فصلنامه‌ی علمی

علم و مهندسی سرامیک

دوره‌ی ۱۰، شماره‌ی ۳، پاییز ۱۴۰۰

بررسی تأثیر افزودنی اکسید نیوبیوم بر خواص دی‌الکتریک تیتانات بیسموت

نوع مقاله: علمی پژوهشی

فاطمه علیدوستی شهرکی[۱]، هاجر احمدی مقدم*[۲]

[۱] دانشجوی کارشناسی ارشد، مهندسی مواد، دانشکده مهندسی، دانشگاه شهرکرد

[۲] استادیار گروه مهندسی مواد، دانشکده مهندسی، دانشگاه شهرکرد

*hajar.ahmadi@sku.ac.ir

اطلاعات مقاله:

دریافت: ۲۲ فروردین ۱۴۰۰

پذیرش: ۸ خرداد ۱۴۰۰

صفحه ۲۴ تا صفحه ۳۵

در دسترس در نشانی:

www.ijcse.ir

زبان نشریه: فارسی

شاپا چاپی: ۲۳۵۲-۲۳۲۲

شاپا الکترونیکی:

۲۷۸۳-۳۰۰۳

چکیده:

سرامیک تیتانات بیسموت به عنوان یک فروالکتریک عاری از سرب به دلیل دمای کوری بالا در کاربردهای دما بالا و همچنین کاربردهای فرکانس‌های بالا مورد توجه قرار گرفته است. در این مطالعه، تاثیر اکسید نیوبیوم به عنوان افزودنی بر ریز ساختار و خواص دی‌الکتریکی سرامیک تیتانات بیسموت مورد بررسی قرار گرفت. به این منظور به تیتانات بیسموت سنتز شده با روش حالت جامد، اکسید نیوبیوم در مقادیر ۰/۳، ۰/۶ و ۱/۲ درصد مولی اضافه گردید. نتایج به‌دست آمده نشان داد که اکسید نیوبیوم تأثیر چشم‌گیری بر ریزساختار و خواص دی‌الکتریک سرامیک تیتانات بیسموت خواهد گذاشت. افزودنی اکسید نیوبیوم منجر به بهبود چگالش و افزایش چگالی سرامیک تیتانات بیسموت گردید به گونه‌ای که برای نمونه حاوی ۰/۶ درصد مولی اکسید نیوبیوم، بیش‌ترین چگالی به مقدار ۹۸ درصد چگالی تئوری حاصل شد. مقدار ۰/۶ درصد مولی اکسید نیوبیوم به عنوان مقدار بهینه گزارش می‌شود که در این نمونه بیش‌ترین مقدار ثابت دی الکتریک به مقدار ۴۲۰ و کم‌ترین مقدار اتلاف دی‌الکتریک به مقدار ۰/۰۴ حاصل گردید و هم‌چنین وابستگی خواص دی‌الکتریک این نمونه به فرکانس نسبت به تیتانات بیسموت کم‌تر بود. بهبود در خواص دی‌الکتریک تیتانات بیسموت را می‌توان به رشد دانه و افزایش چگالی در حضور افزودنی اکسید نیوبیوم نسبت داد. نتایج این تحقیق نشان داد اندازه دانه سرامیک تیتانات بیسموت تاثیر قابل توجهی بر ثابت دی الکتریک و اتلاف دی‌الکتریک خواهد داشت.

کلیدواژه:

تیتانات بیسموت، اکسید نیوبیوم، ریزساختار، ثابت دی‌الکتریک، اتلاف دی‌الکتریک

کد DOR: 20.1001.1.23222352.1400.10.0.4.7

۱- مقدمه

در سال‌های اخیر، تحقیقات در مورد مواد فروالکتریک بدون سرب به دلیل سازگاری زیست‌محیطی مناسب آن‌ها متمرکز شده است. تیتانات بیسموت ($Bi_4Ti_3O_{12}$, BIT) معروف‌ترین ترکیب فروالکتریک‌های ساختار لایه‌ای بیسموت بدون

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-14]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1400.10.0.4.7]

سرب (BLSFs) با دمای کوری بالا (۶۷۵°C) است [۱]. فرمول شیمیایی گروه BLSFs به فرم $(Bi_2O_2)^{2+}(A_{n-1}BnO_{3n+1})^{2-}$ است و ساختار آن‌ها متشکل از واحدهای شبه پروسکایت $(A_{n-1}BnO_{3n+1})^{2-}$ و لایه‌های $(Bi_2O_2)^{2+}$ در امتداد محور c هستند. در اینجا A یون فلزی تک، دو یا سه ظرفیتی با عدد همسایگی ۱۲ و B یون فلزی چهار، پنج یا شش ظرفیتی با عدد همسایگی ۶ است و n یک عدد صحیح که بیانگر تعداد ساختارهای هشت‌وجهی (اکتاهدرال) BO_6 در $(A_{n-1}BnO_{3n+1})^{2-}$ که بین لایه‌های $(Bi_2O_2)^{2+}$ قرار می‌گیرند [۲، ۳].

اکسیدهای BLSF، ثابت دی‌الکتریک کم، استحکام شکست دی‌الکتریک بالا، دمای کوری بالا، ضریب دمایی پاسخ فرکانس کم، ناهمسانگردی شدید و نرخ پیرشوندگی کم از خود نشان می‌دهند. این ویژگی‌ها کاربرد اکسیدهای BLSF را به عنوان مواد پیزوالکتریک در دماهای بالا و فرکانس‌های بالا فراهم می‌کند [۲، ۴]. اکسیدهای BLSF به سختی قطبی می‌شوند بنابراین خواص پیزوالکتریک ضعیفی دارند [۵، ۶]. مواد BLSFs به‌دلیل قابلیت استفاده آن‌ها در حافظه‌های پذیرش تصادفی فروالکتریک (NvRAMs) به شدت مورد توجه قرار گرفتند [۷]. BIT یکی از ساده‌ترین ترکیبات خانواده BLSF با پتانسیل بالا برای کاربرد در صنعت الکترونیک است [۸]. همچنین این ماده در گسترش آنتن‌ها و NvRAMs کاربرد زیادی دارد. BIT در مقایسه با مواد فروالکتریک دیگر مانند $BaTiO_3$ و $PbZr_xTi_{1-x}O_3$، دمای کوری بالایی دارد که این ویژگی کاربرد آن را برای رنج دمای وسیع فراهم خواهد کرد [۹].

