جلد ۲ شماره‌ی ۱ بهار ۱۳۹۲

علم و مهندسی سرامیک

بررسی خصوصیات الکتریکی پیزو سرامیک‌های بدون سرب تیتانات بیسموت سدیم پتاسیم در نزدیکی مرز فازی مورفوتروپیک

اعظم موسوی، محمد علی بهره‌ور، علی‌رضا آقایی

پژوهشگاه مواد و انرژی

Az_moosavi@yahoo.com

چکیده: *پیزوسرامیک بدون سرب $Bi_{0.5}(Na_{1-x}K_x)_{0.5}TiO_3$ با نام مختصر BNKTx با مقادیر مختلف پتاسیم ۰/۲۴، ۰/۲۲، ۰/۲۰، x=۰/۱۸ به روش سنتز حالت جامد تهیه شد. بررسی فازی نمونه ها توسط پراش اشعه x نشان داد که تمامی ترکیب ها دارای ساختار پروسکایت خالص می‌باشند. در ادامه خصوصیات دی الکتریکی، فروالکتریکی و پیزوالکتریکی نمونه ها تعیین شد. افزایش مقدار پتاسیم سبب کاهش دمای قطبش زدایی T_d در نمونه‌ها می‌شود. اندازه گیری حلقه پسماند در دمای اتاق نشان داد که بیشترین مقدار میدان وادارنده و قطبش پس ماند به ترتیب در نمونه‌های x=۰/۱۸ و x=۰/۲۰ بدست آمد. بررسی کرنش در میدان الکتریکی در دمای اتاق برای تمام نمونه‌ها انجام شد و بیشترین مقدار کرنش در نمونه x=۰/۲۰ برابر ۰/۱۳ درصد حاصل شد. کرنش در دمای نزدیک T_d به مقدار بسیار بالای ۰/۳۶ درصد در نمونه x=۰/۲۰ رسید. بهترین خصوصیات دی الکتریکی و پیزوالکتریکی در نمونه x=۰/۲۰ نشان داد که ترکیب مذکور همان ترکیب مرز فازی مورفوتروپیک MPB در این سیستم می‌باشد.*

کلید واژه: *پیزوالکتریک، بدون سرب، تیتانات بیسموت سدیم پتاسیم، مرز فازی مورفوتروپیک.*

۱- مقدمه

مواد فروالکتریک با ساختار پروسکایت کاربردهای بسیاری در وسایل الکتریکی پیدا کرده‌اند. از جمله این کاربردها می‌توان به موتورها و مولدهای پیزوالکتریک، مبدل‌ها، سنسورها و کاراندازها[1] اشاره کرد. تاکنون مواد بر پایه سرب مانند $Pb(Zr,Ti)O_3$ (PZT) و $Pb(Mg_{1/3},Nb_{2/3})O_3$ (PMN) و کامپوزیت‌های آن‌ها با خصوصیات پیزوالکتریکی عالی بیشترین استفاده را داشته‌اند. اما عنصر سرب بدلیل سمی بودن و آلودگی محیط زیست و به خطر انداختن سلامت انسان و سایر موجودات زنده باید حذف شود. بنابراین بررسی ترکیب‌های بدون سرب و رسیدن به ترکیبی با خصوصیات قابل مقایسه با ترکیب پیزوالکتریک‌های دارای سرب از جمله اهداف محققان قرار گرفته است [۱-۴].

ترکیب تیتانات سدیم بیسموت (BNT) از جمله مواد فروالکتریک بدون سرب است که ویژگی‌های قابل توجه‌ای نشان می‌دهد. این ترکیب توسط Smolenskii و همکارانش در سال ۱۹۶۰ کشف شد [۵]. BNT در دمای اتاق دارای تقارن رومبوهدرال R3c می‌باشد و در دمای حدود ^{o}C ۳۰۰ ساختار آن به تتراگونال P4bm تبدیل می‌شود. این دما دمای انتقال از فاز رومبوهدرال

[1] Actuator

به تتراگونال (T_{R-T}) تعریف می‌شود. با افزایش بیشتر دما تا حدود ^{o}C ۵۴۰ فاز تتراگونال به مکعبی پاراالکتریک m3Pm تبدیل خواهد شد [۵-۹]. دمای قطبش زدایی BNT (T_d) برابر ^{o}C ۱۸۵ و دمایی که در آن ضریب دی الکتریک بیشینه می‌شود (T_m) حدود ^{o}C ۳۲۰ می‌باشد [۱۰-۱۲]. مقدار قطبش پس‌ماند (P_r) و میدان وادارنده (E_c) در BNT به ترتیب برابر $38\ \mu C/cm^2$ و $73\ kV/cm$ می‌باشد [۱۱]. اما میدان وادارنده و هدایت الکتریکی زیاد در این ترکیب از جمله نقاط ضعف آن به حساب می‌آید. برای غلبه بر آن می‌توان از ترکیب پروسکایت دیگری مانند BKT که مرز فازی مورفوتروپیک (MPB) با آن می‌دهد استفاده کرد [۹،۱۱و۱۲].

ترکیب تیتانات بیسموت پتاسیم (BKT) با ساختار تتراگونال در سال ۱۹۵۷ توسط Popper سنتز شد و ویژگی فروالکتریکی آن توسط Buhrer اثبات شد [۵]. این ترکیب دمای قطبش زدایی بالاتری از BNT نشان می‌دهد ($۲۷۰^{o}C$). این ترکیب نیز فروالکتریک می‌باشد، مقدار قطبش پس ماند و میدان وادارنده آن به ترتیب برابر $7\ \mu C/cm^2$ و $33\ kV/cm$ می‌باشد [۱۳]. دمایی که در آن ضریب دی‌الکتریک بیشینه است در BKT برابر ^{o}C ۳۸۰ می‌باشد. مرز فازی مورفوتروپیک در BNKTx در گستره x=۰/۱۶-۰/۲۰ قرار گرفته است [۱۲].

