

## رشد و مشخصه‌یابی ساختاری و پیزوالکتریکی تک‌بلور فروالکتریک واهلش‌گر PIN-PMN-PT آلائیده با منگنز

هادی پاپی\*، محسن یزدان‌مهر، حسن احمدوند و حسین کریمی

مجتمع دانشگاهی علوم کاربردی نوین، دانشگاه صنعتی مالک اشتر، اصفهان، ایران.

پست الکترونیکی: hadi.p1368@yahoo.com

(دریافت مقاله: ۱۴۰۳/۱۰/۲۴؛ دریافت نسخه نهایی: ۱۴۰۴/۰۲/۳۱)

### چکیده:

تک‌بلورهای فروالکتریک واهلش‌گر خانواده PMN-PT، پتانسیل زیادی برای به‌کارگیری در محرک‌ها و مبدل‌های الکتروآکوستیکی مبتنی بر مواد پیزوالکتریک دارند. در این مقاله، تک‌بلور پیزوالکتریک Mn:PIN-PMN-PT با فرمول شیمیایی  $24[\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3]-34\text{PbTiO}_3$  -  $24[\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3]$  آلائیده شده با ۲٪ مولی Mn، با قطر ۲ و طول ۵ سانتی‌متر، با استفاده از روش مذاب بریجمن عمودی رشد داده شد. نتایج پراش اشعه ایکس به روش‌های لایه و XRD نشان داد که بلور به دست آمده به صورت تک‌بلور یکدست و در راستای بلورین [۰۰۱] رشد کرده است. دمای کوری نمونه تک‌بلور برابر با ۱۵۰ درجه سانتی‌گراد بود که با استفاده از اندازه‌گیری منحنی ثابت دی‌الکتریک بر حسب دما استخراج گردید. برازش داده‌های منحنی ثابت دی‌الکتریک با قانون کوری-وایس اصلاح شده، واهلش‌گر بودن این تک‌بلور را تایید کرد. نتایج اندازه‌گیری حلقه پسماند دی‌الکتریکی نشان داد که این تک‌بلور دارای میدان وادارندگی ۳/۵ kV/cm و قطبش الکتریکی اشباع  $30 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  است. مقدار ضریب بار پیزوالکتریک ( $d_{33}$ ) برای تک‌بلور رشد داده شده، برابر با  $1455 \text{ pC}/\text{N}$  اندازه‌گیری شد.

**واژه‌های کلیدی:** تک‌بلور، رشد بلور، بریجمن، پیزوالکتریک واهلش‌گر، مبدل الکتروآکوستیکی

### ۱. مقدمه

در مقایسه با قطعات پیزوالکتریک مرسوم خانواده PZT ( $200 < d_{33} < 600 \text{ pC}/\text{N}$ ) [۵، ۶]، آن‌ها را به گزینه‌ای بسیار مناسب برای به‌کارگیری در مبدل‌های مورد استفاده در سامانه‌های الکترومکانیکی از جمله سونار زیر آب [۷، ۸]، حسگرها [۹، ۱۰]، تصویربرداری پزشکی [۱۱، ۱۲] و بهره‌برداری انرژی [۱۳] تبدیل کرده است. تاکنون تک‌بلورهای فراوانی با ترکیبات مختلفی از خانواده Relaxor-PT رشد داده شده و با توجه به خواص پیزوالکتریکی منحصربه‌فرد آن‌ها، در کاربردهای مختلف به کارگیری شده‌اند [۱۴-۱۸]. از طرف دیگر، بسیاری از این ترکیبات دارای دمای کوری پایین‌تری

در سال‌های اخیر تک‌بلورهای پیزوالکتریک واهلش‌گر خانواده تیتانات نیوبات منیزیم سرب (Relaxor-PT) مانند PMN-PT و PIN-PMN-PT به دلیل خواص پیزوالکتریکی بالایی که از خود نشان می‌دهند توجه زیادی را به خود جلب کرده‌اند [۱-۴]. ضریب جفت‌شدگی الکترومکانیکی و همچنین ضریب بار پیزوالکتریک بالای این تک‌بلورها ( $d_{33} > 2000 \text{ pC}/\text{N}$ ) و  $k_{33} > 0.8$

پیش ماده‌ها از شرکت چینی Aladdin خریداری شد. در مرحله اول، پودرهای  $\text{InNbO}_4$ ،  $\text{MgNb}_2\text{O}_6$  و  $\text{MnNb}_2\text{O}_6$  به طور جداگانه سنتز شدند. پیش ماده‌ها برای هر کدام از این ترکیبات به مدت ۱ ساعت در دستگاه آسیاب سیاره‌ای در محیط آب دوبار تقطیر آسیاب شدند. پس از خشک کردن مخلوط اولیه، ترکیبات بالا به مدت ۶ ساعت در دمای ۱۱۰۰ درجه سانتی‌گراد کلسینه شدند. در مرحله دوم، ترکیبات بالا با اکسیدهای  $\text{PbO}$  و  $\text{TiO}_2$  مخلوط شده و همانند گام قبلی به مدت ۱ ساعت در محیط آب دوبار تقطیر آسیاب شدند. برای تشکیل فاز نهایی، پودر حاصل شده در دمای ۸۵۰ درجه به مدت دو ساعت کلسینه شد. در نهایت، قرص‌هایی با قطر ۲ و ضخامت ۱ سانتی‌متر از پودر حاصل، با دستگاه پرس سرد ساخته شد و در دمای ۱۲۰۰ درجه به مدت ۲ ساعت تف‌جوشی شد.

