک محوره با فشار پرس ۳۰۰ MPa تهیه گردید. نمونه‌ها در رنج دمایی ۱۰۰۰°C–۱۱۰۰ با فاصله ۲۵°C به مدت ۲ ساعت تف جوشی شدند.

چگالی نمونه‌های تف جوشی شده طبق استاندارد ASTMC-373 با استفاده از روش ارشمیدس تعیین گردید. با دستگاه پراش اشعه x (XRD) مدل Asenware AW-XDM 300 تشعشع Cu-kα با طول موج ۱/۵۴۲ Å، بررسی فازهای نمونه‌ها صورت گرفت. مورفولوژی و ریز ساختار نمونه‌های تف‌جوشی شده با استفاده از دستگاه میکروسکوپ الکترونی (SEM مدل Leica Cambridge S-360) بررسی گردید. برای فرآیند قطبی کردن، ابتدا سطح نمونه‌ها با چسب نقره پوشش داده شد. میدان الکتریکی ۵ kV/mm در محیط روغن سیلیکون با دمای ۱۲۰°C به مدت ۲۰ دقیقه بر نمونه‌ها اعمال گردید. ضریب پیزوالکتریک نمونه‌ها با دستگاه d_{33} meter مدل Berlincourt در فرکانس ۱۰۰ Hz اندازه گیری شد. خواص دی الکتریک نمونه‌ها با دستگاه LCR meter در دمای محیط در فرکانس ۱ kHz محاسبه گردید.

۳- نتایج و بحث

در شکل ۱ تغییرات چگالی نمونه‌ها بر حسب دمای تف جوشی آورده شده است. با افزایش دمای تف جوشی چگالی نمونه‌ها به دلیل افزایش سرعت نفوذ افزایش می‌یابد [۱۶]. هم‌چنین طبق نتایج، استفاده از دوپنت‌ها منجر به بهبود در چگالی پیزوسرامیک KNNL می‌گردد. در دمای تف جوشی بالاتر از ۱۰۷۵ °C چگالی نمونه‌ها کاهش می‌یابد و این کاهش در چگالی به فراریت اکسیدهای قلیایی در دماهای بالا نسبت داده می‌شود [۱۰]. بنابراین دمای ۱۰۷۵ °C به عنوان دمای بهینه تف جوشی در نظر گرفته می‌شود. چگالی نمونه KNNL-Ti در دمای بهینه حدود ۹۸ درصد چگالی تئوری به دست آمد که به مقدار ۴ درصد بیشتر از چگالی نمونه KNNL می‌باشد. با توجه به واکنش ۱ و ۲ به دلیل ظرفیت کمتر Ti^{4+} و Mo^{3+} نسبت به Nb^{5+}، در اثر جایگزینی این کاتیون‌ها برای حفظ خنثایی الکتریکی، جای خالی اکسیژن ایجاد می‌شود و جای خالی اکسیژن از طریق افزایش نفوذ می‌تواند منجر به بهبود چگالش سرامیک نیوبات سدیم پتاسیم گردد [۱۵،۱۷].

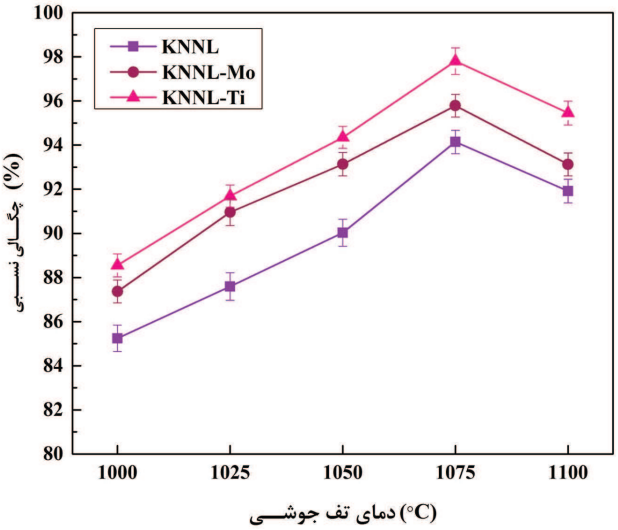
$$2TiO_2 \rightarrow 2Ti_{Nb}^{'} + 4O_O^{\times} + V_O^{\circ\circ} \quad (۱$$

$$Mo_2O_3 \rightarrow 2Mo_{Nb}^{''} + 3O_O^{\times} + 2V_O^{\circ\circ} \quad (۲$$

