

Nhiều tác giả

KỈ YẾU
**HỘI NGHỊ VẬT LÍ
MIỀN TRUNG NĂM 2024**



NHÀ XUẤT BẢN ĐẠI HỌC HUẾ

ÁNH HƯỚNG CỦA NHIỆT ĐỘ Ủ LÊN TÍNH CHẤT HẤP THỤ VI SÓNG CỦA VẬT LIỆU COMPOSITE $\text{Ni}_{0.4}\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.4}\text{Fe}_2\text{O}_4/\text{EPOXY}$	79
<i>Trần Ngọ, Li Bing-Jing, Yang Ruey-Bin</i>	
TÍNH CHẤT QUANG VÀ PHÔ TÁN XẠ RAMAN CỦA VẬT LIỆU $\text{Sr}_2\text{MgSi}_2\text{O}_7:\text{Eu}^{3+}$ TỔNG HỢP BẰNG PHẢN ỨNG PHA RẮN	80
<i>Hồ Văn Tuyên, Trịnh Ngọc Đạt, Trần Thị Hồng, Nguyễn Ngọc Trác</i>	
ÁNH HƯỚNG CỦA ĐIỀU KIỆN KHỬ TRONG MÔI TRƯỜNG 100% H_2 ĐẾN TÍNH CHẤT QUANG CỦA VẬT LIỆU $\text{Sr}_2\text{MgSi}_2\text{O}_7:\text{Eu}^{3+}$	81
<i>Nguyễn Thị Thái An, Hồ Văn Tuyên, Lê Xuân Hùng</i>	
ĐẶC TRƯNG CHUYÊN PHA VÀ TÍNH CHẤT SẮT ĐIỆN CỦA HỆ GÓM KHÔNG CHÌ $(1-x)\text{K}_{0.48}\text{Na}_{0.48}\text{Li}_{0.04})(\text{Nb}_{0.95}\text{Sb}_{0.05})\text{O}_3 -x\text{Bi}_{0.5}(\text{Na}_{0.4}\text{K}_{0.1})\text{TiO}_3$	82
<i>Lê Đại Vương, Nguyễn Thị Hồng Nhung, Nguyễn Thành Đạt Võ Thị Thanh Kiều, Hồ Thị Kim Phụng, Phan Tuấn Anh, Lê Văn Tân</i>	
NGHIÊN CỨU QUY TRÌNH CHÉ TẠO VẬT LIỆU GÓM ÁP ĐIỆN CÙNG BẰNG PHƯƠNG PHÁP NGHIỀN BI NĂNG LƯỢNG CAO	89
<i>Nguyễn Văn Thịnh, Đỗ Viết Ôn, Lê Đại Vương, Nguyễn Thị Hồng Nhung Võ Thị Thanh Kiều, Hồ Thị Kim Phụng, Lê Văn Tân, Võ Thành Tùng</i>	
ÁNH HƯỚNG CỦA CHÉ ĐỘ THIÊU KẾT ĐẾN TÍNH CHẤT ÁP ĐIỆN CỦA BIẾN TỬ ÁP ĐIỆN TRÊN NỀN PZT DẠNG ĐĨA CÓ ĐƯỜNG KÍNH 25 mm	98
<i>Dung Thị Hoài Trang, Lê Thị Liên Phương, Trần Thành Văn, Đinh Thành Khẩn Bùi Nguyễn Văn Anh, Lê Trần Uyên Tú, Võ Thành Tùng</i>	
NGHIÊN CỨU CHÉ TẠO VÀ KHẢO SÁT MỘT SỐ TÍNH CHẤT VẬT LÍ CỦA HỆ GÓM KNNS VỚI CHÉ ĐỘ THIÊU KẾT HAI BƯỚC	99
<i>Lê Thị Liên Phương, Bùi Thành Danh, Vũ Thị Thu Thương Trần Thành Văn, Lê Trần Uyên Tú, Võ Thành Tùng</i>	
NGHIÊN CỨU ÁNH HƯỚNG CỦA QUÁ TRÌNH OXY HÓA CỦA VẬT LIỆU LEN THÉP LÊN TÍNH CHẤT BẮT GIỮ KHÍ H_2S ĐỊNH HƯỚNG ỨNG DỤNG TRONG TINH LỌC KHÍ SINH HỌC	106
<i>Phạm Thảo Trâm, Bùi Thành Trang, Lê Thị Thảo Viễn Lê Thị Thành Liễu, Đinh Quốc Việt, Nguyễn Thị Xuân Huynh Nguyễn Văn Nghĩa, Trần Năm Trung, Nguyễn Minh Vương</i>	
TỔNG HỢP VẬT LIỆU NHIỆT SẮC VO_2 CHO LỚP PHỦ KÍNH THÔNG MINH TỰ ĐỘNG ĐIỀU KHIỂN ĐỘ TRUYỀN QUA ÁNH SÁNG MẶT TRỜI ỨNG DỤNG CHO NHÀ KÍNH PHOI SÁY NÔNG SẢN	107
<i>Hoàng Thị Hằng, Phạm Thế Linh, Nguyễn Thị Hồng Trang, Nguyễn Văn Nghĩa Nguyễn Minh Vương, Kristiaan Temst, Ewald Janssens, Lê Thị Ngọc Loan</i>	

NGHIÊN CỨU CHẾ TẠO VÀ KHẢO SÁT MỘT SỐ TÍNH CHẤT VẬT LÍ CỦA HỆ GÓM KNNS VỚI CHẾ ĐỘ THIÊU KẾT HAI BƯỚC

Lê Thị Liên Phương¹, Bùi Thanh Danh^{1,2}, Vũ Thị Thu Thương^{1,3}

Trần Thành Văn¹, Lê Trần Uyên Tú^{1*}, Võ Thanh Tùng¹

¹Khoa Điện, Điện tử và Công nghệ vật liệu, Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế

²Trường THCS Lương Thế Vinh, Tuy Hòa, tỉnh Phú Yên.

³Trường THPT Nguyễn Bình Khiêm, huyện Chư Sê, tỉnh Gia Lai

*Email: ltutu@husc.edu.vn

TÓM TẮT

Hệ gốm không chì ($Na_{0.52}K_{0.48}(Nb_{1-x}Sb_x)O_3$) với $x = 0; 0,02; 0,05; 0,08; 0,12$ và $0,15$ được chế tạo bằng phương pháp phản ứng pha rắn với chế độ thiêu kết hai bước. Ảnh hưởng của nồng độ Sb đến cấu trúc, vi cấu trúc và tính chất điện của hệ gốm đã được nghiên cứu. Kết quả thực nghiệm cho thấy phương pháp thiêu kết hai bước đóng vai trò quan trọng trong việc hạ nhiệt độ thiêu kết gốm. Khi gia tăng nồng độ Sb, cấu trúc của hệ gốm đã biến đổi từ cấu trúc đối xứng trực thoi sang cấu trúc đối xứng tự giác khi nồng độ $x \geq 0,02$. Tại nồng độ Sb là $0,05$ mol tính chất vật lí của hệ gốm ($Na_{0.52}K_{0.48}(Nb_{1-x}Sb_x)O_3$) tốt nhất: mật độ gốm $4,45\text{ g/cm}^3$; hệ số liên kết điện cơ $k_p = 0,26$; đường trễ sắt điện điển hình với độ phân cực dư cực đại $Pr = 15,00\text{ }\mu\text{C/cm}^2$, và điện trường kháng cực tiểu $Ec = 4,50\text{ kV/cm}$.

