



Investigating the Effects of Sintering Variables on Microstructure and Density of PZT Fibers Fabricated via Extrusion Process

Raziye Hayati ^{1*}, Iman Fereydoonpoor ², Reza Fadaee ²

¹ Assistant Professor, Department of Materials Engineering, Yasouj University, Yasouj, Kohgiluyeh and Boyer Ahmad, Iran

² M. Sc., Department of Materials Engineering, University of Shiraz, Shiraz, Fars, Iran

*Corresponding Author's Email: r.hayati@yu.ac.ir (R. Hayati)

Paper History:

Received: 2023-08-13

Revised in revised form: 2023-09-20

Scientific Accepted: 2023-09-21

Keywords:

Piezoelectric,
Fiber,
PZT,
Sintering,
Microstructure

Abstract In this research, PZT fibers were fabricated using PZT-5A commercial powder, polymeric additives, and deionized water as a solvent. The rheological behavior of different pastes with various amounts of solids and additives was investigated, and the best paste was selected for syringe injection (extrusion process). Meanwhile, the paste containing 85 wt % solid content and 1 wt % glycerol, prepared by a 15 wt % PVA solution, exhibited the best rheological behavior. The resulting fibers were dried at 100 °C, and the burnout process was conducted at 600 °C with the heating rate of 1 °C/min for 2 hours. The sintering process occurred in the temperature range of 1220-1270 °C for 2.5-4 hours. X-Ray Diffraction (XRD) analysis conducted for phase investigations revealed that the fibers sintered at 1220 °C were characterized by a single-phase perovskite structure. Further, the peak splitting confirmed the ferroelectric nature of fiber. However, at higher sintering temperatures, the secondary peaks attributed to zirconium and titanium oxides appeared in the fiber diffraction patterns. According to Scanning Electron Microscope (SEM) images from the surface of the fibers, the fibers sintered at 1220 °C for 2 hours were devoid of any cracks and possessed an acceptable density. Additionally, based on the SEM images from the fracture surface of the fibers, the microstructure of this sample comprised cuboid grains with the average size of 1.5 μm, which is half of the average grain size of bulk PZT with spherical grains at its optimum sintering temperature.



<https://doi.org/10.30501/jamt.2023.411504.1287>

URL: https://www.jamt.ir/article_180719.html

1. INTRODUCTION

Among piezoelectric composites, the 3-1 type or polymer matrix composite with ceramic rods owns significantly higher properties than other types, hence regarded as the most useful type of piezoelectric composite. Among the advantages of this type of composite are its large coupling factor, low acoustic impedance, good compatibility with water and human body tissue, mechanical ductility, wide bandwidth, a low mechanical quality factor, and possibility of making cut arrays with a simple design of electrodes. Piezoelectric composites are particularly useful in underwater sonar applications and ultrasonic transducers in medical imaging [1]. Considering the shape and geometry of devices, piezoelectric ceramic fibers have recently gained recognition as a part of 1-3 type composites. Understanding the potential applications of these fibers has made the fabrication of small-scale fibers increasingly important. Extrusion stands out as the most common method for fabricating fine PZT fibers, involving a thorough mixing of ceramic powder and an organic binder. This method has found widespread applications in the commercial production of PZT fibers [2]. Three commercial methods of fiber synthesis have been introduced by three key commercial companies and are compared below: 1- Extrusion

method, initially employed in 1999 by Sturk et al. [3] for making PZT fibers, is still utilized today by Ceranova company for the commercial production of PZT fibers using the same method; 2- Viscose Slurry Spinning Process (VSSP) method, performed by Advanced Ceramics and first introduced by Cass et al. [4] in 1991; 3- ALCERU method, executed by Smart Materials and first invented by Meinster et al. at 2003.

In this research, PZT pastes were prepared using commercial PZT-5A powder, polyvinyl alcohol, and glycerol additives, and deionized water as solvent. The raw fibers were extruded from a needle with a diameter of about 300 μm using a syringe injection method. Subsequently, this study investigates the impact of different sintering conditions on the microstructure and density of the fibers.

2. MATERIALS AND METHODS

PVA Aqueous solutions were prepared from PVA powder with the weight percentages ranging from 5 to 20. Next, an appropriate amount of this solution, determined by the percentage of the solid content, was added to the PZT powder. Fiber injection was carried out using plastic syringes with volumes ranging from 1 to 5 cc. Given that the viscosity of the optimal pastes was too high to easily perform manual injection, a

Please cite this article as: Hayati, R., Fereydoonpoor, I., Fadaee, R., "Investigating the effects of sintering variables on microstructure and density of PZT fibers fabricated via extrusion process", *Journal of Advanced Materials and Technologies (JAMT)*, Vol. 12, No. 2, (2023), 55-73. (<https://doi.org/10.30501/jamt.2023.411504.1287>).



single-axis press machine was necessary to apply pressure. Once dried in the environment, the obtained raw fibers were heated in the oven at the temperature of 100 °C for 12 hours to completely remove moisture. The burnout process (binder removal) and sintering were then conducted in a box electric furnace. The burnout operation proceeded at a very slow rate of 1 °C/min at the temperature of 600 °C for 2 hours, followed by sintering at the desired temperature with a common heating rate of 5 °C.

3. RESULTS AND DISCUSSION

Investigations into the effect of the binder solution concentration and amount of plasticizer on the rheological behavior of the pastes were carried out, the corresponding diagrams of which are shown in Figure 1 (a-b). As observed, the sample containing 15 wt % PVA and 1 wt % glycerol with an average viscosity of 1068 mPa.s exhibited the best rheological behavior. Other samples, however, were unsuitable for extrusion or injection due to sudden changes in viscosity at higher shear rates.

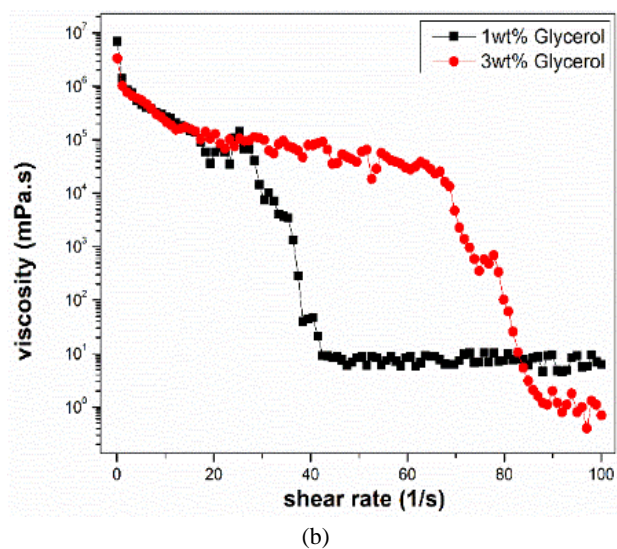
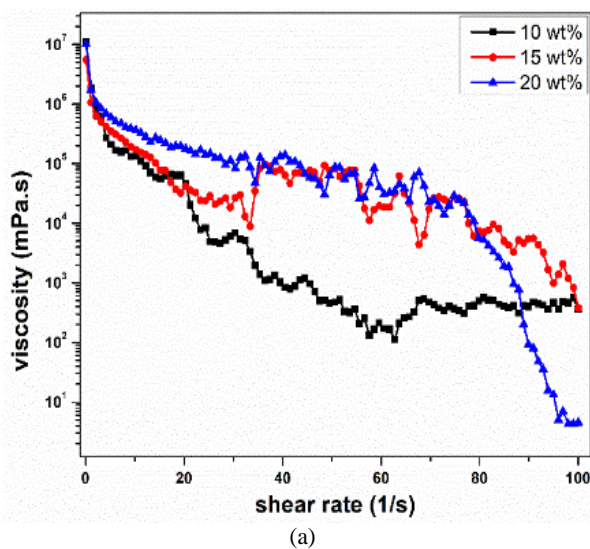
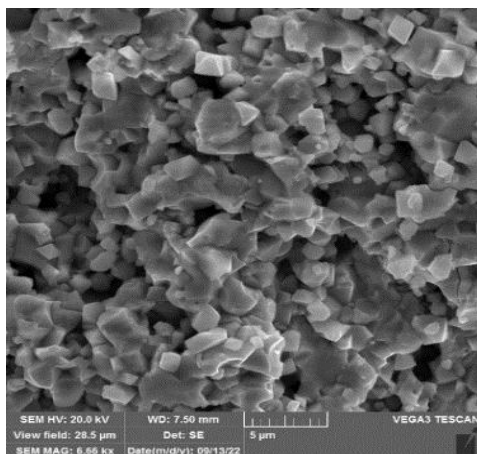


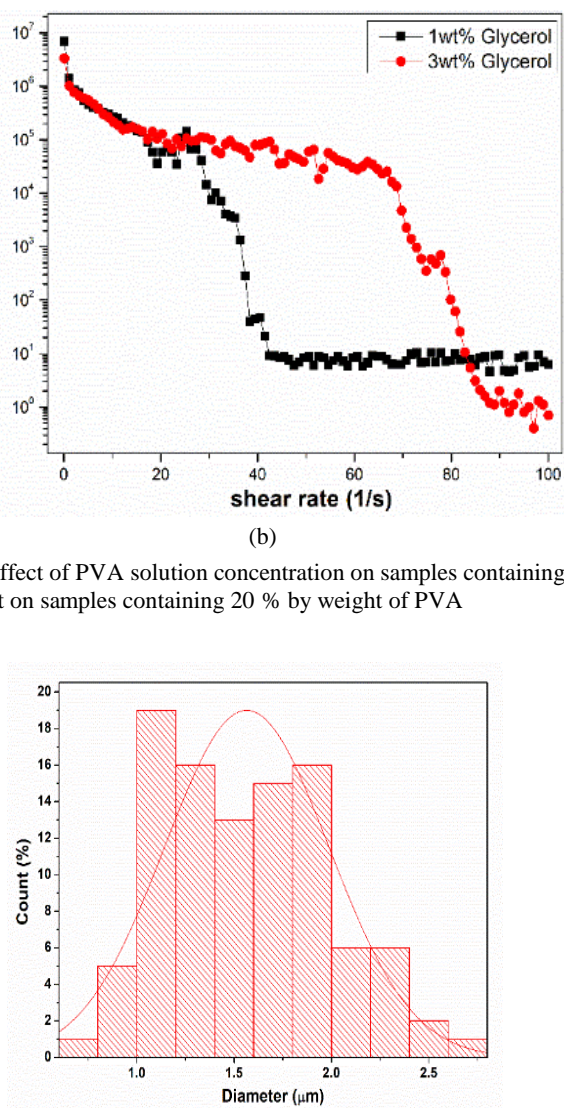
Figure 1. Graphs of changes in viscosity according to shear rate, a) the effect of PVA solution concentration on samples containing 1 % by weight of glycerol and b) the effect of glycerol amount on samples containing 20 % by weight of PVA



(a)

The SEM images from the fracture surface of fibers sintered at 1220 °C for 2.5 and 4 h, compared with the image of the fracture surface of bulk PZT sample at the optimum sintering temperature, are presented in the micrographs of Figure 2. The results indicate that upon increasing the sintering time, the grain microstructure becomes denser, and the average grain size increases, compared to the dwell time of 2.5 h. According to grain size histograms, the majority of grains increased from 1-1.2 µm for 2.5 h to 1-2.5 µm for 4 h sintering time. In Figure (2-c), the bulk PZT sample sintered at 1270 °C for 2.5 h exhibits a morphological change from cubic to quasi-spherical, forming a completely dense microstructure with an average grain size in the range of 2-3.5 µm.

A comparison of the average grain size in the sintered PZT fibers under their optimal sintering conditions and the sintered bulk sample revealed that the grain size in the sintered fibers is about half of the average grain size in the bulk sample. Similar results were reported by Chang et al., who attributed this phenomenon to the higher internal stress in the fibers compared to the bulk. This behavior results in higher tetragonality and a considerable decrease in grain size [5].



