

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^{*}، مهدی دلشاد چرمهینی^۱، محمدرضا رحیمی پور^۱، هومان شکراللهی^۲

^۱ پژوهشگاه مواد و انرژی، کرج، ایران

^۲ دانشگاه صنعتی شیراز، شیراز، ایران

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

چکیده در این تحقیق پودرهای پیزوسرامیکی بدون سرب (K_{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 تهیه گردید. پودرهای سرامیکی سنتز شده پس از پرس شدن در دماهای مختلف پخت شدند. بر روی تمامی نمونه‌ها آزمون‌های اشعه ایکس (XRD)، میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) و اندازه‌گیری خواص دی‌الکتریک انجام شد. الگوی پراش اشعه ایکس نمونه‌های بالک ساخته شده از پودرهایی که با روش کلوییدی آبی سنتز شده بودند، تشکیل فاز خالص پروسکایت پیزوسرامیک بر پایه نایوبات سدیم-پتاسیم را نشان داد. آزمون اشعه ایکس نمونه های پخت شده که پودرهای اولیه آن با کمک روش سرامیکی سنتی تهیه شده بودند علاوه بر ساختار پروسکایت، تشکیل فاز ناخالصی با ساختار تتراگونال تنگستن-برنز را نیز نشان داد. تصاویر SEM نمونه‌های بالک پیزوسرامیکی تهیه شده از هر دو روش سرامیکی و کلوییدی آبی مورفولوژی مکعبی شکل دانه‌های نایوبات سدیم-پتاسیم را به وضوح نشان داد. ضریب دی‌الکتریک نمونه‌های تهیه شده به کمک روش سرامیکی سنتی بالاتر از قرص‌های ساخته شده به روش کلوییدی آبی بوده در حالی که میزان اتلاف دی‌الکتریک برای نمونه‌های تهیه شده به روش کلوییدی آبی پایین‌تر بود.

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

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

Mohamad Ali Bahrevar^{*1}, Mehdi Delshad Chermahini¹, Mohamad Reza Rahimpour¹, Homan Shokrollahi²

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

² Shiraz University of Technology, Department of Electroceramic, 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 specimens 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 with tungsten bronze structure was detected for samples synthesized by the conventional method. For both methods, the typical cube-like morphology of KNN-LST systems with the bimodal distribution was clearly observed. The relative permittivity and loss factor of samples synthesized by aqueous colloidal coating approach were higher and lower than those obtained by conventional ceramic technique, respectively.

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

۱- مقدمه

می‌باشد استفاده از KNN محدود می‌شود. محققین به منظور رسیدن به خواص الکتریکی مناسب به دنبال کاهش دمای PPT به محدوده دمای محیط هستند. یک راهکار برای این قضیه افزودن همزمان لیتیوم، آنتیموان و تانتالیوم به ساختار KNN می‌باشد [۸]. یکی از مهم‌ترین ترکیباتی که پدیده PPT در دمای محیط از خود نشان داده است $(\text{K}_{0.44}\text{Na}_{0.52}\text{Li}_{0.04})(\text{Ta}_{0.1}\text{Sb}_{0.06}\text{Nb}_{0.84})\text{O}_3$ می‌باشد که به صورت اختصار KNN-LST نوشته می‌شود.

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

در این پروژه پودرهای پیزوسرامیکی بدون سرب $(\text{K}_{0.44}\text{Na}_{0.52}\text{Li}_{0.04})(\text{Ta}_{0.1}\text{Sb}_{0.06}\text{Nb}_{0.84})\text{O}_3$ به دو روش سرامیکی سنتی و پوشش‌دهی کلوییدی آبی تهیه شدند که عملیات مخلوط سازی در این دو روش کاملاً متفاوت می‌باشد. بنابراین بررسی‌های میکروساختاری و اندازه‌گیری‌های خواص دی‌الکتریکی نمونه‌های تهیه شده می‌تواند راهگشای رسیدن به نمونه‌های پیزوسرامیکی با کیفیت و خواص مطلوب باشد. علاوه بر این، بررسی وقوع پدیده PPT و تاثیر آن بر خواص دی‌الکتریکی ماده می‌تواند به سایر محققین کمک نماید. در مقایسه با کارهای انجام شده [۱۰] در گذشته روش کلوییدی آبی که قبلاً کمتر به کار گرفته شده، برای سنتز پیزوسرامیک KNN-LST مورد استفاده قرار گرفت.

