

MỘT SỐ TÍNH CHẤT ĐIỆN MÔI, ÁP ĐIỆN CỦA HỆ GỐM BNKT CHẾ TẠO BẰNG PHƯƠNG PHÁP THIÊU KẾT HAI BƯỚC

Phan Đình Giỏi¹, Trần Thị Bích Nhạn²

¹ Khoa Vật lý, Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế

² Khoa Vật lý, Trường Đại học Quy Nhơn

*Email: pdg_55@yahoo.com

TÓM TẮT

Hệ gốm áp điện không chì $\text{Bi}_{0,5}(\text{Na}_{0,8}\text{K}_{0,2})_{0,5}\text{TiO}_3$ (BNKT) đã được chế tạo thành công bằng phương pháp gốm truyền thống kết hợp với thiêu kết hai bước. Ảnh hưởng của chế độ thiêu kết hai bước đến cấu trúc, vi cấu trúc và các tính chất điện môi, áp điện của hệ gốm BNKT đã được nghiên cứu. Kết quả nghiên cứu cho thấy với chế độ thiêu kết 1130/5/1050/5 (TSS2) gồm có các tính chất điện môi và áp điện khá tốt so với mẫu thiêu kết bình thường: mật độ gốm trung bình $5,84 \text{ g/cm}^3$, hằng số điện môi $\epsilon = 1439$, tổn hao điện môi $\tan\delta = 0.023$, hệ số áp điện $d_{31} = 56 \text{ pC/N}$, hệ số liên kết điện cơ $k_p = 0.22$, $k_t = 0.38$.

Từ khóa: Gốm áp điện không chì, cấu trúc, vi cấu trúc, điện môi

1. MỞ ĐẦU

Hiện tượng áp điện đã được nhà khoáng vật học người Pháp Rene Just Haüy đề cập đầu tiên vào năm 1817, sau đó anh em Pierre và Jacques Curie chứng minh và nghiên cứu vào năm 1880, nhưng mãi cho đến những năm 1950, hiện tượng này mới được đưa vào ứng dụng [1]. Hiện nay, nó được ứng dụng rất rộng rãi trong nhiều lĩnh vực kỹ thuật như máy bật lửa, pin điện thoại, cảm biến, máy siêu âm, máy rửa siêu âm, kính hiển vi điện tử xuyên ngầm v.v. Trong hơn 50 năm qua, các hệ gốm áp điện được nghiên cứu và ứng dụng rộng rãi trong kỹ thuật chủ yếu là các hệ gốm trên cơ sở Titanat Zirconat Chì (PZT). Tuy nhiên, nhược điểm lớn nhất của các hệ gốm này là có chứa một lượng chì lớn, do đó trong quá trình chế tạo và xử lý vật liệu, oxít chì sẽ giải phóng vào môi trường. Chì là kim loại nặng, rất độc hại gây nguy hiểm cho sức khỏe con người và ô nhiễm môi trường.

Do đó, việc nghiên cứu phát triển các hệ vật liệu áp điện không chứa chì nhằm thay thế cho vật liệu chứa chì là một yêu cầu cấp thiết. Trong 10 năm trở lại đây, hệ vật liệu áp điện không chì đã được quan tâm nghiên cứu và đã có nhiều công bố với kết quả rất khả quan. Các họ vật liệu không chì được xem xét là ứng cử viên tốt nhất để thay thế PZT trong phạm vi ứng dụng là Titanate Bari, BaTiO_3 (BT) [2], Titanate Kali Natri Bismut, $\text{Bi}_{0,5}(\text{Na}_y\text{K}_{1-y})_{0,5}\text{TiO}_3$ (BNKT) [3] và Niobat Kali Natri $(\text{K,Na})\text{NbO}_3$ (KNN) [4,5]. Trong số đó, hệ gốm không chì

BNKT với thành phần chính Bimust (Bi) đang được phát triển mạnh, mở ra một giai đoạn mới cho gốm áp điện không chì dựa trên nền Bi.