در سال‌های اخیر، روش‌هایی برای بهبود خواص سرامیک‌های BLSFs معرفی شده است و با استفاده از این روش‌ها افزایش قابل توجهی در خواص فروالکتریک‌های BLSFs حاصل گردید. از جمله این روش‌ها می‌توان به تف‌جوشی پلاسما، پرس گرم، روش فورچینگ گرم، رشد دانه جهت‌دار و استفاده از دوپنت‌ها اشاره نمود. در میان این روش‌ها، استفاده از دوپنت‌ها ساده‌تر و نیاز به امکانات کم‌تری دارد که در تولید صنعتی هم قابل کاربرد خواهد بود. استفاده از دوپنت‌ها می‌تواند به صورت قابل توجهی رفتار تف‌جوشی، ریزساختار و خواص الکتریکی سرامیک‌ها را تغییر دهد. گزارش شده است جانشینی کاتیون‌های در مکان A می‌تواند خواص سرامیک‌های BLSFs را بهبود دهد. لوادو و استاچیوتی به بررسی استفاده همزمان از دوپنت‌های Fe^{3+} و Nb^{5+} بر خواص سرامیک BIT با فرمول $Bi_4Ti_{3-x}(Nb_{0.5}Fe_{0.5})_xO_{12}$ پرداختند. نتایج تحقیق آن‌ها نشان داد که با استفاده از این افزودنی‌ها وابستگی خواص دی‌الکتریک به فرکانس در دمای اتاق برای سرامیک BIT کاهش می‌یابد و همچنین مقدار ثابت دی‌الکتریک و اتلاف دی‌الکتریک به‌شدت وابسته به مقدار دوپنت‌ها خواهد بود [۹]. استفاده همزمان از دوپنت‌های کاتیون گروه لانتانوم (مانند Er^{3+}، Nd^{3+}، Ho^{3+}) و کاتیون فلز قلیایی (مانند Na^+، K^+، Li^+) اثر بیش‌تری در بهبود خواص BLSFs نشان می دهد [۱۰، ۱۱]. گزارش شده است جانشینی کاتیون‌های (Nd, Ce) به جای Bi در ساختار BLSFs از طریق جلوگیری از تبخیر Bi و ایجاد عیوب ساختاری منجر به افزایش خواص پیزوالکتریک می‌شود [۱۰]. خواص سرامیک‌های BIT می‌تواند با جانشینی دوپنت‌ها در مکان A و مکان B بهبود یابد [۱۲، ۱۳]. دوپنت‌ها می‌توانند به

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-14]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1400.10.0.4.7]

صورت مؤثر نشت جریان را کاهش و خواص فروالکتریک را بهبود دهند. تاثیر دوپنت‌هایی از قبیل CeO_2، La_2O_3، Sm_2O_3 و V_2O_5 بر خواص سرامیک‌های BIT مورد بررسی قرار گرفتند [۱۴]. جایگزینی V^{5+} به جای Ti^{4+}، خواص دی‌الکتریک، فروالکتریک و پلاریزاسیون باقی مانده سرامیک‌های BIT را بهبود داد [۱۵]. دوپنت‌های دهنده ظرفیت بالا از قبیل Ta^{5+} و W^{6+} برای کاهش هدایت الکتریکی سرامیک‌های BIT از طریق کاهش غلظت جاهای خالی اکسیژن استفاده می‌شوند [۱۶، ۱۷].

سی و همکارانش تاثیر استفاده همزمان از دوپنت‌های Mn^{3+} و Nb^{5+} بر خواص BIT با فرمول $Bi_4Ti_{3-x}(Mn_{1/3}Nb_{2/3})_xO_{12}$ بررسی نمودند و گزارش کردند استفاده از این افزودنی‌ها منجر به افزایش دمای کوری و هم‌چنین بهبود خواص پیزوالکتریک سرامیک‌های BIT می‌گردد که به کاهش غلظت جاهای خالی اکسیژن و کاهش هدایت الکتریکی نسبت داده شد [۱۸].

در تحقیقات انجام شده تاثیر دوپنت‌ها در حین سنتز پودر مورد بررسی گسترده‌ای قرار گرفته است و در مورد استفاده از افزودنی بعد از سنتز پودر برای بهبود خواص سرامیک BIT مطالعات خیلی کمی وجود دارد. در این تحقیق تاثیر اکسید نیوبیوم (Nb_2O_5) با نقش افزودنی بر خواص سرامیک BIT بررسی می‌شود. به این منظور پودر BIT با روش حالت جامد سنتز و سپس مقادیر ۰/۳، ۰/۶ و ۱/۲ درصد مولی Nb_2O_5 به پودر سنتز شده اضافه گردید. خواص سرامیک BIT شامل چگالی، فازها، ریز ساختار و خواص دی‌الکتریک در حضور افزودنی Nb_2O_5 بررسی و با خواص اندازه‌گیری شده سرامیک BIT مقایسه گردید. هم‌چنین مقدار بهینه افزودنی Nb_2O_5 نیز تعیین شد.

۲- فعالیت‌های تجربی

پودر BIT با روش واکنش حالت جامد سنتز گردید. Bi_2O_3 (با درجه خلوص ۹۹/۸ درصد)، TiO_2 (با درجه خلوص ۹۹/۸ درصد) و Nb_2O_5 (با درجه خلوص ۹۹/۹ درصد) به‌عنوان مواد اولیه در این پژوهش استفاده شدند. بر اساس فرمول شیمیایی BIT ($Bi_4Ti_3O_{12}$)، اکسید تیتانیوم و اکسید بیسموت مورد نیاز توزین و در محیط اتانول با استفاده از گلوله‌های آلومینایی در آسیاب سیاره‌ای به مدت ۶ ساعت مخلوط شدند. بعد از خشک‌کردن دوغاب در آون، پودر حاصل برای دست‌یابی به فاز BIT در دمای 850^oC به مدت ۳ ساعت کلسینه گردید. به پودر سنتز شده مقادیر ۰/۳، ۰/۶ و ۱/۲ درصد مولی Nb_2O_5 اضافه گردید (نمونه‌ها به صورت BIT، BIT -Nb0.3، BIT -Nb0.6 و BIT -Nb1.2 نامگذاری می‌شوند). به این منظور از آسیاب سیاره‌ای با سرعت ۳۵۰ دور بر دقیقه به مدت ۴ ساعت محیط اتانول و گلوله‌های آلومینایی با نسبت وزنی گلوله به پودر ۱۵ به ۱ استفاده گردید. پودر حاصل بعد از گرانوله‌کردن، به صورت دیسک‌هایی با قطر ۱۰ mm و ضخامت ۲ mm با دستگاه پرس هیدرولیک تک محوره با فشار ۲۰۰ MPa پرس گردید. بر روی نمونه‌ها در دمای 1075^oC به مدت ۲ ساعت با سرعت حرارت‌دهی $5^oC/min$ عملیات تف‌جوشی انجام گرفت [۱۹].