۲- روش تحقیق

پودرهای اولیه Na_2CO_3 ، Ta_2O_5 ، Sb_2O_3 ، Nb_2O_5 ، K_2CO_3 و Li_2CO_3 تهیه شده از کمپانی آلدریچ با خلوص بالا، به منظور سنتز پودر پیزوسرامیک برپایه نایوبات سدیم-پتاسیم

مواد فروالکتریک بر پایه سرب به دلیل برخورداری از خواص الکترومکانیکی و پیزوالکتریکی فوق‌العاده، کاربردهای فراوانی در زمینه صنایع الکترونیک و مهندسی به عنوان مثال سنسورها و مبدل‌ها دارند [۱]. با این وجود به دلیل سمی بودن سرب تحقیقات بسیاری بر روی مواد پیزوسرامیکی بدون سرب در سراسر جهان در حال انجام می‌باشد [۲]. در بین سرامیک‌های سازگار با محیط‌زیست دو گروه تیتانات بیسموت-سدیم-پتاسیم $\text{Bi}_{0.5}(\text{Na}_{1-x}\text{K}_x)_{0.5}\text{TiO}_3$ [۳] که به صورت اختصار BNKT نوشته می‌شود و نایوبات سدیم-پتاسیم $\text{K}_x\text{Na}_{1-x}\text{NbO}_3$ [۴] که به طور مختصر KNN نوشته می‌شود) به علت دارا بودن خواص الکترومکانیکی و پیزوسرامیکی قابل رقابت با فروالکتریک‌های بر پایه سرب از اهمیت ویژه‌ای برخوردار هستند. مورد اخیر که محلول جامدی از نایوبات پتاسیم (یک ماده فروالکتریک) با ساختار پروسکایت ارتورومبیک و نایوبات سدیم (یک ماده آنتی فروالکتریک) با ساختار ارتورومبیک می‌باشد دارای خواص فروالکتریک مناسبی است [۵]. با افزودن ۲٪ مولی پتاسیم به فاز پروسکایت نایوبات سدیم محلول جامد حاصل از نظر ساختار تقارنی کریستالی و خواص فروالکتریکی مشابه فاز نایوبات پتاسیم می‌شود. در دمای محیط KNN با نسبت سدیم به پتاسیم برابر دارای ساختار ارتورومبیک با گروه تقارنی فضایی $\text{Amm}2$ می‌باشد. با افزایش دما تا حدود 220°C ساختار پروسکایت ارتورومبیک طی یک استحاله فازی به پروسکایت تتراگونال با تقارن فضایی $P4\text{mm}$ تبدیل می‌شود [۶]. این گروه تقارنی هم دارای خاصیت فروالکتریک می‌باشد. چنانچه ماده در محدوده دمای استحاله قرار گیرد به طوری که همزمان دارای دو ساختار فروالکتریک پروسکایت تتراگونال و ارتورومبیک باشد، پدیده حاصل را استحاله فازی پلی‌مورفیک (polymorphic phase transition) یا به صورت اختصار (PPT) می‌نامند. در پدیده PPT به دلیل حضور همزمان دو ساختار فروالکتریک خواص پیزوالکتریکی و فروالکتریکی ماده به شدت بهبود می‌یابد [۷]. از آنجایی که دمای PPT برای پیزوسرامیک KNN بالاتر از دمای محیط بوده و با توجه به این نکته که در بیشتر مواقع کاربردهای در دمای محیط مورد نظر