BNKT là một hợp chất của $(\text{Bi}_{0,5}\text{K}_{0,5})\text{TiO}_3$ (BKT) có cấu trúc tứ giác và $(\text{Bi}_{0,5}\text{Na}_{0,5})\text{TiO}_3$ (BNT) có cấu trúc mặt thoi. Ưu điểm của hệ gốm BNKT là có nhiệt độ Curie cao, các tính chất điện môi, áp điện khá tốt tại biên pha hình thái học $0.16 \leq x \leq 0.20$ [6]. Tuy nhiên hệ gốm này lại có một số nhược điểm như thành phần Bi trong hỗn hợp BNKT dễ bay hơi khi nung ở nhiệt độ thiêu kết cao; các muối K, Na có tính hút ẩm mạnh và cũng dễ bay hơi dưới dạng ôxit nên làm ảnh hưởng đến tính hợp thức và giảm tính chất của gốm. Ngoài ra thành phần BNT sở hữu một dòng điện rò lớn tại trường điện kháng $E_c = 73 \text{ kV/cm}$, do vậy tính chất sắt điện của hệ $[\text{Bi}_{0,5}(\text{Na}_{1-x}\text{K}_x)_{0,5}]\text{TiO}_3$ vẫn chưa tốt. Nhằm mục đích cải thiện tính chất điện của hệ vật liệu này, cách làm thường được thực hiện là biến tính hệ gốm BNKT bằng cách pha thêm một số tạp như Li, La, Nb, Sb v.v. [7-8] hoặc cải tiến chế độ công nghệ chế tạo gốm [9-12]. Hiện nay có nhiều kỹ thuật chế tạo tiên tiến khác nhau đã được thực hiện để cải thiện khả năng thiêu kết và các tính chất của gốm áp điện như phương pháp ép nóng [13], thiêu kết tia lửa điện plasma [14], thiêu kết vi sóng [11], thiêu kết hai bước [15, 16], tổng hợp thủy nhiệt [17] v.v. Trong đó kỹ thuật thiêu kết hai bước là một phương pháp đơn giản, rẻ tiền và có hiệu quả trong việc cải tiến các tính chất của các hệ gốm không chì, đang được nhiều nhà khoa học quan tâm nghiên cứu.

Bài báo này giới thiệu một số kết quả nghiên cứu bước đầu về một số tính chất điện môi và áp điện của hệ gốm BNKT chế tạo bằng phương pháp thiêu kết hai bước.

2. THỰC NGHIỆM

Các mẫu gốm được chế tạo có công thức hoá học $\text{Bi}_{0,5}(\text{Na}_{0,8}\text{K}_{0,2})_{0,5}\text{TiO}_3$ (BNKT) được tổng hợp từ các hóa chất K_2CO_3 (99%), Na_2CO_3 (99%), Bi_2O_3 (99%), Nb_2O_5 (99,9%), TiO_2 (99%).

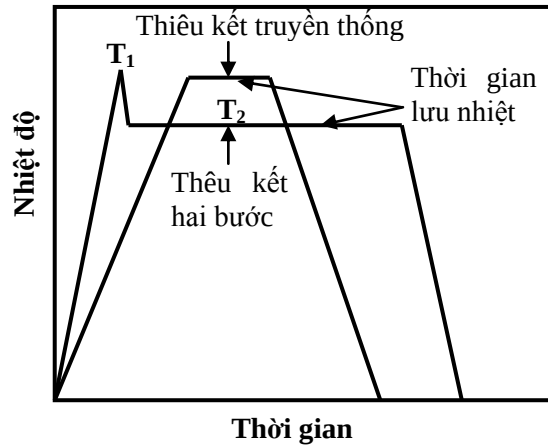
Các thành phần của phối liệu ban đầu được sấy ở 150°C trong 2 giờ. Sau đó cân theo tỷ lệ mong muốn, khuấy từ trong môi trường ethanol trong 10 giờ. Tiếp theo, ép sơ bộ ở áp lực 300 kG/cm^2 thành các viên có đường kính $d = 25 \text{ mm}$, tiến hành nung sơ bộ ở nhiệt độ 850°C trong 2 giờ. Công đoạn này được thực hiện hai lần như nhau nhằm tạo được hợp thức đồng nhất. Sau đó lại tiếp tục nghiền 10 giờ. Sử dụng máy ép đơn trục, ép bột thành dạng đĩa có đường kính 12 mm với áp lực $1,5 \text{ T/cm}^2$. Các viên đã ép được nung thiêu kết theo hai chế độ:

- Chế độ thiêu kết bình thường: mẫu được thiêu kết ở nhiệt độ 1100°C trong 2 giờ. Loại mẫu này ký hiệu CS.