## ۲.۲. فرایند رشد بلور

قرص‌های سرامیکی ساخته شده به عنوان ماده اولیه رشد در یک بوتۀ پلاتینی بارگذاری شد. فرایند رشد در بوتۀ پلاتین به طول ۶cm انجام شد؛ بوتۀ متشکل از یک سلکتور به ارتفاع ۱۰mm، ناحیه مخروطی به طول ۱۰mm و استوانه به ارتفاع ۴۰mm است. به منظور جلوگیری از تبخیر اجزاء ماده بارگذاری شده و حفظ فشار بخار سرب روی مذاب، بوتۀ پلاتینی با استفاده از یک درب و جوش لیزر مهر و موم شد. خلوص پلاتین و فرایند ساخت بوتۀ در روش رشد بریجمن اهمیت زیادی دارد، چرا که مذاب حاوی اکسید سرب در دماهای بالا می‌تواند باعث خوردگی پلاتین و نشتی مذاب از بوتۀ شود. به منظور جلوگیری از این اتفاق، بوتۀ با ضخامت یکسان ۰/۷mm ساخته شد. بوتۀ پلاتینی درون یک لوله سرامیکی که با پودر آلومینا پر شده است قرار داده شد. از پودر آلومینای اطراف بوتۀ به منظور نگه داشتن بوتۀ در مرکز لوله سرامیکی استفاده می‌شود. علاوه بر این، پودر آلومینا به عنوان جاذب بخارهای سرب عمل نموده و در صورت نشتی در حین فرایند رشد می‌تواند تا حد زیادی از آسیب به کوره جلوگیری کند [۱۴، ۲۴، ۲۵، ۲۸].

نسبت به ترکیبات خانواده PZT هستند. دمای کوری برای مواد پیزوالکتریک دمایی است که در آن مواد از فاز فروالکتریک به فاز پارالکتریک گذار کرده و خاصیت پیزوالکتریکی خود را از دست می‌دهند. پایین بودن دمای کوری، کاربرد مواد پیزوالکتریک را به دماهای پایین محدود می‌کند. در میان ترکیبات مختلف خانواده Relaxor-PT، ترکیب PIN-PMN-PT آلائیده شده با یون منگنز ( $\text{Mn:PIN-PMN-PT}$ ) یک ترکیب با ویژگی‌های پیزوالکتریکی ممتاز و همچنین دمای کوری نسبتاً بالا ( $T_C > 150^\circ\text{C}$ ) است. آلاش منگنز در این ترکیب سبب افزایش سختی این ترکیب می‌شود [۲۳-۱۸].

یکی از مرسوم‌ترین روش‌ها برای رشد تک‌بلورهای مختلف، رشد بلور از فاز مذاب با استفاده از روش بریجمن عمودی است. در این فرایند ماده بس‌بلور اولیه، ابتدا به صورت کامل ذوب شده و سپس به آرامی منجمد می‌شود. در صورتی که پارامترهای مهم رشد بلور از جمله دمای فوق ذوب، شیب دمایی و سرعت رشد به درستی رعایت شود، ماده منجمد شده به صورت تک بلور رشد خواهد کرد [۱۷، ۲۴، ۲۵].

در این مقاله، ترکیب  $\text{Mn:PIN-PMN-PT}$  با استفاده از روش بریجمن عمودی رشد داده شده و مشخصات ساختاری و پیزوالکتریکی تک‌بلور حاصل به صورت جامع مورد بررسی قرار گرفته است.

## ۲. مواد و روش‌های تجربی

### ۲.۱. ساخت ماده اولیه رشد

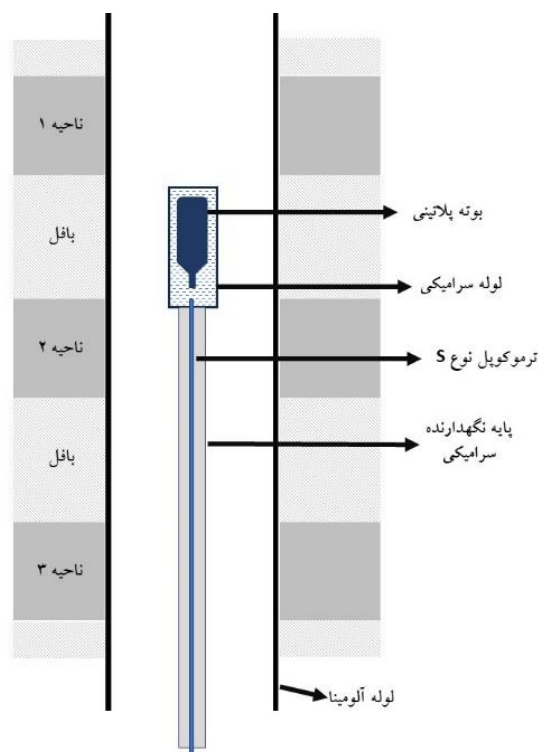
به منظور آماده کردن ماده اولیه رشد، ترکیب  $\text{PbTiO}_3$ -۳۴-  $[\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3)]_{42}$ -۴۲  $[\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2}\text{O}_3)]_{24}$  آلائیده شده با ۲٪ مولی Mn، با استفاده از روش سنتز پودر اکسید حالت جامد دو مرحله‌ای، ساخته شد. در این روش پیش‌ماده‌ها که معمولاً اکسیدهای فلزی هستند به نسبت استوکیومتری توزین شده و با دستگاه آسیاب سیاره‌ای با یکدیگر مخلوط و با انجام عملیات حرارتی، ترکیب مورد نظر تشکیل می‌شود [۲۶، ۲۷]. در فرایند سنتز پودر از اکسیدهای  $\text{TiO}_2$ ،  $\text{In}_2\text{O}_3$ ،  $\text{MgO}$ ،  $\text{PbO}$  و  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  با خلوص بالای ۹۹/۹ درصد استفاده شد. تمامی