منظور تهیه هر ترکیب میزان مورد نیاز از کربنات سدیم، پتاسیم و لیتیوم به صورت جداگانه در آب دیونیزه شامل ۱٪ وزنی دولاپیکس (64 CE) اضافه گردیده 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 Ta_2O_5 و Sb_2O_3 ، Nb_2O_5 به ترتیب به محلول شفاف در حال هم‌خوردن مرحله قبل اضافه شد و به مدت ۲۰ دقیقه مخلوط گردید. سپس محلول شیری رنگ حاصل ۲۰ دقیقه تحت عملیات التراسونیک قرار گرفت و در پایان به منظور مخلوط شدن کامل ذرات اکسیدی در محلول نمک به مدت ۹۰ ثانیه و در دو مرحله ۴۵ ثانیه‌ای تحت عملیات سونیکیت با کمک دستگاه Misonix Sonicator S-4000 ultrasonic processor (50 W, 20 kHz) قرار گرفت. بلافاصله بعد از عملیات سونیکیت محلول حاصل در آون با دمای $180^\circ C$ به مدت ۱۰ ساعت برای خشک شدن و تشکیل پوشش کلوییدی قرار گرفت. محصول مرحله قبل با کمک هاون عقیق خرد و آماده سنتز شد. مانند روش سرامیکی سنتی پودرهای مرحله قبل به مدت ۳ ساعت در دمای $800^\circ C$ جهت سنتز پودر فرواکتریک KNN-LST کلسینه شدند.

در این مرحله پودر کلسینه شده در محیط آب دیونیزه با نسبت وزنی گلوله به پودر ۱:۱۰ و دور 1800rpm به منظور خرد شدن آگلومره‌های ناشی از فرایند کلسیناسیون آسیاب شدند. دوغاب حاصل خشک و با کمک هاون عقیق خرد شده، سپس پودر حاصل از الک با مش ۴۵ عبور داده و با استفاده از محلول حاوی ۲٪ PVA به عنوان بایندر گرانول شدند. پس از آن نمونه‌هایی خام به صورت قرص‌هایی با قطر ۱۳ mm و ضخامت ۱ mm توسط پرس تک محوره با فشار ۱۵۰ Mpa تهیه و در پایان نمونه‌ها در دماهای بین $1110^\circ C$ و $1140^\circ C$ به مدت یک ساعت پخت شدند. دانسیته نمونه‌های تهیه شده با کمک روش ارشمیدس اندازه‌گیری گردید. جهت بررسی های فازی، میکروساختاری و مورفولوژیکی بر روی پودرهای کلسینه شده و نمونه‌های سینتر شده آنالیز XRD و SEM انجام شد. سطوح قرص‌های تهیه شده از مراحل قبل توسط چسب نقره پوشیده و در دمای $600^\circ C$ به مدت ۱۵ دقیقه جهت خشک شدن چسب نقره حرارت داده شدند. در پایان

دوب شده با انتیموان، لیتیوم و تانتالیوم به روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی استفاده شدند. برای سنتز پودر پیزوسرامیک KNN-LST 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 $200^\circ C$ به منظور خشک نمودن حرارت داده شدند و در توزین پودرهای مواد اولیه دقت لازم به عمل آمد. سپس پودرها به منظور رسیدن به استوکیومتری مورد نیاز و جلوگیری از جذب مجدد رطوبت (که می‌تواند باعث بروز خطا در محاسبات شود) سریعاً وزن شدند. پودرهای مواد اولیه بعد از توزین در محیط اتانول با کمک آسیاب سیاره‌ای به منظور مخلوط شدن به مدت ۶ ساعت با نسبت وزنی گلوله به پودر پنج به یک و سرعت 140rpm آسیاب می‌شوند. پس از خشک شدن دوغاب حاصل، پودرها به مدت ۳ ساعت در دمای $800^\circ C$ به منظور سنتز پودر فرواکتریک KNN-LST کلسینه شدند.