چگالی نمونه‌های تف‌جوشی‌شده با استفاده از روش ارشمیدس اندازه‌گیری شد. ترکیب فازی و ساختار کریستالی نمونه‌ها با دستگاه پراش ایکس مدل

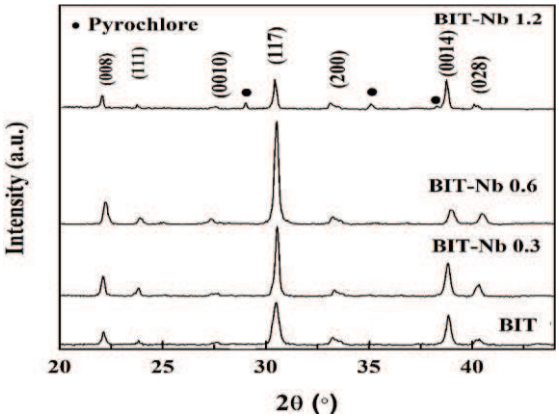
[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-14]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1400.10.0.4.7]

Asenware AW-XDM 300 با اشعه (λ= 1/542 Å) Cu- kα بررسی گردید. از میکروسکوپ الکترونی روبشی (FE-SEM) مدل (FEG, FEI QUANTA ۴۵۰) برای مطالعه ریزساختار نمونه‌ها استفاده شد. به منظور اندازه‌گیری خواص دی‌الکتریک، ابتدا نمونه‌ها برای دست‌یابی به سطحی صاف پولیش و سپس با چسب نقره پوشش داده شدند. ثابت دی‌الکتریک و اتلاف دی‌الکتریک نمونه‌ها با دستگاه(Model OCT1010) LCR-meter تعیین گردید. چگالی و خواص دی‌الکتریک برای سه نمونه اندازه‌گیری و نتیجه به‌صورت میانگین گزارش گردید.

۳- نتایج و بحث

شکل ۱ الگوهای پراش اشعه ایکس مربوط به نمونه‌های تف‌جوشی شده را نشان می‌دهد. پیک‌های اصلی تفرق در نمونه‌ها مطابق با الگوی مرجع با کد JCPDS No 35-0795 هستند. در نمونه های BIT، BIT - Nb0.3 و BIT - Nb0.6 هیچ‌گونه فاز ثانویه و ناخالصی مشاهده نمی‌شود. بنابراین در این نمونه‌ها تک‌فاز $Bi_4Ti_3O_{12}$ با ساختار اورتورمبیک شناسایی گردید [۱، ۱۵].



شکل ۱- الگوهای XRD مربوط به نمونه‌های تف‌جوشی شده با درصد متفاوت Nb_2O_5

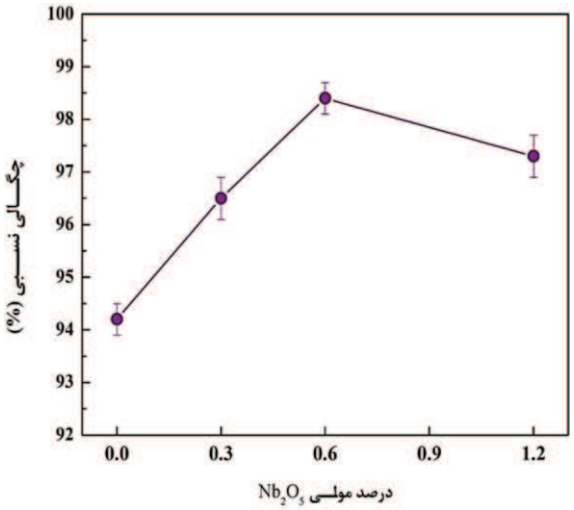
در الگو پراش مربوط به نمونه BIT - Nb1.2 پیک‌های فاز ثانویه مشاهده می‌شود که این پیک‌ها مربوط به فاز $Bi_2Ti_2O_7$ هستند، فاز $Bi_2Ti_2O_7$ پیروکلرو مکعبی است که در ترکیبات BIT گزارش می‌گردد [۹، ۱۹]. پیک مربوط به صفحات (۱۱۷) بیش‌ترین شدت را نشان می‌دهد که بیانگر ساختار لایه‌ای ترکیبات BIT است. این پیک شارپ هم چنین بیانگر تک فاز اورتورمبیک با بلورینگی بالا است [۱۱، ۱۵]. در نمونه BIT - Nb0.6 پیک (۱۱۷) بیش‌ترین شدت را نسبت به نمونه‌های دیگر دارد و شدت این پیک در نمونه BIT - Nb1.2 کاهش چشمگیری یافته است. گزارش شده است که در سرامیک‌های BIT ، یون Ti^{4+} (با شعاع یونی ۰/۶۰۵ Å) در مکان B شبه پروسکایت می‌تواند با یون‌های فلزی با شعاع یونی بین ۰/۵۸ Å تا ۰/۶۵ Å جایگزین گردد. با توجه به شعاع یونی Nb^{5+} (0/645 Å) امکان جایگزینی این یون به جای Ti^{4+} در ساختار BIT خواهد بود. بنابراین امکان ورود Nb^{5+} در شبکه کریستالی BIT و تشکیل محلول جامد وجود دارد [۱۸]. وجود فاز $Bi_2Ti_2O_7$ در سرامیک BIT وقتی درصد افزودنی‌ها افزایش می‌یابد، توسط دیگر محققان نیز گزارش شده است. یکی از دلایل تشکیل این فاز، جایگزینی یون Ti^{4+} با یون‌های افزودنی و خروج یون Ti^{4+} از شبکه کریستالی و در نتیجه تشکیل فاز $Bi_2Ti_2O_7$ عنوان شده است [۹، ۱۶].