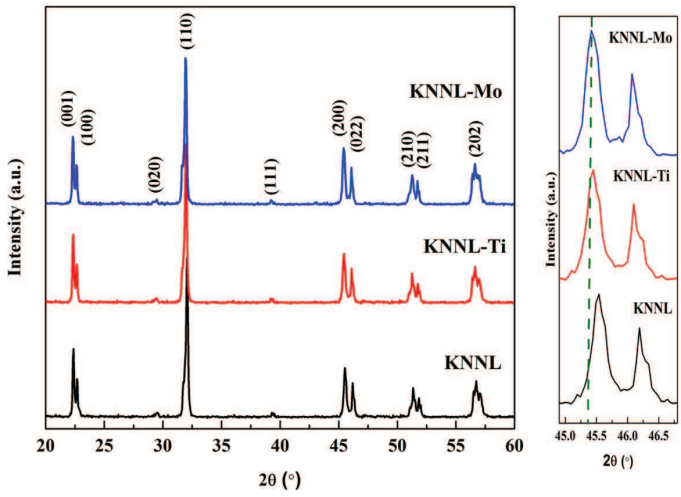
[Downloaded from ijcse.ir on 2026-10-17]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1399.9.1.4.2]

الگوهای پراش اشعه x مربوط به نمونه‌های مختلف تف جوشی شده در دمای ۱۰۷۵°C در شکل ۲ نشان داده شده است. در نمونه‌ها دوپ شده فاز ثانویه یا ناخالصی مشاهده نگردید که می‌تواند به دلیل مقدار کم دوپنت و تشکیل شدن محلول جامد باشد [۱۲]. پیک‌های (۲۰۰) و (۰۲۲) در الگوهای پراش در محدود زاویه ۴۵ تا ۴۷ درجه بیان‌گر ساختار اورتورمبیک نمونه‌ها است [۱۰،۱۲]. پیک‌های مربوط به نمونه‌های دوپ شده نسبت به پیک‌های الگوی پراش KNNL، به سمت زاویه‌های کمتر جابه جا شده‌اند. با توجه به جدول ۱، شعاع یونی Ti^{4+} و Mo^{3+} بزرگتر از Nb^{5+} می‌باشند، بنابراین در اثر جایگزینی یون های دوپنت به جای Nb^{5+}، فاصله بین صفحات اتمی در ساختار KNNL افزایش یافته و منجر به جابجایی پیک‌ها به سمت زوایای کمتر می‌گردد. با توجه به این که شعاع یونی Mo^{3+} بزرگتر از Ti^{4+} می‌باشد، بنابراین مقدار جابجایی پیک‌ها در نمونه KNNL-Mo بیشتر مشاهده می‌شود [۸،۱۸].



شکل ۱- تغییرات چگالی نمونه‌ها بر حسب دمای تف‌جوشی.