(a)

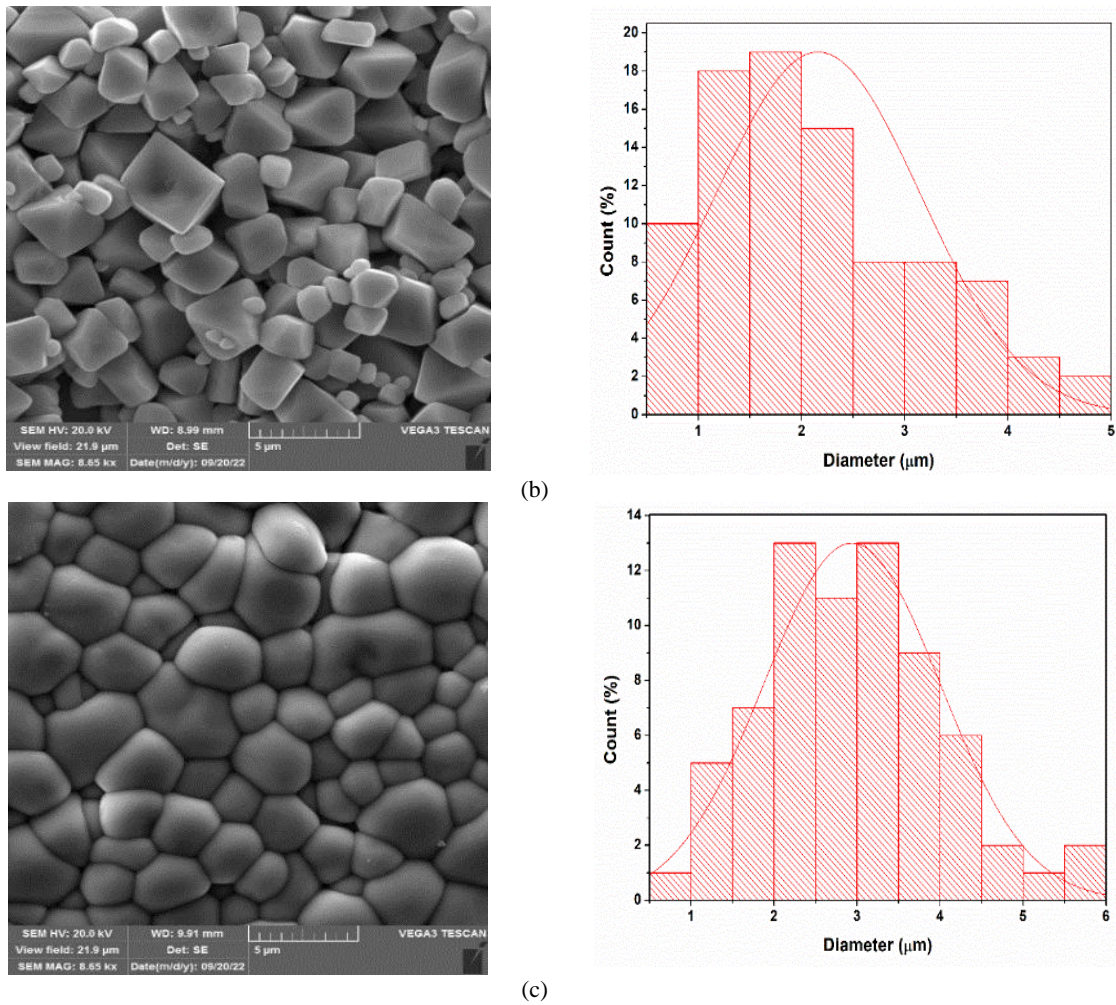


Figure 2. SEM images of the fracture surfaces of fibers sintered at (a) 1220 °C for 2.5 h, (b) 1220 °C for 4 h and (c) bulk sample sintered at 1270 °C for 2.5 h

4. CONCLUSION

In this research, PZT fibers were prepared using the extrusion method. Among the various compositions, the paste containing 85 % solids, prepared with the appropriate amount of 15 wt % PVA solution and 1 wt % glycerol, exhibited the best rheological behavior for injection. The raw fibers with an average diameter of 321 μm were sintered at different temperatures and sintering times, and the microstructure and phases in were studied through SEM and XRD analyses. The density of raw and sintered fibers was also measured using Archimedes method. Based on the obtained results, the fiber sintered at 1220 °C for 2.5 h, with the density of 93 % of the theoretical value and average diameter of 321 μm , was selected as the best fiber since it was devoid of any cracks.

5. ACKNOWLEDGEMENT

The corresponding author of this research paper greatly acknowledges Dr. M. H. Paydar, Full Professor of the Department of Materials Engineering, Shiraz

University, for providing the equipment of the Fuel Cell laboratory during the execution of this research.

REFERENCES

- Uchino, K., *Advanced Piezoelectric Materials*, Woodhead Publishing Limited, Abington Hall, Granta Park, (2010). <https://www.sciencedirect.com/book/9781845695347/advanced-piezoelectric-materials>
- Ozevin, D., "MEMS acoustic emission sensors", *Applied Sciences*, Vol. 10, No. 24, (2020), 8966. <https://doi.org/10.3390/app10248966>
- Strock, H. B., Pascucci, M. R., Parish, M. V., Bent, A. A., Shrout, T. R., "Active PZT fibers, a commercial production process", *Proceedings of the SPIE Conference on Smart Materials Technologies*, Newport Beach, California, (1999). <https://doi.org/10.1117/12.352799>
- French, J. D., Weitz, G. E., Luke, J. E., Cass, R. B., Jadidian, B., Janas, V., Safari, A., "Production of continuous piezoelectric fibers for sensor/actuator applications", *IEEE*, (1996). <https://doi.org/10.1109/ISAF.1996.598163>
- Chang, H. -Y., Yi, C. -H., Lin, C. -H., Cheng, S. -Y., "Surface-condensed piezoelectric fibers and composites", *Materials Chemistry and Physics*, Volume 148, No. 3, (2014), 512-518, <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2014.05.019>



مقاله کامل پژوهشی

بررسی تأثیر متغیرهای تف‌جوشی بر ریزساختار و چگالی الیاف PZT تهیه شده با فرایند اکستروژن

راضیه حیاتی^{۱*}؛ ایمان فریدون‌پور^۲، رضا فدایی^۲^۱استادیار، گروه مهندسی مواد، دانشگاه یاسوج، یاسوج، کهگیلویه و بویراحمد، ایران^۲کارشناسی ارشد، گروه مهندسی مواد، گروه مهندسی مواد، دانشگاه شیراز، شیراز، فارس، ایران

تاریخچه مقاله:

ثبت اولیه: ۱۴۰۲/۰۵/۲۲

دریافت نسخه اصلاح‌شده: ۱۴۰۲/۰۶/۲۹

پذیرش علمی: ۱۴۰۲/۰۶/۳۰

کلیدواژه‌ها:

پیزوالکتریک،

الیاف،

PZT،

تف‌جوشی،

ریزساختار

چکیده در این پژوهش، الیاف PZT با استفاده از پودر تجاری PZT-5A و افزودنی‌های پلیمری و حلال آب دیونیزه تهیه شد. رفتار رئولوژی خمیرهای مختلف با مقادیر جامد و افزودنی‌های متفاوت بررسی شد و بهترین خمیر برای تزریق توسط سرنگ (فرایند اکستروژن) انتخاب شد. در این میان خمیر حاوی ۸۵٪ جامد و ۱٪ وزنی گلیسرول که با استفاده از محلول ۱۵٪ وزنی PVA تهیه شد، دارای بهترین رفتار رئولوژی بود. الیاف به دست آمده در دمای ۱۰۰ °C خشک شده و فرایند چسب زدائی در دمای ۶۰۰ °C با نرخ ۱ °C/min به مدت ۲ ساعت انجام گردید. فرایند تف‌جوشی در محدوده دمای ۱۲۲۰-۱۲۷۰ °C در زمان‌های ۴-۲/۵ ساعت انجام شد. بررسی‌های فازی انجام شده توسط آنالیز پراش X نشان داد که الیاف به دست آمده در دمای ۱۲۲۰ °C دارای ساختار تک فاز پروسکایت PZT می‌باشد، اما با افزایش دمای تف‌جوشی، پیک‌های ثانویه مربوط به اکسیدهای زیرکونیوم و تیتانیوم در الگوهای پراش الیاف مشاهده شد. تصاویر میکروسکوپ الکترونی از سطح الیاف نشان داد الیاف تف‌جوشی شده در دمای ۱۲۲۰ °C به مدت ۲ ساعت عاری از هرگونه ترک و دارای چگالی قابل قبول بود. بعلاوه، بر اساس تصاویر SEM میانگین قطر این نمونه حدود ۳۰۰ μm محاسبه شد. تصاویر سطح شکست الیاف نشان داد که این نمونه دارای ریز ساختاری با دانه‌های مکعبی با میانگین اندازه دانه ۱/۵ μm بود که حدود نصف میانگین دانه‌های PZT بالک با دانه‌های کروی در دمای بهینه تف‌جوشی بود.



<https://doi.org/10.30501/jamt.2023.411504.1287> URL: https://www.jamt.ir/article_180719.html

۱- مقدمه

می‌شود [۲]. پیزوسرامیک‌ها نه تنها خود بازار بزرگی دارند، بلکه در خدمت زمینه‌های دیگری از جمله میکروالکترونیک، پزشکی و صنایع خودروسازی نیز قرار می‌گیرند [۳]. در میان کامپوزیت‌های پیزوالکتریک نوع ۱-۳ یا کامپوزیت زمینه پلیمری با میله‌های سرامیکی به طور قابل ملاحظه‌ای دارای خواص بالاتر نسبت به سایر حالت‌ها بوده و سودمندترین نوع کامپوزیت پیزوالکتریک محسوب می‌شود. مزایای این نوع کامپوزیت عبارتند از: فاکتور جفت‌شدگی بزرگ، امپدانس صوتی پایین، انطباق خوب با آب و بافت‌های بدن انسان، انعطاف‌پذیری

در عصر حاضر اهمیت سرامیک‌های چند کاره^۱ در فناوری‌های پیشرفته به شدت افزایش یافته است، زیرا این مواد انرژی‌های الکتریکی، مکانیکی، حرارتی، نوری و مغناطیسی را به یکدیگر تبدیل می‌نمایند [۱].

پیزوالکتریسیته یک پدیده فیزیکی است که در آن تبدیل بین انرژی‌های الکتریکی و مکانیکی صورت می‌گیرد و منجر به کاربردهای متعددی چون کاراندازها، حسگرها و تراگذارها

^۱ Multi Functional

*عهده دار مکاتبات: راضیه حیاتی

نشانی: ایران، کهگیلویه و بویراحمد، یاسوج، دانشگاه یاسوج، گروه مهندسی مواد، تلفن: ۰۷۴-۳۱۰۰۵۲۱۵، دورنگار: ۰۷۴-۳۱۰۰۵۲۱۵

پیام‌نگار: r.hayati@yu.ac.ir

(Materials) انجام می‌شود و اولین بار توسط ماینستر^۴ و همکاران [۱۷] در سال ۲۰۰۳ ابداع شد.

هر سه نوع روش اصلی از پودر PZT که قبلاً سنتز شده به عنوان ماده اولیه استفاده می‌کند که یا در آب دیسپرز شده و متعاقباً با ویسکوز و سلولز ترکیب می‌شوند (به ترتیب روش VSSP و روش ALCERU) یا با یک پلیمر ترموپلاستیک ترکیب می‌شود (اکستروژن ترموپلاستیک). مخلوط‌های حاصل از میان قالب‌هایی با ابعاد روزنه مشخص اکستروژن می‌شوند. در دو روش VSSP و ALCERU برای شکل دهی، انجماد و خالص سازی، الیاف را از میان چندین حمام شامل اسیدها و نمک‌ها عبور می‌دهند و در نهایت الیاف خام حرارت‌دهی و تفجوشی می‌شوند. با این روش‌ها الیاف با حداقل قطرهای ۱۵، ۳۰ و ۸۰ میکرون به ترتیب با روش‌های VSSP، ALCERU و روش اکستروژن ساخته می‌شود. یک تفاوت جزئی بین دو روش ALCERU و VSSP وجود دارد و آن هم استفاده از سلولز طبیعی به عنوان حامل ماده در مقابل استفاده از ویسکوز می‌باشد. بنابراین، بر پایه روش Lyocell عاری از CS₂ که در صنعت نساجی استفاده می‌شود، روش ALCERU به مراحل تولید کمتری نیاز دارد، تأثیر کمتری بر محیط اطراف دارد و منجر به تولید الیاف PZT با خلوص بالا می‌شود. هر دو روش ALCERU و VSSP نیازمند کنترل شدید پارامترهای فرایندی (به عنوان مثال غلظت اسید در حمام‌های ریسندگی، انعقاد و مرحله پایانی) می‌باشد و دمای تفجوشی به وضوح بالاتر از ۱۰۰۰ °C بوده که PZT شروع به تجزیه می‌کند [۱۸].