در شکل ۲ تغییرات چگالی نسبی نمونه‌های تف‌جوشی شده برحسب درصد مولی Nb_2O_5 آورده شده‌است. نمونه BIT چگالی پایین حدود ۹۴ درصد را نشان می‌دهد. به طورکلی دست‌یابی به چگالی مناسب در طی تف‌جوشی سرامیک‌های BIT دشوار است. در این سرامیک‌ها، به دلیل فشار بخار

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-14]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1400.10.0.4.7]

بالای اکسید بیسموت، در طی تف‌جوشی این اکسید تبخیر و منجر به چگالش ضعیف خواهد شد [۲۰، ۲۱].



شکل ۲- تغییرات چگالی نسبی نمونه‌های تف‌جوشی شده بر حسب درصد مولی Nb_2O_5.

طبق نتایج شکل ۲، استفاده از افزودنی Nb_2O_5 منجر به بهبود قابل توجهی در چگالی سرامیک BIT گردیده است. بیش‌ترین مقدار چگالی برای نمونه BIT - Nb0.6 به مقدار۹۸/۴ درصد حاصل شد. به طورکلی افزودنی‌ها از طریق مکانیسم‌های مختلفی از جمله تف‌جوشی فاز مایع، ایجاد عیوب ساختاری و افزایش نیروی محرکه چگالش می توانند منجر به بهبود رفتار چگالش سرامیک‌ها در طی تف جوشی و در نتیجه افزایش چگالی گردند [۲۲].

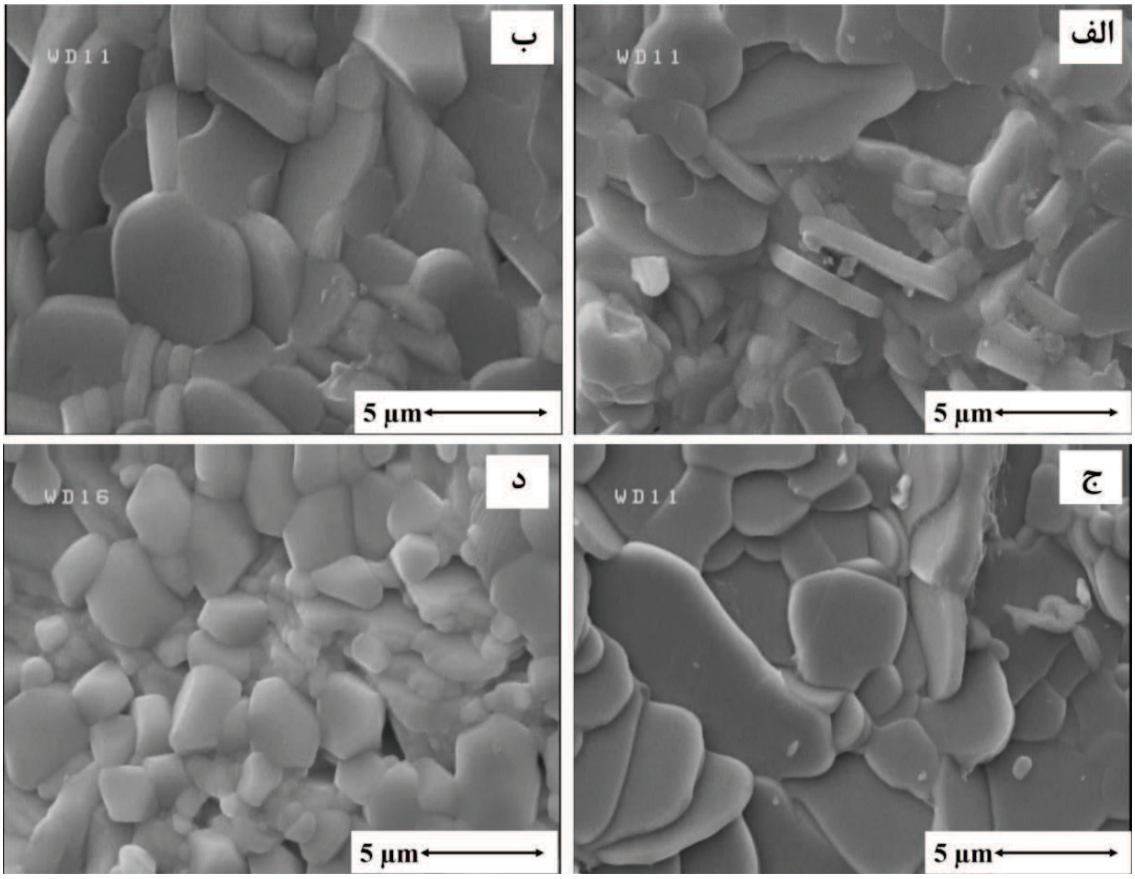
در مورد برخی از افزودنی‌ها با ظرفیت بالا در سرامیک BIT اشاره شده است که می‌توانند از طریق کاهش تبخیر اکسید بیسموت در طی تف‌جوشی منجر به بهبود چگالش شوند [۱۰]. با توجه به نقطه‌ذوب بالای Nb_2O_5 (حدود ۱۵۱۰°C)، امکان تشکیل فاز مذاب در طی تف‌جوشی نخواهد بود. مکانیسمی که برای بهبود چگالش در سرامیک BIT در حضور افزودنی‌های مخصوصا افزودنی‌های دهنده اشاره شده است کاهش تبخیر اکسید بیسموت در طی تف جوشی و افزایش نیروی محرکه چگالش و در نتیجه دست یابی به چگالی بالاتر ذکر شده است [۱۰].در شکل ۳ تصاویر SEM مربوط به سطح شکست نمونه‌های مختلف نشان داده شده است. همان‌گونه که مشاهده می‌شود، افزودنی Nb_2O_5 تاثیر چشمگیری بر ریزساختار سرامیک BIT دارد. ریزساختار بشقابی شکل مشخصه سرامیک‌های BLSFs لایه‌ای است [۹، ۱۴].