Từ khóa: KNNS, thiêu kết hai bước, sắt điện, áp điện.

1. MỞ ĐẦU

Hệ gốm trên cơ sở $Pb(Zr,Ti)O_3$ (PZT) là hệ vật liệu sắt điện điển hình, đã và đang được nghiên cứu và triển khai ứng dụng trong nhiều thiết bị như đầu dò sensor, biến tử siêu âm... do các tính chất điện vượt trội [1]. Tuy nhiên, thành phần PbO trong gốm PZT có độc tính cao, chiếm tỉ lệ khối lượng khá lớn trong hỗn hợp các phôi liệu ban đầu. Do đó, việc phát triển hệ gốm không chì với các tính chất sắt điện, áp điện tốt có thể thay thế cho hệ gốm có chì là việc cần thiết hiện nay [2, 3].

Một trong những vật liệu gốm sắt điện không chì điển hình có công thức hóa học dạng $(K, Na)NbO_3$ (KNN) có biên pha hình thái học ứng với thành phần có tỷ số $Na/K \sim 50/50$. Do đó, tại thành phần này các tính chất sắt điện, áp điện và điện cơ của vật liệu là tốt nhất. $(Na_{1/2}K_{1/2})NbO_3$ cho thấy tính chất áp điện như sau: $d_{33} = 80\text{ pC/N}$, $k_p = 36-40\%$, $Q_m = 130$ và $\mathcal{E}_T = 290$ khi được chế tạo bằng phương pháp phản ứng pha rắn [4].

Các công bố gần đây cho thấy hệ gốm áp điện trên cơ sở $(K, Na)NbO_3$ (KNN) đã đem lại một số đặc tính áp điện tương đối tốt ở lân cận biên pha hình thái học, có nhiều triển vọng trong ứng dụng [5]. Tuy nhiên, các đặc trưng điện môi và áp điện của KNN thuần túy đối thấp ($d_{33} \sim 50\text{ pC/N}$) so với vật liệu PZT. Bên cạnh đó, các thành phần phôi liệu ban đầu của gốm chứa các nguyên tố kim loại kiềm với đặc trưng dễ hút ẩm và bay hơi ở vùng nhiệt độ cao dẫn đến những khó khăn trong việc tạo đồng nhất thức gốm bằng phương pháp truyền thống [6]. Thế nên, mong muốn thay thế PZT truyền thống bằng hệ gốm không chì KNN cần nhiều nỗ lực nghiên cứu hơn nữa. Nhằm tìm kiếm giải pháp tổng hợp tối ưu và cải thiện tính

chất áp điện của hệ gốm trên nền KNN, chúng tôi tập trung nghiên cứu “Nghiên cứu chế tạo và khảo sát một số tính chất vật lí của hệ gốm KNNS với chế độ thiêu kết hai bước”, và trình bày kết quả nghiên cứu trong bài báo này

2. PHƯƠNG PHÁP NGHIÊN CỨU

Vật liệu ban đầu để chế tạo hệ gốm: $(Na_{0.52}K_{0.48})(Nb_{1-x}Sb_x)O_3$ (với $x = 0; 0,02; 0,05; 0,08; 0,12$ và $0,15$) (KNNS) được chế tạo từ các vật liệu ban đầu là các oxit và muối: $NaCO_3$, K_2CO_3 , Nb_2O_5 , Sb_2O_3 (với độ tinh khiết $\geq 99\%$).

Để chế tạo các hệ gốm $(Na_{0.52}K_{0.48})(Nb_{1-x}Sb_x)O_3$ viết tắt là KNNS (với $x = 0; 0,02; 0,05; 0,08; 0,12$ và $0,15$), các phối liệu ban đầu được sấy ở $150^\circ C$ trong 2h. Sau đó, chúng được cân theo đúng tỉ lệ mong muốn và nghiên sơ bộ trong 2 giờ (với máy nghiên). Tiếp theo, tiến hành nung sơ bộ ở nhiệt độ $850^\circ C$ trong 2 giờ.