دمای سه ناحیه کوره به گونه‌ای تنظیم شد که در سطح مشترک مذاب و جامد شیب دمایی  $20^{\circ}\text{C}/\text{cm}$  ایجاد شود. نمودار دمایی کوره در حین فرایند رشد در شکل ۲ نشان داده شده است. ابتدا مکان بوتله در کوره به گونه‌ای تنظیم شد که دمای آن به  $1350^{\circ}\text{C}$  درجه برسد. این دما  $50^{\circ}\text{C}$  درجه بیشتر از دمای ذوب ترکیب است و باعث می‌شود که مواد بارگذاری شده در داخل بوتله به طور کامل در حالت مذاب (فوق ذوب) قرار گیرد. پس از ۴ ساعت، بوتله به آرامی به سمت پایین کشیده شد تا فرایند رشد صورت پذیرد. سرعت حرکت بوتله به سمت پایین،  $0.8^{\circ}/\text{hr}$  -  $0.4^{\circ}/\text{hr}$  میلی‌متر بر ساعت انتخاب شد. پس از پایان فرایند رشد برای جلوگیری از ایجاد ترک یا تنش، بلور تا دمای  $900^{\circ}\text{C}$  با نرخ  $20^{\circ}\text{C}/\text{hr}$  و پس از آن تا دمای محیط با نرخ  $50^{\circ}\text{C}/\text{hr}$  خنک شد.

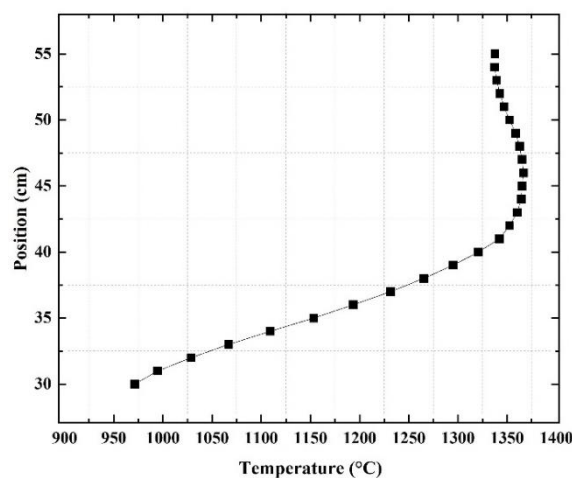
### ۳.۲. روش‌های مشخصه‌یابی

برای بررسی تشکیل فاز بلوری، از دستگاه پراش اشعه ایکس (XRD) (مدل Bruker D8-Advance Diffractometer،  $\lambda = 1.5406 \text{ \AA}$ ) و همچنین به منظور بررسی تک‌بلوری بودن و تعیین جهت‌گیری بلوری، از تحلیل‌گر بلورشناسی به روش لائو<sup>۱</sup> در حالت پس‌تابی (بازگشتی) با استفاده از دستگاه پرتو ایکس پیوسته مدل (ASENWARE Inc.) X-ray-XJ۶۰-۱۰N استفاده شد. (crystal analyzer) استفاده شد.

برای اندازه‌گیری خواص دی‌الکتریکی و فروالکتریکی نمونه تک‌بلور، قطعاتی به ابعاد  $10 \times 7 \times 1 \text{ mm}$  از شمش خام جدا شده و دو سطح آن‌ها با استفاده از چسب نقره الکتروگذاری شد و سپس در دمای  $400^{\circ}\text{C}$  درجه به مدت ۱ ساعت پخت داده شد. قبل از انجام مشخصه‌یابی‌های پیزوالکتریکی، نمونه در روغن ترانس در دمای اتاق به مدت ۱۰ دقیقه با میدان الکتریکی  $20 \text{ kV}/\text{cm}$  قطبیده<sup>۲</sup> شد. ثابت دی‌الکتریک نسبی ( $\epsilon/\epsilon_0$ ) نمونه به عنوان تابعی از دما، در بسامد  $1 \text{ kHz}$  با استفاده از دستگاه LCR-Meter (مدل HIOKI IM۳۵۷۰) اندازه‌گیری شد. حلقه پسماند الکتریکی نمونه با استفاده از یک چیدمان خانگی در بسامد  $50$



شکل ۱. طرح‌واره‌ای از کوره رشد بریجمن و نحوه چیدمان بوتله و ترموکوپل‌های استفاده شده برای رشد تک‌بلور Mn:PIN-PMN-PT.