- Chế độ thiêu kết hai bước (ký hiệu mẫu TSS): Tốc độ gia nhiệt 5°C/phút , đầu tiên tăng nhiệt độ của lò lên 200°C , giữ trong 20 phút. Khi nhiệt độ đạt 850°C , giữ trong 30 phút, sau đó tăng đến nhiệt độ thiêu kết $T_1 = 1130^\circ\text{C}$ với tốc độ 10°C/phút , lưu giữ ở nhiệt độ này trong thời gian ngắn $t_1 = 5 \text{ phút}$ để mẫu đạt được tỷ trọng cần thiết, sau đó hạ nhanh nhiệt độ nung xuống nhiệt

độ $T_2 = 1075, 1050$ và 1025°C với tốc độ gia nhiệt $10^\circ\text{C}/\text{phút}$ để ngăn cản sự phát triển hạt mà vẫn giữ được tỷ trọng cao [18], lưu giữ ở nhiệt độ này trong thời gian dài $t_2 = 5\text{giờ}$. Sau đó hạ nhiệt độ về nhiệt độ phòng (Hình 1). Quá trình thiêu kết trên được ký hiệu $T_1/t_1/T_2/t_2$: 1130/5/1075/5 (TSS1); 1130/5/1050/5 (TSS2); 1130/5/1025/5 (TSS3)

Các mẫu được xử lý bề mặt, tạo điện cực bằng bạc và phân cực trong dầu cao áp với điện trường $4.0\text{kV}/\text{mm}$, nhiệt độ phân cực 90°C , thời gian phân cực là 30 phút.



Hình 1. Quy trình thiêu kết thông thường và thiêu kết hai bước

Mật độ gốm của các mẫu được đo theo phương pháp Archimedes, cấu trúc của hệ gốm được phân tích bằng máy nhiễu xạ tia X, D8 ADVANCE, vì cấu trúc của hệ gốm xác định bằng kính hiển vi điện tử quét HITACHI S-4800. Các phổ điện môi và phổ dao động cộng hưởng được đo từ các hệ đo tự động hóa HIOKI 3532, Impedance HP 4193A. Hệ số áp điện d_{33} được xác định bằng hệ đo YE2730A (Sinoceramics, Inc., China).

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

3.1. Kết quả khảo sát tỷ trọng và tính chất điện môi của gốm ở nhiệt độ phòng

Kết quả khảo sát tỷ trọng và tính chất điện môi ở nhiệt độ phòng tại tần số 1kHz của các mẫu gốm thiêu kết với các chế độ khác nhau được cho ở bảng 1.

Bảng 1. Các giá trị hằng số điện môi ϵ , tổn hao điện môi $\tan\delta$ và tỷ trọng của gốm ứng với các chế độ thiêu kết truyền thống và thiêu kết hai bước

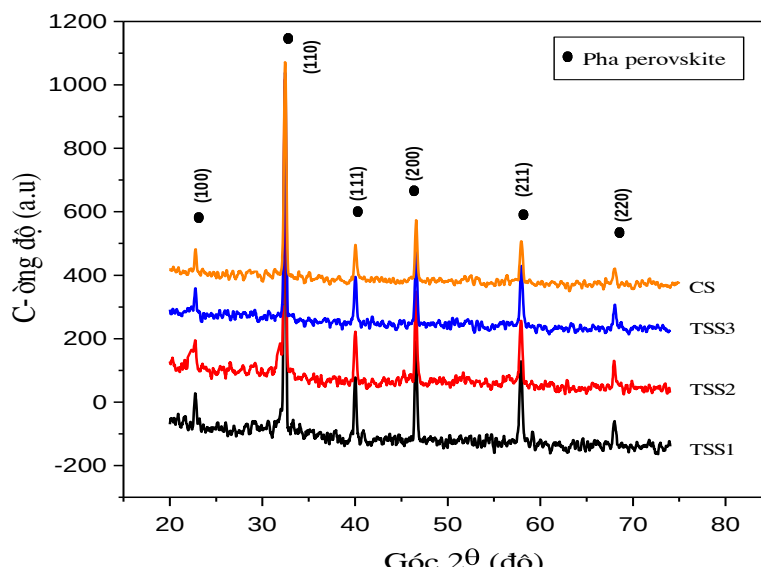
Chế độ thiêu kết	D (g/cm^3)	Tan δ	ϵ
CS	5,74	0,04	1098
TSS1	5,75	0,024	1108
TSS2	5,84	0,02	1439
TSS3	5,76	0,044	1144

Như đã thấy, với phương pháp thiêu kết truyền thống, tỷ trọng và hằng số điện môi của gốm có giá trị thấp ($5,74 \text{ g/cm}^3$ và 1098, tương ứng), tổn hao điện môi $\tan\delta$ có giá trị lớn (0,04). Tuy nhiên khi thiêu kết gốm bằng kỹ thuật thiêu kết hai bước với chế độ TSS2, tỷ trọng và giá trị hằng số điện môi của gốm đã được cải thiện ($5,84 \text{ g/cm}^3$ và 1439, tương ứng), tổn hao điện môi của gốm có giá trị thấp ($\tan\delta = 0,02$). Kết quả này khá phù hợp với kết quả khảo sát vi cấu trúc của gốm.