شکل ۴ تغییرات اندازه متوسط دانه نمونه‌ها بر حسب درصد مولی Nb_2O_5 را نشان می‌دهد. با افزودن مقدار کم Nb_2O_5 اندازه دانه سرامیک BIT افزایش یافت و رشد دانه قابل توجهی در نمونه BIT - Nb0.6 ملاحظه گردید. با افزایش مقدار Nb_2O_5 به ۱/۲ درصد مولی، اندازه دانه در نمونه BIT - Nb1.2 کاهش چشمگیری یافت و همچنین در این نمونه شکل دانه‌ها نیز از حالت بشقابی خارج و به حالت مکعبی و پنج ضلعی تبدیل شده است. با افزایش مقدار افزدونی این امکان وجود دارد که افزودنی با قرارگیری در مرزهای دانه یا ایجاد فاز ثانویه در مرزهای دانه منجر به کاهش قابلیت تحرک مرزدانه و در نتیجه جلوگیری از رشد دانه و تغییر شکل دانه‌ها نیز گردد [۱۰، ۱۷، ۲۲].

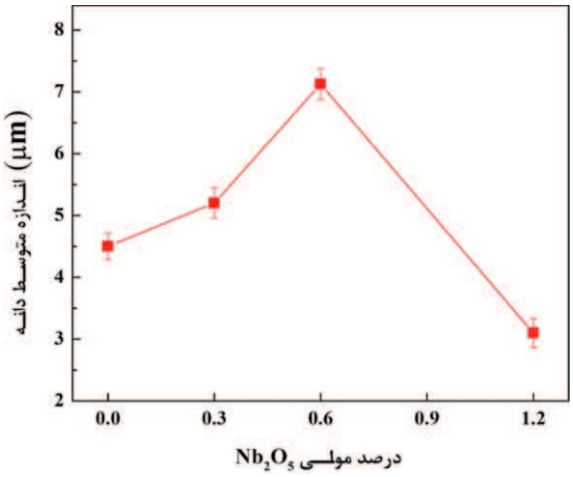
همان‌گونه که در مقدمه اشاره شد، ساختار سرامیک‌های BIT به صورت لایه‌ای است که این ساختار لایه‌ای در نتایج XRD با ایجاد پیک شارپ (۱۱۷) و در تصاویر SEM با ساختار بشقابی شکل مشخص می‌گردد که نشان‌دهنده سرعت رشد متفاوت دانه‌ها در جهات کریستالی مختلف است.

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-14]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1400.10.0.4.7]



شکل ۳- تصاویر SEM مربوط به سطح شکست نمونه‌های مختلف الف) BIT، ب) BIT - Nb0.3، ج) BIT - Nb0.6 و د) BIT - Nb1.2.



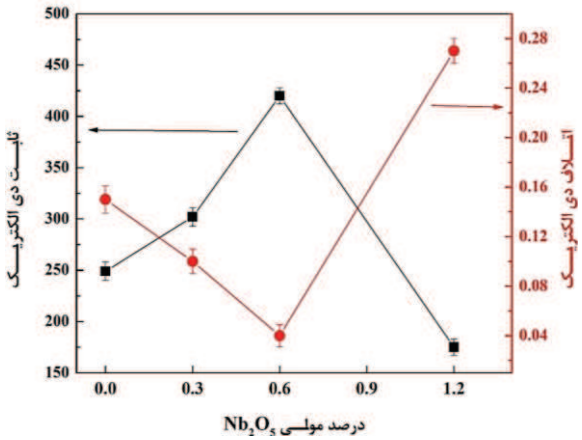
شکل ۴- تغییرات اندازه متوسط دانه نمونه‌ها بر حسب درصد مولی Nb_2O_5.

در نمونه BIT - Nb 1.2 ریزساختار از حالت لایه‌ای و بشقابی به مکعبی تغییر کرده است که این تغییر در ریزساختار در شدت پیک (۱۱۷) نیز تاثیر داشته است و مطابق شکل ۱ منجر به کاهش شدید در شدت پیک (۱۱۷) شده است. همچنین حضور فاز پیروکلرو مکعبی $Bi_2Ti_2O_7$ در سرامیک‌های BIT علاوه بر مشخص شدن در نتایج XRD، در تصاویر SEM نیز به دلیل شکل دانه‌های مکعبی، باعث تغییر از ساختار بشقابی به مکعبی می‌گردد [۵، ۹]. ثابت دی‌الکتریک و اتلاف دی‌الکتریک نمونه‌ها اندازه‌گیری شده در فرکان ۱۰۰ Hz بر حسب درصد مولی Nb_2O_5 در شکل ۵ نشان داده شده است. طبق نتایج استفاده از کمک زینتر Nb_2O_5 تا مقدار ۰/۶ درصد مولی منجر به بهبود قابل

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-14]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1400.10.0.4.7]

توجه خواص دی‌الکتریک سرامیک BIT شده است. نمونه BIT - Nb0.6 بیش‌ترین مقدار ثابت دی الکتریک و کم ترین مقدار اتلاف دی‌الکتریک را دارد. بهبود در خواص دی الکتریک را می‌توان به چگالی بالاتر و اندازه دانه بزرگ‌تر نمونه‌ها نسبت داد.



شکل ۵- تغییرات ثابت دی‌الکتریک و اتلاف دی‌الکتریک نمونه‌ها بر حسب درصد مولی Nb_2O_5.

گزارش شده است که سرامیک BIT هدایت مخلوط از نوع هدایت یونی اکسیژن و هدایت الکتریکی حفره نشان می دهد [۱۸، ۲۱]. با جایگزینی کاتیون پنج ظرفیتی Nb^{5+} به جای کاتیون چهار ظرفیتی Ti^{4+}، برای حفظ خنثایی الکتریکی مقدار عیوب جای خالی اکسیژن و حفره‌های الکترونی کاهش می‌یابد. با کاهش مقدار عوامل الکتریکی، هدایت الکتریکی سرامیک BIT کاهش و در نتیجه ثابت دی‌الکتریک افزایش و اتلاف دی‌الکتریک کاهش خواهد یافت [۹، ۱۷، ۲۰]. همچنین گزارش شده است جایگزینی یون‌های با ظرفیت بالاتر در مکان Ti^{4+} ساختار BIT منجر به کاهش جریان نشتی و در نتیجه بهبود خواص دی الکتریک خواهد شد [۸، ۱۷، ۲۳]. افزایش اندازه دانه سرامیک دی‌الکتریک می‌تواند منجر به حرکت راحت‌تر دومین‌ها به دلیل مقاومت کم‌تر دیواره دومین‌ها و همچنین کاهش هدایت الکتریکی دانه و مرز دانه و در نتیجه بهبود در خواص دی‌الکتریک گردد [۲۴، ۲۵]. کاهش شدید در مقدار ثابت دی‌الکتریک و افزایش شدید در مقدار اتلاف دی الکتریک نمونه BIT - Nb1.2 را می‌توان به اندازه دانه‌ریز و وجود فاز پیروکلرو مکعبی در آن نسبت داد.