پیزوالکتریک‌های بدون سرب در نزدیکی مرز فازی مورفوتروپیک ویژگی‌های الکترومکانیکی بالا نشان می‌دهند. در فاز رومبوهدرال (BNT) قطبش در طول جهت‌های <۱۱۱> وجود دارد در حالیکه در فاز تتراگونال (BKT) قطبش خود به خودی در طول <۱۰۰> اتفاق می‌افتد. مشخصه‌های فیزیکی مانند ثوابت دی‌الکتریک و پیزوالکتریک در مرز فازی مورفوتروپیک (MPB) یک تغییر ناگهانی نشان داده و مقادیر بیشینه ای اختیار می‌کنند. این مرز فازهای رومبوهدرال و تتراگونال را از هم جدا می‌کند و در تلاقی مرز فازی، دو قطبی‌ها دوباره آرایش می‌یابند. قطبی کردن این سرامیک‌ها در ترکیب MPB آسان است زیرا قطبش خود به خودی در هر دانه می‌تواند به یکی از ۱۴ آرایش ممکن صورت گیرد (۸ جهت [۱۱۱] برای فاز رومبوهدرال و ۶ جهت [۱۰۰] برای فاز تتراگونال)، در نتیجه ماده سرامیکی با ترکیب MPB خصوصیات پیزوالکتریکی عالی نشان می‌دهند [۱۲و۱۳]. ترکیب BNKTx به عنوان فروالکتریک واهلشگر[1] به علت قرار گرفتن عناصر Bi^{+3}, Na^{+}, K^{+} همگی در مکان A در ساختار ABO_3 دارای ساختار پروسکایت پیچیده می‌باشد.

در این پژوهش هدف تهیه ترکیب‌های بر پایه BNKTx با مقادیر مختلف پتاسیم در گستره MPB می‌باشد. اثر پتاسیم بر خصوصیات دی‌الکتریکی، پیزوالکتریکی و کرنش ایجاد شده توسط میدان بررسی شده تا بتوان سیستم بدون سربی با خصوصیات قابل مقایسه با سیستم‌های سربی بدست آورد.

۲- فعالیت‌های تجربی

پیزوسرامیک بدون سرب $Bi_{0.5}(Na_{1-x}K_x)_{0.5}TiO_3$ با نام مختصر BNKTx با مقادیر مختلف پتاسیم ۰/۲۴، ۰/۲۲، ۰/۲۰، x=۰/۱۸ با روش سنتز حالت جامد تهیه شد. مواد اولیه استفاده شده عبارتند از: Bi_2O_3(99/9%,Aldrich)، K_2CO_3(>99.0%,Aldrich) و Na_2CO_3(99/95%,Aldrich) و نانو ذرات TiO_2 (Degussa). پودرهای توزین شده با

[1] Relaxor

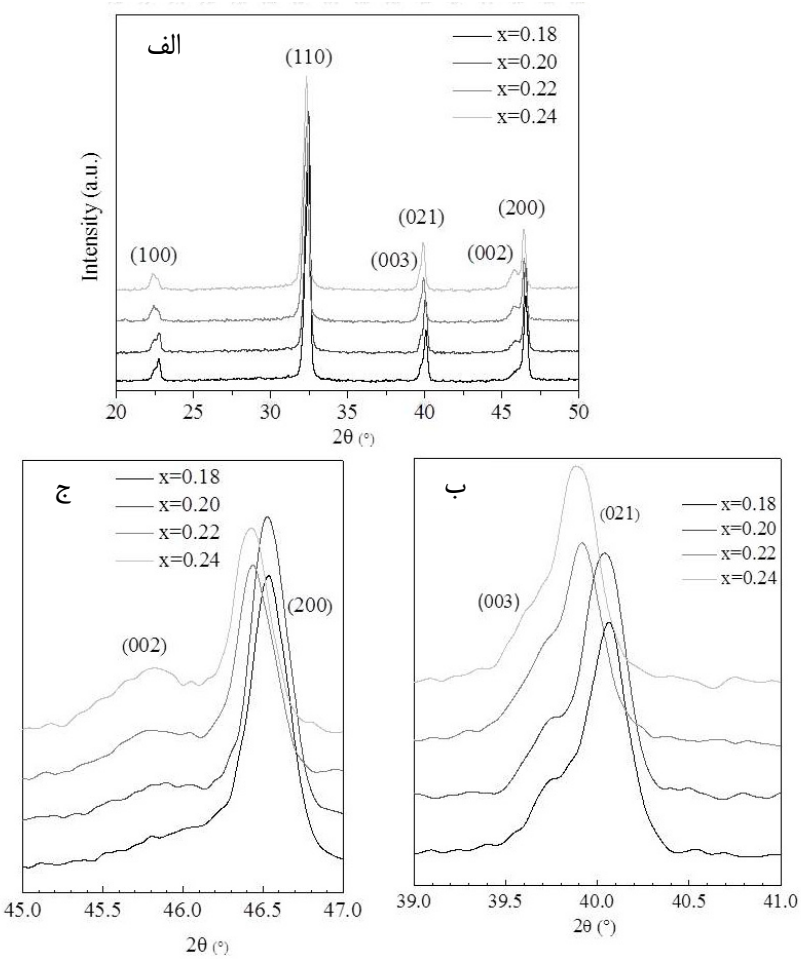
نسبت استوکیومتری به همراه اتانول درون آسیاب سیاره‌ای با گلوله‌های زیرکونیایی با سرعت 180 rpm بـه مـدت ۲ سـاعت آسیاب شدند. پودرهای حاصل پس از خشک شدن در دمای ۸۵۰°C درجه به مدت ۲ سـاعت کلـسینه شـدند. بعـد از آسـیاب مجدد به مدت ۳ ساعت از پودرهای کلسینه شده تحت فشار ۲۵۰ مگاپاسکال قرص‌هایی به قطر ۱۳ و ضـخامت ۱ میلـی‌متـر تهیه شد. فرایند زینتر قرص‌های تهیه شده درون بوته‌های در بسته از جنس آلومینا، در دمای ۱۱۵۰°C به مدت ۲ ساعت و بـا سرعت ۵°C/min انجام گرفت. بعد از برداشتن لایه‌ای از سطح قرص‌های زینتر شـده توسـط کاغـذ سـمباده دانـسیته آن‌هـا محاسبه شد.