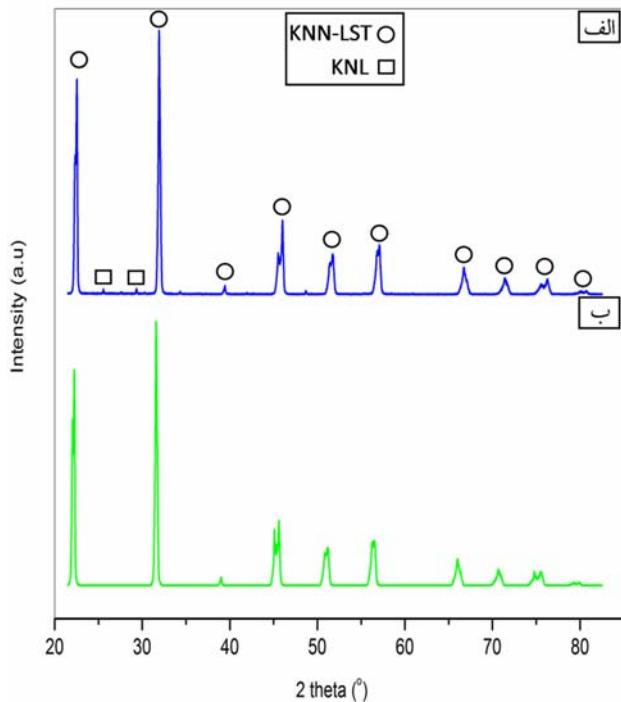
روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی

در این روش نیز خشک کردن و توزین پودرها مانند روش سنتی می‌باشد. از آنجایی که پودرهای اولیه کربنات سدیم، پتاسیم و لیتیوم در محیط آب دیونیزه قابلیت حل شدن کامل دارند، روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی می‌تواند برای تولید این دسته از مواد بررسی شود. این روش شامل حل شدن ذرات نمک در آب و سپس توزیع ذرات اکسیدی در محلول حاصل می‌باشد. پس از آن با تبخیر آب حاصل در اثر حرارت دادن در آون پوششی کلوییدی، ذرات ریز نمک حل شده بر روی پودرهای اکسیدی تشکیل می‌شود که می‌تواند به مخلوط شدن موثرتر نسبت به روش مخلوط کردن معمول منتهی شود. نتیجه این امر به تشکیل فاز همگن فروالکتریک نایوبات سدیم-پتاسیم کمک می‌کند، اما مشکل این روش عدم توزیع مناسب ذرات اکسیدی Ta_2O_5 و Sb_2O_3 ، Nb_2O_5 در محیط آب دیونیزه در مقایسه با اتانول می‌باشد. برای رفع این مشکل از دولاپیکس (CE64) به عنوان پایدارکننده استفاده شد. به

اندازه‌گیری‌های خواص دی‌الکتریک با کمک دستگاه (HP4291 impedance analyzer (Agilent, Palo Alto, CA)) صورت گرفت.

۳-۲- بررسی فازی و ساختاری

در شکل (۲) الگوی تفرق اشعه ایکس (XRD) مربوط به نمونه پیزوالکتریک KNN-LST سنتز شده به کمک روش سنتی و پوشش‌دهی کلوییدی آبی سینتر شده در دمای 1130°C به مدت یک ساعت مشاهده می‌شود.