3.2. Cấu trúc và vi cấu trúc của gốm

Hình 2 là giản đồ nhiễu xạ tia X của các mẫu BNKT thiêu kết ở các chế độ khác nhau: truyền thống (CS) và hai bước: 1030/5/1075/5 (TSS1), 1030/5/1050/5 (TSS2), 1030/5/1025/5 (TSS3).

Từ giản đồ cho thấy tất cả các mẫu gốm BNKT được thiêu kết theo chế độ truyền thống (CS) và chế độ hai bước (TSS1, TSS2, TSS3) đều có pha perovskit với cấu trúc đơn tà (monoclinic) ở nhiệt độ phòng, không có pha lạ thứ hai, chứng tỏ nhiệt độ thiêu kết T_2 của chế độ thiêu kết hai bước không ảnh hưởng lớn đến tính đối xứng của cấu trúc so với thiêu kết truyền thống. Kết quả này phù hợp với công trình của nhóm tác giả Supalak Manotham [19]

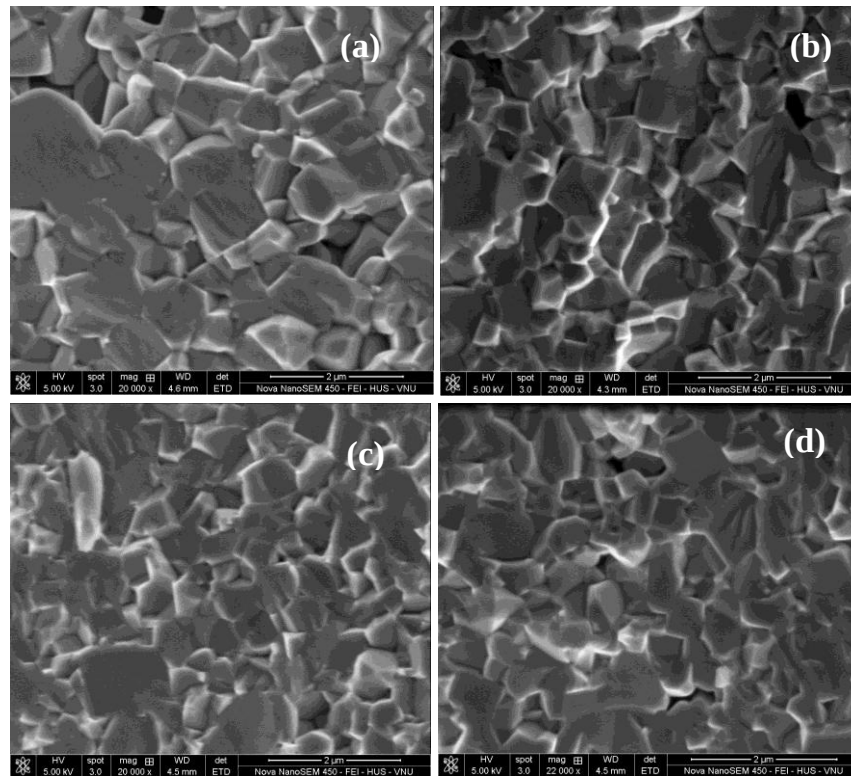


Hình 2. Giản đồ nhiễu xạ tia X của các mẫu gốm BNKT thiêu kết ở các chế độ khác nhau: CS, TSS1, TSS2, TSS3

Hình 3 là ảnh vi cấu trúc của các mẫu gốm BNKT thiêu kết ở chế độ truyền thống (CS) và chế độ hai bước với nhiệt độ thiêu kết T_2 khác nhau: 1030/5/1075/5 (TSS1), 1030/5/1050/5 (TSS2), 1030/5/1025/5 (TSS3) được chụp bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM). Kết quả cho thấy rằng chế độ thiêu kết có ảnh hưởng đến vi cấu trúc của vật liệu gốm. Với chế độ thiêu kết truyền thống gốm có một số lỗ xốp, kích thước trung bình của hạt cỡ $0,9\mu\text{m}$, tuy nhiên khi chuyển sang chế độ thiêu kết hai bước TSS1, kích thước trung bình của các hạt đã giảm

($\sim 0,67\mu\text{m}$), số lượng và kích thước các lỗ xốp cũng giảm. Với chế độ thiêu kết hai bước TSS2, vi cấu trúc của gốm đồng đều hơn, các hạt xếp chặt, cỡ hạt trung bình giảm xuống $0,59\mu\text{m}$, kết quả này phù hợp với giá trị mật độ gốm của chế độ thiêu kết TSS2 đạt cao nhất ($5,84\text{g}/\text{cm}^3$). Vi cấu trúc của mẫu gốm với chế độ thiêu kết hai bước TSS3 có một số lỗ xốp, kích thước hạt trung bình gia tăng ($\sim 0,69\mu\text{m}$).