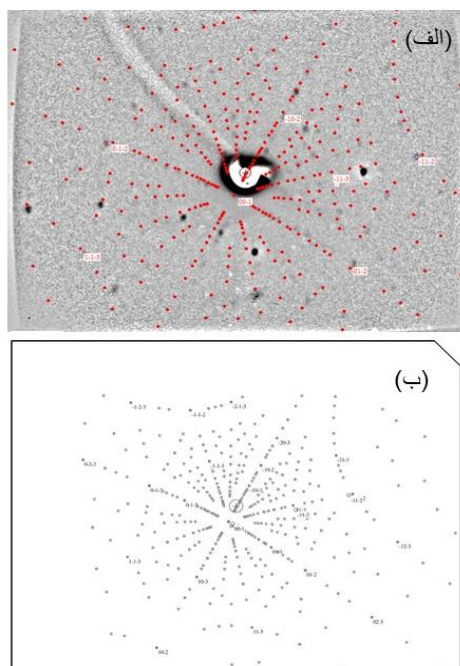


شکل ۲. رخ‌نمای دمایی کوره در حین فرایند رشد تک‌بلور Mn:PIN-PMN-PT.

فرایند رشد در یک کوره بریجمن (مدل CYKY-BG۱۶۵۰) با سه ناحیه حرارتی با المنت‌های گرمایشی  $\text{MoSi}_2$  انجام شد. دماها توسط یک ترموکوپل نوع S که در فاصله  $5 \text{ mm}$  پایین بوتله قرار گرفته بود، اندازه‌گیری شد. طرح‌واره نحوه قرارگیری بوتله در کوره در شکل ۱ نشان داده شده است.

۱. Laue

۲. Poling



شکل ۵. الف) الگوی پراش برآش داده شده؛ ب) تحلیل الگوی پراش لاوه توسط نرم‌افزار OrientExpress مربوط به نمونه‌تک بلور Mn:PIN-PMN-PT.

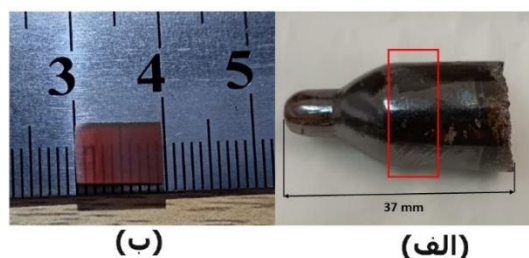
قسمت مشخص شده در شکل ۳ هستند که در ضخامت ۱ سانتی‌متر تقریباً همگن است.

به منظور تعیین جهت‌گیری بلوری، الگوی پراش لاوه از شمش تک‌بلور در جهت رشد گرفته شد که در شکل ۴ نشان داده شده است.

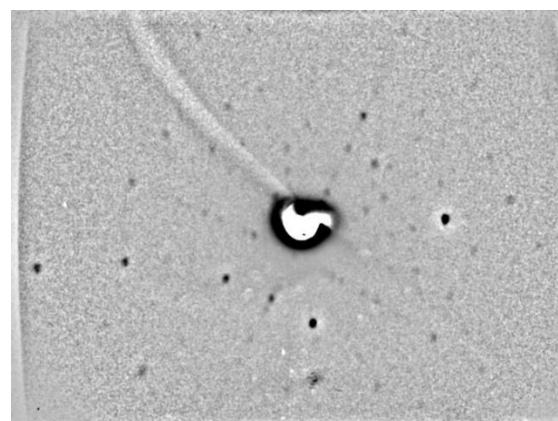
الگوهای پراش لاوه از نقاط مختلف بلور در راستای محور رشد، گرفته شد. نتایج نشان داد در یک راستای ثابت عمود بر سطح بلور برای نقاط مختلف، الگوهای پراش لاوه ثابت باقی می‌ماند و این مطلب نشان‌گر تک‌بلوری بودن کامل شمش رشد داده شده است. الگوی لاوه به دست آمده با استفاده از نرم‌افزار OrientExpress برآش و تحلیل گردید. نتایج به دست آمده در شکل ۵ نشان داده شده‌اند.

طبق تحلیل بلورنگاری انجام شده، جهت‌گیری بلوری نمونه مورد نظر در راستای محور رشد، با زاویه انحراف  $4/3^\circ$  نسبت به جهت مرجح [۰۰۱] تشخیص داده شد.

پس از انجام تجزیه و تحلیل بلورنگاری با دستگاه پراش لاوه و تعیین زوایای دوران به منظور دوران بلور مورد نظر در



شکل ۳. الف) تک بلور Mn:PIN-PMN-PT رشد داده شده؛ ب) یک قطعه برش داده شده از شمش تک بلور از ناحیه مشخص شده با کادر قرمز با ابعاد  $1 \times 7 \times 1$  mm.



شکل ۴. الگوی پراش لاوه مربوط به نمونه تک بلور Mn:PIN-PMN-PT.

هرتز اندازه‌گیری شد. ضریب بار پیزوالکتریک ( $d_{33}$ )، با استفاده از دستگاه d<sub>33</sub>-Meter (مدل PolyK-۴۰۰۰) اندازه‌گیری شد.

