

تصنيع ودراسة الخواص التركيبية والكهربائية لمركبات $Pb(Zr,Ti)O_3$ المحضرة بطريقة المساحيق

عبد السميع فوزي عبد العزيز¹، صباح جلال فتحي²، نجوى عبد الجبار جاسم¹

¹قسم الفيزياء، كلية التربية للعلوم الصرفة، جامعة تكريت، تكريت، العراق

²قسم الفيزياء، كلية العلوم، جامعة كركوك، كركوك، العراق

الملخص

تم تحضير مركبات تيتانات زركونات الرصاص ذات الصيغة الكيميائية $Pb(Zr_{1-x}Ti_x)O_3$ حيث أن $x=0.5, 0.48$ وذلك باستخدام طريقة تكنولوجيا المساحيق حيث تم تلدين النماذج المحضرة عند درجة حرارة $(1000^\circ C)$ ولمدة $(6hr)$. أجريت الفحوصات الفيزيائية للنماذج، حيث تم دراسة الخواص التركيبية، بدلالة قياسات حيود الأشعة السينية إذ أظهرت نتائجها أن جميع النماذج كانت ذات تركيب رباعي (Tetragonal) ذات معاملات ميلر (001) ، (100) ، (110) ، (111) ، (002) ، (200) ، (210) ، (211) ، (220) ، (221) ، (103) وأن الإتجاه السائد هو (110) ونتائج المطاوعة الميكروية مقارنة جداً بمعنى المسافة البينية متقاربة أيضاً والتشوهات البلورية قليلة نسبياً. زيادة الكثافة الظاهرية عن الكثافة الحقيقية باختلاف تركيز الزركونيوم والتيتانيوم. كما أظهرت نتائج فحص المجهر الإلكتروني أن الحجم الحبيبي (D_{nm}) يكون متقارب بين النماذج وتجانس الحبيبات، وكذلك زيادة تجانس البنية التركيبية مسبباً تحسن في الخواص الفيزيائية والميكانيكية. أظهرت نتائج تقنية EDAX تكوين المركب من العناصر المتفاعلة وهناك فرق قليل بين الوزن الحقيقي والوزن الملاحظ. كما تمت دراسة الخواص الكهربائية إذ تضمنت الخواص الكهربائية دراسة كل من ثابت العزل بنوعيه الحقيقي (ϵ') والخيالي (ϵ'') وكذلك خسارة العازل $(\tan\delta)$ والتوصيلية المتناوبة (σ_{ac}) .

كلمات مفتاحية: حيود الأشعة السينية، المجهر الإلكتروني الماسح، خصائص العزل، تقنية المساحيق، بيروفسكايت، الفيروكهربائية

المقدمة:

لأهمية المواد ذاتية الإستقطاب أدى هذا الأمر إلى زيادة وتكثيف الدراسة والبحث عن هذه المواد [3]. وإن من أقدم هذه المواد المكتشفة هو حامض التارتريك (tartaric acid) الذي يسمى بملح روشيل (Rochelle salt) رمزه الكيميائي $NaKC_4H_4O_4 \cdot 4H_2O$ ، أما الصنف الثاني فهو فوسفات الهيدروجين الثنائية القلويات (phosphely al kali dihydrate) أما الصنف الثالث الوحدة الأساسية له هو جسم ثنائي الأوجه أساسه أيونات الأوكسجين وأن هذا الصنف يحتوي على مركبات مشابهة لتركيب البيروفسكايت (perovskite structure)، ومن هذه المواد نيوبات البوتاسيوم $(KNbO_3)$ وتيتانيت الباريوم $(BaTiO_3)$ [1] كما ويعد ثنائي أوكسيد التيتانيوم (TiO_2) وهو معدن الروتايل (Rutile) أساس تكوين السيراميك إذ يدخل في صناعة المكثفات الكهربائية، ويتغير نسب تكوين السيراميك يمكن اختيار معامل تغير ثابت العزل مع درجة الحرارة على مدى واسع وهذا عامل مهم في دوائر التحكم الإلكترونية [4].

تحضير مركبات Lead-Zirconata-Titanate السيراميكية بطريقة تكنولوجيا المساحيق للتعرف على المتغيرات العملية أثناء التحضير كالمزج والكبس والمواد الرابطة المستخدمة واختيار المواد الأولية ودرجة نقاوتها إضافة إلى إختيار ظروف التلدين والتلدين الملائمة للحصول على نماذج متجانسة.