جهت بررسی فازی نمونه‌ها آزمایش پراش اشعه ایکس XRD به کمک دستگاه زیمـنس D500 باتـابش مـس بـه طـول مـوج ۱/۵۴۱۸ آنگستروم به روی نمونه‌ها انجام شد. برای اندازه‌گیری‌های الکتریکی خمیر نقره بروی دو سطح قـرص‌هـا نـشانده و در دمای ۶۰۰ °C به مدت ۱ ساعت پخت شدند. بستگی گذردهی دی الکتریک به دما در گستره دمایی ۲۵ تـا ۴۵۰ °C بـا سـرعت ۲ °C/min در بسامدهای[1] ۰/۱ تا ۱۰۰۰ کیلو هرتز به کمک HP 4284A LCR meter انجام شد. حلقه‌های پسماند در دمـای اتاق با اعمال موج‌های سینوسی ولتاژ در بسامد ۰/۱ هرتز توسط دستگاه HP3325B و تقویت کننده با ولتاژ بالا اندازه‌گیری شد. برای اندازه‌گیری مشخصات پیزوالکتریکی، نمونه‌های سرامیکی تحت میدان ۴-۳ kV/mm در دمای ۱۵۰°C به مدت ۱۵دقیقـه قطبی شدند. ضریب پیزوالکتریک d_{33} بعد از قطبی شدن نمونه‌ها با دستگاه Berlincourt اندازه‌گیری شد. برای ارزیابی ویژگـی نمونه‌ها به عنوان کارانداز، اندازه‌گیری تغییر شکل طولی قرص‌ها تحت میدان مثبت موازی با جهت قطبش انجام شد. ولتاژهـای محرکه، موج‌های سینوسی بایاس شده ۰/۱ هرتز بودند که توسط مولد دیجیتالی NI-SCXI 1302 و منبع تغذیه/تقویـت کننـده KEPCO BOP 1000 M اعمال شدند. تغییر شکل به کمک مبدل تفاضلی خطی متغیر[2] اندازه‌گیری شد.

۳- نتایج و بحث

الگوهای پراش اشعه X از نمونه‌های BNKTx با مقادیر x مختلف در گستره 2θ برابر ۲۰-۵۰ درجه در شکل ۱الـف نـشان داده شده است. همانطور که از این شکل دیده می‌شود تمام ترکیب‌های دارای سـاختار پروسـکایت خـالص بـا تقـارن رومبوهـدرال و تتراگونال بدون فاز ناخالصی و همراه با تشکیل محلول جامد می‌باشند. فازهای BNT و BKT بر اساس کارت های JCPDS به ترتیب با شماره‌های ۰۳۴۰-۳۶ و ۰۳۳۹-۳۶ بررسی شدند. حضور دو پیک (۰۲۱)/(۰۰۳) در محـدوده ۳۹-۴۱ درجـه مربـوط بـه تقارن رومبوهدرال (شکل ۱ب) ترکیب BNT می‌باشد در حالیکه هم پوشانی دو پیـک (۲۰۰)/(۰۰۲) در محـدوده ۴۵-۴۷ درجـه (شکل ۱ج) نشان دهنده تقارن تتراگونال ترکیب BKT می‌باشد. هم پوشانی پیک‌های ذکر شده نشان از وجود همزمان فازهـای تتراگونال و رومبوهدرال در ترکیب‌های MPB در سیستم BNKTx دارد [۱۴]. با افزایش مقدار x از ۰/۱۸ به ۰/۲۴ و بالا رفـتن مقدار پتاسیم پیک‌های پراش به طور سیستماتیک به سمت زوایای کمتر منتقل می‌شوند که بر اساس رابطه براگ نـشان دهنـده ثوابت شبکه بزرگتر می‌باشد [۱۳].