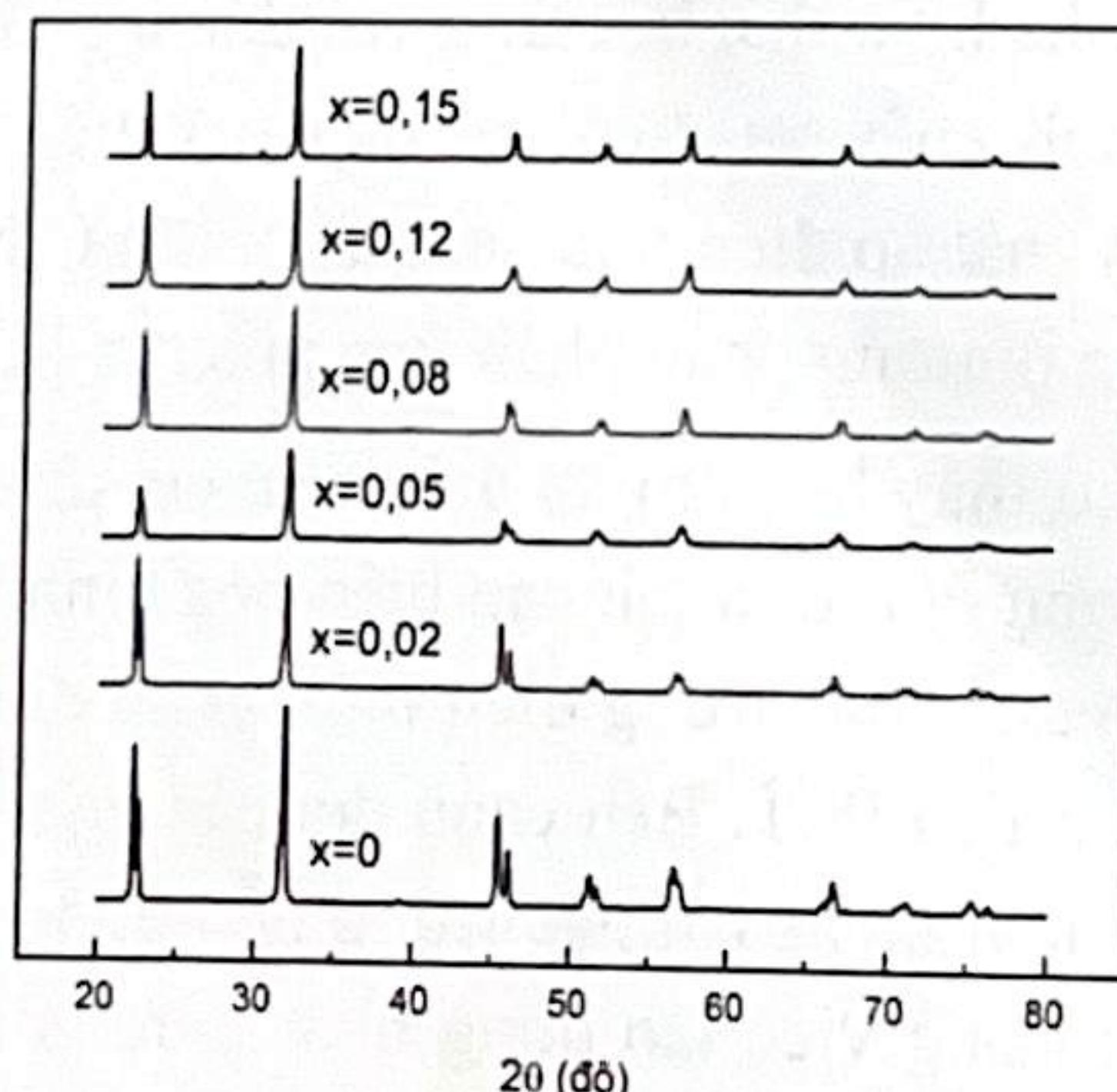
Vật liệu sau khi nung sơ bộ được tiếp tục nghiên trong 2 giờ với máy nghiên. Sử dụng máy ép đơn trực, ép bột thành dạng đĩa có đường kính 12 mm ở áp lực $1,5 T/cm^2$. Sau đó mẫu được thiêu kết với chế độ thiêu kết hai bước ở nhiệt độ T_1/ T_2 tương ứng là $1100/1050^\circ C$ và thời gian lưu ủ lần lượt là $10/ 120$ phút. Các mẫu được xử lí bề mặt, tạo điện cực bằng bạc và phân cực trong dầu cao áp với điện trường cỡ $2 kV/mm$, nhiệt độ $110^\circ C$, thời gian phân cực 30 phút.

Khối lượng riêng của gốm được đo bằng phương pháp Archimedes. Pha cấu trúc được xác định từ máy nhiễu xạ tia X (D8 ADVANCE), vi cấu trúc của hệ gốm cũng được kiểm tra bởi kính hiển vi điện tử quét (SEM; HITACHI S-4800). Các tính chất áp điện của hệ gốm khảo sát thông qua hệ đo tự động hóa HP 4193A và RLC Hioki 3532.

3. KẾT QUẢ VÀ THẢO LUẬN

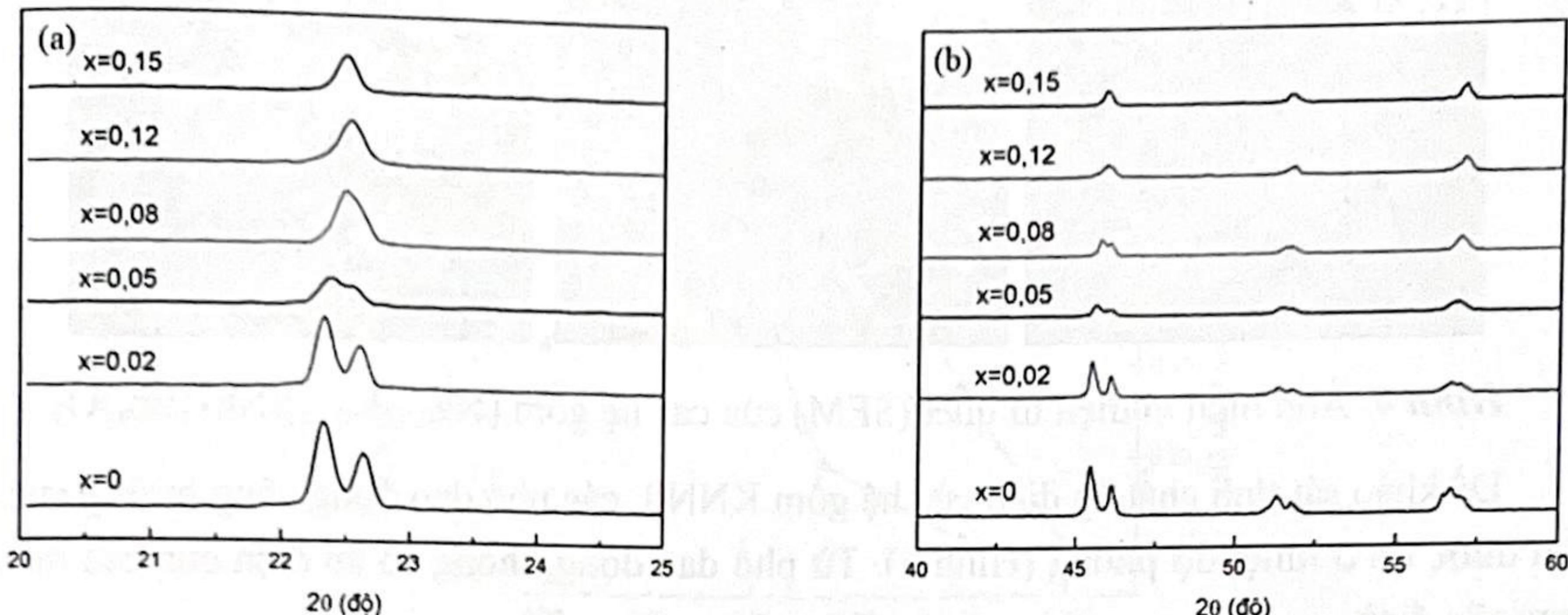
Kết quả khảo sát các phổ nhiễu xạ tia X (XRD) của các hệ gốm $(Na_{0.52}K_{0.48})(Nb_{1-x}Sb_x)O_3$ với $x = 0; 0,02; 0,05; 0,08; 0,12$ và $0,15$ được biểu diễn ở Hình 1. Từ giản đồ cho thấy tất cả các mẫu gốm KNNS được thiêu kết tại nhiệt độ T_1/ T_2 tương ứng là $1100/1050^\circ C$ đều có pha perovskite. Kết quả này chứng tỏ rằng ion Sb^{5+} đã khuếch tán vào mạng tinh thể của hệ nền KNN tạo thành dung dịch rắn đồng nhất.