Như vậy có thể kết luận rằng với chế độ thiêu kết hai bước 1030/5/1050/5 (TSS2), gốm BNKT có tỷ trọng lớn, kích thước hạt nhỏ với vi cấu trúc đồng đều và xếp chặt so với thiêu kết truyền thống.



Hình 3. Ảnh hiển vi điện tử quét của các mẫu gốm BNKT thiêu kết ở các chế độ khác nhau: (a) (CS), (b) TSS1, (c) TSS2, (d) TSS3

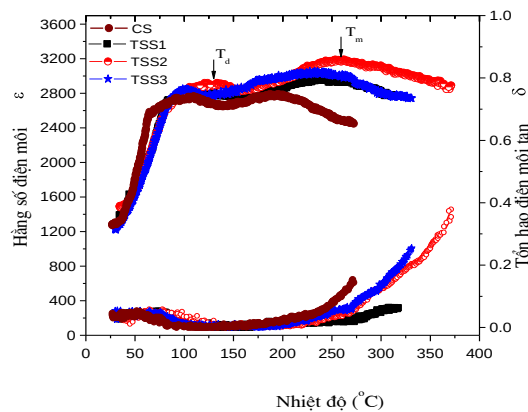
3.3. Tính chất điện môi theo nhiệt độ

Kết quả khảo sát tính chất điện môi theo nhiệt độ của các mẫu gốm BNKT với các chế độ thiêu kết khác nhau được chỉ ra ở hình 4. Như đã thấy, phổ điện môi-nhiệt độ $\epsilon(T)$ có hai đỉnh rõ rệt, đỉnh ở nhiệt độ thấp (trong khoảng $92 - 131^\circ\text{C}$) ứng với nhiệt độ chuyển pha sắt điện-phản sắt điện (nhiệt độ khử phân cực T_d), đỉnh ở nhiệt độ cao hơn (trong khoảng $196 - 265^\circ\text{C}$) ứng với nhiệt độ chuyển pha phản sắt điện-thuận điện (nhiệt độ Curie T_C) [20].

Kết quả cho thấy chế độ thiêu kết hai bước đã ảnh hưởng đến phổ $\epsilon(T)$ của gốm BNKT, với thiêu kết truyền thống (CS), nhiệt độ chuyển pha T_d và T_C có giá trị là 92 và 196°C , trong

khi đó với chế độ thiêu kết hai bước TSS2 các giá trị của nhiệt độ T_d và T_C lần lượt là 131 và 265 $^{\circ}\text{C}$, rõ ràng chế độ thiêu kết hai bước TSS2 đã làm gia tăng nhiệt độ khử phân cực T_d và T_C của gốm BNKT. Ngoài ra kết quả còn cho thấy phổ điện môi-nhiệt độ của tất cả các mẫu với chế độ thiêu kết khác nhau đều có đỉnh ứng với nhiệt độ T_C mở rộng, điều này cho thấy quá trình chuyển pha từ phân sắt điện sang thuận điện được trải rộng trong một khoảng nhiệt độ, do đó nhiệt độ ứng với hằng số điện môi đạt cực đại ϵ_m được xác định bằng giá trị trung bình của T_C và thường được gọi là nhiệt độ T_m . Sự mở rộng đỉnh điện môi tại nhiệt độ T_m là một đặc trưng của các sắt điện relaxo [21].

Các đường biểu diễn tổn hao điện môi theo nhiệt độ ứng với các chế độ thiêu kết khác nhau là tương tự nhau, cho thấy các chế độ thiêu kết ít ảnh hưởng đến phổ tổn hao điện môi-nhiệt độ của gốm.