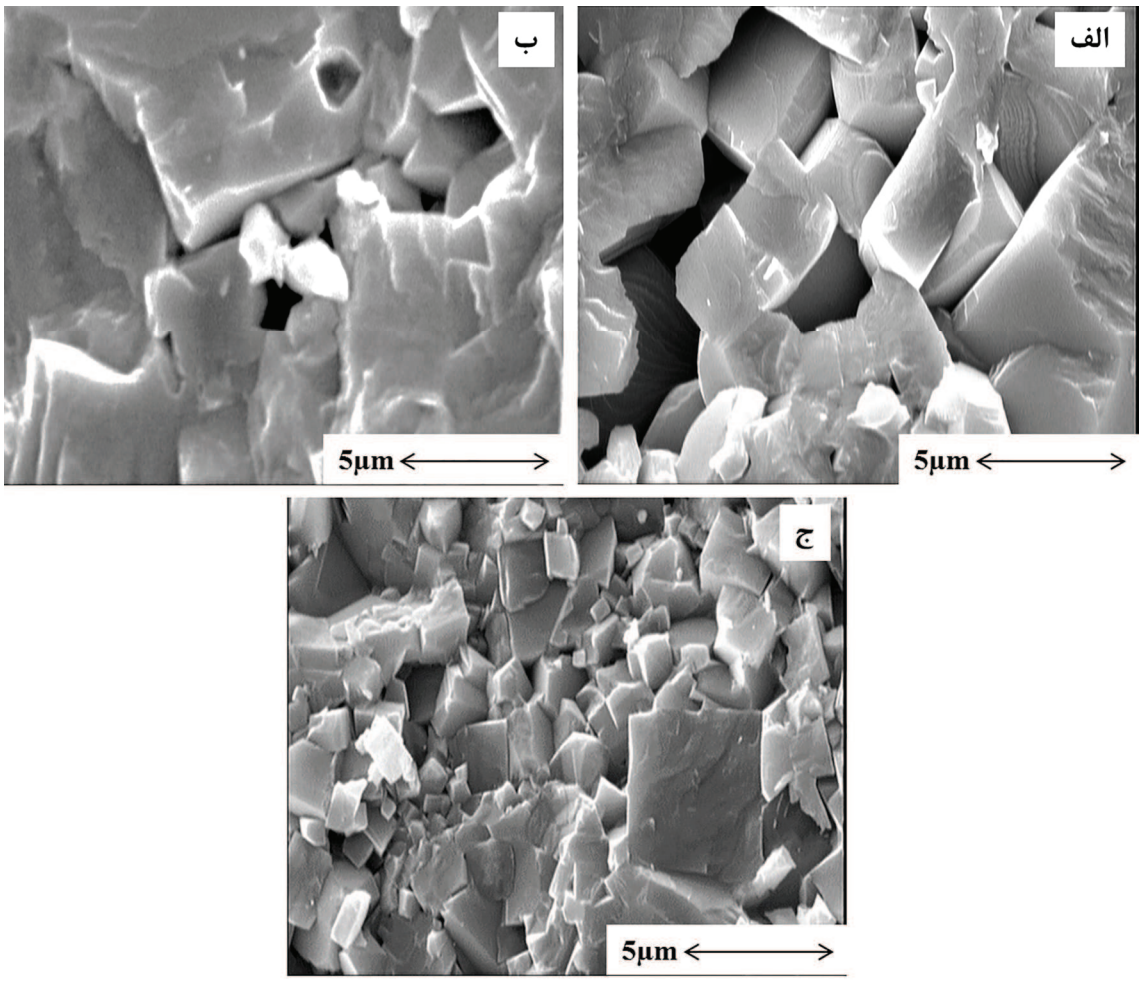


شکل ۲- الگوهای پراش اشعه x مربوط به نمونه‌ها تف جوشی شده در دمای ۱۰۷۵ °C.

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-10-17]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1399.9.1.4.2]

شکل ۳ تصاویر SEM مربوط به سطح شکست نمونه‌های مختلف تف‌جوشی شده در دمای ۱۰۷۵°C را نشان می‌دهد. طبق شکل ۳ دوپنت‌ها تاثیر چشم گیری بر ریزساختار پیزوسرامیک KNNL دارند. دانه‌های مکعبی شکل که مشخصه ریزساختار سرامیک‌های نیوبات سدیم پتاسیم می‌باشد، در نمونه‌ها مشاهده می‌گردد [۶]. متراکم بودن ریزساختار نمونه‌های KNNL-Ti و KNNL-Mo نسبت به نمونه KNNL نیز در تصاویر SEM مشخص است که با نتایج چگالی نیز مطابقت دارد. اندازه دانه‌های نمونه KNNL-Ti نسبت به نمونه KNNL کوچکتر می‌باشد. در تف‌جوشی سرامیک‌ها، افزودنی‌ها از طریق مکانیزم‌های مختلف مانند ایجاد عیوب، تشکیل فاز مایع و جلوگیری از رشد دانه می‌توانند منجر به بهبود چگالش شوند [۱۵]. در اینجا دوپنت اکسید تیتانیوم علاوه بر ایجاد عیب جای خالی اکسیژن، می‌تواند از طریق کاهش رشد دانه و در نتیجه کاهش مقدار تخلخل منجر به بهبود چگالش گردد [۱۵،۱۶]. تغییر ریزساختار در نمونه KNNL-Mo می‌تواند به دلیل تشکیل فاز مایع در طی تف جوشی باشد [۲،۱۶].