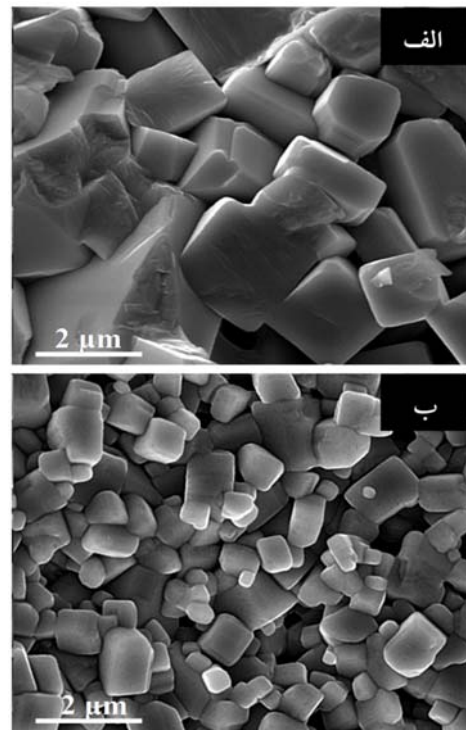
شکل ۲. نمودار XRD نمونه پیزوالکتریک KNN-LST پخت شده در دمای 1130°C از پودر سنتز شده به روش (الف) سنتی سرامیکی، (ب) پوشش دهی کلوییدی.

همانطوریکه در شکل (۲) دیده می‌شود نمونه سنتز شده با کمک روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی حضور ساختار پروسکایت برپایه نایوبات سدیم- پتاسیم با شماره کارت مرجع ۰۹۴۸-۰۷۱-۰۱ را به صورت تک‌فاز نشان می‌دهند و در محدوده دقت آنالیز XRD اثری از تشکیل فاز دوم ناخالصی مشاهده نمی‌شود. عدم مشاهده فاز دوم دلالت بر نفوذ کامل لیتیوم، تانتالیوم و آنتیموان در شبکه پایه KNN و تشکیل فاز KNN-LST دارد. بنابر نتایج حاصل از الگوی تفرق اشعه ایکس نمونه‌ها مشاهده می‌شود که عملیات پخت با موفقیت انجام شده و فاز دوم در حین این عملیات تشکیل نشده است. در نمودار XRD نمونه سنتز شده به روش سرامیکی سنتی علاوه بر ساختار پروسکایت، پیک‌های مربوط به فاز دوم

۳- نتایج و بحث

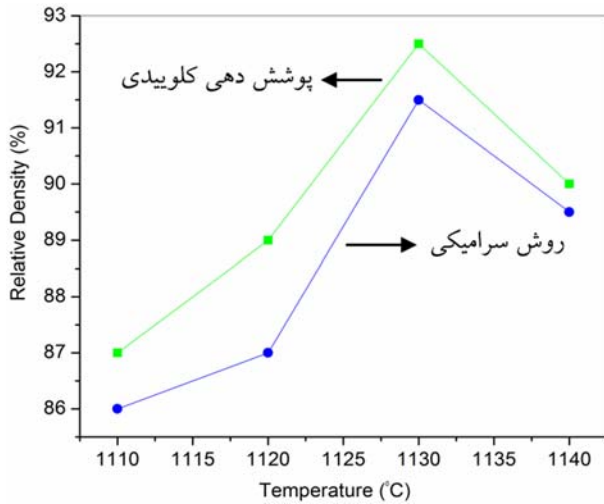
۳-۱- بررسی ریزساختاری و مورفولوژی

شکل (۱) تصویر میکروسکوپ الکترونی روبشی (SEM) مربوط به نمونه پیزوالکتریک KNN-LST سنتز شده به کمک روش سنتی و پوشش‌دهی کلوییدی آبی سینتر شده در دمای 1130°C به مدت یک ساعت را نشان می‌دهد.



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

همانطوریکه در شکل (۱) مشاهده می‌شود برای هر دو روش نمونه‌های پیزوسرامیک با ساختار فشرده و مورفولوژی مکعبی دانه‌ها که از مشخصه‌های پیزوسرامیک‌های بر پایه نایوبات سدیم- پتاسیم می‌باشد [۱۱] به وضوح دیده می‌شود. اندازه دانه‌ها در روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی ریزتر از روش سنتی سرامیکی می‌باشد. اندازه دانه می‌تواند خواص دی‌الکتریک، پیزوالکتریک و فروالکتریک نمونه حاصل را تحت تاثیر قرار دهد.