[1] Frequency
[2] Linear variable differential transducer

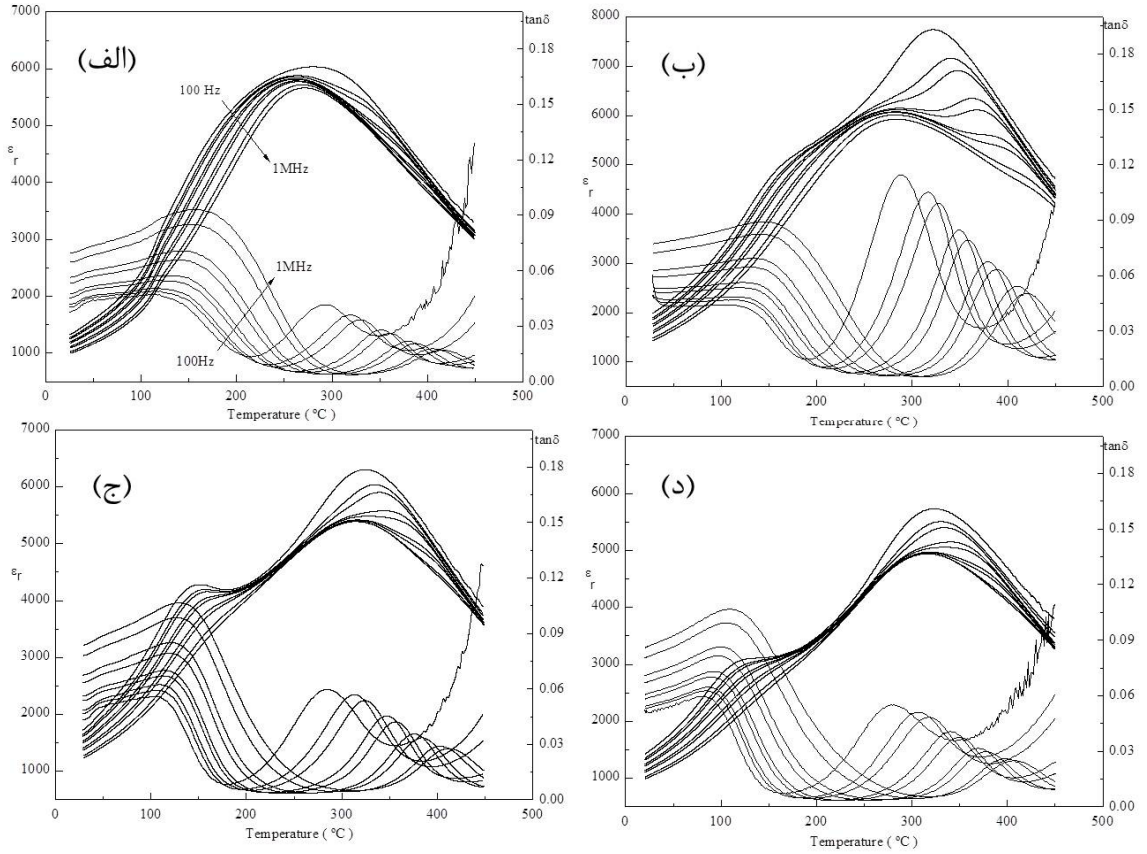


شکل ۱- الگوی پراش اشعه X سرامیک‌های BNKTx (۰/۲۴، ۰/۲۲، ۰/۲۰، ۰/۱۸=x)

الف) در محدوده ۲θ برابر ۲۰-۵۰ درجه ب) ۳۹-۴۱ درجه ج) ۴۵-۴۷ درجه.

جانشینی کاتیون‌ها در مکان‌های A در ساختار پروسکایت اثر زیادی بر رفتار دی الکتریک پروسکایت‌های فروالکتریک با دما دارد [۱۵-۱۸]. بنابراین بستگی دمایی ثابت دی الکتریک نسبی (ε_r) و تانژانت اتلاف (tan δ) نمونه‌ها بررسی شد. شکل ۲ تغییرات ε_r و tan δ نمونه‌های قطبی نشده را در بسامدهای ۰/۱، ۰/۵، ۱، ۵، ۱۰، ۵۰، ۱۰۰ و ۱۰۰۰ کیلو هرتز نشان می‌دهد. در این شکل به جز نمونه ۰/۱۸ علاوه بر پیک بیشینه ثابت دی الکتریک، یک شانه[1] نیز در دماهای پایین‌تر دیده می‌شود. در دمای T_m هر دو مقدار ε_m و tan δ با افزایش بسامد کاهش می‌یابد. مقدار ε_r در نمونه ۰/۲۰ افزایش زیادی نشان می‌دهد و سپس با افزایش بیشتر مقدار پتاسیم به طور تدریجی کاهش می‌یابد. رفتار پاشیدگی بسامدی[2] ε_r در دماهای کمتر از شانه و اطراف T_m در تمامی نمونه‌ها دیده می‌شود. وابستگی دمای T_m به بسامد، رفتار پاشیده[3] منحنی ε_r در حدود T_m، و پیک پهن بیشینه مشاهد شده در منحنی‌های ε_r-T همگی اشاره به مکانیزم گذار پخشی[4] از فاز تتراگونال به پاراالکتریک مکعبی در سیستم BNKTx دارند.

[1] Shoulder
[2] Frequency dispersive behavior
[3] Dispersive
[4] Diffuse transition



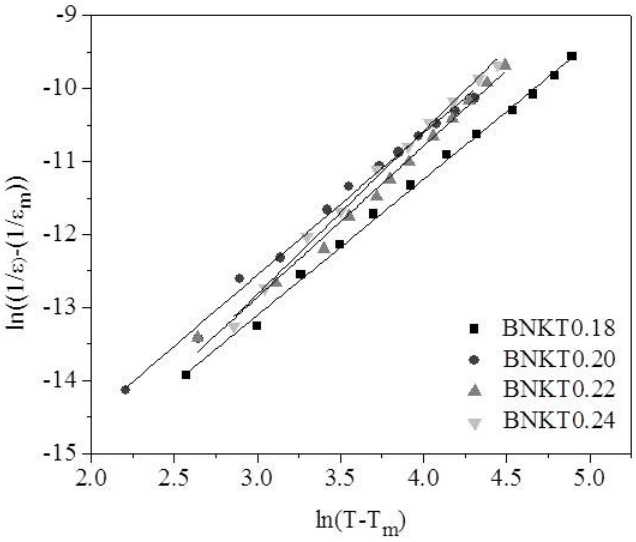
شکل ۲- تغییرات ε_r و tan δ نمونه‌های قطبی نشده را در بسامدهای ۰/۱، ۰/۵، ۱، ۵، ۱۰، ۵۰، ۱۰۰ و ۱۰۰۰ کیلو هرتز الف) x=۰/۱۸ ب) x=۰/۲۰ ج) x=۰/۲۲ د) x=۰/۲۴.