شکل ۳- تصاویر SEM مربوط به سطح شکست نمونه ها تف جوشی شده در دمای ۱۰۷۵°C

الف) KNNL، **ب)** KNNL-Mo **و ج)** KNNL-Ti.

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-10-17]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1399.9.1.4.2]

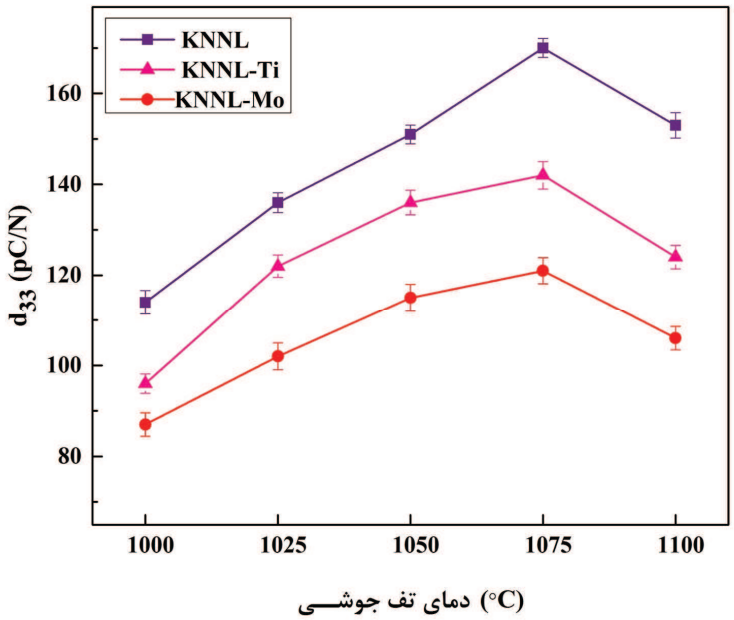
در شکل ۴ تغییرات ضریب پیزوالکتریک نمونه‌ها بر حسب دمای تف جوشی آنها آورده شده است. روند تغییرات ضریب پیزوالکتریک مشابه تغییرات چگالی با دمای تف جوشی (شکل ۱) می‌باشد. با افزایش دمای تف جوشی و در نتیجه افزایش چگالی و کاهش درصد تخلخل ضریب پیزوالکتریک افزایش می‌یابد [۴،۱۸]. نمونه‌های دوپ شده ضریب پیزوالکتریک کمتری نسبت به نمونه KNNL دارند. گزارش شده است که وجود عیب جاهای خالی اکسیژن در پیزوسرامیک‌ها به صورت مانعی در برابر چرخش و حرکت دومین‌ها عمل می‌کنند و منجر به کاهش ضریب پیزوالکتریک و رفتار پیزوالکتریک سخت در آنها می‌گردد [۱۹،۲۰]. بنابراین وجود جاهای خالی اکسیژن می‌توانند همزمان باعث بهبود چگالش و کاهش ضریب پیزوالکتریک گردند و کاهش در ضریب پیزوالکتریک به دلیل وجود این عیب و رفتار سخت پیزوسرامیک غالب بر افزایش ضریب پیزوالکتریک در نتیجه افزایش چگالی می‌باشد. با توجه به واکنش‌های ۱ و ۲ مقدار جاهای خالی اکسیژن ایجاد شده در نمونه KNNL-Mo نسبت به نمونه KNNL-Ti بیشتر می‌باشد. بنابراین به دلیل چگالی کمتر و مقدار جاهای خالی اکسیژن بیشتر نمونه‌های KNNL-Mo ضریب پیزوالکتریک کمتری خواهند داشت.