الجزء العملي: تم تحضير المركب السيراميك PZT باستخدام (أوكسيد الرصاص PbO، أوكسيد الزركونيوم ZrO، وأوكسيد التيتانيوم

إن المواد العازلة ذاتية الإستقطاب (Ferroelectric material) تُعد جزءاً ثانوياً من المواد الكهروحرارية (pyroelectric) التي تستقطب بإنعدام المجال الكهربائي الخارجي وأن إتجاه إستقطابها يتغير تحت تأثير ذلك المجال [1]، إذ تمتاز بكونها تمتلك سلوك مماثل جداً للبلورات أحادية التكافؤ والتي تمتلك خصائص مصاحبة لذلك الإستقطاب ومن أشهر هذه الخواص هي خاصية (الهستيرة) (Hysteresis) [2]، وخاصية اللاخطية (non-linearity) المتمثلة بعلاقة الإستقطاب والمجال الكهربائي المسلط، والخاصية الأخرى هي درجة الحرارة الحرجة، التي تسمى درجة حرارة كوري (Curie Temperature) التي يحدث عندها التغير في الطور من مواد عازلة ذاتية الإستقطاب عند درجات الحرارة الواطئة إلى مواد عازلة غير ذاتية الإستقطاب (Non-ferro electric material) عند درجات الحرارة العالية، يُقصد بالإستقطاب الذاتي هنا هو دالة تناقص لدرجة الحرارة ويتلاشى تماماً عند درجة حرارة كوري وعند هذه الدرجة يحدث شذوذ في سماحية العزل الكهربائي Dielectric (permittivity) وكذلك ثابت المطيلية Elastic constant والحرارة النوعية وكذلك الكهربائية الإجهادية (piezoelectric) والصفات الأخرى وبالتالي يحدث تغير في التركيب البلوري للمادة [1].

إن المواد ذات الخاصية الإجهادية الكهربائية تعد من المواد الرئيسة ضمن مجموعة المواد العازلة ذاتية الإستقطاب، وهذه الخاصية تحدث عند تسليط ضغط ميكانيكي عليها يؤدي إلى تشوه ميكانيكي في تركيبها، وعلى هذا الأساس تصنف إلى عدة مجاميع إذ يعتمد تصنيفها على مكونات المادة أو التركيب البلوري للمادة [1]. ونظراً

إذ إن m : كتلة النموذج و V : حجم النموذج الذي تم حسابه مسبقاً. كما يعتمد فحص حيود الأشعة السينية (XRD) وذلك لمعرفة الحصول على مادة PZT ذات التركيب الرباعي ، إذ تم تشخيص نمط حيود الأشعة السينية من خلال التعرف على مواقع القمم العليا التي تظهر عند تسليط حزمة من الأشعة السينية لمدى $2\theta = (20^\circ - 80^\circ)$ على سطح المادة، ونتيجة لإنعكاس هذه الأشعة من سطح البلورات المتوازية تكون هذه الأشعة المنعكسة متداخلة فيما بينها عند توافر الشروط التي تحقق قانون براك: [7]

$$2d \sin\theta = n\lambda \dots\dots\dots(3)$$

إذ إن:

n : أعداد صحيحة (1, 2, 3, ...), λ : الطول الموجي المستخدم.
 d : المسافة العمودية بين سطحين متتاليين، θ : زاوية سقوط وانعكاس الأشعة السينية.

كما يمكن حساب بعض المتغيرات التركيبية المتمثلة بثابت الشبكة (a) والحجم الحبيبي (D) والمسامية (P) للنماذج من خلال العلاقات الرياضية الآتية:

$$\frac{1}{d^2} = \frac{h^2+k^2}{a^2} + \frac{l^2}{c^2} \dots\dots\dots(4)$$

إذ أن:

(hkl): معاملات ميلر المناظرة لكل مستوي في هذا النموذج [8].
كما تم حساب الحجم البلوري للنماذج (D_{nm}) باستخدام معادلة ديبيي شيرر

(Debye-Sherrer Equation): [9]

$$D_{nm} = \frac{k\lambda}{\beta \cos\theta} \dots\dots\dots(5)$$

إذ إن:

K : الثابت الشكلي وقيمه (0.9)، λ : تساوي (1.54056 Å)، β : عرض القمة عند منتصف الشدة (FWHM)، θ زاوية براك (Bragg) التي حولت من (Degree) إلى الزاوية النصف القطرية (Radian) بعد ضربها بـ $(\frac{\pi}{180})$.