### ۳. نتایج و بحث

#### ۳.۱. ساختار بلوری

تک بلور Mn:PIN-PMN-PT رشد داده شده به طول حدود ۴ سانتی‌متر، به همراه یک قطعه برش داده شده از آن در جهت رشد، به ابعاد  $1 \times 7 \times 1$  mm در شکل ۳ نشان داده شده است. همان‌طور که از شکل ۳. ب مشاهده می‌شود، تک بلور به دست آمده شفاف و فاقد هر گونه ترک و عیب‌های ظاهری است. از آنجایی که در رشد تک بلورهای خانواده Relaxor-PT به روش بریجمن، در طول رشد پدیده جدایش ترکیب<sup>۱</sup> اتفاق می‌افتد [۲۴، ۳۱-۲۹]، در طول شمش ترکیب همگن باقی نمی‌ماند. داده‌های اندازه‌گیری شده در این مقاله از قطعات جدا شده از

۱. Segregation

۲. Misorientation

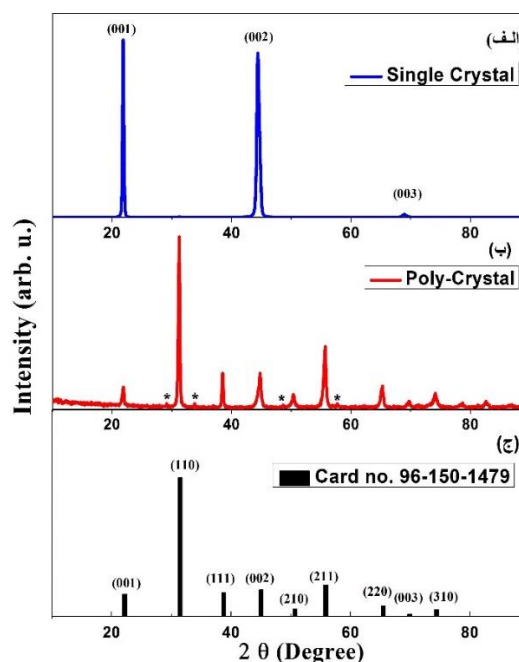
هستند. همچنین مشاهده می‌شود که این ترکیب حاوی مقدار اندکی فاز پایروکلر است که قله‌های مرتبط با آن در شکل با علامت \* نشان‌دار

شده است. تشکیل فاز پایروکلر با فرمول کلی  $A_2B_2O_7$  در اثر واکنش عناصر Pb و Nb در ترکیبات Relaxor-PT بسیار مرسوم است [۳۲، ۳۳]. نتایج الگوی XRD قطعه تک‌بلور (شکل ۶ الف) در تطابق با نتایج الگوی لاهو، تک‌بلور بودن نمونه و راستای بلوری [۰۰۱] مرتبط با ساختار بلوری چهارگوشه با گروه فضایی  $P4mm$  را تایید کرد.

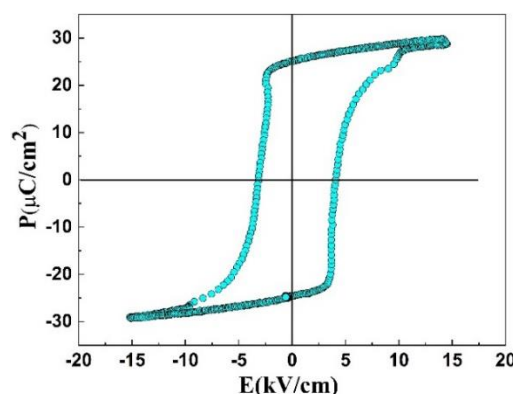
### ۳.۲. مشخصات پیزوالکتریکی

شکل ۷، حلقه پسماند الکتریکی تک‌بلور Mn:PIN-PMN-PT که در دمای اتاق و بسامد ۵۰ هرتز اندازه‌گیری شده است را نشان می‌دهد.

همان‌طور که از نمودار حلقه پسماند الکتریکی مشاهده می‌شود حلقه پسماند محور افقی را در نقاط ۳/۱- و ۴/۱۶ کیلو ولت بر سانتی‌متر قطع کرده است که به ترتیب متناظر با میدان وادارندگی الکتریکی منفی و مثبت نمونه هستند. مقدار قطبش الکتریکی اشباع  $P_s$  برای این نمونه برابر  $30/06 \mu C/cm^2$  است. مقدار قطبش الکتریکی باقیمانده  $P_r$  برای این نمونه برابر  $24/33 \mu C/cm^2$  است. مقدار میدان الکتریکی اشباع  $E_s$  برای این نمونه برابر  $14/8 kV/cm$  است. عدم تقارن حلقه پسماند الکتریکی در این ترکیب به دلیل وجود میدان الکتریکی داخلی در آن است. جانشانی یون Mn با ظرفیت مختلط ( $+2$  و  $+3$ ) در جایگاه B پروسکایت که با یون‌های ۴ ظرفیتی اشغال شده است، باعث ایجاد تهی‌جای اکسیژن در ترکیب می‌شود. برهم‌کنش بین یون‌های Mn در جایگاه B و تهی‌جای اکسیژن که به صورت  $Mn_B'' - V_O^\bullet$  نوشته می‌شود، موجب ایجاد یک میدان الکتریکی موضعی داخلی شده که چرخش ممان‌های دوقطبی الکتریکی در ترکیب را دچار جهت‌گیری ترجیحی می‌کند. بنابراین در هنگام اندازه‌گیری حلقه پسماند الکتریکی، چرخش دوقطبی‌های الکتریکی تحت میدان خارجی مثبت و منفی به صورت یکسان اتفاق نمی‌افتد و حلقه پسماند به یک طرف جابه‌جا می‌شود [۱۸، ۲۱].



شکل ۶. الگوی XRD مربوط به الف) نمونه تک‌بلور و ب) نمونه بس‌بلور Mn:PIN-PMN-PT به همراه ج) کارت استاندارد مربوطه.