در حقیقت در این حالت، قانون کوری-وایس تعدیل شده می‌تواند استفاده شود:

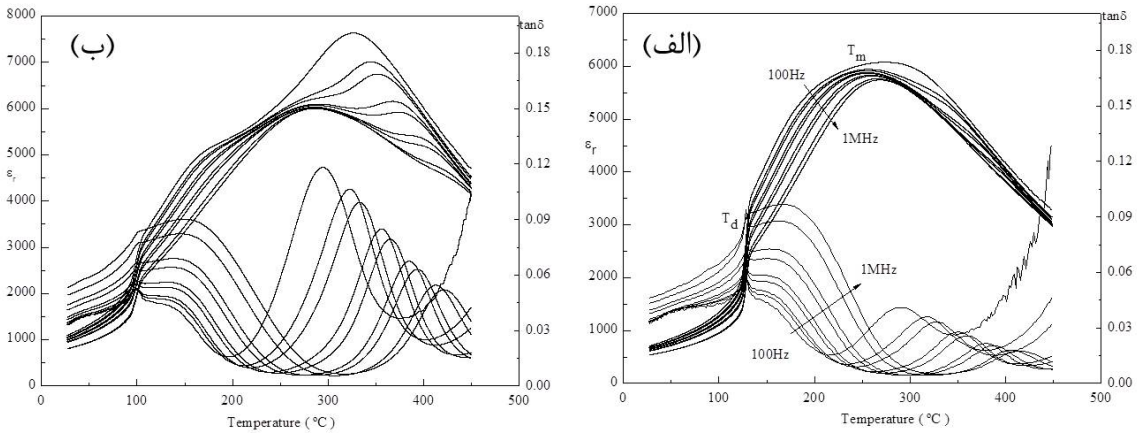
$$\frac{1}{\varepsilon_r}-\frac{1}{\varepsilon_m}=C\left(T-T_m\right)^{\gamma}$$

که در آن C و γ به ترتیب ثابت کوری و مقدار پراکندگی می‌باشند. مقدار γ بین ۱ و ۲ برای مواد فروالکتریک تغییر می‌کند. وقتی γ برابر ۱ باشد رابطه بالا به صورت قانون کوری-وایس برای مواد فروالکتریک کلاسیک با ساختار پروسکایت در می‌آید و وقتی به ۲ نزدیک می‌شود بیانگر رفتار فروالکتریک واهلشگر می‌باشد [۱۹]. شکل ۳ تغییرات $\ln(\frac{1}{\varepsilon_r}-\frac{1}{\varepsilon_m})$ بر حسب $\ln(T-T_m)$ را برای نمونه‌های مختلف در بسامد ۱۰ کیلو هرتز نشان می‌دهد. شیب خطوط که بیانگر مقدار γ است در محدوده ۱/۸۳-۱/۹۸ قرار دارد که رفتار واهلشگری نمونه‌ها را بیان می‌کند.

روش‌های متفاوتی برای تعیین دمای قطبش زدایی (T_d) سرامیک‌های فروالکتریک بیان شده است. Hiruma و همکارانش برای تعیین T_d از اولین پیک tan δ برحسب دما از نمونه‌های کاملا قطبی شده استفاده کردند [۲۰]. شکل ۴ تعیین دمای قطبش‌زدایی نمونه‌های ۰/۱۸ و ۰/۲۰ را نشان می‌دهد. ناپیوستگی در tan δ بر حسب دما در نمونه‌های قطبی شده در دماهای کم نشان‌دهنده دمای قطبش‌زدایی می‌باشد. مقادیر T_d تمام نمونه‌ها در جدول ۱ گرد آوری شده است.