أما القيمة النظرية لكثافة النماذج (ρ_{x-ray}) فقد تم حسابها من خلال العلاقة التالية: [10]

$$\rho_{x-ray} = M / N_A a^3 \dots\dots\dots(6)$$

إذ إن:

M : الكتلة المولارية N_A : عدد افكادرو Avogadro's number وقيمه $(6.023 \times 10^{23}) \text{mol}^{-1}$

كما تم حساب النسبة المئوية للمسامات (P) في PZT وذلك باستخدام العلاقة التالية: [11]

$$p = \frac{\rho_{x-ray} - \rho_d}{\rho_{x-ray}} \times 100\% \dots\dots\dots(7)$$

كما تم فحص النماذج بالمجهر الإلكتروني الماسح الذي يستخدم لدراسة سطح وشكل ومكونات المواد بدقة عالية. كما تم حساب امل التشكيل لوصف الإتجاه السائد لمستوي البلورة hkl وبالتالي يمكن حسابه من المعادلة التالية:

(TiO) بنقاوة 99% إذ تم تهيئة المواد الأولية اللازمة بنسب مختلفة (0.48, 0.5) وحساب النسب الوزنية باستخدام الميزان الحساس ، ويتم تحديد أوزان المركبات الداخلة في التفاعل اعتماداً على الوزن الجزيئي لكل عنصر :

الوزن الجزيئي لأوكسيد الرصاص: M.Wt for PbO= 207.2+16=223.2 gm/mole
الوزن الجزيئي لأوكسيدالزركونيوم: M.wt for ZrO = 91.22+16=107.22 gm/mole
الوزن الجزيئي لأوكسيد التيتانيوم: M.Wt for TiO= 47.88+16=63.88 gm/mole

بعد وزن المواد الأولية تخلط بشكل جيد بوساطة مورتر (Mortar) مع مدقة من العقيق لتسحن جيداً لمدة 2-3hr، وذلك للحصول على خليط متجانس، وبحجم حبيبي دقيق ذي أحجام متجانسة، تم تسخين الخليط المتجانس إلى درجة حرارة 700°C ولمدة 8hr بإرتفاع بطيئ بمعدل (200°C/h) بعد وضعه في بودقة مصنوعة من مادة الألومينا ، وبعد إخراجها من الفرن يسحق مرة أخرى وبشكل جيد لمدة (2-1)hr لكي يكون خليطاً متجانساً ، كما تم كبس النماذج تحت ضغط (5 Ton) خلال فترة 10 min للحصول على أحجام وأشكال النماذج الملائمة لمتطلبات الأجهزة المستخدمة لغرض إجراء الفحوصات المطلوبة .

ثم تسخن الأفراس المكبوسة إلى درجة حرارة (1000°C) ولمدة (6hr) بمعدل (200°C/h) باستخدام فرن كهربائي تصل درجة حرارته إلى (1300°C) ومن ثم تبرّد النماذج تدريجياً إلى أن تصل إلى درجة حرارة الغرفة . زيادة درجة حرارة التلدين تقلل المسامات ومن ثم يزداد حجم الحبيبات (grains size) [5] . ثم طلاء جزء من النماذج بمعجون الفضة لغرض الفحوصات الكهربائية .

إن الفحوصات التي أجريت على نماذج PZT المحضرة أشتملت على فحوصات تركيبية تتمثل بفحص حيود الأشعة السينية (XRD) ، وفحص المجهر الإلكتروني (SEM) ، وحساب الكثافة والمسامية للنماذج المحضرة. كما أشتملت على فحوصات كهربائية باستخدام جهاز الـ LCR-meter لأغراض قياس ثابت العزل الكهربائي الحقيقي ϵ' والخيالي ϵ'' وظل زاوية الفقد $\tan\delta$ والتوصيلية الكهربائية المتناوبة (σ_{ac}). من ضمن الفحوصات الفيزيائية التي أجريت قياس الكثافة الظاهرية للنماذج، وذلك بقياس كتلة كل نموذج وهو جاف تماماً. ومن الممكن قياس حجم كل نموذج رياضياً إذ أنها ذات شكل أسطواني متجانس من العلاقة الرياضية: [6]