شکل ۷. حلقه پسماند الکتریکی در دمای اتاق برای نمونه تک‌بلور Mn:PIN-PMN-PT در بسامد ۵۰ Hz.

راستای مرجح [۰۰۱] و متعاقباً برش بلور در این راستای بلوری، ویفرهایی با ضخامت‌های مختلف با دستگاه سیم برش الماس تهیه شدند و به منظور تأیید نهایی ساختار و جهت‌گیری بلوری، توسط تحلیل گر XRD نیز مورد بررسی قرار گرفت. الگوی XRD پودر بس‌بلور اولیه به همراه قطعه تک‌بلور در شکل ۶ نشان داده شده‌اند.

از شکل ۶ ب مشاهده می‌شود که پودر بس‌بلور این ترکیب دارای ساختار بلوری پروسکایت با گروه فضایی  $P4mm$  در دسته چهارگوشه (تتراگونال) است. اطلاعات ساختار بلوری این ترکیب در کارت استاندارد ۹۶-۱۵۰-۱۴۷۹ در دسترس

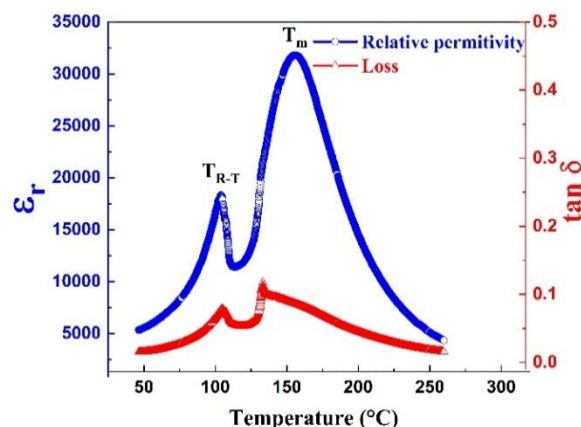
دما گذردهی الکتریکی افزایش می‌یابد، زیرا انرژی گرمایی باعث سهولت در چرخش و جهت‌مند شدن دوقطبی‌های الکتریکی شده و قطبش افزایش می‌یابد.

در دماهای گذار  $T_{R-T}$  و  $T_C$ ، گذردهی الکتریکی به حداکثر خود می‌رسد زیرا هنگامی که در ماده گذار فاز ساختاری رخ می‌دهد قطبش الکتریکی پویا شده و جهت‌گیری آن به راحتی تغییر می‌کند و منجر به یک پاسخ دی‌الکتریک بزرگ می‌شود. پس از دمای  $T_C$ ، ماده وارد فاز پارالکتریک می‌شود، جایی که نظم قطبش دائمی از بین رفته و آشفتگی‌های حرارتی و بی‌نظمی غالب شده و باعث می‌شوند که گذردهی الکتریکی با افزایش دما کاهش یابد [۳۴]. مقادیر ثابت دی‌الکتریک و اتلاف در

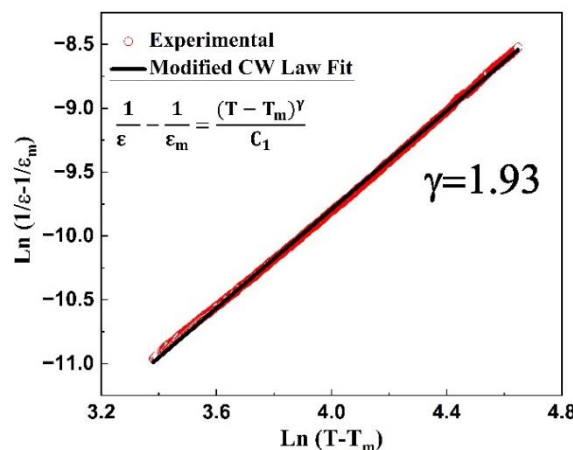
دمای اتاق به همراه دماهای  $T_{R-T}$  و  $T_C$  این ترکیب در جدول ۱ ارائه شده‌اند. فروالکتریک‌های واهلش‌گر دسته‌ای از مواد فروالکتریک هستند که رفتار دی‌الکتریک غیرمعمول از خود نشان می‌دهد. برخلاف فروالکتریک‌های سنتی که دارای گذار فاز تیز و قطبش یکنواخت هستند، فروالکتریک‌های واهلش‌گر یک قله پهن و وابسته به بسامد در تابع دی‌الکتریک خود در یک محدوده دمایی وسیع نشان می‌دهند. این رفتار ناشی از ساختار نامنظم آنهاست، جایی که نانو نواحی قطبیده (نواحی کوچک قطبش موضعی) شکل می‌گیرند و بدون نظم دوربرد نوسان می‌کنند. این نواحی پویا<sup>۱</sup> خواص متمایزی به فروالکتریک‌های واهلش‌گر می‌دهند، مانند گذردهی دی‌الکتریک بالا و وابستگی بسامدی قوی، که استفاده آنها را در حسگرها، محرک‌ها و خازن‌های با کارایی بالا مفید می‌کند [۳۵]. برای فروالکتریک‌های واهلش‌گر در دماهای بالاتر از دمای گذار، ثابت دی‌الکتریک را می‌توان با رابطه کوری-وایس اصلاح شده توصیف کرد. رابطه کوری-وایس اصلاح شده به صورت زیر است:

$$\frac{1}{\epsilon} - \frac{1}{\epsilon_m} = \frac{(T - T_m)^\gamma}{C_1} \quad (1)$$