شکل ۶ وابستگی ثابت دی‌الکتریک و اتلاف دی‌الکتریک سرامیک BIT به اندازه دانه را نشان می‌دهد. همان‌گونه که مشاهده می‌شود یک رابطه خطی با ضریب تطابق بالا بین ثابت دی‌الکتریک با اندازه دانه می‌تواند وجود داشته باشد. طبق شکل ۶ ب، ارتباط به‌دست آمده بین اتلاف دی الکتریک و اندازه دانه به صورت تابع نمایی است که می تواند بیانگر وابستگی شدیدتر اتلاف دی‌الکتریک به اندازه دانه در نظر گرفت. وابستگی شدید اتلاف دی‌الکتریک به اندازه دانه با نتایج محققان دیگر مطابقت دارد، این که مقدار اتلاف دی‌الکتریک در سرامیک دی‌الکتریک با ریزساختار ریزدانه به شدت افزایش می‌یابد [۲۵]. گزارش شده است با کاهش اندازه دانه‌ها و افزایش کسر حجمی مرزهای دانه، ضخامت لایه تهی[۱] مرزهای دانه افزایش می‌یابد که با افزایش ضخامت این لایه‌ها اتلاف دی‌الکتریک افزایش خواهد یافت [۲۵].

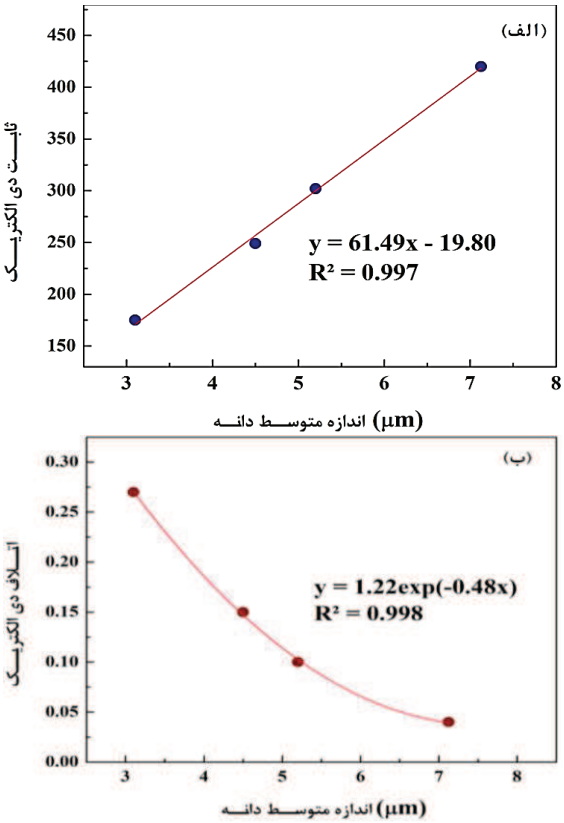
در شکل ۷ تغییرات ثابت دی‌الکتریک و اتلاف دی‌الکتریک نمونه‌های BIT و BIT - Nb0.6 اندازه‌گیری شده در محدوده فرکانس ۱۰۰ تا ۱۰۰۰۰۰ هرتز در دمای اتاق را

[۱] depletion layer thickness

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-14]

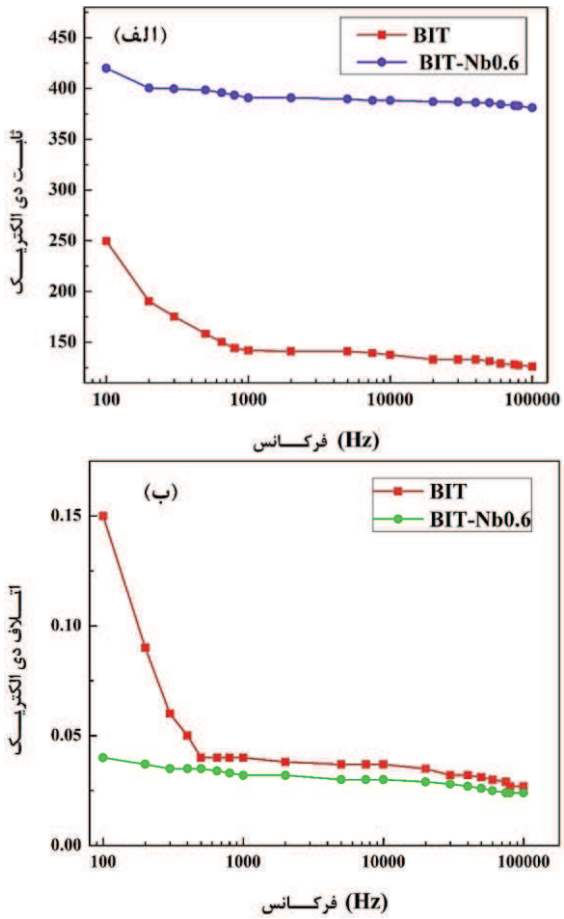
[DOR: 20.1001.1.23222352.1400.10.0.4.7]

نشان می‌دهد. یک پراکندگی در خواص دی‌الکتریک در نمونه BIT در فرکانس‌های پایین مشاهده می‌شود که بیانگر وابستگی خواص دی‌الکتریک به فرکانس سرامیک BIT در فرکانس‌های پایین است. به‌گونه‌ای که برای نمونه BIT با افزایش فرکانس از ۱۰۰ به ۱۰۰۰ هرتز، مقدار ثابت دی الکتریک از ۲۴۹ به ۱۴۰ کاهش یافت. این پراکندگی و وابستگی خواص دی‌الکتریک به فرکانس در نمونه BIT - Nb0.6 به‌صورت چشمگیری کاهش یافته است.