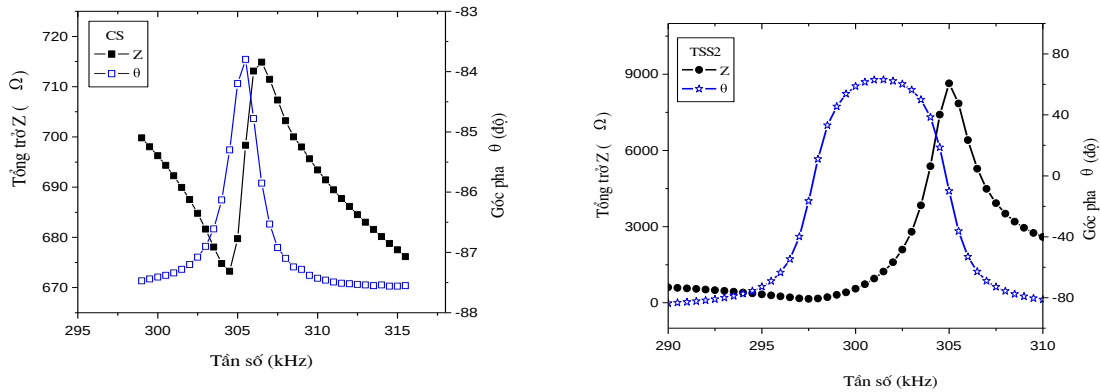
Hình 3. Sự phụ thuộc của hằng số điện môi ϵ và tổn hao điện môi $\tan\delta$ vào nhiệt độ của gốm BNKT thiêu kết ở chế độ truyền thống (CS) và hai bước: 1030/5/1075/5 (TSS1), 1030/5/1050/5 (TSS2), 1030/5/1025/5 (TSS3)

3.2. Tính chất áp điện của hệ gốm

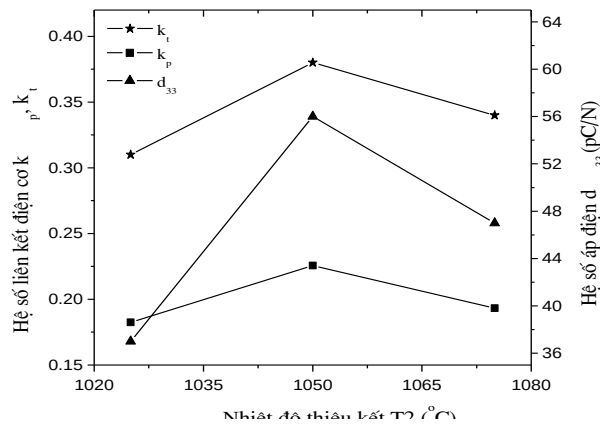
Hình 4 là phổ dao động cộng hưởng theo phương radian của các mẫu gốm thiêu kết truyền thống và hai bước TSS2. Từ kết quả đo phổ dao động cộng hưởng theo phương radian và theo phương bề dày, sự phụ thuộc của hệ số liên kết điện cơ k_p , k_t và hệ số áp điện d_{33} vào nhiệt độ thiêu kết T_2 được biểu diễn trên hình 5.

Kết quả cho thấy phương pháp thiêu kết hai bước có ảnh hưởng đáng kể tới hệ số áp điện và hệ số liên kết cơ của hệ gốm BNKT. Theo chế độ thiêu kết truyền thống CS, hệ số liên kết cơ k_p , k_t và hệ số áp điện có giá trị thấp ($k_p = 0,13$; $k_t = 0,18$; $d_{33} = 17(\text{pC/N})$). Tuy nhiên khi thiêu kết gốm BNKT bằng phương pháp thiêu kết hai bước, hệ số liên kết điện cơ k_p , k_t và hệ số áp điện của gốm đã được cải thiện so với phương pháp thiêu kết truyền thống, đặc biệt với chế độ thiêu kết hai bước TSS2, các hệ số áp điện đạt giá trị cao nhất ($k_p = 0,22$; $k_t = 0,38$; $d_{33} = 56(\text{pC/N})$). Có khả năng là do tác động của chế độ thiêu kết TSS₂ đã làm gia tăng mật độ gốm

và thay đổi vi cấu trúc của hệ gốm, trên cơ sở đó làm gia tăng tính chất áp điện của gốm. Tuy nhiên các thông số áp điện của gốm đạt được còn thấp so với các công trình khác [16].



Hình 4. Phổ dao động cộng hưởng radian của hệ gốm BNKT được thiêu kết theo công nghệ truyền thống và hai bước với các chế độ khác nhau.



Hình 5. Sự phụ thuộc của hệ số liên kết điện cơ k_p , k_t và hệ số áp điện d_{33} vào nhiệt độ thiêu kết T2 của hệ gốm BNKT chế tạo bằng phương pháp thiêu kết hai bước.