در رابطه بالا  $\epsilon_m$  مقدار ثابت دی‌الکتریک در دمای  $T_m$ ،  $C_1$  ثابت کوری-وایس اصلاح شده و  $\gamma$  پارامتر پراکندگی است که مقدار آن بین ۱ و ۲ است. مقدار این پارامتر برای فروالکتریک‌های معمولی برابر ۱ و برای یک فروالکتریک کاملاً واهلش‌گر برابر



شکل ۸. ثابت دی‌الکتریک (آبی) و اتلاف دی‌الکتریک (قرمز) بر حسب دما برای نمونه تک بلور Mn:PIN-PMN-PT در بسامد ۱ kHz.



شکل ۹. برازش داده‌های تابع دی‌الکتریک بالاتر از دمای کوری بر اساس رابطه کوری-وایس اصلاح شده برای نمونه تک بلور Mn:PIN-PMN-PT در بسامد ۱ kHz.

شکل ۸، ثابت دی‌الکتریک نسبی ( $\epsilon_r$ ) و تابع اتلاف دی‌الکتریک ( $\tan \delta$ ) متناظر آن بر حسب دما را برای تک‌بلور Mn:PIN-PMN-PT نشان می‌دهد.

همان‌طور که دیده می‌شود ثابت دی‌الکتریک با افزایش دما افزایش یافته و در دماهای  $T_{R-T}$  و  $T_C$  دارای دو قله مشخص است.  $T_{R-T}$  مربوط به گذار فاز ساختاری از ساختار لوزی پهلوی (رومبوهدرال) به چهارگوشه و  $T_C$  مربوط به گذار فاز الکتریکی از فاز فروالکتریک (چهارگوشه قطبی) به پارالکتریک (مکعبی غیر قطبی) است. گذردهی الکتریکی مواد فروالکتریک با میزان قطبش آنها رابطه مستقیم دارد. قبل از دماهای گذار، با افزایش

جدول ۱. پارامترهای پیزوالکتریکی به دست آمده برای نمونه تک بلور Mn:PIN-PMN-PT و مقایسه آن با سایر مواد پیزوالکتریک.

| ماده                        | $d_{33}$<br>(pC/N) | $\epsilon_r$ | $g_{33}$<br>(Vm/N) | $T_C$<br>(°C) | $T_{R-T}$<br>(°C) | $E_C$<br>(kV/cm) | $P_f$<br>( $\mu C/cm^2$ ) | $P_s$<br>( $\mu C/cm^2$ ) | $\gamma$ | Loss<br>(%) |
|-----------------------------|--------------------|--------------|--------------------|---------------|-------------------|------------------|---------------------------|---------------------------|----------|-------------|
| Mn:PIN-PMN-PT<br>(کار حاضر) | ۱۴۵۵               | ۳۴۵۰         | ۰/۰۴۷              | ۱۵۰           | ۱۰۴               | ۳/۵              | ۲۴                        | ۳۰                        | ۱/۹۳     | ۰/۷۸        |
| [۲۸] Mn: PMN-PT             | ۱۲۰۰               | ۵۰۰۰         | ۰/۰۲۷              | —             | ۸۰                | ۳/۸۵             | —                         | —                         | —        | —           |
| [۳۷] Mn:PIN-PMN-PT          | ۱۰۵۳               | ۳۵۲۳         | ۰/۰۳۳              | ۱۹۷           | —                 | ۵/۱              | —                         | —                         | —        | ۰/۶         |
| [۳۷] PIN-PMN-PT             | ۲۷۴۲               | ۷۲۴۴         | ۰/۰۴۳              | ۱۹۷           | —                 | ۵/۵              | —                         | —                         | —        | —           |
| [۳۸] PZT-5H                 | ۵۸۵                | ۳۴۰۰         | ۰/۰۱۹              | ۱۸۰           | —                 | ۵                | ۱۲                        | ۱۷                        | —        | ۲           |

#### ۴. نتیجه‌گیری

تک‌بلور پیزوالکتریک Mn:PIN-PMN-PT با قطر ۲ و ارتفاع ۴ سانتی‌متر با استفاده از روش رشد مذاب بریچمن با موفقیت رشد داده شد. تک‌بلور حاصل از نظر ظاهری شفاف و بدون ترک بود. نتایج پراش پرتو ایکس به دو روش لایه و XRD تک بلور بودن شمش به دست آمده را تایید کرد. نتایج حاصل از تحلیل الگوی لایه نشان داد که تک‌بلور در راستای بلوری [۰۰۱] رشد کرده و زاویه انحراف راستای رشد با جهت مرجع [۰۰۱]، برابر با ۴/۳ درجه است. نتایج حاصل از اندازه‌گیری تابع دی‌الکتریک بر حسب دما برای نمونه تک‌بلور نشان داد که دمای کوری این ترکیب برابر ۱۵۰ °C است. همچنین ثابت دی‌الکتریک و اتلاف این ترکیب در دمای اتاق به ترتیب برابر ۳۴۵۰ و ۰/۷۸٪ محاسبه شد. ضریب بار پیزوالکتریک این ترکیب  $d_{33}=1455$  pC/N به دست آمد. با توجه به پارامترهای استخراج شده، این ترکیب می‌تواند گزینه مناسبی برای به‌کارگیری در کاربردهای سونوگرافی، پزشکی و مبدل‌های الکتروآکوستیکی با دما و توان بالا باشد.