فرایند اکستروژن، با دو ویژگی محتوای پودری بیش از ۹۲٪ وزنی در الیاف خام و هندسه شدیداً متغیر سطح مقطع، مشخصه یابی می‌شود. به علت تعداد پارامترهای فرایندی کم، فرایند اکستروژن در مقایسه با سایر روش‌های تولید الیاف مقرون به صرفه‌تر می‌باشد. در روش CERANOVA از فرایند اکستروژن برای تهیه الیاف PZT مستقیم با مقطع دایره ای و عاری از آلودگی استفاده می‌شود. در این روش پودر PZT تجاری با اندازه ذرات زیرمیکرونی تحت شرایط برشی شدید با یک چسب (بایندر) با فرمول خاص ترکیب شده و یک مخلوط

مکانیکی، پهنای باند وسیع به علاوه فاکتور کیفیت مکانیکی پایین و امکان ساخت آرایه‌های برش خورده با طراحی ساده الکترودها. انطباق آکوستیک با بافت و آب در پیزوسرامیک‌های نمادین با وارد شدن آن‌ها به داخل این کامپوزیت‌ها به طور قابل ملاحظه بهبود می‌یابد، زیرا بخشی از سرامیک متراکم و صلب با فاز پلیمری نرم‌تر جایگزین می‌شود. کامپوزیت‌های پیزوالکتریک به طور خاص در کاربردهای سونارهای زیرآبی و مبدل‌های آلتراسونیک در عکسبرداری پزشکی مفید می‌باشند [۴].

از نقطه نظر شکل و هندسه ادوات، اخیراً الیاف سرامیکی پیزوالکتریک به عنوان بخشی از کامپوزیت‌های نوع ۳-۱ مورد توجه قرار گرفته‌اند. برای درک این کاربردهای بالقوه، ساخت الیاف در مقیاس کوچک به عنوان یک موضوع با اهمیت افزایش یافته تبدیل شده است. متداول‌ترین روش ساخت الیاف ظریف از جنس PZT اکستروژن مخلوط حاوی یک پودر سرامیکی و یک چسب آلی می‌باشد که در ساخت تجاری الیاف PZT استفاده شده است [۵].

روش‌های مختلفی برای تولید الیاف PZT در یک محدوده قطر مشخص توسعه یافته‌اند [۶-۱۷]. روش سل-ژل در سال ۱۹۹۲ توسط سلواراج^۱ و همکاران [۱۸] معرفی شد. چند سال بعد و در سال ۲۰۰۱ روش ترکیبی سل-ژل-اکستروژن توسط کوبایاشی^۲ و همکاران [۱۹] برای تهیه الیاف PZT ابداع شد. در همین سال اولین بار روش الکتروریسی برای تهیه الیاف PZT توسط وانگ^۳ و همکاران معرفی شد. سه روش تجاری سنتز الیاف نیز توسط سه شرکت تجاری مهم معرفی شدند که در ادامه با هم مقایسه می‌شوند. ۱- روش اکستروژن که اولین بار در سال ۱۹۹۹ توسط استروک^۴ و همکاران [۶] برای ساخت الیاف PZT به کار برده شد و امروزه شرکت Ceranova با همین روش به صورت تجاری الیاف PZT را تولید می‌کند، ۲- روش فرایند ریسندگی دوغاب ویسکوز (VSSP) که توسط شرکت Advanced Cerametrics انجام می‌شود و اولین بار توسط کاس^۵ و همکاران [۱۴] در سال ۱۹۹۱ معرفی شد، ۳- روش ALCERU که توسط شرکت تجاری مواد هوشمند (Smart

⁴ Stroock

⁵ Cass

⁶ Meister

¹ Selvaraj

² Kobayashi

³ Wang

۱ آورده شده است.

جدول ۱. مشخصات مواد شیمیایی استفاده شده در این پژوهش

نام ماده	فرمول شیمیایی	خلوص (%)	سازنده
PZT-5A	PZT تجاری	≥ ۹۹	چین
پلی وینیل الکل	(C ₂ H ₄ O) _x	۹۹/۹	مرک آلمان
اسید بوریک	BH ₃ O ₃	≥ ۹۹	مرک آلمان
گلیسرول	C ₃ H ₈ O ₃	≥ ۹۹	مرک آلمان

۱-۲- ساخت خمیر PZT

محللول های آبی از بایندر PVA با درصدهای وزنی ۵ تا ۲۰ تهیه شد. سپس با توجه به درصد فاز جامد نسبت به محللول PVA مقدار مناسب از این محللول به پودر PZT اضافه شد. با توجه به اینکه در شروع کار متغیرهای زیادی در ساخت خمیر PZT وجود داشت، طراحی آزمایش با روش تاگوچی انجام شد تا تعداد نمونه ها به حداقل رسانده شود. بدین منظور در گام اول با در نظر گرفتن متغیرهای: ۱- درصد PVA در محللول، ۲- مقدار جامد در خمیر، ۳- مقدار پلاستیسایزر گلیسرول و ۴- زمان نگهداری الیاف در حمام اسید بوریک با آرایه L9 تاگوچی ۹ نمونه با شرایط مطابق جدول ۲ آماده سازی شد.

همگن حاصل می شود. برای فرایند اکستروژن از یک قالب کاربردی با قطر روزنه $160 \mu\text{m}$ استفاده می شود. در روش استاندارد Ceranova مخلوط‌هایی حاوی ۶۰-۴۰٪ حجمی از سرامیک PZT-5A و بایندر خاص استفاده می شود. انتخاب سیستم بایندر در تهیه خمیر، نقش بسیار مهمی ایفا می کند. در نهایت هدف، تولید خمیری با بیشترین درصد سرامیک، سیالیت کافی و رفتار پلاستیک مناسب می باشد. سیالیت خمیر به ترکیب شیمیایی بایندر و کسر حجمی سرامیک وابسته است. انتخاب خمیری با ویسکوزیته و رفتار پلاستیک مناسب باعث افزایش سرعت اکستروژن شده و دفعات مسدود شدن قالب را به حداقل می رساند [۱۸].

در این پژوهش، خمیرهای PZT با استفاده از پودر تجاری PZT-5A و افزودنی های پلی وینیل الکل و گلیسرول و حلال آب دیونیزه تهیه شده و الیاف خام با روش تزریق سرنگ از روزنه با قطر حدود $300 \mu\text{m}$ اکستروود می شود. در ادامه، تأثیر شرایط مختلف تف جوشی بر ریزساختار و چگالی آن ها بررسی می شود.

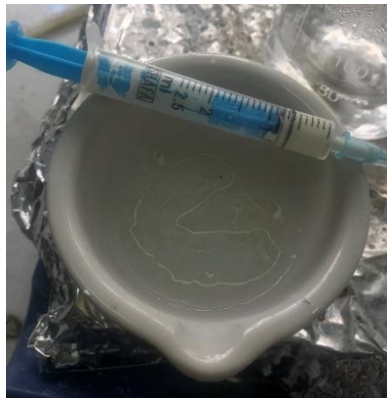
۲- روش تحقیق

مشخصات مواد شیمیایی مورد استفاده در این پژوهش شامل فرمول شیمیایی، خلوص، جرم مولی و چگالی در جدول

جدول ۲. اجزای تشکیل دهنده نمونه های ۹-۱ که توسط روش تاگوچی با آرایه L9 طراحی شدند

شماره نمونه	درصد وزنی PVA در محللول	درصد جامد در خمیر	درصد وزنی گلیسرول	زمان نگهداری در حمام اسید بوریک (دقیقه)
۱	۵	۷۵	۰	۱۰
۲	۵	۸۰	۱	۳۰
۳	۵	۸۵	۲	۶۰
۴	۷/۵	۷۵	۱	۶۰
۵	۷/۵	۸۰	۲	۱۰
۶	۷/۵	۸۵	۰	۳۰
۷	۱۰	۷۵	۲	۳۰
۸	۱۰	۸۰	۰	۶۰
۹	۱۰	۸۵	۱	۱۰

شکل ۱-الف تصویر نمونه شماره ۵ را نشان می‌دهد که حباب‌های هوای داخل خمیر به خوبی قابل رؤیت می‌باشند. یک نمونه از الیاف تزریق شده پس از عبور از حمام اسید بوریک در شکل ۱-ب نشان داده شده است. الیاف بدست آمده از نمونه‌های ذکر شده پس از فرایند چسب سوزی در دمای ۱۲۷۰ درجه سانتی گراد پخت شدند. با تکرار پخت در این شرایط دمایی مشاهده شد که همه الیاف ذوب و تبخیر شدند که علت این رفتار به حضور بور ناشی از حمام اسید بوریک در ساختار ماده و تشکیل فاز شیشه ای بین بور و اکسید سرب نسبت داده شد. در نهایت با در نظر گرفتن رفتار رئولوژی نمونه ها و واکنش بین بور و اکسید سرب در گام بعد نمونه‌هایی با استفاده از محلول‌های PVA با درصدهای وزنی ۱۰، ۱۵ و ۲۰ و مقادیر ۱ و ۳ درصد وزنی گلیسرول بدون استفاده از حمام اسید بوریک تهیه شد. شکل های ۱-ج و ۱-د الیاف تزریق شده با دو قطر مختلف $300 \mu\text{m}$ و 3 mm را نشان می‌دهد.



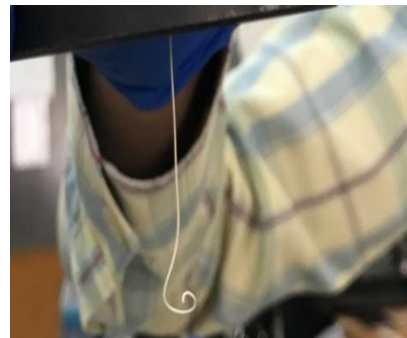
(ب)



(ف)



(د)



(ج)

علت استفاده از اسید بوریک آن است که طبق مطالعات قبلی [۲۰] عبور دادن الیاف از حمام اسید بوریک باعث افزایش استحکام الیاف خام بدست آمده از روش اکستروژن یا تزریق سرنگ می‌شود. مخلوط‌سازی ترکیبات اولیه و ایجاد خمیری با ویسکوزیته مناسب با استفاده از آسیای سایشی اتریشن موجود در آزمایشگاه پیل سوختی دانشگاه شیراز انجام شد. امکانات مورد نیاز یک عدد ظرف پلاستیکی و یک همزن پره‌دار بود که بدون استفاده از گلوله آماده‌سازی خمیر در شرایط دور آسیا $180-250 \text{ rpm}$ و مدت زمان آسیاکاری ۲ ساعت انجام شد و در نهایت خمیرهای ۹-۱ آماده شد. از میان این ۹ خمیر، شماره های ۲، ۶، ۸ و ۹ از رفتار مناسبی برخوردار بودند و با استفاده از سرنگ پلاستیکی به الیاف تبدیل شدند. سایر نمونه ها یا حاوی ۷۵٪ جامد بودند یا مقدار گلیسرول ۲ درصد وزنی داشتند که در نهایت باعث کاهش ویسکوزیته و ایجاد حباب هایی در خمیر شد که آنها را غیر قابل تزریق می ساخت و یا اینکه الیاف بدست بصورت بریده بریده و غیرقابل جابجایی بود.

شکل ۱. تصاویر مربوط به: الف) خمیر دارای حبابهای هوا که غیر قابل تزریق می‌باشد، ب) الیاف تزریق شده از سرنگ و نگهداری شده در حمام اسید بوریک، ج) نمونه ای از الیاف تزریق شده از روزنه سرنگ که با اعمال فشار توسط دستگاه پرس هیدرولیک انجام شد و د) یک نمونه از الیاف ضخیم تزریق شده توسط سر پلاستیکی سرنگ

۲-۲- تهیه الیاف PZT و پخت آن

به منظور اندازه‌گیری چگالی حجمی نمونه‌ها از دستگاه چگالی‌سنج موجود در آزمایشگاه پیل سوختی دانشگاه شیراز استفاده شد. از دستگاه آنالیز حرارتی همزمان مدل PerkinElmer STA6000 ساخت کشور آمریکا، موجود در آزمایشگاه مرکزی دانشگاه یاسوج، برای تعیین دمای خروج پلیمرهای استفاده شده در تهیه خمیر اکستروژن استفاده گردید. با تعیین این دماها می‌توان سیکل حرارتی مناسب برای تف-جوشی بدون تبخیر سرب و همچنین رژیم دمایی مناسب جهت خروج آرام افزودنی‌ها به منظور جلوگیری از ایجاد تنش در قطعه را تعیین نمود.

به منظور بررسی‌های فازی نمونه‌های بالک و الیاف توسط آنالیز اشعه X با تابش Cuka و با گام‌های روبشی 0.01° با استفاده از دستگاه XRD مدل Rigaku Ultima IV ساخت کشور ژاپن، موجود در آزمایشگاه مرکزی دانشگاه یاسوج آنالیز شدند و شناسایی فاز توسط نرم افزار Xpert High Score انجام شد. با استفاده از دستگاه تخلخل‌سنج BET مدل Belsorp miniII ساخت کشور ژاپن، موجود در آزمایشگاه مرکزی دانشگاه یاسوج، سطح ویژه پودر PZT تجاری اندازه‌گیری شد. با توجه به اینکه در این پژوهش از روش اکستروژن (تزریق توسط سرنگ) برای تولید الیاف استفاده می‌شود، میانگین اندازه ذرات در تهیه خمیر نقش اساسی ایفا می‌کند.