در شکل ۵ و ۶ تغییرات خواص دی الکتریک نمونه‌ها بر حسب دمای تف جوشی مشخص شده است. افزایش در ثابت دی الکتریک (شکل ۵) و کاهش در تلفات دی‌الکتریک (شکل ۶) پیزوسرامیک KNNL در حضور دوپنت‌ها مشاهده می‌شود. خواص دی الکتریک پیزوسرامیک‌ها وابستگی زیادی به مقدار تخلخل موجود در ریزساختار آنها دارد. کاهش مقدار تخلخل از طریق افزایش پلاریزاسیون بار فضایی منجر به افزایش ثابت دی‌الکتریک می‌گردد [۲۱،۱۰-۲۳]. نمونه KNNL-Mo با وجود دانسیته کمتر نسبت به KNNL-Ti ثابت دی‌الکتریک بیشتری دارند که دلیل این رفتار را می‌توان با مقایسه ریزساختار نمونه‌ها توجیه نمود. ریزساختار نمونه KNNL-Ti به صورت دو مدلی حاوی دانه‌های ریز و درشت کنار هم می‌باشد و وجود دانه‌های ریز منجر به کاهش ثابت دی‌الکتریک می‌گردد [۲۴]. مکانیزم جلوگیری از رشد دانه در حضور دوپنت‌ها به توزیع غیر یکنواخت دوپنت‌ها در دانه و مرز دانه نسبت داده می‌شود که غلظت بالاتر دوپنت در مرزهای دانه می‌تواند از رشد دانه جلوگیری کند [۱۴]. نتایج تحقیق ماکووس و همکارانش نشان داد که مقدار افزودنی TiO_2 در دانه‌های سرامیک $KNbO_3$ کمتر از مرزهای دانه می‌باشد و هم چنین TiO_2در مرزهای دانه نیز به صورت غیر یکنواخت توزیع شده است [۲۵]. بنابراین می توان نتیجه گرفت که این احتمال وجود دارد که دوپنت TiO_2 به صورت غیر یکنواخت در مرزهای دانه سرامیک KNNL-Ti توزیع شده باشد. توزیع غیر یکنواخت دوپنت منجر می‌شود که برخی از دانه‌ها رشد کمتری نسبت به دانه‌هایی که مرزهای آنها TiO_2 کمتری دارند، داشته باشند و به این ترتیب دوپنت TiO_2 می‌تواند از رشد برخی از دانه‌ها که مقدار TiO_2 در مرزهای دانه آنها زیاد است، جلوگیری کند و در نتیجه منجر به ایجاد ریزساختار دو مدلی حاوی دانه‌های ریز و درشت گردد [۱۴،۲۵]. هم چنین دلیل ایجاد ریزساختار دو مدلی حاوی دانه‌های با اندازه بزرگ و ریز در کنار هم، به توزیع غیر یکنواخت فاز مذاب در طی تف جوشی نسبت داده شده است [۶]. در جدول ۲ خواص

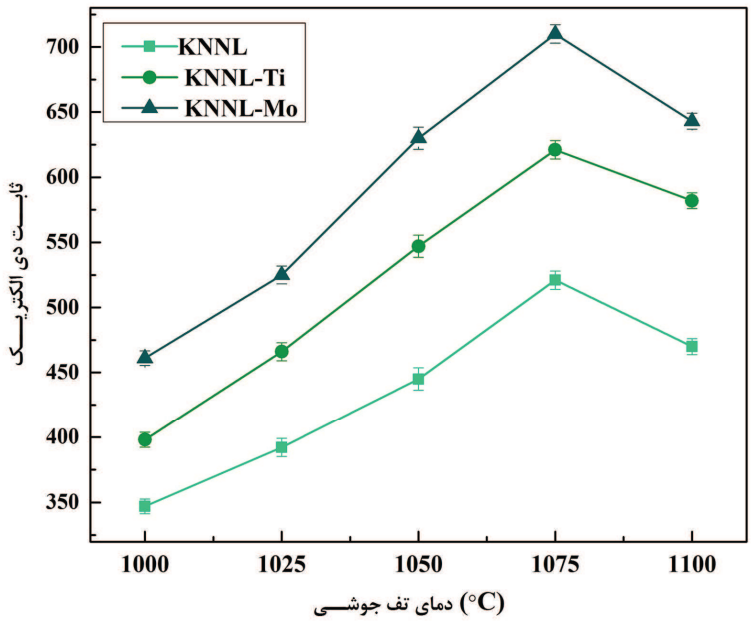
[Downloaded from ijcse.ir on 2026-10-17]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1399.9.1.4.2]