۲ است [۳۶]. برازش داده‌ها بر اساس رابطه کوری-وایس اصلاح شده برای برای نمونه تک‌بلور Mn:PIN-PMN-PT، در بسامد ۱ kHz در شکل ۹ نشان داده شده است. مقدار  $\gamma$  برای این نمونه برابر ۱/۹۳ است که نشان‌دهنده واهلش‌گر بودن رفتار آن است.

به‌منظور اندازه‌گیری ضریب بار پیزوالکتریک، نمونه در میدان الکتریکی مستقیم ۲۰ kV/cm در دمای اتاق به مدت ده دقیقه قطبیده شد. ۲۴ ساعت پس از انجام فرایند قطبیده‌سازی،  $d_{33}$  نمونه با استفاده از دستگاه Meter- $d_{33}$  اندازه‌گیری شد. مقدار ضریب بار پیزوالکتریک برای نمونه تک‌بلور برابر pC/N  $d_{33}=1455$  حاصل شد. پارامترهای پیزوالکتریک استخراج شده از تحلیل گر‌ها به صورت خلاصه در جدول ۱ ارائه شده و با مواد پیزوالکتریک دیگر مقایسه شده‌اند. نتایج ارائه شده در جدول ۱ نشان می‌دهند که مقادیر به دست آمده برای تک‌بلور رشد داده شده در این پژوهش با مقادیر گزارش شده برای این دسته از ترکیبات در مقالات معتبر بین‌المللی قابل مقایسه هستند.

#### ۵. مراجع

1. W Y Chang, et al., 2023 *IEEE (IUS)* (2023) 1.
2. Z Chen, et al., *CrystEngComm*. **24** (2022) 837.
3. C Deng, et al., *Adv. Materials* **33** (2021) 2103013.
4. F Tian, Y Liu, R Ma, F Li, Z Xu, and Y Yang, *Applied Acoustics* **175** (2021) 107827.
5. W Tian, Z Ling, W Yu, and J Shi, *Applied Sciences* **8** (2018) 645.

6. H Lexian, M H Hemati, and M. H. GhezelAyagh, *JICerS*. (in Persian) **18** (2023) 57.
7. F Li, et al., *Journal of Applied Physics* **120** (2016) 074105.
8. S Zhang, et al., *Progress in materials science* **68** (2015) 1.
9. H Wang, et al., *Review of Scientific Instruments* **88** (2017) 116103.
10. J Zhao, et al., *Journal of Alloys and Compounds* **816** (2020) 152500.
11. J Chen and R Panda, *IEEE Ultrasonics Symposium* **1** (2005) 235.
12. Z Zhang, et al., *Sensors and Actuators A: Physical* **283** (2018) 273.
13. N Li, et al., *ACS nano* **13** (2019) 2822.
14. Z W Yin, H S Luo, P C Wang, and G S Xu, *Ferroelectrics* **229** (1999) 207.
15. X Zhao, et al., *Materials Science and Engineering: B* **96** (2002) 254.
16. P Sun, et al., " *IEEE Trans. on Ultrasonics, Ferroelectrics, and Frequency Control* **56** (2009) 2760.
17. H Guo, K Song, Z Li, S Fan, and Z Xu, *Journal of Advanced Dielectrics* **10** (2020) 2050001.
18. H P Kim, et al., *Journal of the Korean Ceramic Society* (2024) 1.
19. X Qi, et al., *Ceramics International* **42** (2016) 15332.
20. X Qi, et al., *Ceramics International* **43** (2017) 16819.
21. B H Watson, et al., *Journal of the American Ceramic Society* **103** (2020) 6319.
22. M J C Es-Souni, *Crystals* **14** (2024) 236.
23. R Xiao, et al., *Journal of Materials Science & Technology* **240** (2026) 19.
24. Z Li, et al., *Journal of Crystal Growth* **468** (2017) 331.
25. K Song, et al., *Journal of Alloys and Compounds* **851** (2021) 156145.
26. D Lin, Z Li, F Li, Z Xu, and X Yao, *Journal of Alloys and Compounds* **489** (2010) 115.
27. D Wang, M Cao, and S Zhang, *Journal of the European Ceramic Society* **32** (2012) 433.
28. L Luo, W Li, Y Zhu, and J J Wang, *Solid state communications* **149** (2009) 978.
29. Y Liu, et al., *Journal of Alloys and Compounds* **742** (2018) 958.
30. K Echizenya, N. Noda, and H. J. C. Noro, *Crystals* **12** (2022) 1183.
31. T d C Fernandes, et al., *Materialia* **32** (2023) 101935.
32. K T Zawilski, et al., *Journal of Crystal Growth* **258** (2003) 353.
33. Y Yang, et al., *Journal of the American Ceramic Society* **105** (2022) 4180.
34. D Damjanovic, *Reports on progress in physics* **61** (1998) 1267.
35. L E Cross, *Ferroelectrics* **76** (1987) 241.
36. H Papi, et al., *J. of Mag. and Mag. Mat.* **521** (2021) 167484.
37. L Baasandorj and Z J C Chen, *Crystals* **12** (2021) 56.
38. M W Hooker, *No. NAS.* **26** (1998) 208708.