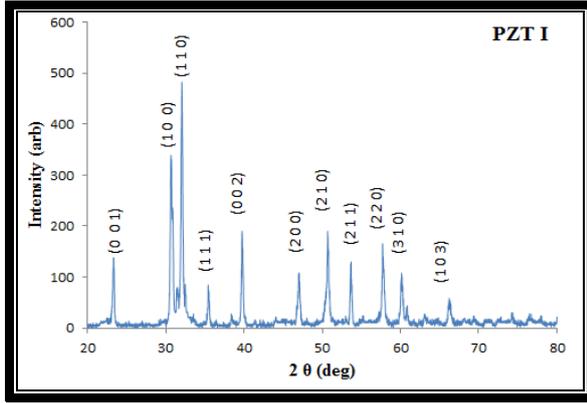
$$V = \pi r^2 h \dots\dots\dots(1)$$

إذ إن:

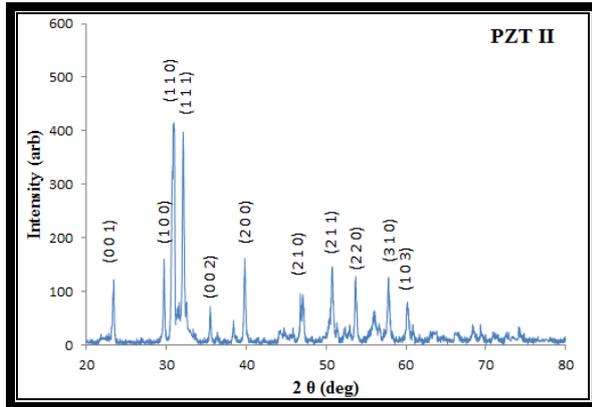
r : تمثل نصف قطر النموذج ، h : سمك النموذج ، V : حجم النموذج

ولقد تم حساب الكثافة الظاهرية ρ_d من العلاقة الرياضية التالية: [6]

$$\rho_d = \frac{m}{V} \dots\dots\dots(2)$$



الشكل (1) نمط حيود الأشعة السينية لنموذج PZT I



الشكل (2) نمط حيود الأشعة السينية لنموذج PZT II

عند مطابقة هذه النتائج مع النتائج التي توصل اليها الباحث (Noborn tohge) و جماعته [16] نلاحظ تطابقاً كبيراً بين النتائج ومن المهم ذكره هنا أنّ درجة نقاوة المواد الأولية المستخدمة ونوع الشوائب فيها تلعب دوراً كبيراً في التحكم بالظروف المناسبة من درجة الحرارة وزمن التليد اللازمين للحصول على مادة فيروكهربائية ذات تركيب بلوري رباعي بشكل جيد وكذلك لوحظ أنها ذات تطابق جيد مع بطاقة (ASTM) لفحص المواد [17].

تم توضيح معاملات ميلر (hkl) والمسافة البينية التي تم التوصل اليها من خلال حيود الأشعة السينية للنماذج (PZT II, PZT I) من خلال الجداول (1,2) التالية:

الجدول (1) يوضح معاملات ميلر (hkl) والمسافة البينية (d) التي تم الحصول عليها من نتائج حيود الأشعة السينية والمسافة البينية في بطاقة

ASTM لنموذج PZT I

Peak number	θ (degree)	d (Å°)	d _{std} (Å°)	(h k l)	I (%)
1	11.68	4.16	4.14	0 0 1	26
2	14.72	4.06	4.03	1 0 0	71
3	15.21	2.88	2.85	1 1 0	100
4	17.71	2.42	2.35	1 1 1	16
5	19.88	2.06	2.07	0 0 2	40
6	23.53	1.99	2.01	2 0 0	23
7	25.35	1.79	1.81	2 1 0	39
8	26.85	1.70	1.65	2 1 1	30
9	28.86	1.39	1.42	2 2 0	33
10	30.07	1.29	1.28	3 1 0	24
11	33.11	1.35	1.35	1 0 3	11

$$T_{c(hkl)} = \frac{I_{(hkl)} / I_{o(hkl)}}{N^{-1} \sum I_{(hkl)} / I_{o(hkl)}} \dots (8)$$

إذ أن

N: عدد القمم الظاهرة في حيود الأشعة السينية (XRD)

$I_{(hkl)}$: الشدة النسبية المقاسة للمستوي (hkl)

$I_{o(hkl)}$: الشدة القياسية للمستوي (hkl) المأخوذ من (ASTM) [12]

كما تم أيضاً حساب المطاوعة الميكروية (S) لمعرفة التشوهات في البلورة تؤدي الى تغيير في المسافة البينية (d) من المعادلة التالية :

$$S = [C_{(ASTM)} - C_{(XRD)} / C_{(ASTM)}] \times 100\% \dots (9)$$

$C_{(ASTM)}$: قيمة ثابت الشبكة في بطاقة (ASTM)

$C_{(XRD)}$: القيمة المحسوبة لثابت الشبكة من (XRD) [13][14].