شکل ۶- وابستگی ثابت دی‌الکتریک (الف) و اتلاف دی الکتریک (ب) سرامیک BIT به اندازه دانه.

برای نمونه BIT - Nb0.6 با افزایش فرکانس از ۱۰۰ به ۱۰۰۰ هرتز، مقدار ثابت دی‌الکتریک از ۴۲۰ به ۳۹۴ کاهش یافت. در نمونه BIT - Nb0.6 تغییرات ثابت دی‌الکتریک و اتلاف دی‌الکتریک با فرکانس به صورت یک خط تقریبا افقی است.



شکل ۷- تغییرات ثابت دی‌الکتریک و اتلاف دی‌الکتریک با فرکانس نمونه‌های BIT و BIT - Nb0.6.

تشکیل دوقطبی‌ها در مواد دی‌الکتریک از طریق مکانیسم‌های پلاریزاسیون صورت می‌گیرد. یکی از این مکانیسم‌ها، پلاریزاسیون بار فضایی است که در مرزهای بین‌دانه‌ای رخ می‌دهد. این نوع پلاریزاسیون در اکثر دی الکتریک‌ها در فرکانس‌های پایین ایجاد می‌گردد. در مکانیسم‌های مختلف پلاریزاسیون، اندازه دوقطبی‌ها تشکیل شده در آن‌ها با هم متفاوت است. وقتی سرعت چرخش

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-14]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1400.10.0.4.7]

میدان بیش‌تر از سرعت حرکت دوقطبی گردد (در فرکانس های بالا)، آن مکانیسم پلاریزاسیون غیرفعال می‌گردد. پس با افزایش فرکانس، مکانیسم‌های پلاریزاسیون کاهش و مقدار ثابت دی‌الکتریک کاهش می‌یابد. با توجه به اینکه اندازه دوقطبی‌ها در پلاریزاسیون بار فضایی نسبت به موارد دیگر بزرگ‌تر است و در فرکانس‌های پایین فعال هستند، بنابراین در فرکانس‌های پایین، وابستگی خواص دی الکتریک به فرکانس‌ها می‌تواند به پلاریزاسیون بار فضایی نسبت داده شود. گزارش شده است در سرامیک BIT حضور افزودنی‌ها از طریق کاهش عوامل هدایت الکتریکی مانند جاهای خالی اکسیژن باعث وابستگی کم‌ترخواص دی الکتریکی به فرکانس خواهد شد [۱۰، ۱۱].

۴- نتیجه‌گیری

نتایج این تحقیق نشان داد که Nb_2O_5 به عنوان یک افزودنی تاثیر زیادی بر ریزساختار و خواص سرامیک تیتانات بیسموت دارد و تاثیر آن به مقدار Nb_2O_5 بستگی خواهد داشت. استفاده از Nb_2O_5 به مقدار ۰/۶ درصد مولی باعث بهبود قابل توجهی در خواص دی‌الکتریک سرامیک تیتانات بیسموت گردید به گونه‌ای که اتلاف دی‌الکتریک از مقدار ۰/۱۵ به ۰/۰۴ کاهش یافت. با افزایش مقدار Nb_2O_5 به ۱/۲ درصد مولی افت شدید در خواص دی‌الکتریک BIT ایجاد شد که می‌توان به اندازه دانه کوچک‌تر ریزساختار آن و وجود فاز ثانویه پیروکلرو مکعبی نسبت داده شود.

مراجع

[1] S.K. Badge, and A.V. Deshpande, "Study of dielectric and ferroelectric properties of Bismuth Titanate ($Bi_4Ti_3O_{12}$) ceramic prepared by sol-gel synthesis and solid state reaction method with varying sintering temperature", Solid State Ionics, Vol. 334, pp.21-28, 2019.

[2] Q. Wang, C.M. Wang, J.F. Wang, and S. Zhang, "High performance Aurivillius-type bismuth titanate niobate (Bi_3TiNbO_9) piezoelectric ceramics for high temperature applications", Ceramics International, Vol. 42, pp.6993-7000, 2016.

[3] D. Thomazini, M.W. Gelfuso, and J.A. Eiras, "Microwave assisted hydrothermal synthesis of $Bi_4Ti_3O_{12}$ nanopowders from oxide as raw materials", Powder technology, Vol. 222, pp.139-142, 2012.

[4] Z.P. Cao, C.M. Wang, T.L. Zhao, S.L. Yu, H.Z. Wu, Y.M. Wang, Q. Wang, Y. Liang, Y.N. Wei, Y. Zhang, and Y. Liu, "Piezoelectric properties and thermal stabilities of strontium bismuth titanate ($SrBi_4Ti_4O_{15}$)", Ceramics International, Vol. 41, pp.13974-13982, 2015 .

[5] D. Jiang, Z. Zhou, R. Liang, and X. Dong, "Highly orientated $Bi_4Ti_3O_{12}$ piezoceramics prepared by pressureless sintering", Journal of the European Ceramic Society, Vol. 41, pp.1244-1250, 2021.

[6] Z.L. Guo, C.M. Wang, T.L. Zhao, S.L. Yu, and Z.P. Cao, "Piezoelectric properties and thermal stabilities of cobalt-modified potassium bismuth titanate", Materials Chemistry and Physics, Vol. 140, pp.260-265, 2013 .

[7] S.K. Badge, and A.V. Deshpande, "Effect of pressure of pelletization on dielectric properties of Bismuth Titanate prepared by sol-gel synthesis", Advanced Powder Technology, Vol. 29, pp.555-562, 2018.

[8] S. Xie, J. Xu, Y. Chen, L. Jiang, Z. Tan, R. Nie, Q. Xu, Q. Wang, and J. Zhu, "Poling effect and sintering temperature dependence on fracture strength and fatigue properties of bismuth titanate based piezoceramics", Ceramics

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-14]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1400.10.0.4.7]

International, Vol. 44(16), pp.20432-20440, 2018.

[9] C. Lavado, and M.G. Stachiotti, "Fe^{3+}/Nb^{5+} co-doping effects on the properties of Aurivillius $Bi_4Ti_3O_{12}$ ceramics", Journal of Alloys and Compounds, Vol. 731, pp.914-919, 2018.