Để nghiên cứu chi tiết hơn về cấu trúc pha của gốm KNNS, phổ nhiễu xạ tia X của hệ gốm đã được khảo sát trong khoảng góc đo 2θ trong khoảng $(20-40)^\circ$ (Hình 2.a) và trong khoảng $(40-60)^\circ$ (Hình 2.b).



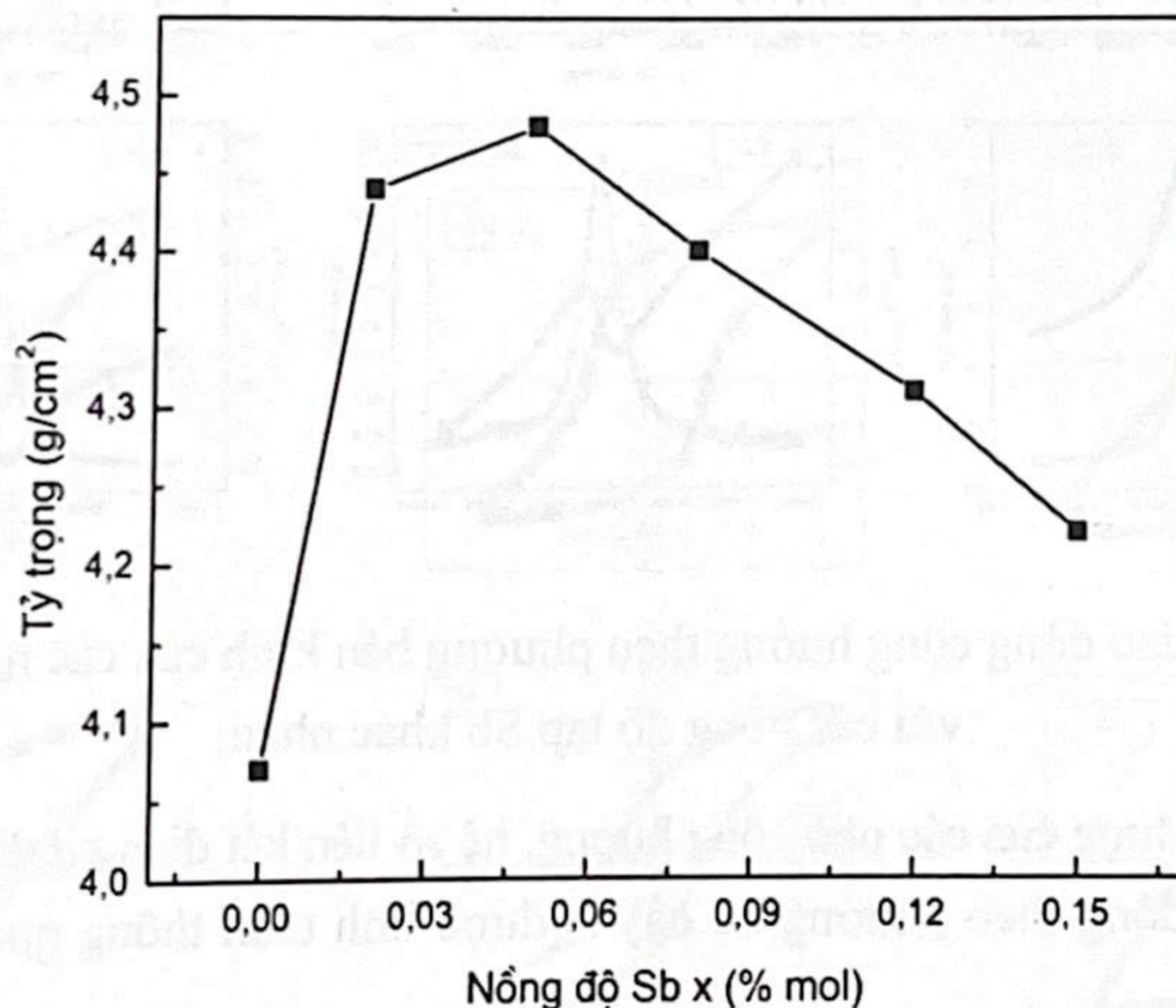
Hình 1. Giản đồ nhiễu xạ tia X của các hệ gốm $(Na_{0.52}K_{0.48})(Nb_{1-x}Sb_x)O_3$ tại góc 2θ ở $10^\circ \div 80^\circ$.

Từ giàn đồ cho thấy cùng với sự gia tăng của nồng độ Sb, cấu trúc của hệ KNNS có sự chuyển pha đối xứng từ pha có cấu trúc trực thoi khi $x = 0,02$ sang pha có cấu trúc tứ giác khi $x = 0,08$. Bên cạnh đó, khi nồng độ Sb $x > 0,08$, giàn đồ pha của gốm xuất hiện pha thứ cấp được biểu hiện bởi sự xuất hiện các đỉnh ở vị trí 2θ lân cận 29° và 36° . Kết quả này phù hợp với công trình được công bố bởi Yong Sun và các cộng sự trên tạp chí Jounal of the Ceramic Society of Japan [7].