أيضاً تمت الفحوصات الكهربائية إذ تتضمن قياسات العزل الكهربائي كل من ثابت العزل الكهربائي بنوعيه الحقيقي (ϵ') والخيالي (ϵ'') وظل زاوية فقد ($\tan \delta$) والتوصيلية الكهربائية المتناوبة (σ_{ac}) كدالة لتغيير التردد من 100Hz الى 6000000Hz وعند درجة حرارة الغرفة.

إذ أستخدم جهاز LCR-meter لقياس السعة (c) والمقاومة (R_p) و الفقد في العزل الكهربائي $\tan \delta$ في حالة التوازي عند فرق جهد 1v

ثابت العزل الكهربائي ϵ' فقد تم حسابه من المعادلة التالية:

$$\epsilon' = C / C_o \dots (10)$$

عامل الفقد ϵ'' فقد تم حسابه من المعادلة التالية:

$$\epsilon'' = \epsilon' \tan \delta \dots (11)$$

و التوصيلية الكهربائية المتناوبة σ_{ac} فتحسب من العلاقة التالية:

$$\sigma_{ac} = \frac{d}{R_p A} \dots (12)$$

النتائج والحسابات:

توضح الأشكال (1-2) نتائج حيود الأشعة السينية للمركبين (PZT I, PZT II) إذ لوحظ تكون الفيروكهربائية لجميع النماذج وبصورة جيدة وذات تراكيب بلورية رباعية الشكل كذلك يلاحظ ظهور قمم حيود مميزة عند المستويات البينية في الجدول (1) كما يتبين من الشكل انخفاض الشدة عند بعض قمم الحيود مع قيم الشروط الحدودية لمركبات PZT وذلك بسبب إنتشار الأيونات الموجبة Ti^{+4} / Ti^{+3} و Zr^{+3} / Zr^{+2} على مواقع مختلفة من (A-site) و (B-site) داخل الشبكة [15].

كما إن حسابات ثوابت الشبكة لجميع النماذج والكثافة الظاهرية بدلالة حيود الأشعة السينية ($\rho_{x\text{-ray}}$) الموضحة في الجدول (3) كما يلاحظ أن الكثافة الظاهرية المحسوبة بدلالة حيود الأشعة السينية تكون أكبر من الكثافة الفيزيائية ρ_{actual} بسبب وجود المسامات في النماذج التي لوحظت من خلال حساب المسامية للنماذج المحضرة، أيضاً تم حساب الحجم البلوري باستخدام علاقة (Debye-Sherrer Equation) [18]: وقد أظهرت النتائج تقارب في قيم الحجم البلوري لنماذج المركب $\text{Pb}(\text{Zr}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{O}_3$ وهذا ناتج عن توحيد البلورات الكبيرة عند التلدين بدرجات الحرارة العالية [15].

الجدول (2) يوضح معاملات ميلر (hkl) والمسافة البينية (d) التي تم الحصول عليها من نتائج حيود الأشعة السينية والمسافة البينية في بطاقة ASTM لنموذج PZT

Peak number	Θ (degree)	d (Å°)	d_{std} (Å°)	(h k l)	I (%)
1	11.68	4.14	4.14	0 0 1	12
2	14.84	4.00	4.03	1 0 0	17
3	15.45	2.88	2.85	1 1 0	100
4	16.04	2.32	2.35	1 1 1	42
5	17.73	2.02	2.07	0 0 2	7
6	19.91	2.01	2.01	2 0 0	17
7	23.38	1.83	1.81	2 1 0	8
8	25.38	1.69	1.65	2 1 1	16
9	26.84	1.45	1.42	2 2 0	16
10	28.91	1.30	1.28	3 1 0	14
11	30.09	1.38	1.35	1 0 3	9

جدول (3) يوضح النتائج التي تم الحصول عليها من حيود الأشعة السينية لنماذج $\text{Pb}(\text{Zr Ti})\text{O}_3$