نمونه‌ها در دمای تف جوشی ۱۰۷۵ °C خلاصه شده است. خواص دی الکتریک نمونه‌های دوپ شده با اکسید تیتانیوم و اکسید مولیبدن در این تحقیق نسبت به نمونه‌های دوپ شده به وسیله اکسید منگنز [۲۶]، اکسیدآنتیموان [۲۷]، اکسید زیرکونیوم [۱۴] و گروه اکسیدها لانتانیدها [۱۲] گزارش شده توسط دیگران محققان بهبود داشته‌اند.



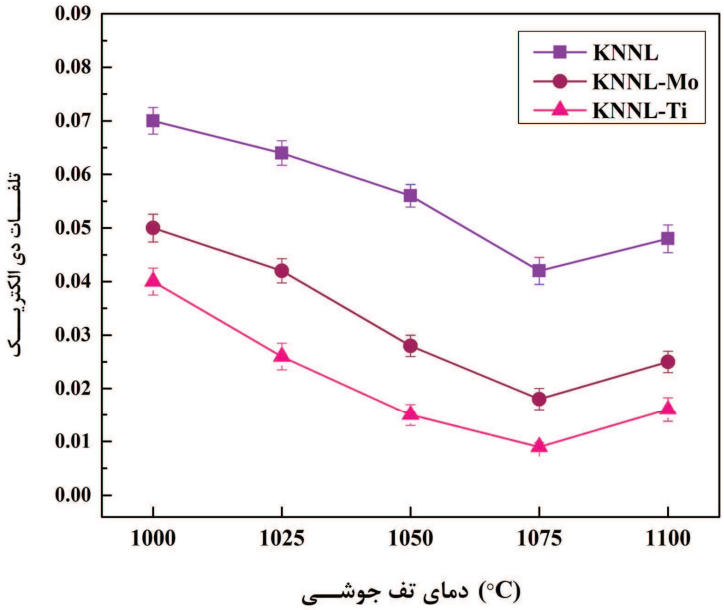
شکل ۴- تغییرات ضریب پیزوالکتریک نمونه‌ها بر حسب دمای تف جوشی.



شکل ۵- تغییرات ثابت دی الکتریک نمونه‌ها بر حسب دمای تف جوشی.

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-10-17]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1399.9.1.4.2]



شکل ۶- تغییرات تلفات دی الکتریک نمونه‌ها بر حسب دمای تف جوشی.

شکل ۷- خواص نمونه‌ها در دمای تف جوشی ۱۰۷۵°C.

نمونه	چگالی نسبی (٪)	ضریب پیزوالکتریک d_{33} (pC/N)	ثابت دی الکتریک	تلفات دی الکتریک
KNNL	۹۴/۰۴	۱۷۰	۵۲۱	۰/۰۴۲
KNNL-Ti	۹۷/۸	۱۴۲	۶۱۸	۰/۰۰۹
KNNL-Mo	۹۵/۷	۱۲۱	۷۱۰	۰/۰۱۸

۴- نتیجه گیری

در تحقیق حاضر تأثیر دوپنت‌های اکسید تیتانیوم و اکسید مولیبدن به مقدار ۱ درصد مولی بر خواص پیزوسرامیک نیوبات سدیم پتاسیم دوپ شده با لیتیم $((K_{0.5}Na_{0.5})_{0.094}Li_{0.06}NbO_3$, KNNL-6) مورد بررسی قرار گرفت. با توجه به شعاع یونی تیتانیوم و مولیبدن، این کاتیون‌ها در موقعیت B ساختار پروسکایت نیوبات سدیم پتاسیم قرار می‌گیرند. بهبود در چگالش و کاهش مقدار ضریب پیزوالکتریک KNNL-6 در نمونه‌های دوپ شده می تواند ناشی از ایجاد خالی اکسیژن باشد. بهبود در خواص دی‌الکتریک، افزایش ثابت دی‌الکتریک و کاهش تلفات دی‌الکتریک، نمونه‌های KNNL-Mo و KNNL-Ti را می‌توان به چگالی بالاتر آنها نسبت داده شود.