۳- نتایج و بحث

الگوی پراش اشعه X پودر PZT تجاری در شکل ۲ نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود این الگوی پراش به تک فاز پروسکایت PZT بدون هیچ فاز اضافی یا ناخالصی متعلق می‌باشد. این الگوی پراش با ترکیب تیتانات زیرکونات سرب با شماره کارت استاندارد 96-151-3334 و ساختار بلوری تتراگونال همخوانی داشت. طبق پژوهش‌های صورت گرفته ترکیب PZT-5A دارای آلاینده‌های دهنده می‌باشد، ولی از آنجا که مقدار این آلاینده‌ها زیر ۳٪ وزنی است، هیچ گونه پیک اضافی در الگوی XRD این نمونه مشاهده نشد.

شکل ۳ تصاویر FESEM پودر PZT تجاری را در بزرگنمایی‌های مختلف نشان می‌دهد. با توجه به این تصاویر

بعد از طی شدن ۲۴ ساعت زمان پیرشدگی (Aging time)، ویسکوزیته خمیرها در شرایط یکسان اندازه‌گیری شد. بدین منظور از دستگاه رئومتر مدل Anton Paar MCR-302 ساخت کشور اتریش، موجود در آزمایشگاه مرکزی دانشگاه شیراز استفاده شد. جهت تهیه الیاف با قطر حدود $250 \mu\text{m}$ از سرنگ‌های پلاستیکی با حجم‌های ۱-۵ cc استفاده شد. با توجه به اینکه ویسکوزیته خمیرهای بهینه در حدی بود که به راحتی با اعمال فشار دست قابل تزریق نبودند، لازم بود برای اعمال فشار از دستگاه پرس تک محوره استفاده شود. بدین ترتیب با استفاده از فشار اعمالی توسط دستگاه پرس دستی به پیستون سرنگ، الیاف خام با ضخامتی به اندازه روزنه فلزی سرنگ حاصل شد. الیاف خام بدست آمده بعد از این که در محیط خشک شدند به منظور حذف کامل رطوبت در در آن در دمای 100°C به مدت ۱۲ ساعت قرار حرارت‌دهی شد. سپس عملیات حذف چسب (بایندرزدایی^۱) و تف جوشی در کوره الکتریکی باکسی انجام شد. عملیات بایندرزدایی با نرخ بسیار آهسته در دمای 600°C به مدت ۲ ساعت انجام شد و در ادامه نمونه‌ها با نرخ حرارت دهی متداول 5°C در دمای مورد نظر تف جوشی شدند.

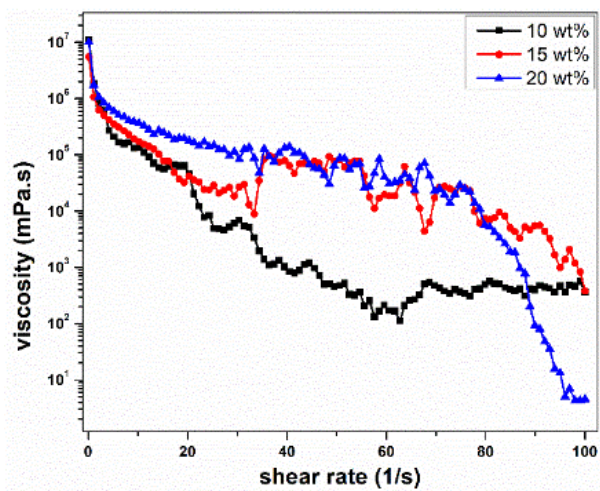
۳-۲- بررسی خواص الیاف خام و تف‌جوشی شده

به منظور بررسی ریزساختار (تعیین اندازه ذرات پودر، محاسبه میانگین اندازه دانه و بررسی ترک‌های احتمالی) نمونه‌های پودری، بالک و الیاف توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی بررسی شدند. بررسی پودرها توسط دستگاه FESEM مدل (FE-SEM, Mira 3-XMU, Czech Republic) متعلق به شرکت دانش بنیان بیم گستر تابان و آنالیز الیاف با استفاده از دستگاه SEM مدل TESCAN-Vega3 ساخت کشور جمهوری چک، موجود در آزمایشگاه مرکزی دانشگاه شیراز انجام شد. لازم به ذکر است مورفولوژی و اندازه ذرات پودر PZT با استفاده از روش بصری توسط میکروسکوپ الکترونی روبشی نیز بررسی شد.

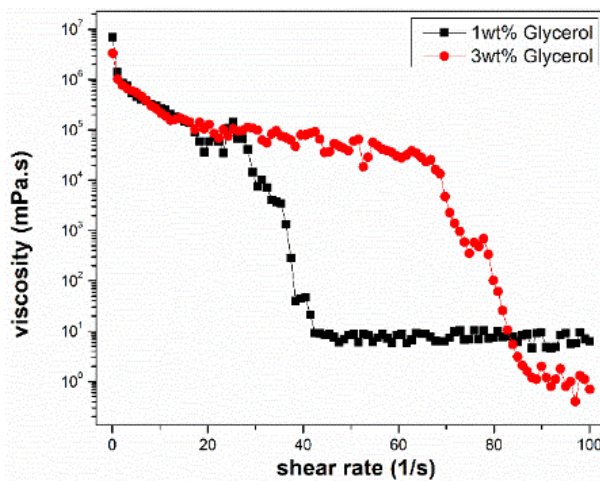
¹ Burnout

شکل ۳. تصاویر مربوط به آنالیز FESEM پودر تجاری PZT-5A خریداری شده در بزرگنمایی‌های متفاوت

تأثیر غلظت محلول بایندر و تأثیر مقدار پلاستیسیزر بر رفتار رئولوژی خمیرها بررسی شد. نمودارهای مربوطه در شکل ۴ نشان داده شده است. همان طور که در این نمودارها مشاهده می‌شود نمونه حاوی ۱۵٪ وزنی PVA و ۱٪ وزنی گلیسرول با متوسط ویسکوزیته ۱۰۶۸ mPa.s بهترین رفتار رئولوژی را نشان داد. سایر نمونه‌ها به علت تغییرات ناگهانی ویسکوزیته در نرخ برش بالاتر برای اکستروود یا تزریق شدن مناسب نمی‌باشند.



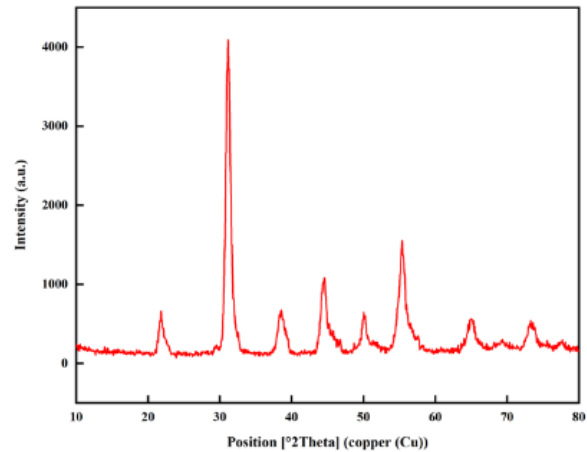
(الف)



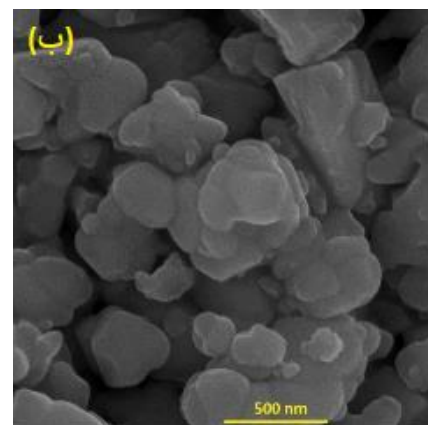
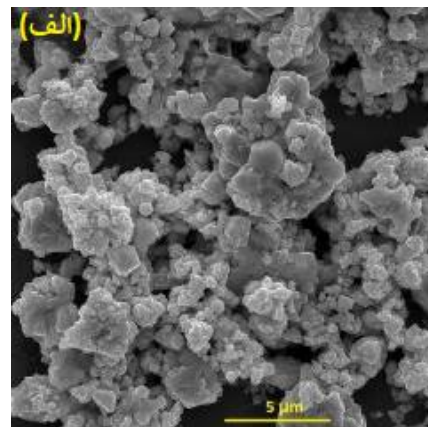
(ب)

شکل ۴. نمودارهای تغییرات ویسکوزیته بر حسب نرخ برش، (الف) تأثیر غلظت محلول PVA بر نمونه‌های حاوی ۱٪ وزنی گلیسرول و (ب) تأثیر مقدار گلیسرول بر نمونه حاوی ۲۰٪ وزنی PVA

می‌توان دریافت که در بعضی قسمت‌های تصویر، این پودر از کلوخه‌های چند میکرومتری تشکیل شده است و کوچکترین سایز ذرات پودر گرانول شده در مقیاس چند صد نانومتر است. در ادامه کار جهت اندازه‌گیری ویسکوزیته خمیرهای تهیه شده، نمودارهای مربوط به تغییرات ویسکوزیته بر حسب نرخ برش بررسی شدند و متوسط ویسکوزیته برای این نمونه‌ها محاسبه شد.



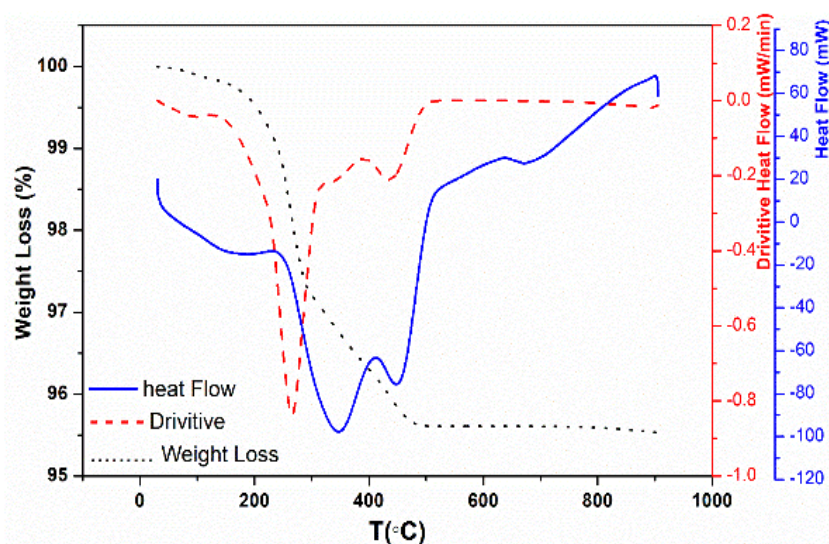
شکل ۲. الگوی پراش اشعه X مربوط به پودر PZT-5A تجاری خریداری شده



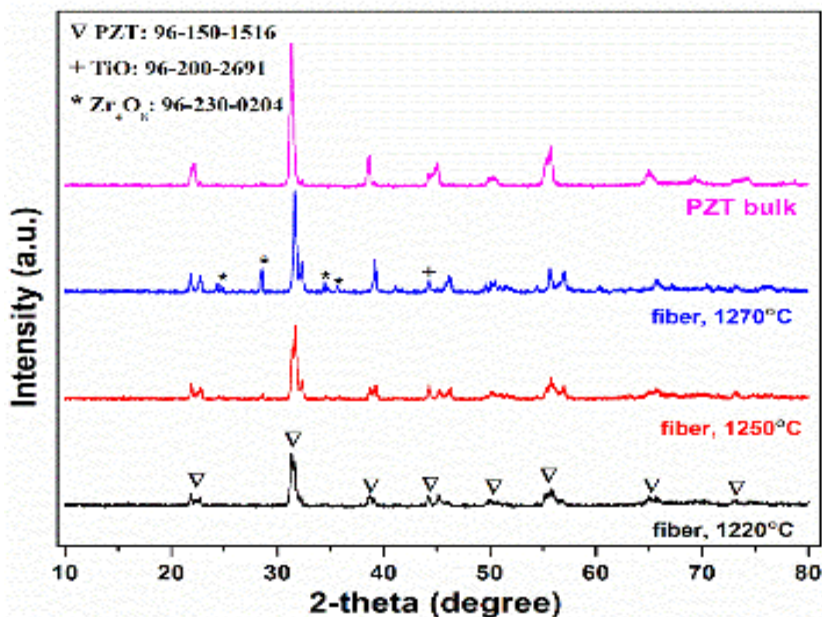
منحنی کاهش وزن، درصد کاهش وزنی معادل ۴/۵٪ از دمای محیط تا 900°C رخ داده است که طی دو مرحله و در محدوده دماهای محیط تا 300°C و $300-600^{\circ}\text{C}$ صورت گرفته است. در منحنی مشتق آنالیز حرارتی نیز دو پیک گرماگیر قبل از دماهای 300°C و 600°C مشاهده می‌شود که به ترتیب به خروج حلال و ترکیبات آلی موجود در خمیر نسبت داده می‌شود. الگوهای پراش اشعه X مربوط به نمونه PZT بالک و الیاف تفجوشی شده در دماهای 1220 ، 1250 و 1270°C در شکل ۶ نشان داده شده است. همان‌طور که مشاهده می‌شود، نمونه بالک دارای پیک‌های مشخصه فاز پروسکایت PZT است و هیچ‌گونه پیک اضافی یا فاز ناخالصی در الگوی پراش آن مشاهده نشد.