Samples	a (Å°)	c (Å°)	c / a	FWHM (degree)	crystallite size D (nm)	$\rho_{x\text{-ray}}$ (g/cm ³)	ρ_{actual} (g/cm ³)	Porosity %
PZT I	4.08	4.11	1.0073	0.228	0.6073	7.880	4.1375	47.49
PZT II	4.05	4.09	1.0098	0.203	0.6832	8.081	4.1122	49.11

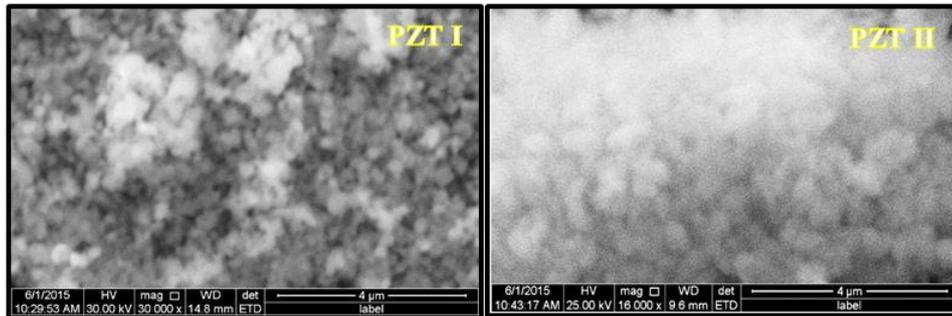
النماذج مما يدل على أن المسافات البينية للنماذج لا تختلف كثيراً مما يعني أن التشوهات البلورية قليلة نسبياً [20].

جدول (4) يوضح قيم ثوابت الشبكة وعامل التشكيل والمطاوعة الميكروية

Samples	a (nm)	c (nm)	Texture Coefficient (Tc)	Crystal distortion (S)
PZT I	0.5776	0.3802	0.03	7.0904
PZT II	0.5808	0.3980	0.03	6.9400

أما نتائج الفحص المجهرية التي تمت باستخدام المجهر الإلكتروني الماسح لدراسة سطح وشكل ومكونات المواد بدقة عالية مبينة في الشكل (3).

كما تم حساب ثوابت الشبكة العملية من نتائج حيود الأشعة السينية، في الجدول (4) كما تم حساب عامل التشكيل Tc لوصف الاتجاه السائد لـ hkl باستخدام العلاقة (8) ويثبت النتائج إن عامل التشكيل يتغير قليلاً بتغير نسب كل من Zr و Ti وأن قيم عامل التشكيل لكل النماذج أقل من الواحد وهذا يعني إن كافة النماذج لها إتجاه سائد واحد 110 ولا يوجد تغير في الإتجاه السائد [19]. كما تم حساب المطاوعة الميكروية S لمعرفة التشوهات في البلورة وتغير المسافة البينية d، وأظهرت النتائج تقارب في قيم المطاوعة الميكروية بين



شكل (3) صور المجهر الإلكتروني للنماذج (PZT I, PZT II)

من الواضح أن النماذج السيراميكية ذات حجم حبيبي متقارب، كما تم الحصول على الرسوم البيانية التي تظهر توزيع العناصر لكل نماذج التركيب $\text{Pb}(\text{Zr}_{1-x}\text{Ti}_x)\text{O}_3$ الفيروكهربائية الملدنة على درجة حرارة 1000°C وذلك باستخدام تقنية EDAX كما موضح في الشكل (4)، (5).

من الصور أعلاه وجد إن الحبيبات موحدة ومرتبطة، ولوحظ أن المسامية ليست كبيرة، كما أن متوسط الحجم الحبيبي [15] موضح في الجدول (5).

الجدول (5) يوضح نتائج الحجم الحبيبي التي تم الحصول عليها من فحص SEM

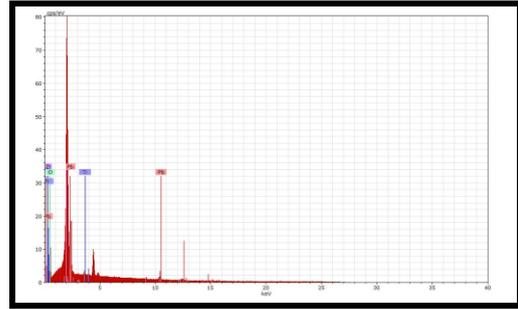
لـ (PZT II, PZT I)