مراجع

[1] J. Fuentes, J. Portelles, A. Pérez, M. D. Durruthy-Rodríguez, C. Ostos, O. Raymond, J. Heiras, M. P. Cruz, and J. M. Siqueiros, "Structural and dielectric properties of La-and Ti-modified $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$ ceramics," Applied Physics A, vol. 107, pp. 733-738, 2012.

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-10-17]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1399.9.1.4.2]

$Na_{0.52}Li_{0.04}$) ($Nb_{0.86}Ta_{0.10}Sb_{0.04}$)$O_3$-based piezoelectric ceramics," Journal of the European ceramic society, vol. 34, pp. 2249-2257, 2014.

[10] E. Shafiee, M. D. Chermahini, A. Doostmohammadi, M. R. Nilforoushan, and B. Zehipour, "Influence of sintering temperature on densification, microstructure, dielectric and ferroelectric properties of Li/Sb Co-doped KNN pizoceramics," Ceramics International, vol. 45, pp.22203-22206, 2019.

[11] Y. Liu, G. Xu, J. Liu, D. Yang, and X. Chen, "Dielectric, piezoelectric properties of MnO_2-doped $(K_{0.5}Na_{0.5})NbO_3$–$0.05LiNbO_3$ crystal grown by flux-Bridgman method," Journal of Alloys and Compounds, vol. 603, pp.95-99, 2014.

[12] Vendrell, J. E. García, E. Cerdeiras, D. A. Ochoa, F. Rubio-Marcos, J. F. Fernández, and L. Mestres, "Effect of lanthanide doping on structural, microstructural and functional properties of $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$ lead-free piezoceramics," Ceramics International, vol. 42, pp.17530-17538, 2016.

[13] X. Chao, X. Ren, X. Zhang, Z. Peng, J. Wang, P. Liang, D. Wu, and Z. Yang, "Excellent optical transparency of potassium-sodium niobate-based lead-free relaxor ceramics induced by fine grains," Journal of the European Ceramic Society, vol. 39, pp.3684-3692, 2019.

[14] X. Vendrell, J. E. García, X. Bril, D. A. Ochoa, L. Mestres, and G. Dezanneau, "Improving the functional properties of $(K_{0.5}Na_{0.5})NbO_3$ piezoceramics by acceptor doping," Journal of the European Ceramic Society, vol. 35, pp.125–130, 2015.

[15] M. Barsoum and M.W. Barsoum, Fundamentals of Ceramics, CRC press, 2002.

[16] M. N. Rahaman, Ceramic Processing and Sintering, New York, Marcel Dekker, 1995.

[2] J. J. Zhou, L. Q. Cheng, K. Wang, Z. W. Zhang, J. F. Li, H. Liu, and J. Z. Fang, "Low-temperature sintering of (K, Na)NbO_3-based lead-free piezoceramics with addition of LiF," Journal of the European Ceramic Society, vol. 34, pp.1161-1167, 2014.

[3] J. Du, G. Z. Zang, X. J. Yi, D. F. Zhang, and Z. F. Huang, "Effects of $W_{2/3}Bi_{1/3}$ substitute on piezoelectric properties of KNN-based ceramics,"Materials Letters, vol. 70, pp.23-25, 2012.

[4] F. Rubio-Marcos, J. J. Romero, M. G. Navarro-Rojero, and J. F. Fernandez, "Effect of ZnO on the structure, microstructure and electrical properties of KNN-modified piezoceramics," Journal of the European Ceramic Society,vol. 29, pp.3045-3052, 2009.

[5] Z. Fu, J. Yang, P. Lu, L. Zhang, H. Yao, F. Xu, and Y. Li, "Influence of secondary phase on polymorphic phase transition in Li-doped KNN lead-free ceramics," Ceramics International, vol. 43, pp.12893-12897, 2017.