در مورد تأثیر گلیسرول هم مشخصاً در نمونه حاوی پلاستیسایزر بیشتر ویسکوزیته کاهش یافت، اما مقدار آن در محدوده نرخ برش بزرگتری ثابت بوده و در مقادیر نرخ برش بزرگ تر نسبت به نمونه حاوی ۱٪ وزنی گلیسرول با کاهش همراه بود. با این حال متوسط ویسکوزیته این نمونه (0.84 mPa.s) از نمونه حاوی ۱٪ وزنی گلیسرول (7.1 mPa.s) کمتر بود و هر دو نمونه از مقدار مطلوب ویسکوزیته برای اکستروژن کردن خمیر فاصله دارند.

نتایج مربوط به آنالیز حرارتی همزمان مربوط به بهترین خمیر تهیه شده با کمک بایندر PVA و پلاستیسایزر گلیسرول در شکل ۵ نشان داده شده است. در این نمودار منحنی‌های درصد کاهش وزن، شار حرارتی و مشتق شار حرارتی در محدوده دمای محیط تا 900°C اندازه‌گیری شده است. طبق



شکل ۵. نمودارهای آنالیز حرارتی همزمان مربوط به خمیر PZT تهیه شده با ۱۵٪ وزنی بایندر PVA و ۱٪ وزنی گلیسرول



شکل ۶. الگوهای پراش اشعه X مربوط به الیاف تف‌جوشی شده در دماهای مختلف به مدت ۲ ساعت

های بدست آمده برای چگالی الیاف در جدول شماره ۳ نشان داده شده است. لازم به ذکر است، چگالی تئوری پودر PZT تجاری با استفاده از روش پیکنومتری اندازه‌گیری شد و برابر با $0.03 \pm 7/62$ به دست آمد. بر اساس نتایج به دست آمده، الیاف خام دارای چگالی ۵۲٪ چگالی تئوری PZT بود که بعد از تف‌جوشی در دمای 1250°C به بالاترین مقدار ۹۵٪ چگالی تئوری رسید. در میان مطالعات انجام شده بر روی سنتز الیاف PZT با روش مشابه این پژوهش، چانگ و همکاران بالاترین چگالی ۹۴٪ را در دمای تف‌جوشی 1220°C گزارش کردند [۲۰]. ریزساختار الیاف خام و الیاف تف‌جوشی شده در دماهای مختلف توسط میکروسکوپ الکترونی SEM مطالعه و بررسی شد.

در میان الیاف PZT، با افزایش دمای تف‌جوشی از 1220°C تا 1270°C ، پیک‌های ثانویه کم شدتی در الگوهای پراش ظاهر شده است. در الگوی پراش اشعه X الیاف تف‌جوشی شده در دمای 1220°C ، فقط پیک‌های مربوط به PZT با ساختار تتراگونال با شماره کارت استاندارد ۱۵۱۶-۱۵۰-۹۶ مشاهده شد که در سایر دماهای تف‌جوشی نیز این ترکیب فاز غالب الگوهای پراش بود. شدت پیک‌های ثانویه در دمای 1270°C افزایش یافت و طبق بررسی‌های انجام شده با نرم افزار Xpert High score این پیک‌ها به اکسیدهای تیتانیوم و زیرکونیوم نسبت داده می‌شود.

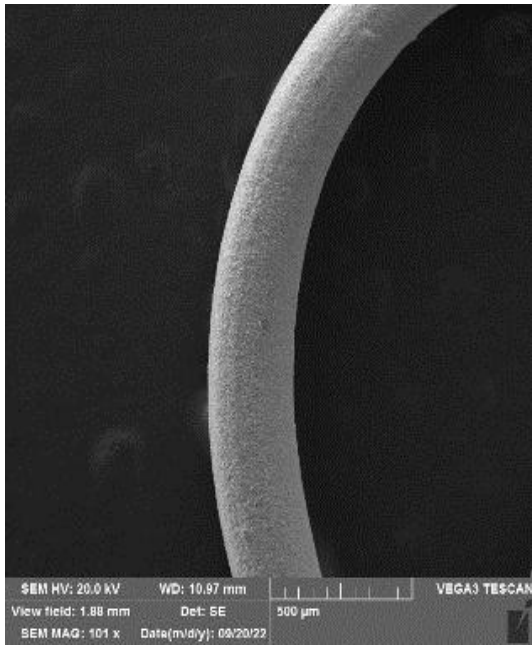
چگالی الیاف خام و تف‌جوشی شده در شرایط مختلف تف‌جوشی با استفاده از روش ارشمیدس اندازه‌گیری شد. داده

جدول ۳. چگالی الیاف تف‌جوشی شده در دماهای مختلف

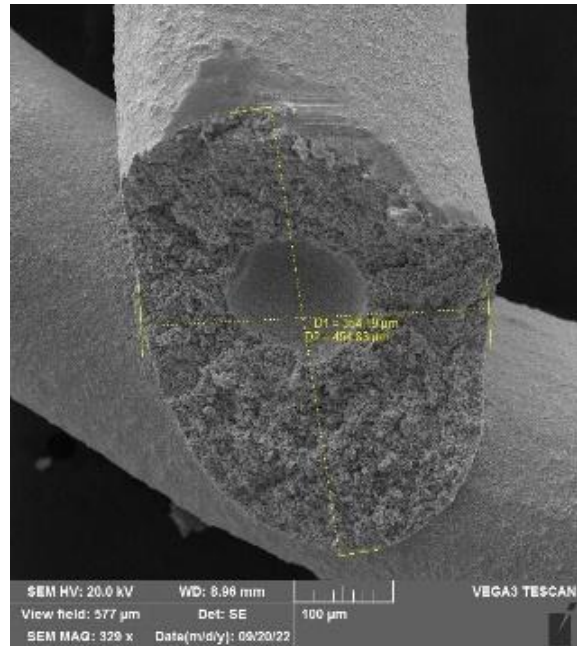
الیاف تف‌جوشی شده در دماهای مختلف ($^\circ\text{C}$) به مدت ۲ ساعت			الیاف خام	نمونه
۱۲۷۰	۱۲۵۰	۱۲۲۰		
۷/۱۴	۷/۲۴	۷/۰۹	۳/۹۶	چگالی (g/cm^3)
۹۳/۷	۹۵/۰۴	۹۳	۵۲	چگالی (%)

شده است. همان‌طور که از تصاویر مشخص است، الیاف تف‌جوشی شده در دمای 1250°C توخالی می‌باشد و در الیاف خام نیز کندگی کم عمقی مشاهده می‌شود که در اثر شکستن نمونه رخ داده است.

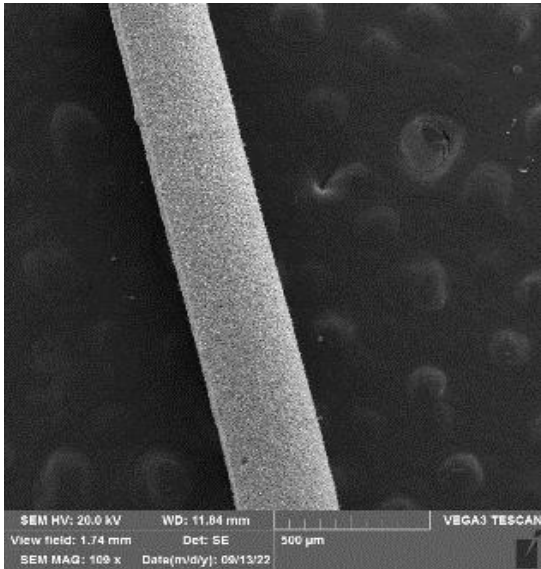
شکل ۷ تصاویر SEM مربوط به الیاف خام و تف‌جوشی شده در دماهای ۱۲۲۰، ۱۲۵۰ و 1270°C را نشان می‌دهد. در این تصاویر سطوح مقطع شبه‌دایره‌ای الیاف به خوبی قابل مشاهده می‌باشد و میانگین قطر الیاف در جدول ۴ نشان داده



(الف-۲)



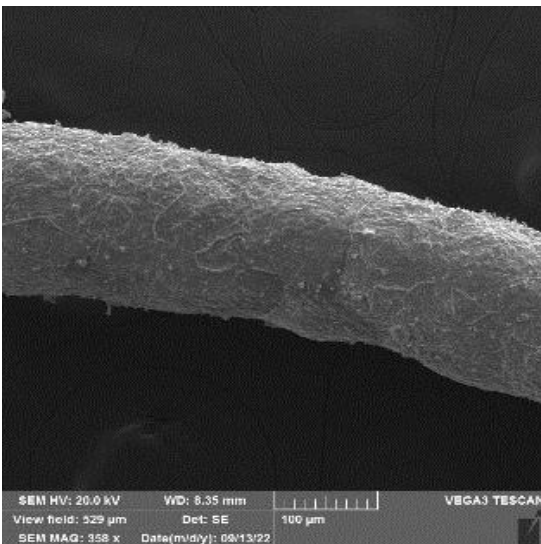
(الف-۱)



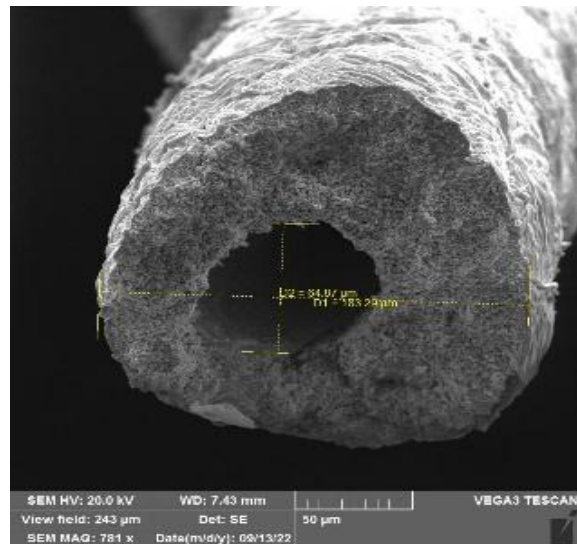
(ب-۲)



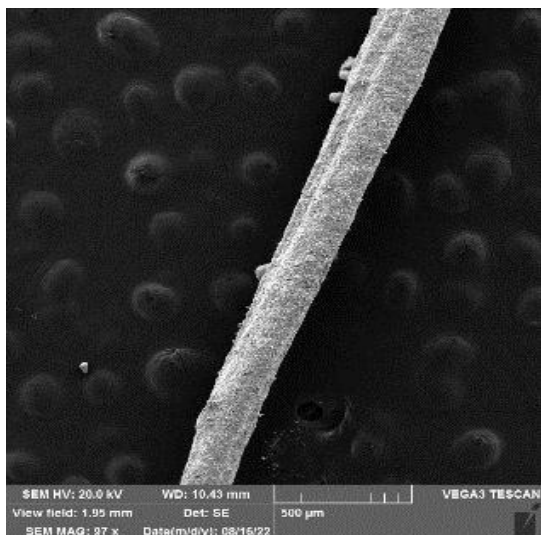
(ب-۱)



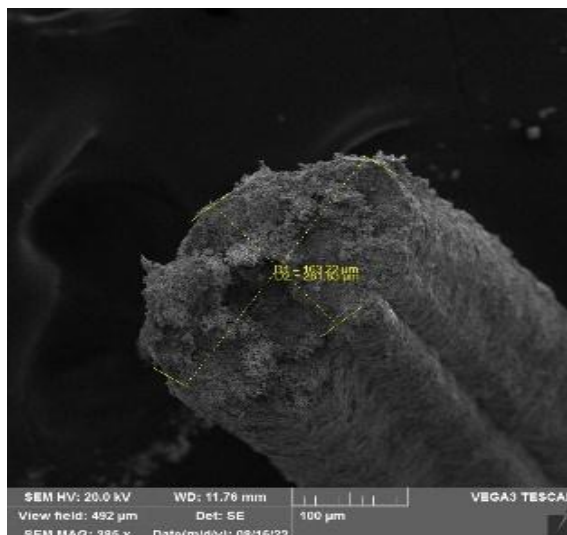
(ج-۲)