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

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

۳-۴- بررسی خواص دی‌الکتریکی

در جدول (۱) مقادیر ضریب دی‌الکتریک و فاکتور اتلاف مربوط به نمونه‌های پیزوسرامیک KNN-LST سنتز شده به کمک روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی و سرامیکی سنتی، پخت‌شده در دماهای 1130°C و 1140°C به مدت یک ساعت ارایه شده است.

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

نمونه	ضریب دی‌الکتریک	فاکتور اتلاف
روش کلوییدی، دمای پخت 1130°C	۱۷۶۰	۰/۰۲۹
روش کلوییدی، دمای پخت 1140°C	۱۳۹۵	۰/۰۸
روش سنتی، دمای پخت 1130°C	۱۶۵۰	۰/۰۳۵
روش سنتی، دمای پخت 1140°C	۱۲۰۰	۰/۰۹

$\text{K}_3\text{LiNb}_6\text{O}_{17}$ (که به صورت اختصار KLN نوشته می‌شود) در زوایای بین 25° تا 30° دیده شدند. ژو و همکارانش [۱۲] نشان دادند که یکی از فازهای ناخالصی که معمولاً در حین پخت نمونه‌های فروالکتریک بر پایه نایوبات سدیم-پتاسیم تشکیل می‌شود فاز KLN با شماره کارت ۰۵۳۳-۳۶ و ساختار کریستالوگرافی موسوم به تنگستن-برنز تتراگونال (TTB) می‌باشد. این فاز یک اکسید شفاف با دمای انتقال فروالکتریک-پارالکتریک حدود 420°C است که تشکیل آن می‌تواند خواص دی‌الکتریک، پیزوالکتریک و فروالکتریک نمونه حاصل را تحت تاثیر قرار دهد. فاز KLN در اثر تبخیر اجزای فرار موجود در سیستم از جمله Na، K و Li تشکیل می‌شود. هرچند میزان تبخیر این اجزا در دماهای مختلف متفاوت گزارش شده است [۱۳]، در تمامی دماهای بالاتر از 1000°C میزان تبخیر سدیم به مراتب بالاتر از پتاسیم 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 پوشش‌دهی کلوییدی آبی دلالت بر مخلوط سازی موثرتر در این روش نسبت به روش سنتی سرامیکی دارد.

۳-۳- بررسی دانسیته نسبی

در شکل (۳) دانسیته نسبی مربوط به نمونه‌های پیزوسرامیک KNL-NTS سنتز شده به کمک روش سرامیکی سنتی و پوشش‌دهی کلوییدی آبی برحسب دمای پخت ارایه شده است. همان‌طوری که در شکل (۳) 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 پیزوالکتریک KNN-LST در دمای بالاتر از 1130°C می‌تواند به دلیل تبخیر 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 پوشش‌دهی کلوییدی آبی بالاتر می‌باشد.

یافته و سپس با افزایش بیشتر دما تا 1140°C میزان دانسیته کاهش می‌یابد.

علاوه بر این مقادیر دانسیته در تمامی دماهای پخت برای روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی بالاتر می‌باشد. مقادیر ضریب دی‌الکتریک برای نمونه سنتز شده به کمک روش پوشش‌دهی کلوییدی نسبت به روش سنتی سرامیکی بالاتر و فاکتور اتلاف پایین‌تر می‌باشد.