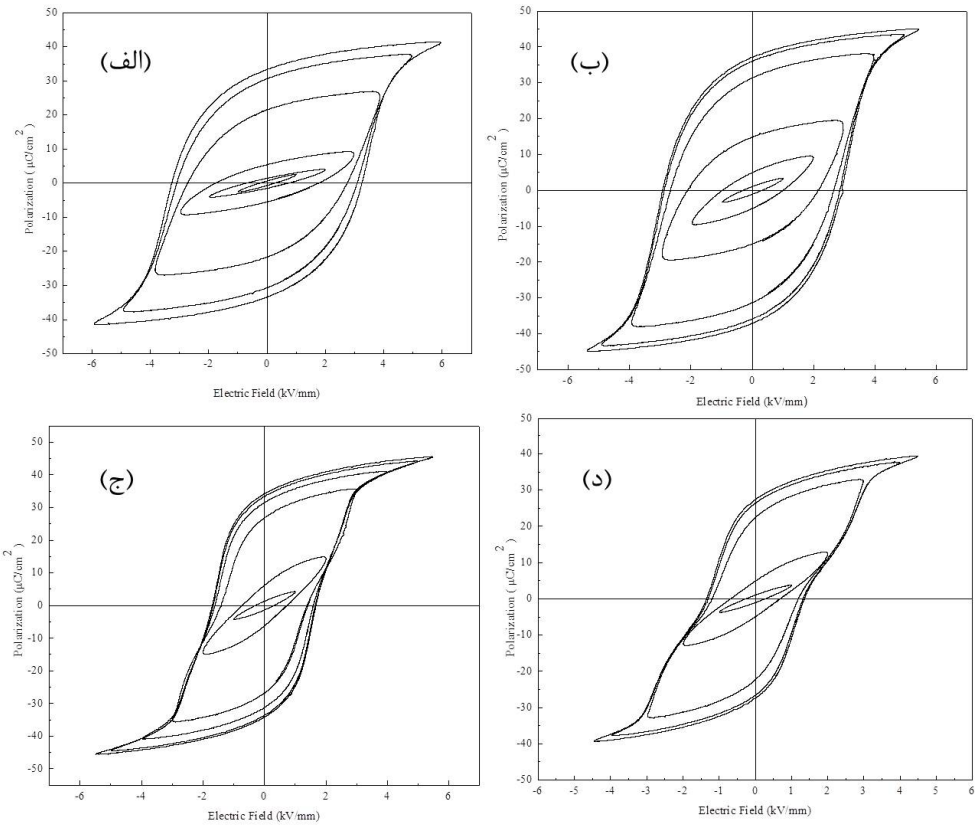


شکل ۳- تغییرات $\ln(\frac{1}{\varepsilon_r}-\frac{1}{\varepsilon_m})$ بر حسب $\ln(T-T_m)$ برای تمام نمونه‌ها.



شکل ۴- تعیین دمای قطبش زدایی در نمونه‌های الف) x=۰/۱۸ ب) x=۰/۲۰.

حلقه پسماند نمونه‌ها با مقادیر مختلف پتاسیم در شکل ۵ نشان داده شده است. بیشترین مقدار میدان بازدارنده (E_c) در نمونه x=۰/۱۸ و بیشترین مقدار قطبش پس ماند (P_r) در نمونه x=۰/۲۰ بدست آمد. مقادیر قطبش پس ماند همه نمونه‌ها در جدول ۱ دیده می‌شود. با افزایش مقدار پتاسیم حلقه پسماند باریکتر می‌شود و با رسیدن به x=۰/۲۴ منحنی جمع می‌شود. در بسیاری از بررسی‌های انجام شده این جمع شدگی منحنی به حضور فاز آنتی فروالکتریک در ترکیب‌های بر پایه BNT نسبت داده شده است [۲۱و۲۲]. این حالت در نمونه پروسکایت‌های واهلشگر کلاسیک نیز دیده می‌شود. در فروالکتریک‌های پروسکایت کلاسیک این جمع شدگی مربوط به وجود فازهای آنتی فروالکتریک نمی‌باشد بلکه دلیل آن به حضور فاز غیر قطبی یا قطبی ضعیف که با اعمال میدان الکتریکی به فاز قطبی تبدیل می‌شود بر می‌گردد [۲۳]. با توجه به مقادیر قطبش پس‌ماند حتی در مورد نمونه x=۰/۲۴ می‌توان گفت که این جمع شدگی منحنی ممکن است به علت حضور فاز غیر قطبی یا قطبی ضعیف در سیستم BNKTx باشد.

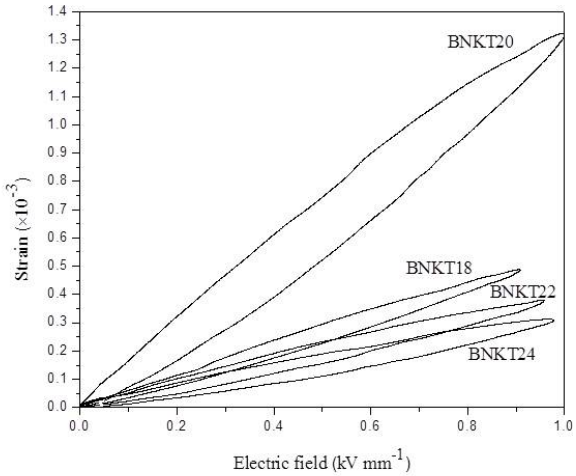


شکل ۵- حلقه پسماند نمونه‌ها با مقادیر مختلف پتاسیم الف) x=۰/۱۸ ب) x=۰/۲۰ ج) x=۰/۲۲ د) x=۰/۲۴.

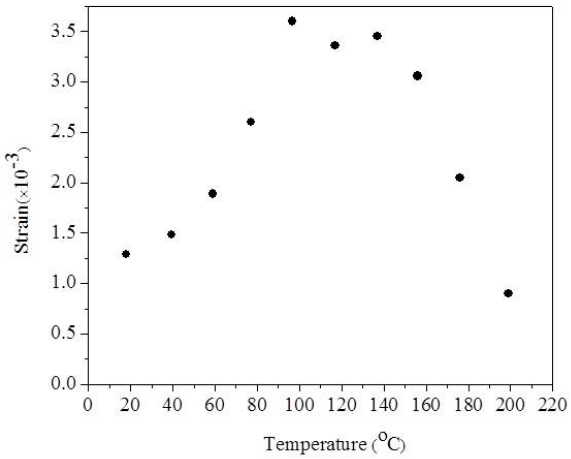
کرنش القا شده[1] توسط میدان الکتریکی برای تمام نمونه‌ها در میدان ۱ kV/mm اندازه‌گیری شد. مقدار قابل توجه کرنش S=۰/۱۳٪ در نمونه x=۰/۲۰ بدست آمد (شکل ۶). گزارش شده است که ترکیب‌های BNKTx در مرز فازی مورفوتروپیک که دارای دو فاز فروالکتریک رومبوهدرال و تتراگونال هستند بهینه مقادیر دی‌الکتریک، فروالکتریک و پیزوالکتریک را نشان می‌دهند. همچنین پیشنهاد شده است که فازهای آنتی فروالکتریک در این سیستم وجود ندارد. نتایج XRD وجود همزمان فازهای فروالکتریک تتراگونال و رومبوهدرال را تایید کرد (شکل ۱). گفته شده است که در بین دماهای قطبش زدایی T_d و T_m ناحیه دو فازی وجود دارد [۲۴]. بنابراین در نمونه x=۰/۲۰ (شکل ۴) دمای قطبش زدایی و دمای انتقال از فاز رومبوهدرال به تتراگونال T_{R-T} بر هم منطبق است. از آنجاییکه وضعیت سامان‌ها[2] و ترکیب فاز در MPB در سیستم BNKTx تقریبا پیچیده است، انتقال فاز از طریق اعمال میدان الکتریکی، می‌تواند منجر به کرنش‌ها و اتلاف بالاتر شود. در شکل ۴ مقدار دمای قطبش‌زدایی در نمونه x=۰/۲۰ برابر ۱۰۰ ^oC بدست آمد با اندازه‌گیری کرنش در دماهای مختلف، مقدار S=۰/۳۶٪ در دمای ۹۶/۸^oC نزدیک به دمای قطبش زدایی حاصل شد (شکل ۷). می‌توان نتیجه‌گیری کرد که در سیستم BNKTx تغییر تقارن کریستالی از رومبوهدرال به تتراگونال در میدان الکتریکی کوچک ۱ kV/mm در دمای $T_{R-T}=T_d$ اتفاق می‌افتد. مقدار کرنش