(ج-۱)



(۲-د)



(۱-د)

شکل ۷. بررسی میکروسکوپی سطح و مقطع شکست (الف) الیاف خام و الیاف تف‌جوشی شده در دماهای (ب) ۱۲۲۰، (ج) ۱۲۵۰ و (د) ۱۲۷۰ درجه سانتی گراد به مدت ۲/۵ ساعت

جدول ۴. قطر متوسط (طبق تصاویر SEM) و درصد تخلخل (محاسبه شده با نرم افزار ImageJ) مربوط به الیاف خام و تف‌جوشی شده در دماهای مختلف به مدت ۲/۵ ساعت

نمونه	الیاف خام	۱۲۲۰ °C	۱۲۵۰ °C	۱۲۷۰ °C
قطر (μm)	۳۲۱	۳۰۰	۱۸۱	۲۰۴
تخلخل (%)	۴۶/۴	۶/۲	۴/۵	۵/۳

اما ترک‌هایی در ریزساختار مشاهده می‌شود (روی تصاویر مشخص شده‌اند) که می‌تواند به تنش‌های آزاد شده در فرایند چسب سوزی و خروج ترکیبات آلی نسبت داده شود. با توجه به اینکه این ترک‌ها در الیاف تف‌جوشی شده در دمای ۱۲۲۰ °C به مدت ۲/۵ ساعت مشاهده نشد و با افزایش دما و زمان تف‌جوشی ظاهر شده‌اند، به نظر می‌رسد که فرایند چسب سوزی نمی‌تواند عامل ایجاد آن‌ها باشد. کارازون و همکاران در پژوهش انجام شده در سال ۲۰۲۰ دلایل و مکانیزم جوانه زنی و رشد ترک در سرامیک‌ها بعد از فرایند تف‌جوشی را مطالعه و بررسی کردند. طبق نتایج این محققین، ترک‌های بعد از فرایند تف‌جوشی به محدودیت‌های فرایند تف‌جوشی که مانع از انقباض^۱ نمونه در یک یا چند جهت می‌شود، نسبت داده می‌شود. عواملی که ترک‌های ناشی از تف‌جوشی را به همراه دارند عبارتند از: رژیم دمایی تف‌جوشی (دما، نرخ و زمان)، چگالی فشردگی (چگالی خام) و هندسه نمونه [۲۱]. لازم به ذکر است

در بزرگنمایی پایین الیاف تف‌جوشی شده در دماهای ۱۲۲۰ و ۱۲۵۰ °C دارای ظاهری مناسب بودند که بررسی‌های دقیق‌تر ریزساختار در بزرگنمایی‌های بالاتر انجام شد. میانگین قطر الیاف نیز نسبت به الیاف خام کاهش یافت و بیشترین مقدار کاهش قطر در الیاف تف‌جوشی شده در دمای ۱۲۵۰ °C حاصل شد.

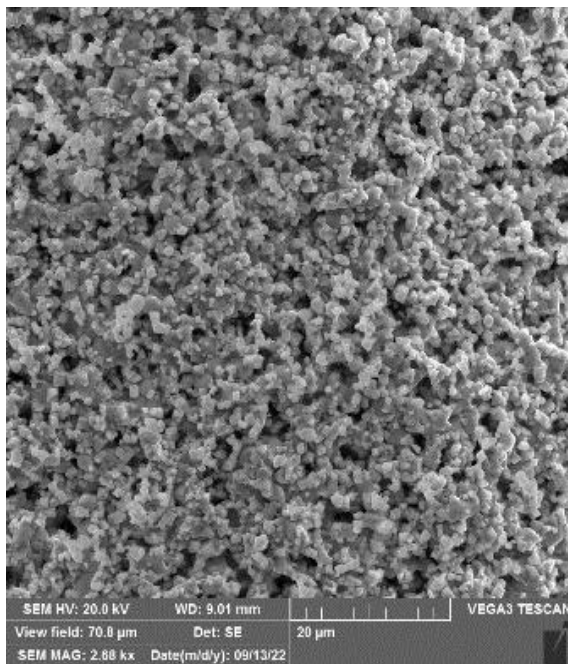
تصاویر SEM مربوط به سطوح الیاف تف‌جوشی شده در دماهای مختلف تف‌جوشی در شکل ۸ نمایش داده شده است. همان‌طور که در شکل ۸-الف مشاهده می‌شود، سطح نمونه خام یکنواخت و بدون ترک می‌باشد، اما با توجه به چگالی پایین این نمونه تخلخل‌های ریز قابل توجهی در ساختار مشاهده می‌شود. اشکال ۸-ب تا ۸-د تصاویر SEM مربوط به نمونه‌های تف‌جوشی شده در دماهای ۱۲۲۰ تا ۱۲۷۰ °C را نشان می‌دهد. طبق این تصاویر، با افزایش دمای تف‌جوشی از ۱۲۲۰ به ۱۲۷۰ °C میزان تخلخل‌ها کاهش یافت (جدول ۴)،

¹ Shrinkage

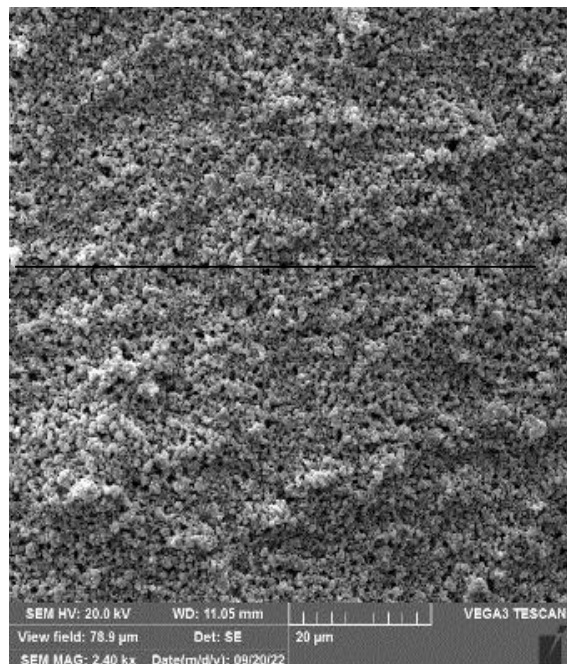
توزیع اندازه دانه‌ها، بیشترین فراوانی در محدوده اندازه دانه $1-1/25 \mu\text{m}$ به دست آمد. با افزایش دمای تف‌جوشی میانگین اندازه دانه و تراکم ساختار افزایش یافت، به طوری که در دماهای 1250°C و 1270°C بیشترین فراوانی به ترتیب در محدوده اندازه دانه $1-1/5 \mu\text{m}$ و $2-2/5 \mu\text{m}$ حاصل شد. تصاویر SEM مربوط به سطح شکست الیاف تف‌جوشی شده در دمای 1220°C به مدت ۴ ساعت و تصویر سطح شکست نمونه PZT بالک در دمای بهینه تف‌جوشی در میکروگراف‌های ۹- و ۹- مشاهده می‌شود. بر اساس نتایج به دست آمده، با افزایش زمان تف‌جوشی در الیاف تف‌جوشی شده در دمای 1220°C ، ریزساختار دانه‌ها متراکم‌تر و میانگین اندازه دانه نسبت به زمان ۲/۵ ساعت افزایش یافته است. طبق هیستوگرام‌های اندازه دانه، با افزایش زمان تف‌جوشی اکثریت دانه‌ها از محدوده $1-1/2 \mu\text{m}$ برای زمان ۲/۵ ساعت (شکل ۹-ب) به $1/2-5 \mu\text{m}$ برای زمان تف‌جوشی ۴ ساعت (شکل ۹-ه) افزایش یافت. همان‌طور که در شکل ۹-و مشاهده می‌شود، در مورد نمونه PZT بالک که در دمای 1270°C به مدت ۲/۵ ساعت تف‌جوشی شده است، مورفولوژی از حالت مکعبی به شبه‌کروی تغییر یافته است و ضمن ایجاد ریزساختار کاملاً متراکم، بیشترین فراوانی اندازه دانه‌ها در محدوده $3-2/5 \mu\text{m}$ به دست آمد.

که در تصاویر SEM مربوط به سطح و سطح شکست الیاف ضخیم‌تر (قطر حدود ۳ mm) که در دمای 1250°C تف‌جوشی شدند، هیچ‌گونه ترکی مشاهده نشد. در نتیجه می‌توان گفت هندسه الیاف (قطر آنها) عامل محدودکننده انقباض تف‌جوشی می‌تواند عامل ایجاد ترک باشد. با توجه به قطر الیاف گزارش شده در جدول ۴، بیشترین مقدار انقباض تف‌جوشی در دمای 1250°C (قطر $181 \mu\text{m}$) مشاهده می‌شود که باعث ایجاد بیشترین ترک در این نمونه شده است. بدیهی است الیاف تف‌جوشی شده در دمای 1220°C (قطر $300 \mu\text{m}$) در حین تف‌جوشی با انقباض کمتری همراه بوده که این نمونه را عاری از ترک ساخته است. از طرفی، وجود تخلخل‌های زیادتر در این نمونه خود می‌تواند مانعی در برابر رشد ترک محسوب شود.

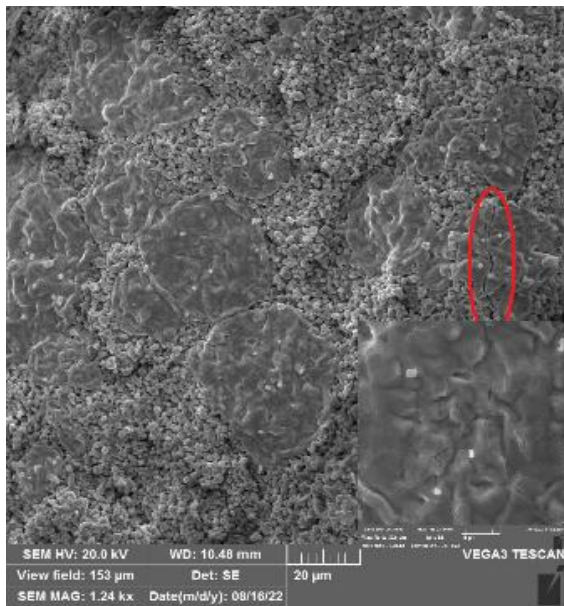
تصاویر SEM مربوط به سطوح شکست الیاف خام و الیاف تف‌جوشی شده به همراه هیستوگرام‌های اندازه دانه، در شکل ۹ نشان داده شده است. طبق تصویر ۹-الف، در الیاف خام مورفولوژی دانه‌ها شبه مکعبی بوده و میانگین اندازه دانه‌ها حدود 500 nm می‌باشد. در نمونه‌های پخته شده در دمای 1220°C هیچ‌گونه ترکی مشاهده نشد. طبق شکل ۹-ب، ریزساختار این نمونه نسبت به نمونه خام متراکم‌تر و دانه‌درشت‌تر است ولی همچنان تخلخل‌هایی مشاهده می‌شود. در نمودار



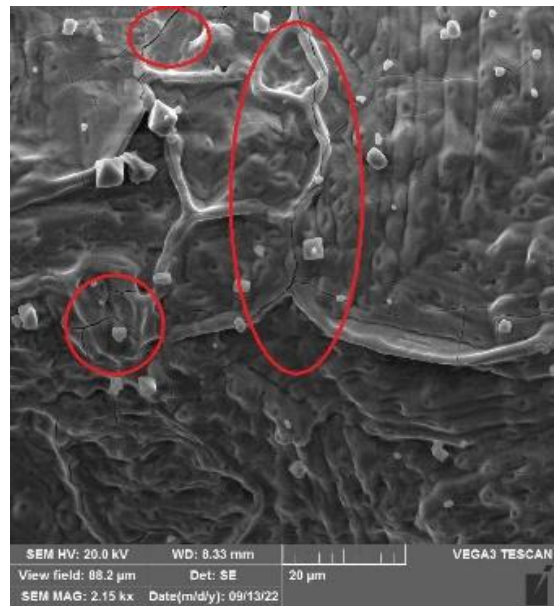
(ب)