مراجع

- Hollenstein, E., Damjanovic, D., Setter, N. "Temperature stability of the piezoelectric properties of Li-modified KNN ceramics", *Journal of the European Ceramic Society*, 2007, 27, 4093-4097.
- Bomlai, P., Muensit, N., "Structural and electrical properties of $\text{Na}_{0.47}\text{K}_{0.47}\text{Li}_{0.06}\text{NbO}_3$ 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., 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 nano-structured ceramics by MPB engineering", *Ceramic International*, 2013, 39, S97-S102.
- Xu, L.W., Chu, Z. R., Zeng, H. "Enlarged polymorphic phase transition boundary and enhanced piezoelectricity in ternary component $0.8\text{Ba}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TiO}_3\text{-}0.1\text{BaTi}_{0.8}\text{Zr}_{0.2}\text{O}_3\text{-}0.1\text{BaTi}_{0.9}\text{Sn}_{0.1}\text{O}_3$ ceramics", *Materials Letters*, 2013, 110, 80-82.
- Wongsaenmai, S., Ananta, S., Yimnirun, R. "Effect of Li addition on phase formation behavior and electrical properties of $(\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{NbO}_3$ lead free ceramics", *Ceramic International*, 2012, 39, 147-152.
- Hagh, N. M., Kerman, K., Safari, A., "Dielectric and piezoelectric properties of Cu^{2+} -doped alkali niobates", *Journal of the European Ceramic Society*, 2009, 29, 2325-2332.
- Mgbemere, H. E., Herber, R. P., Gerold, A. S., "Effect of MnO_2 on the dielectric and piezoelectric properties of alkaline niobate based lead free piezoelectric ceramics", *Journal of the European Ceramic Society*, 2009, 29, 1729-1733.
- Qian, S., Kongjun, Z., Pang, X., "Phase transition, microstructure, and dielectric properties of Li/Ta/Sbco-doped $(\text{K,Na})\text{NbO}_3$ lead-free ceramics", *Ceramics International*, 2014, 40, 4389-4394.

همانطوریکه مشاهده می‌شود مقادیر ضریب دی‌الکتریک در هر دو دمای پخت برای نمونه سنتز شده به کمک روش پوشش‌دهی کلوییدی نسبت به روش سنتی سرامیکی بالاتر می‌باشد. همان‌گونه که در قسمت‌های قبل ذکر شد عواملی چون تشکیل فاز دوم ناخالصی و دانسیته نمونه‌ها می‌تواند بر خواص دی‌الکتریک تاثیر گذار باشد [۵ و ۶]. بنابراین 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 نمونه‌ها افزایش می‌یابد. ضریب دی‌الکتریک برای پیروسرامیک KNN-LST در بازه 1570 تا 1750 گزارش شده است [۱۰، ۱]. مقادیر ضریب دی‌الکتریک در تحقیق حاضر برای روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی 1760 گزارش شده که نشان‌دهنده موفقیت‌آمیز بودن روش مذکور در تولید پیروسرامیک KNN-LST می‌باشد.

۴- نتیجه گیری

در این تحقیق پودرهای پیروسرامیکی بدون سرب $(\text{K}_{0.44}\text{Na}_{0.52}\text{Li}_{0.04})(\text{Ta}_{0.1}\text{Sb}_{0.06}\text{Nb}_{0.84})\text{O}_3$ به دو روش سرامیکی سنتی و پوشش‌دهی کلوییدی آبی تهیه شدند. در هر دو روش نمونه‌های پیروسرامیک با ساختار فشرده و مورفولوژی مکعبی دانه‌ها که از مشخصه‌های پیروسرامیک‌های بر پایه نایوبات سدیم-پتاسیم می‌باشد، مشاهده گردید. نمونه سنتز شده با کمک روش پوشش‌دهی کلوییدی آبی و سپس پخت شده حضور ساختار پروسکایت بر پایه نایوبات سدیم-پتاسیم 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 $\text{K}_3\text{LiNb}_6\text{O}_{17}$ نیز مشاهده شد. برای هر دو روش با افزایش دمای پخت از 1110°C تا 1130°C ، دانسیته نمونه‌ها افزایش

-
14. Saito, Y. , Takao, H. , Tani, T. , Nonoyama, T. , Takatori, K. , Homma, T. , Nagaya, T. , Nakamura, M. "Lead-free piezoceramics", *Nature*. 2004, 432 84-87.
 13. Wang, K. , "(K, Na)NbO₃-based lead-free piezoceramics: Phase transition, sintering and property enhancement", *Journal of Advanced Ceramics*, 2012, 1(1) 24-37.