النماذج	Grain size (nm)
PZT I	107.01
PZT II	109.57

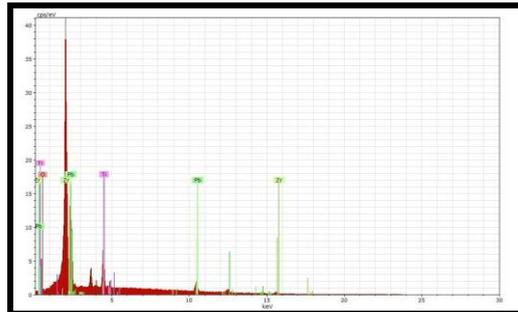
كما تم أيضاً الحصول على تحليل العناصر الداخلة في نماذج التركيب السيراميكي $Pb(Zr_{1-x}Ti_x)O_3$ باستخدام تقنية EDAX كما هو موضح في الجدول (6) الذي أكد تكوين المركب من العناصر المتفاعلة ولوحظ أن هناك فرق قليل بين الوزن المتوقع والوزن الملاحظ [21].

الجدول (6) : النتائج التي تم الحصول عليها من المجهر الإلكتروني باستخدام تقنية EDAX في تحليل العناصر للنموذج PZT I

Element	Number	Series	Weight %	Atomic %	Error %
Pb	82	L-Series	42.67	43.73	1.18
Zr	40	L-Series	31.39	44.63	1.69
Ti	22	K-Series	17.22	0.79	0.07
O	8	K-Series	8.70	10.85	0.04



الشكل (4) توزيع العناصر الذي تم الحصول عليه من المجهر الإلكتروني SEM باستخدام تقنية EDAX للنموذج PZT I



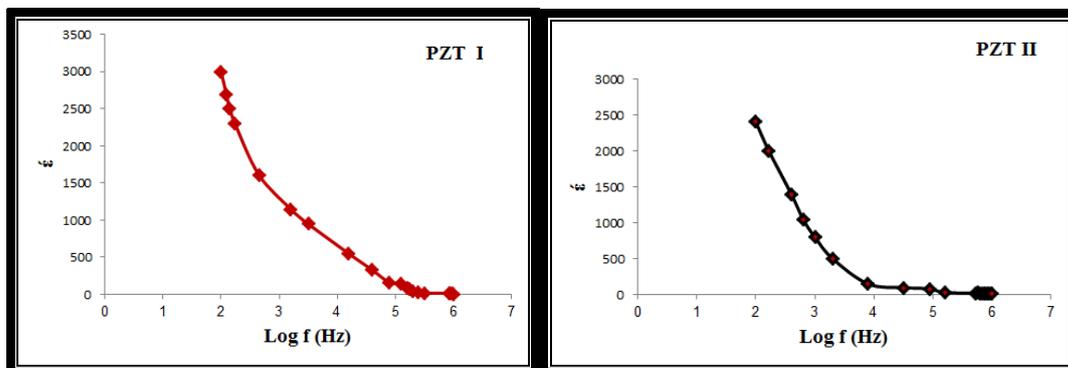
الشكل (5) توزيع العناصر الذي تم الحصول عليه من المجهر الإلكتروني SEM باستخدام تقنية EDAX للنموذج PZT II

الجدول (7) : النتائج التي تم الحصول عليها من المجهر الإلكتروني باستخدام تقنية EDAX في تحليل العناصر للنموذج PZT II

Element	Number	Series	Weight %	Atomic %	Error %
Pb	82	L-Series	45.53	30.01	0.73
Zr	40	L-Series	27.19	58.07	1.68
Ti	22	K-Series	17.07	5.85	0.25
O	8	K-Series	10.21	6.07	0.09

التردد إلى أكثر من (3000Hz) نجد إنخفاضاً حاداً في قيم ثابت العزل وهذا يدل على أنه ضمن هذا المدى من الترددات تنتهي فترة استقطاب الشحنة الفراغية، إذ تكون ثنائيات القطب المسؤولة عن الإستقطاب التوجيهي غير قادرة على مواكبة التغير في إتجاه المجال الكهربائي المسلط وتوجيه نفسها بإتجاهه وهذا من شأنه أن يؤدي إلى تناقص في قيم ثابت العزل الكهربائي .