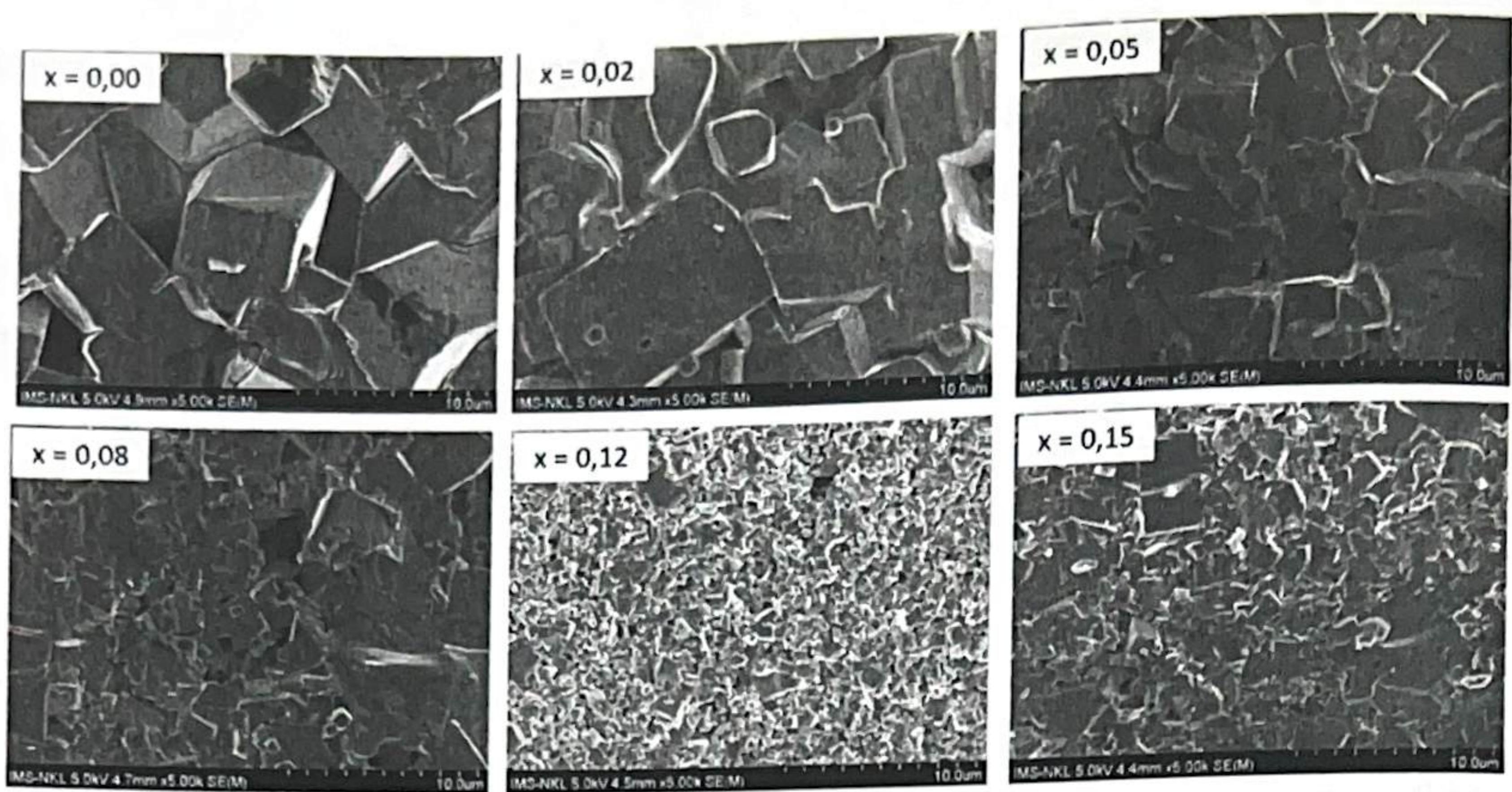
Hình 2. Giản đồ nhiễu xạ tia X của các hệ gốm $(Na_{0,52}K_{0,48})(Nb_{1-x}Sb_x)O_3$ (a) $20^\circ \div 40^\circ$, (b) $40^\circ \div 60^\circ$.

Kết quả khảo sát mật độ gốm của hệ gốm KNNS được biểu diễn ở Hình 3. Kết quả thực nghiệm cho thấy ban đầu mật độ gốm của hệ tăng theo nồng độ Sb, nhưng sau đó giảm dần khi tiếp tục tăng nồng độ tạp Sb.



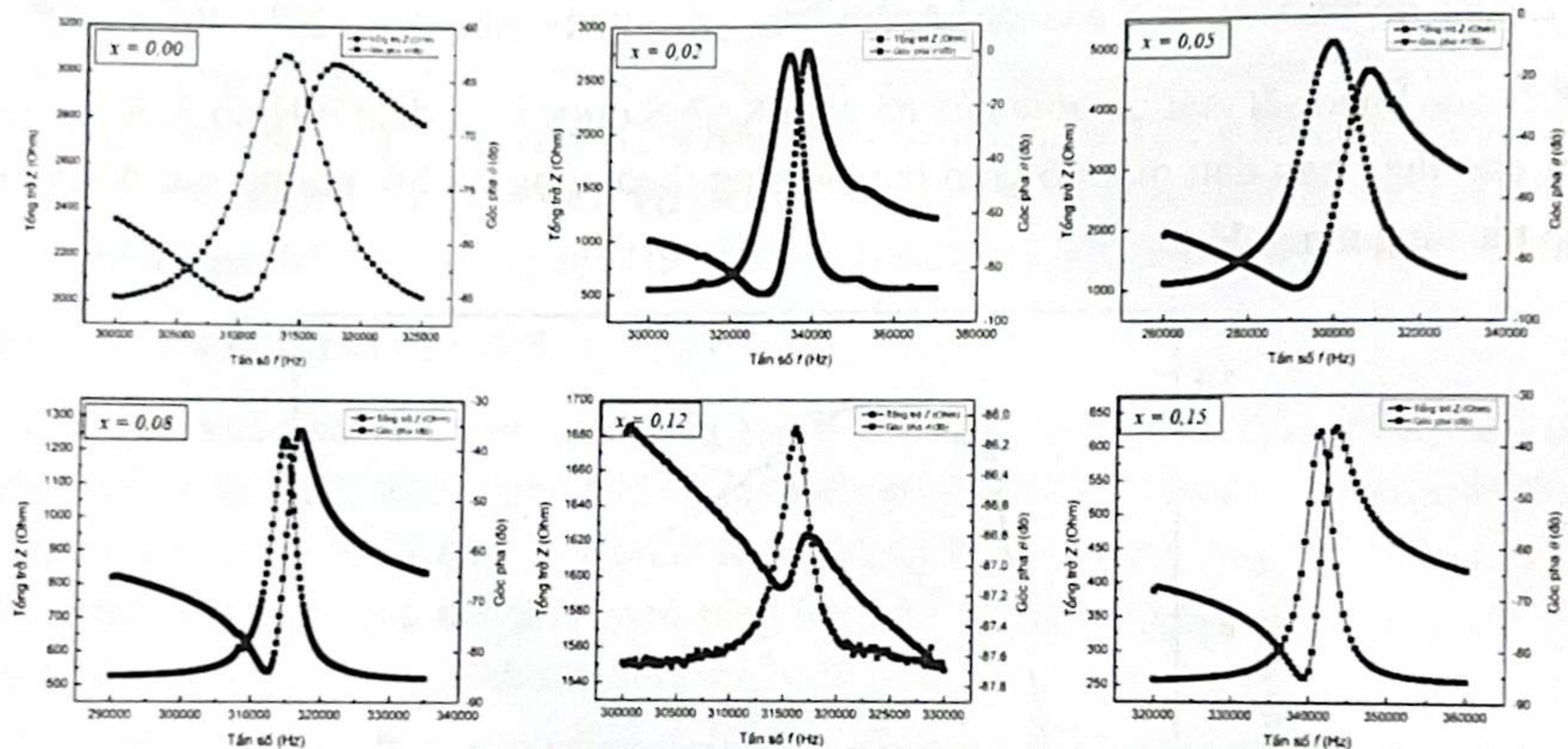
Hình 3. Sự phụ thuộc của mật độ gốm KNNS vào nồng độ pha tạp Sb.