[6] J. J. Zhou, L. Q. Cheng, K. Wang, X. W. Zhang, J. F. Li, H. Liu, and J. Z. Fang, 2014. "The phase structure and electric properties of low-temperature sintered (K,Na) NbO_3- based piezoceramics modified by CuO," Ceramics International, vol. 40, pp. 2927-2931, 2014.

[7] B. Malic, J. Bernard, J. Holc, D. Jenko, and M. Kosec, "Alkaline-earth doping in (K, Na) NbO_3 based piezoceramics," Journal of the European Ceramic Society, vol. 25, pp.2707-2711, 2005.

[8] Z. Geng, K. Li, D. Shi, L. Zhang, and X. Shi, "Effect of Sr and Ba-doping in optical and electrical properties of KNN based transparent ceramics," Journal of materials science: materials in electronics, vol. 26, pp. 6769-6775, 2015.

[9] L. Ramajo, M. Castro, A. Del Campo, J.F. Fernandez, and F. Rubio-Marcos, "Influence of B-site compositional homogeneity on properties of ($K_{0.44}$

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-10-17]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1399.9.1.4.2]

[17] X. Wei, Y. Cao, L. Lu, H. Yang, and X. Shen,"Synthesis and characterization of titanium doped sodium beta″-alumina," Journal of Alloys and Compounds, vol. 509, pp. 6222–6226, 2011.

[18] J. Du, J. Wang, G. Zang, and X. Yi, "Phase transition behavior and piezoelectric properties of low-Li and high-Sb modified KNN based piezoceramics," Physica B: Condensed Matter, vol. 406, pp.4077-4079, 2011.

[19] H. Ahmadi moghadam, and M. Abdolghafar, "Low-temperature sintering of $K_{0.5}Na_{0.5}NbO_3$ lead free ceramics using nano CuO sintering aid," Journal of Materials Science: Materials in Electronics, vol. 28, pp.13161-13167, 2017.

[20] E. M. Alkoy, and M. Papila, "Microstructural features and electrical properties of copper oxide added potassium sodium niobate ceramics," Ceramics International, vol. 36(6), pp.1921-1927, 2010.

[21] Z. Hou, F. Ye, and L. Liu, "Effects of pore shape and porosity on the dielectric constant of porous β-SiAlON ceramics," Journal of the European Ceramic Society, vol. 35(15), pp.4115-4120, 2015.

[22] B. P. Kumar, H. H. Kumar, and D. K. Kharat, "Effect of porosity on dielectric properties and microstructure of porous PZT ceramics," Materials Science and Engineering: B, vol. 127(2-3), pp.130-133, 2006.

[23] H. I. Hsiang, F. S. Yen, and C. Y. Huang, "Effects of porosity on dielectric properties of $BaTiO_3$ ceramics," Japanese journal of applied physics, vol. 34(4R), pp.1922-1925, 1995.

[24] R. Hayati and A. Barzegar, "Microstructure and electrical properties of lead free potassium sodium niobate piezoceramics with nano ZnO additive," Materials Science and Engineering: B, vol. 172, pp. 121–126, 2010.

[25] D. Makovec, I. Pribošič, and M. Drofenik, 2008. "TiO_2 as a sintering additive for $KNbO_3$ ceramics," Ceramics International, vol. 34, pp.89-94, 2008.

[26] Y. Liu, G. Xu, J. Liu, D. Yang, and X. Chen, "Dielectric, piezoelectric properties of MnO_2-doped $(K_{0.5}Na_{0.5})NbO_3$–$0.05LiNbO_3$ crystal grown by flux-Bridgman method," Journal of Alloys and Compounds, vol. 603, pp. 95–99, 2014.

[27] E. Shafiee, M. Delshad Chermahini, A. Doostmohammadi, M. R. Nilforoushan, and B. Zehipour, "Influence of sintering temperature on densification, microstructure, dielectric and ferroelectric properties of Li/Sb Co-doped KNN pizoceramics," Ceramics International, vol.45, pp.22203-22206, 2019.

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-10-17]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1399.9.1.4.2]