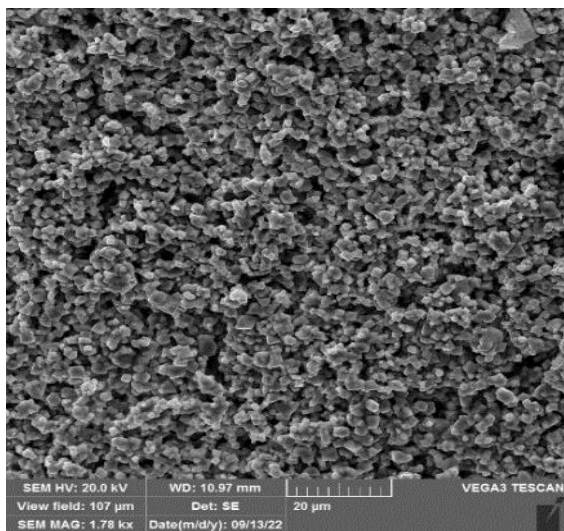
(الف)



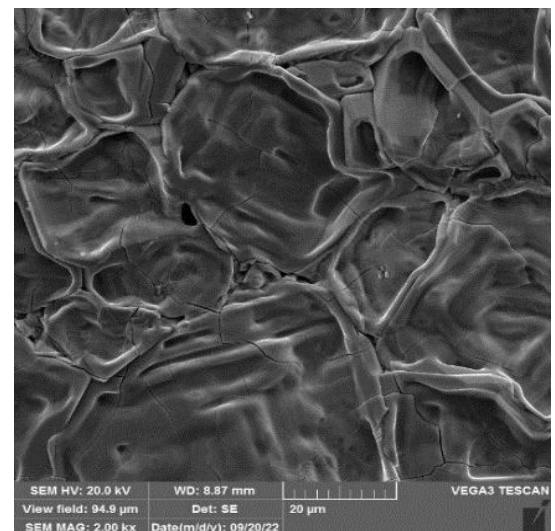
(د)



(ج)

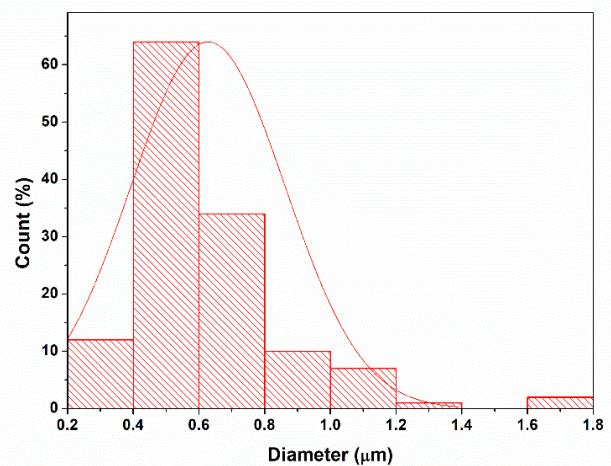
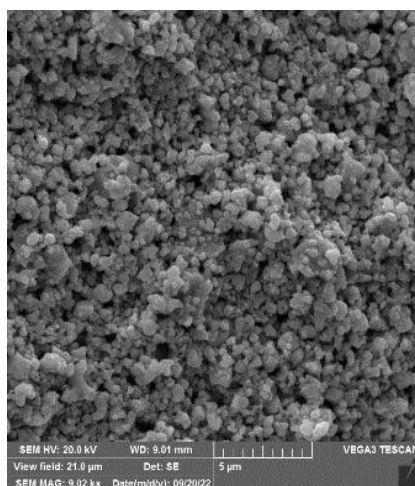


(و)

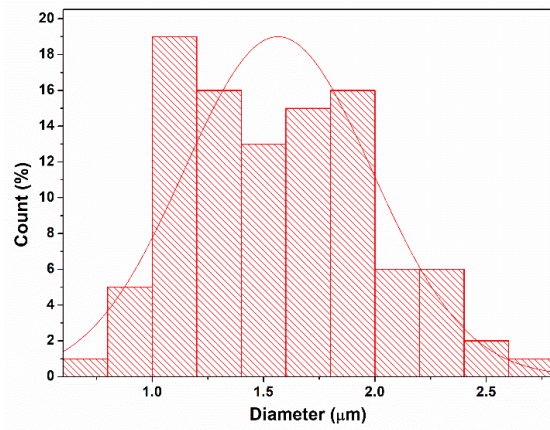
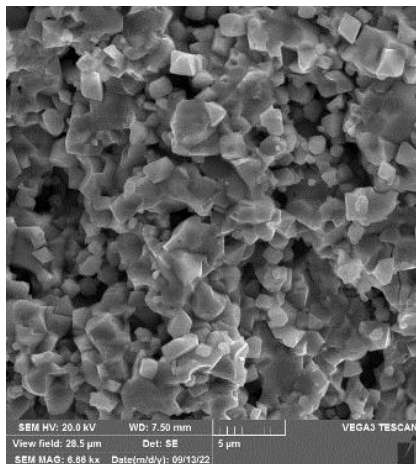


(ه)

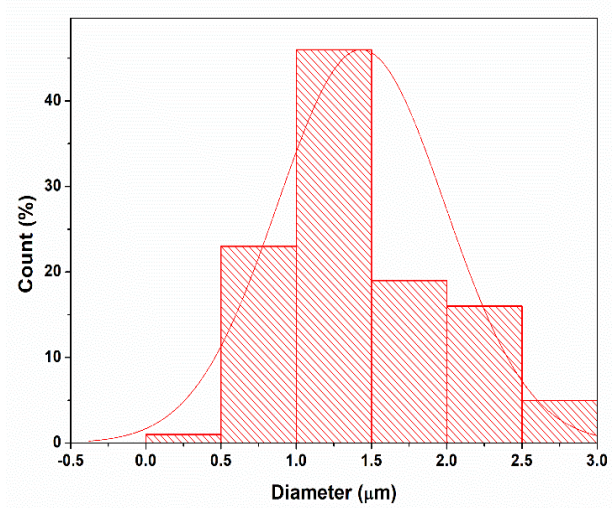
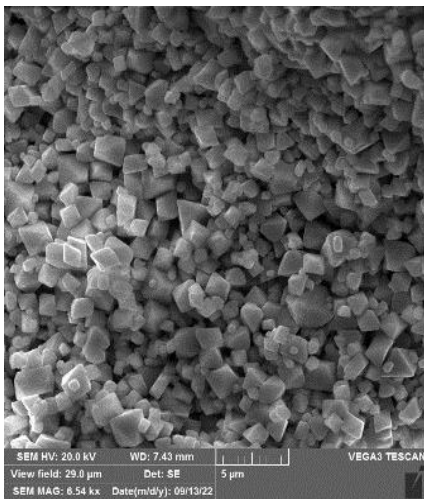
شکل ۸. تصاویر SEM مربوط به سطوح الیاف خام (الف) و الیاف تف جوشی شده در دماهای (ب) ۱۲۲۰، (ج) ۱۲۵۰ و (د) ۱۲۷۰ درجه سانتی گراد به مدت ۲/۵ ساعت، (ه) ۱۲۲۰ درجه سانتی گراد به مدت ۴ ساعت و (و) الیاف با قطر اولیه ۳ mm در دمای ۱۲۵۰ درجه سانتی به مدت ۲/۵ ساعت



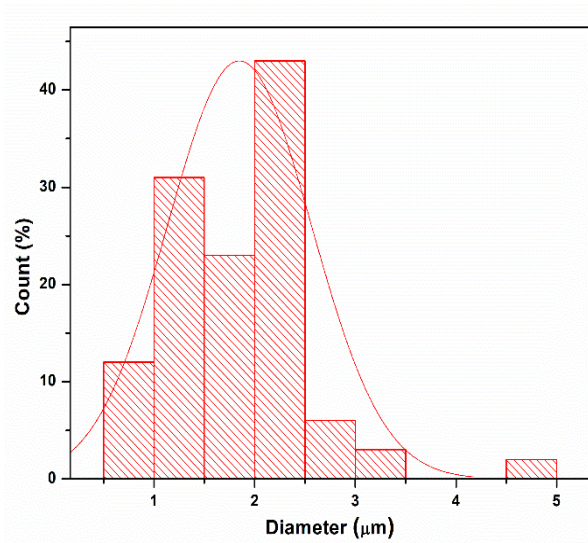
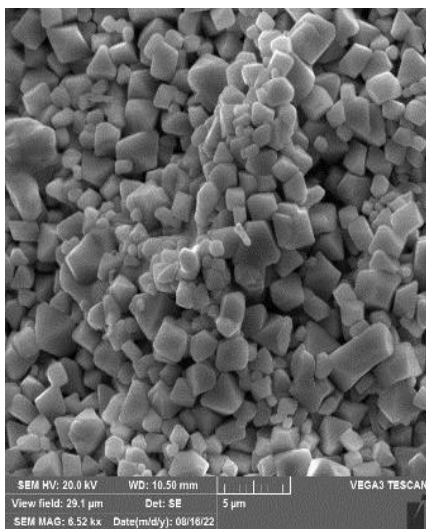
(الف)



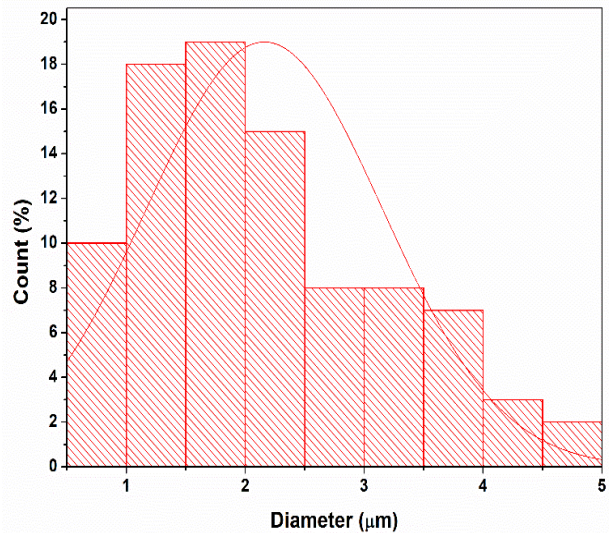
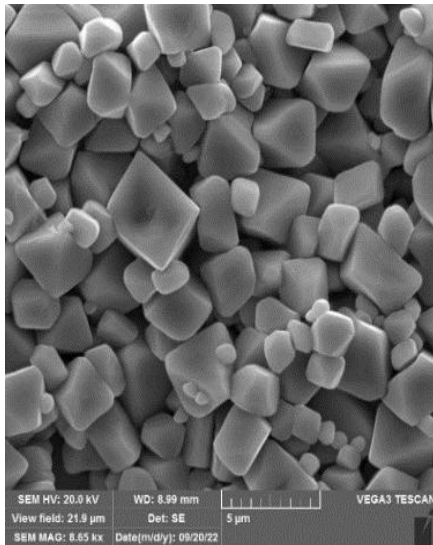
(ب)



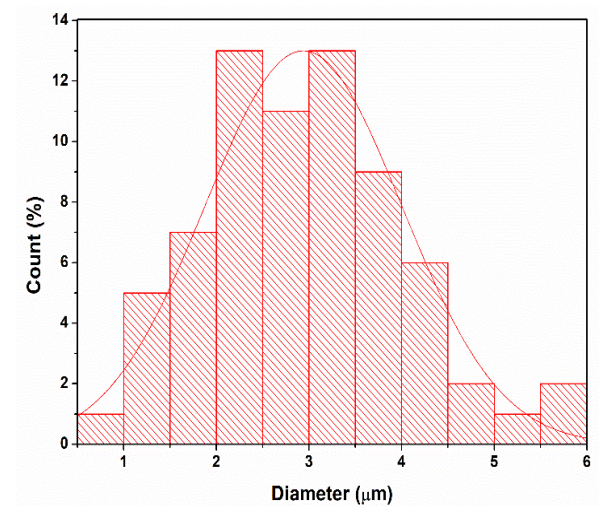
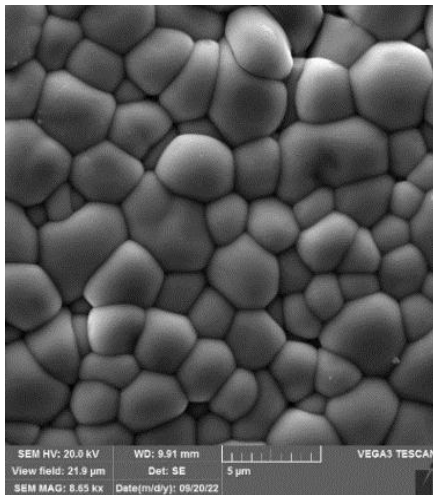
(ج)



(د)



(ا)



(ب)