[1] Field-induced strain
[2] Domain

بالا در دماهای نزدیک دمای قطبش زدایی نشان دهنده انتقال فازی آسان در میدان‌های الکتریکی کوچک می‌باشد. مقادیر ضرایب پیزوالکتریک d_{33} و کرنش نرماله شده d_{33}^* نمونه‌ها در جدول ۱ دیده می‌شود. بیشینه مقدار هر دو ضریب در ترکیب BNKT۰/۲۰ بدست آمد. اگرچه مقادیر d_{33} با سایر گزارشات ارائه شده توسط دیگران قابل مقایسه می‌باشد اما مقادیر کرنش بسیار بالا در دمای محیط کاملا استثنایی می‌باشد. مقادیر بالای d_{33}^* بیانگر میدان‌های الکتریکی کم برای انتقال فاز در مرز فازی مورفوتروپیک می‌باشد.



شکل ۶- حلقه‌های کرنش طولی بر حسب میدان (S-E) در تمام نمونه‌ها.



شکل ۷- بررسی کرنش طولی بر حسب دماهای مختلف در نمونه x=۰/۲۰

بنابراین می‌توان گفت که در سیستم BNKTx بالاترین مقادیر d_{33} و d_{33}^* در ترکیب MPB (x=0.20) بین فازهای رومبوهدرال و تتراگونال بدست آمد. در حالیکه در دمای قطبش زدایی ویژگی‌های پیزوالکتریکی از بین می‌رود، اما کرنش القا شده در این دما در ترکیب مذکور افزایش چشمگیری نشان می‌دهد. همانطور که انتظار می‌رفت در ترکیب MPB کلیه ویژگی‌های الکترو مکانیکی افزایش قابل توجه‌ای نشان دادند بطوریکه مقدار کرنش القا شده در این نقطه، بیشینه مقدار را دارا

می‌باشد. شایان ذکر است که مقدار کرنش‌های بالا اغلب در ترکیب فازی آنتی فروالکتریک-فروالکتریک و تبدیل فاز آنتی‌فروالکتریک به فاز فروالکتریک با اعمال میدان الکتریکی بدست آمده است، در حالیکه مقادیر کرنش حاصل از این پژوهش نشان داد که در مرز فازی رومبوهدرال-تتراگونال جاییکه دو فاز فروالکتریک-فروالکتریک وجود دارند با اعمال میدان الکتریکی در مقدار ۱ kV/mm انتقال فاز اتفاق افتاده و مقادیر کرنش افزایش می‌یابند. افزایش دما تا دمای قطبش زدایی نیز موجب ترغیب انتقال فاز و افزایش کرنش می‌شود (شکل ۷).

جدول ۱- دمای قطبش زدایی (T_d)، خصوصیات فروالکتریکی و پیزوالکتریکی تمامی نمونه‌های BNKTx.

ترکیب	۰/۱۸BNKT	۰/۲۰BNKT	۰/۲۲BNKT	۰/۲۴BNKT
T_d (°C)	۱۳۰	۱۰۰	۷۱	۶۵
P_r (μC/cm^2)	۳۳/۵	۳۷/۵	۳۴	۲۶/۸
E_c (kV/mm)	۳/۲۶	۲/۶۰	۱/۵۵	۱/۱۸
d_{33} (pC/N)	۱۵۰	۱۹۵	۱۶۰	۱۲۵
(pm/V) d^*_{33}	۵۶۰	۱۳۲۰	۴۴۰	۳۶۰

۴- نتیجه‌گیری

پیزوسرامیک BNKTx با روش سنتز حالت جامد تهیه شد. تمامی ترکیبات بررسی شده فاز فروالکتریک با ساختار پروسکایت نشان می‌دهند. ویژگی‌های دی الکتریکی، فروالکتریکی و پیزوالکتریکی ترکیب BNKTx نشان داد که ترکیب بهینه در x=۰/۲۰ قرار دارد. در حقیقت بهترین انتخاب به عنوان ترکیب MPB در نمونه x=۰/۲۰ حاصل شده است. مطالعات دی‌الکتریکی نشان دادکه در مرز فازی مورفوتروپیک، سیستم فروالکتریک واهلشگر می‌باشد. همچنین با افزایش مقدار پتاسیم دمای قطبش زدایی کاهش یافت. مقدار کرنش S=0.13% در نمونه بهینه تحت میدان ۱ kV/mm بدست آمد. مقادیر بالاتر کرنش S=0.38% در میدان های بزرگتر ۲/۴ kV/mm یا دمای بالاتر (100°C) نتیجه شد. میدان محرکه اعمالی بسیار کوچکتر از سایر گزارشات ارائه شد در مورد سیستم‌های بر پایه BNT می‌باشد که این امر نوید بخش استفاده از این ترکیب بدون سرب را به عنوان کارانداز می‌دهد.