Kết quả ảnh hiển vi điện tử quét (SEM, hình 4) cho thấy sau khi nung thiêu kết các hạt gốm KNNS có dạng hình vuông, biên hạt rõ nét. Tuy nhiên, kích thước các hạt chưa thật sự đồng đều. Khi nồng độ tạp Sb tăng, kích thước các hạt gốm có xu hướng giảm, các lỗ xốp xuất hiện nhiều hơn. Đây có thể là nguyên nhân khiến mật độ gốm giảm khi gia tăng nồng độ Sb trong hệ nền KNN, đã được trình bày ở trên.



Hình 4. Ảnh hiển vi điện tử quét (SEM) của các hệ gốm $(\text{Na}_{0.52}\text{K}_{0.48})(\text{Nb}_{1-x}\text{Sb}_x)\text{O}_3$.

Để khảo sát tính chất áp điện của hệ gốm KNNS, các phô dao động cộng hưởng của các mẫu được đo ở nhiệt độ phòng (Hình 5). Từ phô dao động, thông số áp điện của các mẫu đã được xác định.



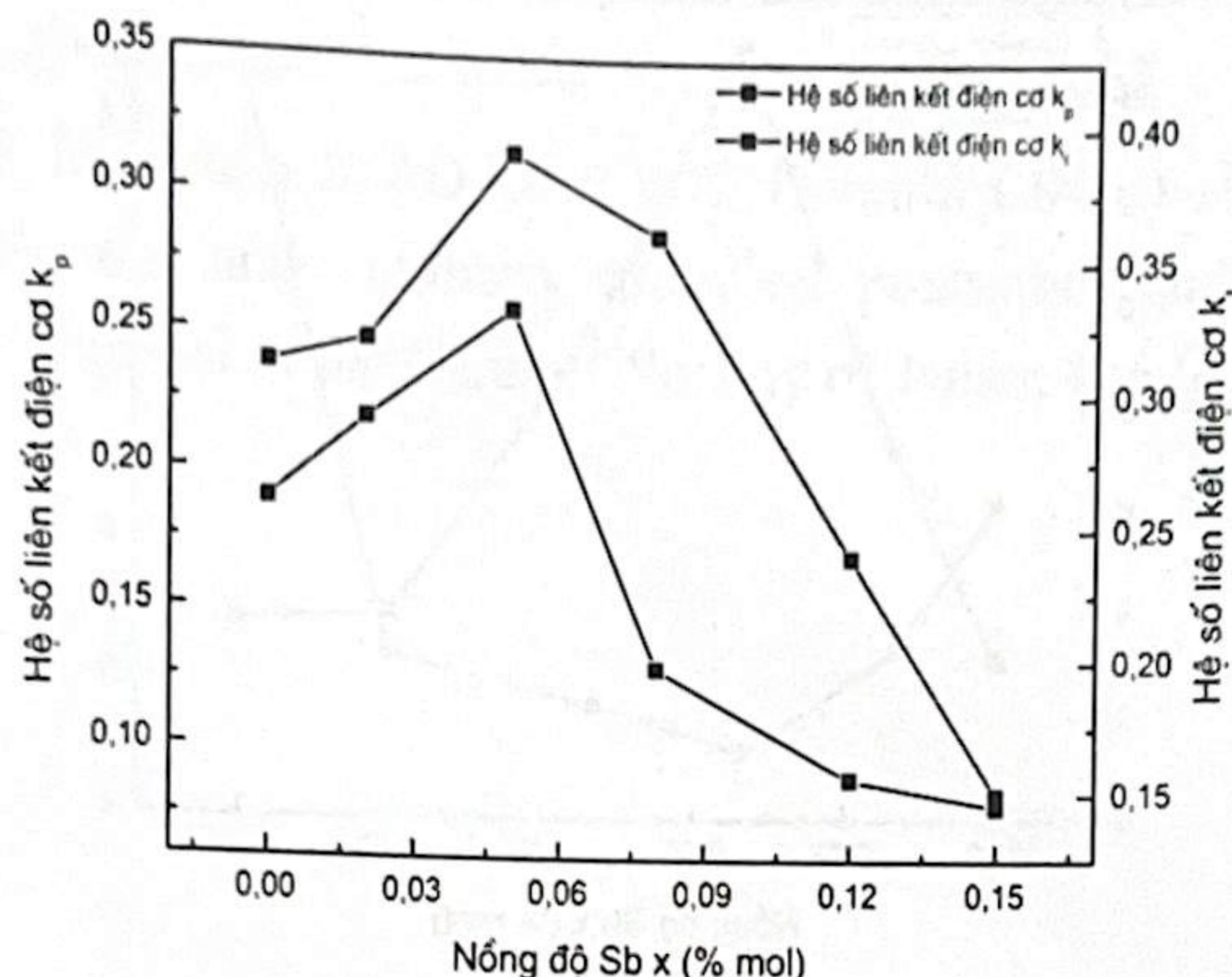
Hình 5. Phô dao động cộng hưởng theo phương bán kính của các hệ gốm KNNS với các nồng độ tạp Sb khác nhau.

Từ số liệu thu được của các phô cộng hưởng, hệ số liên kết điện cơ dao động theo phương bán kính k_p và dao động theo phương bề dày k_t được tính toán thông qua chuẩn IREE 61 và thể hiện ở Bảng 1.

Bảng 1. Hệ số k_p của các hệ gốm $(\text{Na}_{0.52}\text{K}_{0.48})(\text{Nb}_{1-x}\text{Sb}_x)\text{O}_3$.