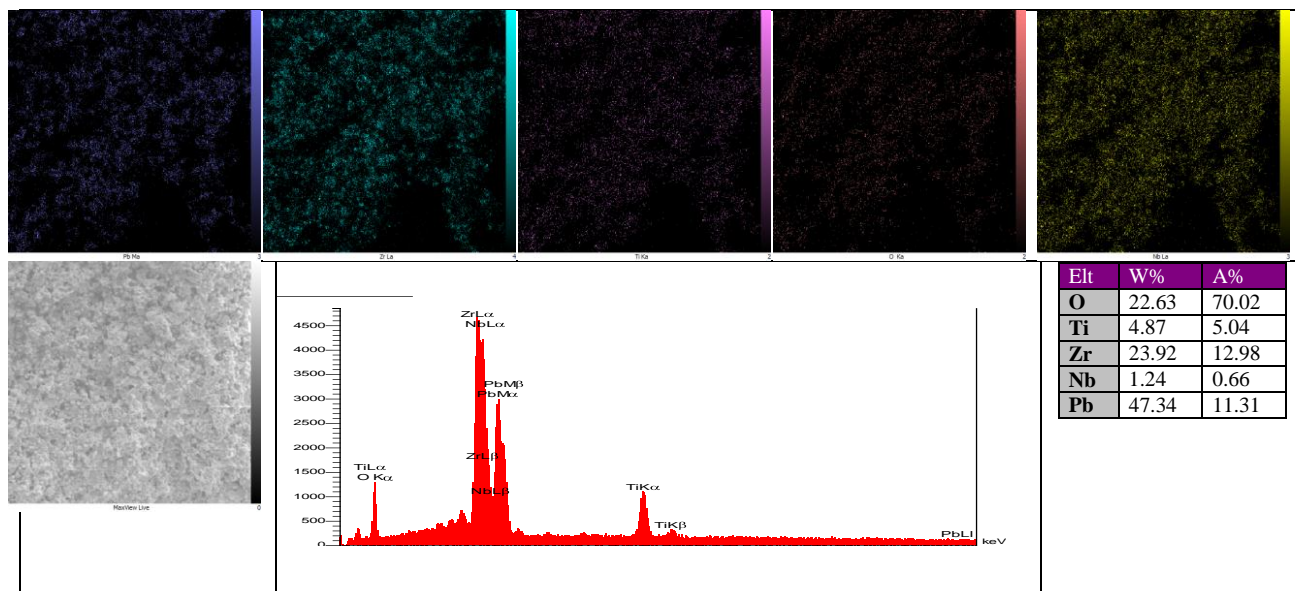
شکل ۹. تصاویر SEM مربوط به سطوح شکست (الف) الیاف خام و الیاف تفجوشی شده در دماهای (ب) ۱۲۲۰، (ج) ۱۲۵۰، (د) ۱۲۷۰ درجه سانتی گراد به مدت ۲/۵ ساعت، (ه) ۱۲۲۰ به مدت ۴ ساعت و (و) نمونه بالک تفجوشی شده در دمای ۱۲۷۰ درجه سانتی گراد به مدت ۲/۵ ساعت

(SM، روش ALCERU) و سرانوا (CN، روش اکستروژن) انجام دادند. قطر متوسط این الیاف ۲۵۰ μm بود و درصد تخلخل و میانگین اندازه دانه‌ها در هر سه نوع الیاف محاسبه شد. طبق نتایج بدست آمده میانگین اندازه دانه‌ها در الیاف شرکت AC، CN و SM به ترتیب ۳/۸، ۲/۱ و ۱/۸ μm بود. در صد تخلل‌ها نیز در هر سه روش ذکر شده به ترتیب ۱۰/۱، ۳/۶ و ۲/۱٪ گزارش شد [۱۸]. درصد تخلخل‌ها و میانگین اندازه دانه‌های الیاف تفجوشی شده در دمای بهینه در این پژوهش با اعداد بدست آمده در الیاف تهیه شده با روش اکستروژن در شرکت CN هم خوانی دارد.

با مقایسه میانگین اندازه دانه در الیاف PZT تفجوشی شده در شرایط بهینه تفجوشی و نمونه بالک تفجوشی شده، مشاهده می‌شود که اندازه دانه در الیاف تفجوشی شده حدود نصف میانگین اندازه دانه در نمونه بالک می‌باشد. چانگ و همکاران با گزارش نتایج مشابه، این پدیده را به حضور تنش‌های سطحی شدیدتر در الیاف نسبت به نمونه بالک و در نتیجه تراگوناقلیته شدیدتر نسبت دادند که به کاهش اندازه دانه در مقایسه با نمونه بالک منجر می‌شود [۲۰]. هایبر و همکاران در سال ۲۰۰۸ مقایسه‌ای بین الیاف تهیه شده از سه شرکت تجاری سرامیک پیشرفته (AC، روش VSSP)، مواد هوشمند

عنوان آلاینده که در طیف EDX شناسایی شد، در جدول آورده شده است. به علاوه، توزیع عناصر نیز در مپ های EDX مشاهده می شود.

به منظور بررسی عناصر تشکیل دهنده الیاف، نمونه تف جوشی شده در دمای 1220°C توسط آنالیز EDX و مپ مربوطه بررسی شد. همان طور که در شکل ۱۰ مشاهده می شود، مقادیر وزنی و اتمی عناصر اصلی سازنده ترکیب PZT و نایوبیوم به



شکل ۱۰. نتایج آنالیز EDX و مپ مربوط به سطح شکست الیاف تف جوشی شده در دمای 1220°C

۴- نتیجه گیری

نویسنده مسئول این مقاله از جناب آقای دکتر پایدار، استاد تمام گروه مهندسی مواد دانشگاه شیراز به خاطر در اختیار قرار دادن تجهیزات آزمایشگاه پیل سوختی در مدت اجرای این پژوهش قدردانی می نماید.

مراجع

- Landau, D. P., Schuttler, H. B., Lewis, S., Bachmann, M., Bennett, J. W., "Discovery and design of functional materials: Integration of database searching and first principles calculations", *Physics Procedia*, Vol. 34, (2012), 14-23. <https://doi.org/10.1016/j.phpro.2012.05.003>
- Jo, W., Dittmer, R., Acosta, M., Zang, J., Groh, C., Sapper, E., Wang, K., Rödel, J., "Giant electric-field-induced strains in lead-free ceramics for actuator applications—status and perspective", *Journal of Electroceramics*, Vol. 29, (2012), 71-93. <https://doi.org/10.1007/s10832-012-9742-3>
- Rödel, J., Webber, K. G., Dittmer, R., Jo, W., Kimura, M., Damjanovic, D., "Transferring lead-free piezoelectric ceramics into application", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 35, (2015), 1659-1681. <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2014.12.013>
- Uchino, K., *Advanced Piezoelectric Materials*, Woodhead Publishing Limited, Abington Hall, Granta Park, (2010). <https://www.sciencedirect.com/book/9781845695347/advanced-piezoelectric-materials>
- Ozevin, D., "MEMS acoustic emission sensors", *Applied Sciences*, Vol. 10, No. 24, (2020), 8966. <https://doi.org/10.3390/app10248966>
- Strock, H. B., Pascucci, M. R., Parish, M. V., Bent, A. A., Shrout, T. R., "Active PZT fibers, a commercial production process", *Proceedings of the SPIE Conference on Smart Materials*

در این پژوهش، الیاف PZT با استفاده از روش اکستروژن تهیه شد. بدین منظور، خمیرهای PZT با استفاده از افزودنی های مناسب تهیه شدند. در میان ترکیب های مختلفی که مورد بررسی قرار گرفتند، خمیر حاوی ۸۵٪ جامد که با مقدار مناسب از محلول ۱۵٪ وزنی PVA و ۱٪ وزنی پلاستیسایزر گلایسرول در آسیای اتریشن آماده سازی شده بود، از بهترین رفتار رئولوژی برای تزریق برخوردار بود. الیاف خام به دست آمده از این خمیر با قطر متوسط $321\ \mu\text{m}$ در دماها و زمان های مختلف تف جوشی پخت شدند و ریزساختار و فازهای موجود در آن ها توسط آنالیزهای SEM و XRD مطالعه گردید. چگالی الیاف خام و تف جوشی شده نیز توسط روش ارشمیدس اندازه گیری شد. بر اساس نتایج به دست آمده خمیر تف جوشی شده در دمای 1220°C به مدت ۲/۵ ساعت با چگالی برابر با ۹۳٪ مقدار تئوری و قطر متوسط $321\ \mu\text{m}$ که عاری از هرگونه ترک بود، به عنوان بهترین الیاف انتخاب شد.

۵- سپاسگزاری

14. French, J. D., Weitz, G. E., Luke, J. E., Cass, R. B., Jadidian, B., Janas, V., Safari, A., "Production of continuous piezoelectric fibers for sensor/actuator applications", *IEEE*, (1996). <https://doi.org/10.1109/ISAF.1996.598163>
15. Hossain, M., Kim, A., "The effect of acetic acid on morphology of PZT nanofibers fabricated by electrospinning", *Materials Letters*, Vol. 63, (2009), 789792. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2009.01.005>
16. Cung-Hao, Y., Chia-Hsin, L., Yi-Hui Wang, W., Syh-Yuh, Ch., Horng-Yi, Ch., "Fabrication and characterization of flexible PZT fiber and composite", *Ferroelectrics*, Vol. 434, (2012), 91-99. <https://doi.org/10.1080/00150193.2012.732513>
17. Meister, F., Vorbach, D., Niemz, F., Schulze, T., Taeger, E., "High-tech-cellulose-funktionspolymere nach dem AL CERU-verfahren", *Materialwissenschaft und Werkstofftechnik*, Vol. 34, (2003), 262-266. <https://doi.org/10.1002/mawe.200390056>
18. Heiber, J., Belloli, A., Ermanni, P., Clemens, F., "Ferroelectric characterization of single PZT fibers", *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, Vol. 20, No. 4, (2008), 379-385. <https://doi.org/10.1177/1045389X08094365>
19. "1-3 piezocomposite & transducers for ultrasound applications, 1-3 Composites Overview", Available at smart-material.com.
20. Chang, H. -Y., Yi, C. -H., Lin, C. -H., Cheng, S. -Y., "Surface-condensed piezoelectric fibers and composites", *Materials Chemistry and Physics*, Vol. 148, No. 3, (2014), 512-518. <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2014.05.019>
21. Carazzone, J. R., Martin, Ch. L., Cordero, Z. C., "Crack initiation, propagation, and arrest in sintering powder aggregates", *Journal of American Ceramic Society*, Vol. 103, No. 9, (2020), 4754-4773. <https://doi.org/10.1111/jace.17170>
7. Qiu, J., Tani, J., Kobayashi, Y., Young Um, T., Takahashi, H., "Fabrication of piezoelectric ceramic fibers by extrusion of Pb (Zr, Ti)O₃ powder and Pb(Zr, Ti)O₃ sol mixture", *Smart Materials Structure*, Vol. 12, (2003), 331-337. <https://doi.org/10.1088/0964-1726/12/3/303>
8. Bink, O., Nass, R., "Synthesis and characterization of PZT fibers via sol-gel", *Journal of Sol-Gel Science and Technology*, Vol. 13, (1998), 1023-1026. <https://doi.org/10.1023/A:1008616516686>
9. Meyer Jr., R., Shrouf, T., Yoshikawa, Sh., "Lead zirconate titanate fine fibers derived from alkoxide-based sol-gel technology", *Journal of American Ceramic Society*, Vol. 81, No. 4, (1998), 861-868. <https://doi.org/10.1111/j.11512916.1998.tb02420.x>
10. Helbig, J., Glaubitt, W., Spaniol, H., Vierhaus, P., Lange, U., Hansch, R., Watzka, W., Sporn, D., "Development and technology of doped sol-gel derived lead zirconate titanate fibers", *Smart Materials Structure*, Vol. 12, (2003), 987-992. <https://doi.org/10.1088/0964-1726/12/6/017>
11. Cho, K. -H., Priya, Sh., "Synthesis of ferroelectric PZT fibers using sol-gel technique", *Materials Letters*, Vol. 65, (2011), 775-779. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2010.11.070>
12. Bowen, C. R., Stevens, R., Nelson, L. J., Dent, A. C., Dolman, G., Su, B., Button, T. W., Cain, M. G., Stewart, M., "Manufacture and characterization of high activity piezoelectric fibres", *Smart Materials Structure*, Vol. 15, (2006), 295-301. <https://doi.org/10.1088/0964-1726/15/2/008>
13. Kornmann, X., Huber, C., "Microstructure, and mechanical properties of PZT fibres", *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 24, (2004), 1987-1991. [https://doi.org/10.1016/S0955_2219\(03\)00364-9](https://doi.org/10.1016/S0955_2219(03)00364-9)