مراجع

1. B. Jaffe, R. S. Roth, S. Marzullo, “Piezoelectric properties of lead zirconate titanate:II,” Appl. Phys. 25 [6]: 809-810 (1954).
2. G. H. Haertling, ” Ferroelectric ceramics: History and Technology“ J. Am. Ceram. Soc. 82: 797-818 (1999).
3. K. Uchino, Ferroelectric devices (Marcel Dekker, New York, 2000).

4. P. K. Panda, Mat. Sci., “Environmental friendly lead-free piezoelectric materials” 44: 5049-5062 (2009).
5. J. Rodel, W. Joo, K. T. P. Seifert, E. Maria, and T. Granzow, “Perspective on the development of lead-free piezoceramics” J. Am. Ceram. Soc. 92 [6]: 1153-1177 (2009).
6. J. A. Zvirgzds, P. P. Kapostis, and J. V. Zvirgzde, “X-ray study of phase transition in ferroelectric $(Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO_3$” Ferroelectrics 40: 75-77 (1982).
7. G. O. Jones and P. A. Thomas, “The tetragonal phase of NBT- a new variant of the perovskite structure” Acta Crystallogr., Sect. B: Struct. Sci. 56 [3]: 426-430 (2002).
8. G. Siny, C. S. Tu, and V. H. Schmidt, “Critical acoustic behavior of the relaxor ferroelectric BNT in the transition region” Phys. Rev. B 51 5659- 5665 (1995).
9. K. Sakata and Y. Masuda, ”Ferroelectric and antiferrielectric properties of BNT-$SrTO_3$ solid-solution ceramics” Ferroelectrics 7: 347-351 (1974).
10. C. S. Tu, I. G. Siny, , and V. H. Schmidt, ”Sequence of dielectric anomalies and high temperature relaxation behavior in BNT” Phys. Rev. B 49: 11550-11559 (1994).
11. T. Takenaka, K. Sakata, K. Toda, “Piezoelectric and pyroelectric properties of BNT- based ceramics” Ferroelectrics 95: 153-156 (1989).
12. Sasaki, T. Chiba, Y. Mamiya, E. Otsuki, ”Dielectric and piezoelectric properties of (BNKT) systems” Jpn. J. Appl. Phys. 38: 5564-5567 (1999).
13. M. Otoničar, S. D. Škapin, M. Spreitzer, D. Suvorov, “Compositional range and electrical properties of the morphotropic phase boundary in the BNT-BKT system” J. Eur. Ceram. Soc.” 30: 971-979 (2010).
14. M. Zou, H. Fan, L. Chen, W. Yang, ”Microstructure and electrical properties of (1-x)[0/82BNT-0/18BKT]-x$BiFeO_3$ lead-free piezoelectric ceramics” J. Alloys Compd. 495: 280-283 (2010).
15. H-d. Li, C-d. Feng, W-l. Yao, “Some effects of different additives on dielectric and piezoelectric properties of BNT-$BaTiO_3$ morphotropic phase boundary composition” J. Mat. Lett. 58 (2004) 1194-1198.
16. Z. Yang, B. Liu, L. Wei, Y. Hou,”Structure and electrical properties of (1-x)BNT-xBKT ceramics near morphotropic phase boundary” J. Mat. Res. Bull. 43: 81-89 (2008).
17. P. Marchet, E. Boucher, V. Dorcet, J. P. Mercurio, “Dielectric properties of some low-lead or

lead-free perovskite-derived materials BNT-$PbZrO_3$, BNT-$BiScO_3$ and BNT-$BiFeO_3$ ceramics" J. Eur. Ceram. Soc. 26 [14]: (2006) 3037-3041.

18. B. Parija, T. Badapanda, V. Senthil, S. K. Rout, S. Panigrahi, "Diffuse phase transition, piezoelectric and optical study of BNT ceramic" Bull. Mat. Sci. 35 [2]: (2012) 197-202.
19. X. X. Wang, S. H. Choy, X. G. Tang, H. L. Chan, "Dielectric behavior and microstructure of BNT-BKT-BT lead-free piezoelectric ceramics" J. Appl. Phys. 97: 104101 (2005).
20. Y. Hiruma, H. Nagata, T. Takenaka, "Phase transition temperatures and piezoelectric ceramics of BNT-BKT-BaTiO3 lead-free piezoelectric ceramics" Jpn. J. Appl. Phys. 45 [5B]: 7409-7412 (2006).
21. S-T. Zhang, A. B. Kounga, E. Aulbach, T. Granzow, W. Jo, "Lead-free piezoceramics with giant strain in the system BNT-BT-KNN.I. Structure and room temperature properties" J. Appl. Phys. 103: 034107 (2008).
22. Singh, R. Chatterjee, "Structural, electrical, and strain properties of stoichiometric 1-x-y(BNT)-X(BKT)-Y(KNN) solid solutions" J. Appl. Phys. 109: 024105 (2011).
23. W. Jo, S. Schaab, E. Sapper, L. A. Schmitt, H-J. Kleebe, A. J. Bell, J. Rodel, J."On the phase identity and its thermal evolution of lead free BNT-6mol% BT" Appl. Phys. 110: 074106 (2011).
24. Y. Hiruma, H. Nagata, and T. Takenaka, "Phase diagrams and electrical properties of BNT-based solid solutions" J. Appl. Phys. 104: 124106 (2008).