4. KẾT LUẬN

Các tính chất điện môi, áp điện của hệ gốm $\text{Bi}_{0,5}(\text{Na}_{0,8}\text{K}_{0,2})_{0,5}\text{TiO}_3$ (BNKT) chế tạo bằng phương pháp thiêu kết hai bước đã được khảo sát. Kết quả đạt được như sau:

Đã chế tạo thành công hệ gốm $\text{Bi}_{0,5}(\text{Na}_{0,8}\text{K}_{0,2})_{0,5}(\text{Ti}_{0,99}\text{Nb}_{0,01})\text{O}_3$ bằng phương pháp thiêu kết truyền thống và thiêu kết hai bước. Mật độ trung bình của gốm có giá trị khoảng $5,74\text{--}5,84\text{ g/cm}^3$ và đạt được giá trị cao nhất ($5,84\text{ g/cm}^3$) ứng với chế độ thiêu kết TSS2. Hệ gốm đã chế tạo theo chế độ truyền thống và hai bước đều có cấu trúc perovskit đơn pha với tính đối xứng đơn tà.

Hằng số điện môi ϵ và tổn hao điện môi $\tan\delta$ của gốm tại nhiệt độ phòng phụ thuộc vào chế độ thiêu kết. Phổ hằng số điện môi theo nhiệt độ cho thấy xuất hiện hai đỉnh, một đỉnh

tương ứng với nhiệt độ khử phân cực T_d và một đỉnh tương ứng nhiệt độ chuyển pha T_m . Tính chất điện môi thể hiện tốt nhất tại mẫu ứng với chế độ thiêu kết TSS2.

Tính chất áp điện tốt nhất ứng với mẫu có chế độ thiêu kết TSS2: $k_p = 0,22$; $k_t = 0,38$; hệ số áp điện $d_{33} = 56$ pC/N.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1] Prasanta Kumar Samal, Premanjan Sethy, Pramod Kumar Malik, Dr. Rudra Pratap (2014), Modelling, Fabrication and Characterization of a Piezoelectric Vibration Energy Harvester, *International Journal of Engineering Research & Technology (IJERT)*, Vol. 3 Issue 1, 397-402
- [2] M. M. Vijatović, J. D. Bobić, B. D. Stojanović (2008), History and Challenges of Barium Titanate, *Science of Sintering*, **40**, 235-244
- [3] Binay Kuma, Sonia Bhandar, Nidhi Sinha, Geeta Ray (2014), Processing and properties of ferroelectric $\text{Bi}_{0.5}(\text{Na}_{0.65}\text{K}_{0.35})_{0.5}\text{TiO}_3$ ceramics under the effect of different sintering temperature, *Scripta Materialia* **89**, 61–64.
- [4] Y. Guo, K. Kakimoto, and H. Ohsato (2004), Phase transitional behavior and piezoelectric properties of $(\text{Na}_{0.5}\text{K}_{0.5})\text{NbO}_3\text{-LiNbO}_3$ ceramics. *Appl. Phys. Lett.* **85**, 4121.
- [5] Hongliang Du, Fusheng Tang, Fa Luo, Wancheng Zhou, Shaobo Qu, Zhibin Pei (2007), Effect of poling condition on piezoelectric properties of $(\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{NbO}_3\text{-LiNbO}_3$ lead-free piezoelectric ceramics, *Materials Science and Engineering B* **137**, 175-179
- [6] Amir Ullah, Aman Ullah, Ill Won Kim, Dae Su Lee, Soon Jong Jeong, ChangWon Ahn (2014), Large electromechanical response in lead-free La-doped BNKT–BST piezoelectric ceramics, *J. Am. Ceram. Soc.*, **97** (8), pp 2471–2478.
- [7] KRISHAN KUMAR AND BINAY KUMAR (2010), Synthesis and Characterization of Sb-Doped $\text{Bi}_{0.5}(\text{Na}_{0.5}\text{K}_{0.5})_{0.5}\text{TiO}_3$ Ceramics, *Integrated Ferroelectrics*, **121**:99–105.
- [8] Krishan Kumar, Binay Kumar (2012), Effect of Nb-doping on dielectric, ferroelectric and conduction behaviour of lead free $\text{Bi}_{0.5}(\text{Na}_{0.5}\text{K}_{0.5})_{0.5}\text{TiO}_3$ Ceramics, *Ceramics International* **38**, 1157-1165.
- [9] Li K., Li F.L., Wang Y., et al (2011). Hot-pressed $\text{K}_{0.48}\text{Na}_{0.52}\text{Nb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ ($x = 0.05\text{--}0.15$) lead-free ceramics for electro-optic applications, *Mater. Chem. Phys.*, **131**: 320–324.
- [10] Jiro Abe, Masafumi Kobune, Kazuya Kitada and Tetsuo Yazawa (2007), Effects of Spark-Plasma Sintering on the Piezoelectric Properties of High-Density $(1 - x)(\text{Na}_{0.5}\text{K}_{0.5})\text{NbO}_3\text{-xLiTaO}_3$ Ceramics, *Journal of the Korean Physical Society*, Vol. **51**, No. 2, pp.810-814
- [11] Xie Z, Gui Z, Li L, et al (1998). Microwave sintering of lead-based relaxor ferroelectric ceramics. *Mater. Lett.*, **36**: 191–194.
- [12] Kensuke KATO, Ken-ichi KAKIMOTO, Keiichi HATANO, Keisuke KOBAYASHI and Yutaka DOSHIDA (2014), Lead-free Li-modified $(\text{Na,K})\text{NbO}_3$ piezoelectric ceramics fabricated by two-step sintering method, *Journal of the Ceramic Society of Japan* **122** [6], 460-463
- [13] Li K., Li F.L., Wang Y., et al (2011). Hot-pressed $\text{K}_{0.48}\text{Na}_{0.52}\text{Nb}_{1-x}\text{Bi}_x\text{O}_3$ ($x = 0.05\text{--}0.15$) lead-free ceramics for electro-optic applications, *Mater. Chem. Phys.*, **131**: 320–324.
- [14] Jiro Abe, Masafumi Kobune, Kazuya Kitada and Tetsuo Yazawa (2007), Effects of Spark-Plasma Sintering on the Piezoelectric Properties of High-Density $(1 - x)(\text{Na}_{0.5}\text{K}_{0.5})\text{NbO}_3\text{-xLiTaO}_3$ Ceramics, *Journal of the Korean Physical Society*, Vol. **51**, No. 2, pp.810-814
- [15] Kensuke KATO, Ken-ichi KAKIMOTO, Keiichi HATANO, Keisuke KOBAYASHI and Yutaka DOSHIDA (2014), Lead-free Li-modified $(\text{Na,K})\text{NbO}_3$ piezoelectric ceramics fabricated by two-step sintering method, *Journal of the Ceramic Society of Japan* **122** [6], 460-463