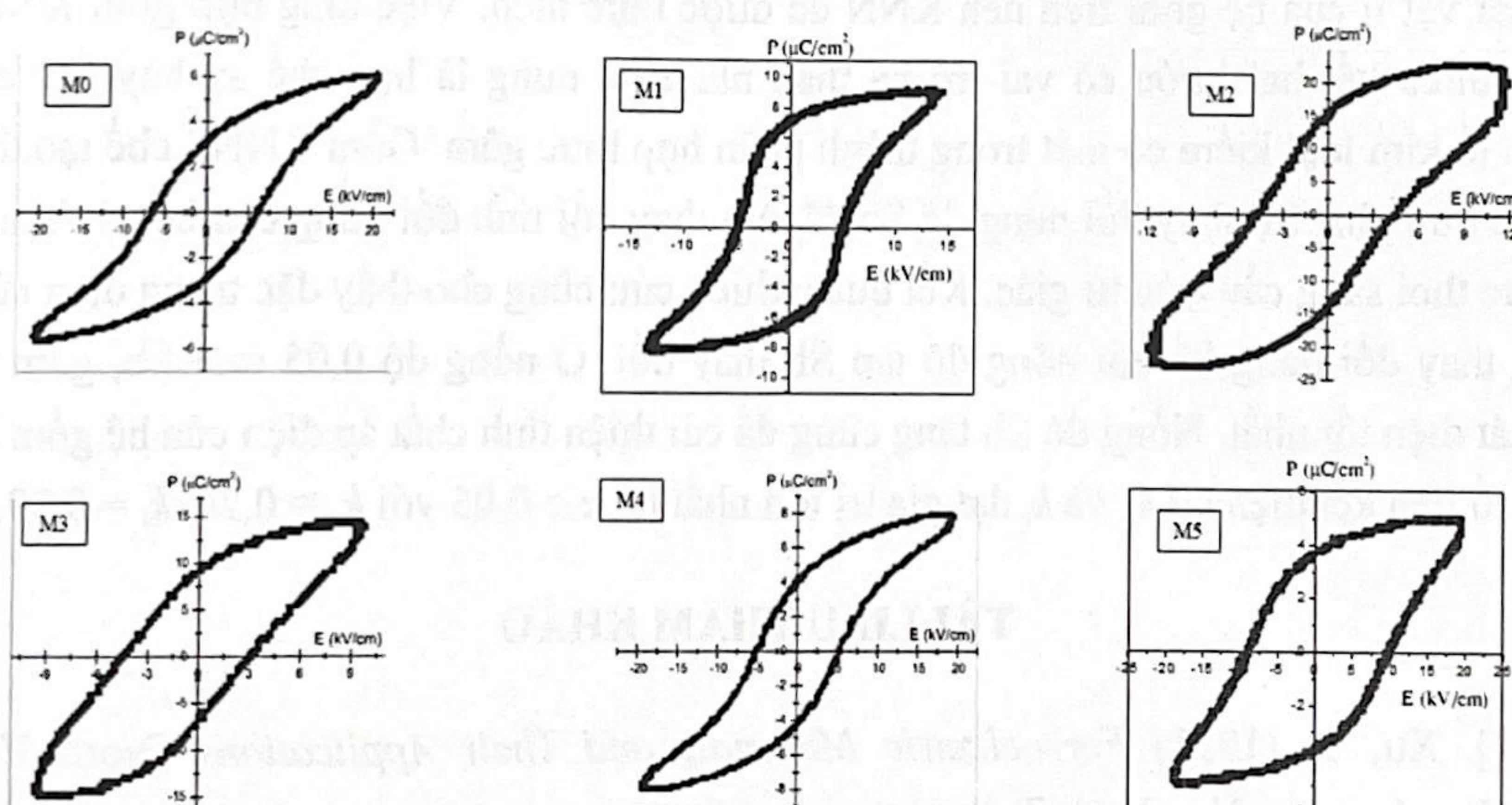
Mẫu	$(\text{Na}_{0.52}\text{K}_{0.48})(\text{Nb}_{1-x}\text{Sb}_x)\text{O}_3$					
	$x = 0$	$x = 0,02$	$x = 0,05$	$x = 0,08$	$x = 0,08$	$x = 0,15$
k_p	0,19	0,22	0,26	0,13	0,09	0,08
k_t	0,31	0,32	0,39	0,36	0,24	0,15

Từ số liệu ở Bảng 1, sự phụ thuộc của hệ số liên kết điện cơ của gốm theo nồng độ Sb được biểu diễn ở Hình 6. Kết quả cho thấy khi tăng nồng độ Sb thì hệ số liên kết điện cơ dao động theo phương bán kính và phương bù dày gia tăng và đạt giá trị lớn nhất tại mẫu có nồng độ 0,05mol Sb với $k_p = 0,26$ và $k_t = 0,39$. Sau đó, giá trị của hệ số này có xu hướng giảm khi nồng độ Sb tiếp tục tăng. Sở dĩ có sự thay đổi như thế khả năng là do tạp Sb đã đi vào cấu trúc của mạng nền và tác động đến vi cấu trúc của vật liệu, như đã đề cập ở trên.



Hình 6. Sự phụ thuộc của hệ số liên kết điện cơ dao động theo phương bán kính (k_p) và dao động theo phương bù dày (k_t) của gốm $(\text{Na}_{0.52}\text{K}_{0.48})(\text{Nb}_{1-x}\text{Sb}_x)\text{O}_3$ theo nồng độ Sb.

Để khảo sát tính chất sắt điện của hệ gốm KNNS với các nồng độ Sb khác nhau, chúng tôi sử dụng phương pháp Sawyer - Tower để xác định dạng đường trễ sắt điện của hệ gốm.