[10] L. Sheng, X. Du, Q. Chao, P. Zheng, W. Bai, L. Li, F. Wen, W. Wu, and L. Zheng, "Enhanced electrical properties in Nd and Ce co-doped $CaBi_4Ti_4O_{15}$ high temperature piezoceramics", Ceramics International, Vol. 44, pp.18316-18321, 2018.

[11] R. Bokolia, O.P. Thakur, V.K. Rai, S.K. Sharma, and K.J.C.I. Sreenivas, "Dielectric, ferroelectric and photoluminescence properties of Er3+ doped $Bi_4Ti_3O_{12}$ ferroelectric ceramics", Ceramics International, Vol. 41(4), pp.6055-6066, 2015 .

[12] R. Bhattacharyya, and S. Omar, S., "Electrical conductivity study of B-site Ga doped non-stoichiometric sodium bismuth titanate ceramics", Journal of Alloys and Compounds,Vol. 746, pp.54-61, 2018 .

[13] F. Yang, P. Wu, and D.C. Sinclair, "Enhanced bulk conductivity of A-site divalent acceptor-doped non-stoichiometric sodium bismuth titanate", Solid State Ionics, Vol. 299, pp.38-45, 2017 .

[14] O. Subohi, C.R. Bowen, M.M. Malik, and R. Kurchania, "Dielectric spectroscopy and ferroelectric properties of magnesium modified bismuth titanate ceramics", Journal of Alloys and Compounds,Vol. 688, pp.27-36, 2016 .

[15] S.K. Badge, and A.V. Deshpande, "Effect of vanadium doping on structural, dielectric and ferroelectric properties of bismuth titanate ($Bi_4Ti_3O_{12}$) ceramics", Ceramics International, Vol. 45, pp.15307-15313, 2019.

[16] Y. Chen, S. Xie, H. Wang, Q. Chen, Q. Wang, J. Zhu, and Z. Guan, "Dielectric abnormality and ferroelectric asymmetry in W/Cr co-doped $Bi_4Ti_3O_{12}$ ceramics based on the effect of defect dipoles", Journal of Alloys and Compounds, Vol. 696, pp.746-753, 2017.

[17] J. Hou, R.V. Kumar, Y. Qu, and D. Krsmanovic, "B-site doping effect on electrical properties of $Bi_4Ti_{3-2x}Nb_xTa_xO_{12}$ ceramics", Scripta Materialia, Vol. 61(6), pp.664-667, 2009.

[18] X. Xie, Z. Zhou, R. Liang, and X. Dong, "Significantly enhanced piezoelectric performance in $Bi_4Ti_3O_{12}$-based high-temperature piezoceramics via oxygen vacancy defects tailoring", Journal of Materiomics, Vol. 7(1), pp.59-68, 2021.

[19] H. Ahmadimoghadam, and M. Maleki Shahraki, "The effect of sintering parameters on the microstructure and dielectric properties of bismuth titanate", Iranian Journal of Ceramic Science & Engineering. Vol. 9 (2), pp. 9-20, 2020.

[20] D.P. Shih, A. Aguadero, and S.J. Skinner, "Improvement of ionic conductivity in A-site lithium doped sodium bismuth titanate", Solid State Ionics, Vol. 317, pp.32-38, 2018.

[21] Y. Chen, Z. Pen, Q. Wang, and J. Zhu, "Crystalline structure, ferroelectric properties, and electrical conduction characteristics of W/Cr co-doped $Bi_4Ti_3O_{12}$ ceramics", Journal of alloys and compounds, Vol. 612, pp.120-125, 2014.

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

[23] M. Villegas, T. Jardiel, A.C. Caballero, and J.F. Fernandez, "Electrical properties of bismuth titanate based ceramics with secondary phases", Journal of electroceramics, Vol. 13, pp.543-548, 2004.

[24] J.W. Lee, and J.H. Koh, "Grain size effects on the dielectric properties of $CaCu_3Ti_4O_{12}$ ceramics for supercapacitor applications", Ceramics International, Vol. 41(9), pp.10442-10447, 2015.

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-14]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1400.10.0.4.7]

[25] Q. Zhang, J. Zhai, B. Shen, H. Zhang, and X. Yao,"Grain size effects on dielectric properties of barium strontium titanate composite ceramics," Materials Research Bulletin, Vol. 48, pp. 973–977, 2013.

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-14]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1400.10.0.4.7]

Iranian Journal of
Ceramic Science & Engineering
Vol. 10, No. 3, 2021

Investigation the Effect of Niobium Oxide Additive on the Dielectric Properties of Bismuth Titanate

Fatemeh Alidoosti Shahraki, Hajar Ahmadi Moghadam*

Department of Materials Engineering, Faculty of Engineering, Shahrekord University, Shahrekord, Iran.

*hajar.ahmadi@sku.ac.ir

Abstract: In the present project, the use of scarp electronic components in the synthesis of Bismuth titanate ceramic has been attracted as a lead-free ferroelectric due to its high Curie temperature in high temperature applications as well as high frequency applications. In this study, the effect of niobium oxide as an additive on the microstructure and dielectric properties of bismuth titanate ceramic was investigated. For this purpose, niobium oxide was added to bismuth titanate, synthesized by the solid state method, in the amounts of 0.3, 0.6 and 1.2 mole %. The results showed that niobium oxide has a significant effect on the microstructure and dielectric properties of bismuth titanate ceramic. The addition of niobium oxide improved the density and the densification of bismuth titanate ceramics. For a sample containing mole % of niobium oxide, the highest density was obtained at 98% of the theoretical density. The amount of 0.6 mole % of niobium oxide is reported as the optimal value. In this sample, the highest dielectric constant (420) and the least amount of dielectric loss (0.04) were obtained. Also, the dependence of the dielectric properties of this sample on the frequency was less than bismuth titanate. Improvements in the dielectric properties of bismuth titanate can be attributed to grain growth and higher density by the addition of niobium oxide additive. The results of this study show that the grain size of bismuth titanate ceramic will have a significant effect on dielectric constant and dielectric loss.

Keywords: Bismuth titanate, Niobium Oxide, Microstructure, Dielectric constant, Dielectric loss.

[Downloaded from ijcse.ir on 2026-11-14]

[DOR: 20.1001.1.23222352.1400.10.0.4.7]