- [16] Gunhyun Lee, Jae-Hoon Ji, Jung-Hyuk Koh (2017), Enhanced piezoelectric properties of (Bi,Na)TiO₃–(Bi,K)TiO₃ ceramics prepared by two-step sintering process, *International Journal of Applied Ceramics Technology*, **15** (2), 531-537
- [17] Zhou Y, Guo M, Zhang C, et al (2009). Hydrothermal synthesis and piezoelectric property of Ta-doping K_{0.5}Na_{0.5}NbO₃ lead-free piezoelectric ceramic. *Ceram. Int.*, **35**: 3253–3258.
- [18] N.J. Lóh; L. Simão; C.A. Faller; A. De Noni Jr.; O.R.K. Montedo (2016), A review of two-step sintering for ceramics, *Ceramics International*, Volume **42**, Issue 11, Pages 12556-12572 (<http://dx.doi.org/10.1016/j.ceramint.2016.05.065>)
- [19] SUPALAK MANOTHAM, CHATCHAI KRUEA-IN, AND GOBWUTE RUJIANAGUL (2014), Properties of 0.94Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO₃–0.06BiAlO₃ Ceramics Prepared by Two Steps Sintering Technique, *Ferroelectrics*, **458**:152–157
- [20]Feng Ni, Laihui Luo, Weiping Li and Hongbing Chen (2012), A-site vacancy-induced giant strain and the electrical properties in non-stoichiometric ceramics Bi_{0.5+x}(Na_{1-y}K_y)_{0.5-3x}TiO₃ *Journal of Physics D: Applied Physics*. Vol. **45**, 415103 (6pp)
- [21] Yuhuan Xu (1991), Ferroelectric Materials and Their Applications, *North-Holland, Amsterdam-London- Newyork-Tokyo*.

Họ tên tác giả chính: PHAN ĐÌNH GIỚI

Cơ quan công tác: Khoa Vật lý, Trường Đại học Khoa Học Huế

Địa chỉ email: pdg_55@yahoo.com

Số điện thoại liên hệ: 0905156253