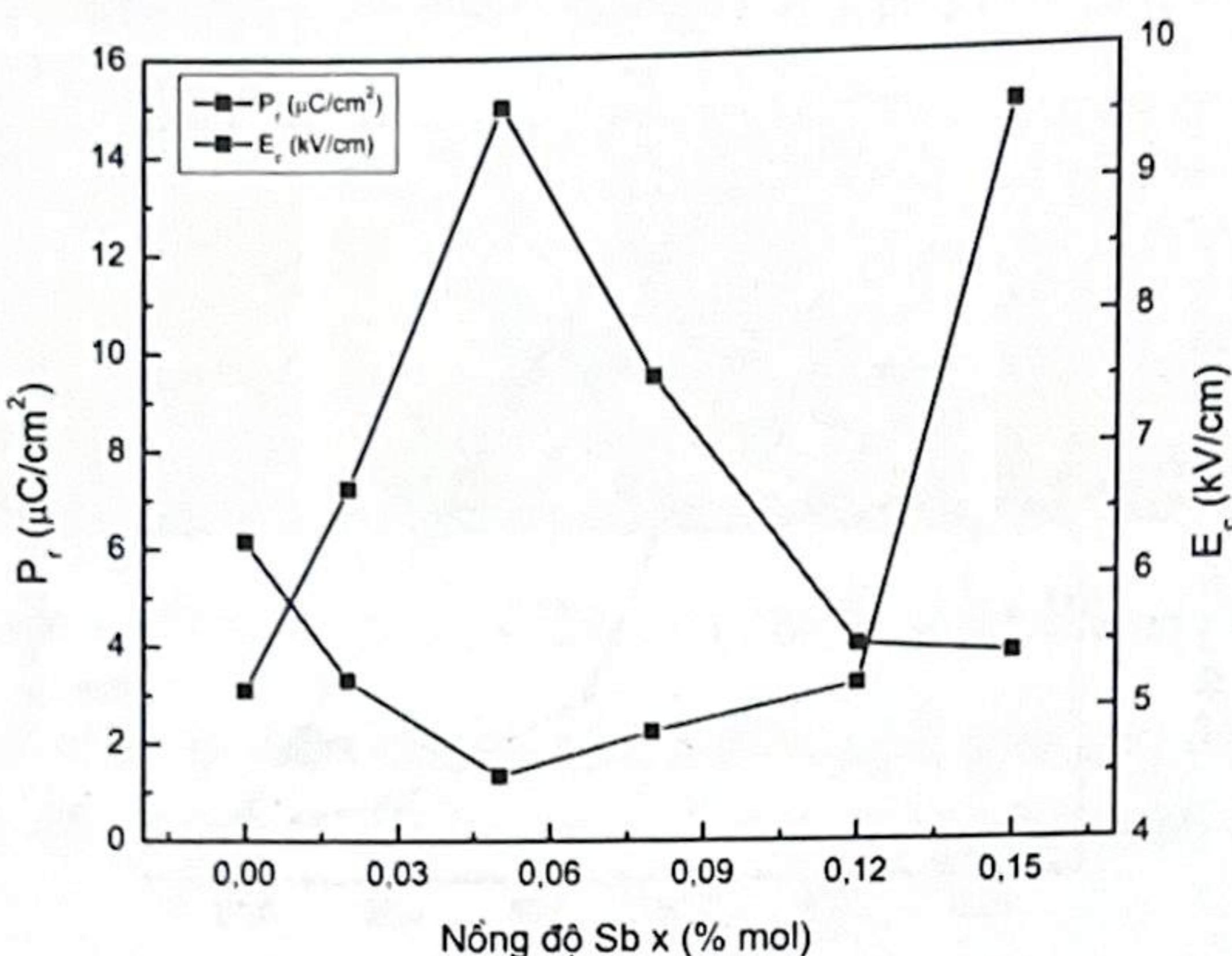


Hình 7. Đường trễ sắt điện của các mẫu gốm KNNS với các nồng độ Sb khác nhau.

Như biểu diễn ở Hình 7, dạng đường trễ của các mẫu gốm KNNS với các nồng độ Sb khác nhau đều có dạng điển hình của vật liệu sắt điện. Từ đường trễ sắt điện các thông số sắt điện là trường điện kháng E_c và độ phân cực P , đã được xác định.

Từ đó, sự thay đổi của trường điện kháng và phân cực của hệ gốm KNNS theo nồng

độ tạp Sb được thể hiện ở Hình 8. Các kết quả thực nghiệm cho thấy độ phân cực dư P_r của gốm KNNS tăng khi tăng nồng độ Sb và đạt giá trị cao nhất ($15,0 \mu\text{C}/\text{cm}^2$) tại mẫu có nồng độ $x = 0,05$ mol, nếu tiếp tục tăng Sb thì độ phân cực dư giảm. Giá trị điện trường kháng E_c giảm từ $6,31 \text{ kV}/\text{cm}$ đến giá trị nhỏ nhất $4,5 \text{ kV}/\text{cm}$ khi tăng nồng độ Sb từ 0 đến 0,05 mol sau đó tăng trở lại cùng với sự tăng nồng độ tạp.



Hình 8. Sự phụ thuộc của điện trường kháng E_c và độ phân cực dư P_r của gốm KNNS vào nồng độ tạp Sb.

4. KẾT LUẬN

Các nghiên cứu thực nghiệm về chế độ thiêu kết hai bước và ảnh hưởng của tạp Sb đến tính chất vật lí của hệ gốm trên nền KNN đã được thực hiện. Việc tổng hợp gốm KNNS với chế độ thiêu kết hai bước có vai trò hạ thấp nhiệt độ nung là hạn chế sự bay hơi của các nguyên tố kim loại kiềm có mặt trong thành phần hợp thức gốm. Gốm KNNS chế tạo được có cấu trúc đơn pha. Sự thay đổi nồng độ Sb đã làm thay đổi tính đối xứng của hệ vật liệu từ cấu trúc trực thoi sang cấu trúc tứ giác. Kết quả nghiên cứu cũng cho thấy đặc trưng điện của gốm KNNS thay đổi đáng kể khi nồng độ tạp Sb thay đổi. Ở nồng độ 0,05 mol Sb, gốm có đặc trưng sắt điện tốt nhất. Nồng độ Sb tăng cũng đã cải thiện tính chất áp điện của hệ gốm KNNS với hệ số liên kết điện cơ k_p và k_t đạt giá trị lớn nhất tại $x = 0,05$ với $k_p = 0,26$, $k_t = 0,39$.

TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. Xu, Y. (1991) *Ferroelectric Materials and Their Applications* (North-Holland, Amsterdam-London-NewYork-Tokyo).
- [2]. Zhang, Z., Wu, P., Chen, L., & Wang, J. (2010), “Systematic Variations in Structural and Electronic Properties of BiFeO_3 by A-site Substitution”, *Applied Physics Letters*, 96, 012905-3.
- [3]. Tabuchi, K., Nagata, H., & Takenaka, T. (2013), “Fabrication and Electrical Properties of Potassium Excess and Poor $(\text{Bi}_{1/2}\text{K}_{1/2})\text{TiO}_3$ Ceramics”, *Journal of The Ceramic Society of Japan*, 121, 623-626.

[4]. Hollenstein E, Damjanovic D, Setter N (2007), "Temperature stability of the piezoelectric properties of Li-modified KNN ceramics", J Eur Ceram Soc 27(13-15):4093-4097.

[5]. Mallika Bhattacharyya (2011), "Some studies of lead free KNN - LN ceramics", Master's thesis of science in physics, department of physics national institute of technology rourkela - 769008.

[6]. Trần Hồ Minh Luyện (2009), "Chế tạo và nghiên cứu các tính chất vật lí của hệ gốm áp điện $(1-x)(K_{0.52}Na_{0.48})NbO_3$ ", J Mater Sci 44(19):5049-5062.

[7]. Yong SUN, Dingquan XIAO, Lang WU, Dunmin LIN, et al, 2008. Microstructure and properties of lithium and antimony modified potassium sodium niobate lead-free piezoelectric ceramics, Journal of the Ceramic Society of Japan, 116 [4], 536-539.

NHÀ XUẤT BẢN ĐẠI HỌC HUẾ

07 Hà Nội, TP. Huế - Điện thoại: 0234.3834486; Fax: 0234.3819886

<http://huph.hueuni.edu.vn>

Chịu trách nhiệm xuất bản

Giám đốc - Tổng biên tập: Trần Bình Tuyên

Biên tập viên

Trần Dương Hoàng Long

Biên tập kỹ thuật

Tôn Nữ Quỳnh Chi

Trình bày, minh họa

Minh Hoàng

Sửa bản in

Thanh Thúy

Đối tác liên kết xuất bản

Võ Thanh Tùng, Trường Đại học Khoa học, Đại học Huế
77 Nguyễn Huệ, thành phố Huế

KỈ YẾU

HỘI NGHỊ VẬT LÍ MIỀN TRUNG NĂM 2024

In 70 bản, khổ 20.5x29.5cm tại Công ty TNHH MTV In và Dịch vụ Thanh Minh, 99 Phan Văn Trường, thành phố Huế. Số xác nhận đăng ký xuất bản: 2940-2024/CXBIPH/1-46/ĐHH. Quyết định xuất bản số: 528/QĐ-NXB cấp ngày 13 tháng 9 năm 2024. In xong và nộp lưu chiểu năm 2024.

ISBN: 978-604-489-397-6