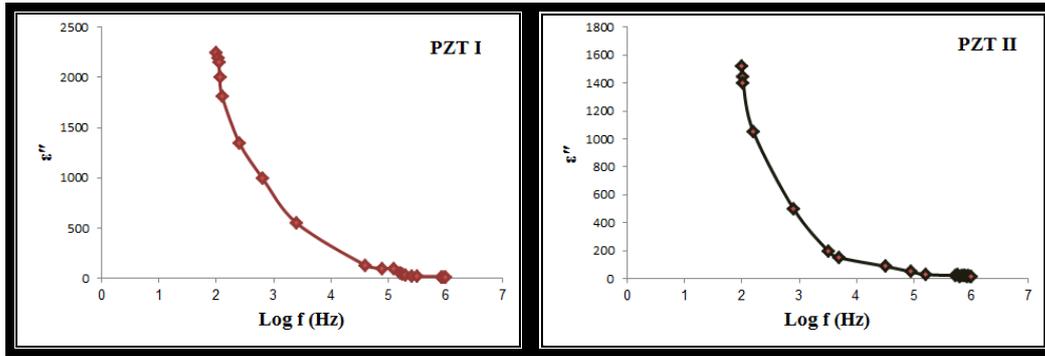
أما نتائج الفحوصات الكهربائية بينت تغير ثابت العزل الكهربائي الحقيقي كدالة للتردد في المدى (100Hz-6000KHz) لجميع نماذج المركب $Pb(Zr_{1-x}Ti_x)O_3$ لقيم (X) . يتبين من الشكل أن قيم ثابت العزل الكهربائي تكون عالية عند الترددات المنخفضة ومن ثم يتناقص بسرعة مع إرتفاع في التردد إلى أن تصل إلى قيمة ثابتة ، إلا أن القيمة العالية لثابت العزل يعود إلى عملية الإستقطاب للشحنة الفراغية وذلك لكبر كتلتها بالنسبة على الأنواع الأخرى ، وعند زيادة



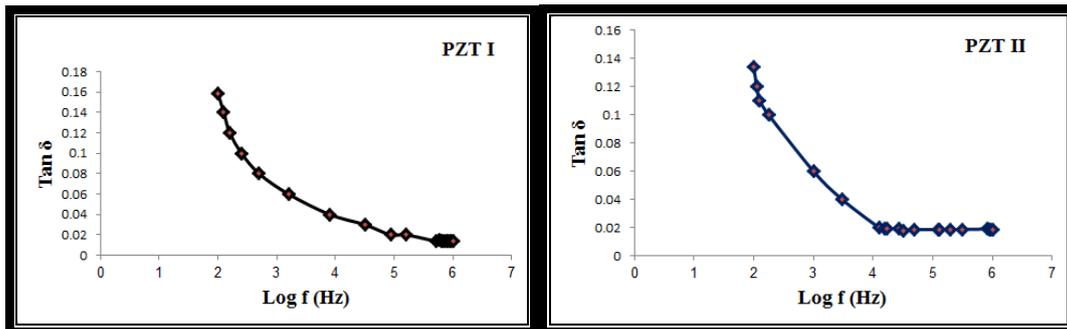
الشكل (6) : تغير ثابت العزل الكهربائي الحقيقي مع التردد

إلى طاقة عالية لحصول تنقل حاملات الشحنة لذلك تكون فقدان الطاقة عالية عند الترددات المنخفضة وبالتالي فإن قيم ϵ'' و $\tan\delta$ تكون مرتفعة في منطقة التردد المنخفض. أما عند الترددات العالية فإن عملية انتشار الحبيبات وتوجيهها تكون أكثر فعالية لذلك تكون فقدان الطاقة منخفضة عند الترددات العالية لأنها تحتاج إلى طاقة قليلة لإنتقال حاملات الشحنة تبعاً لذلك فإن قيم ϵ'' و $\tan\delta$ تكون منخفضة عند الترددات العالية [22].

والشكل (7) و (8) يبين تغيير عامل الفقد ϵ'' وظل زاوية الفقد $\tan\delta$ مع التردد عند درجة حرارة الغرفة للمركب $Pb(Zr_{1-x}Ti_x)O_3$ تظهر قيم عظمى لعامل الفقد وظل زاوية الفقد عند الترددات المنخفضة يعود ذلك إلى ارتباط قوي بين آلية التوصيل وسلوك العزل في الـ (PZT). عندما يكون تردد حاملات الشحنة الكهربائية يساوي تقريباً تردد المجال المسلط نحصل على قيم عظمى لظل زاوية الفقد، إضافة إلى أن الحدود الحبيبية في الترددات المنخفضة تكون أكثر فعالية لذلك يتطلب



الشكل (7) : تغيير عامل الفقد مع التردد



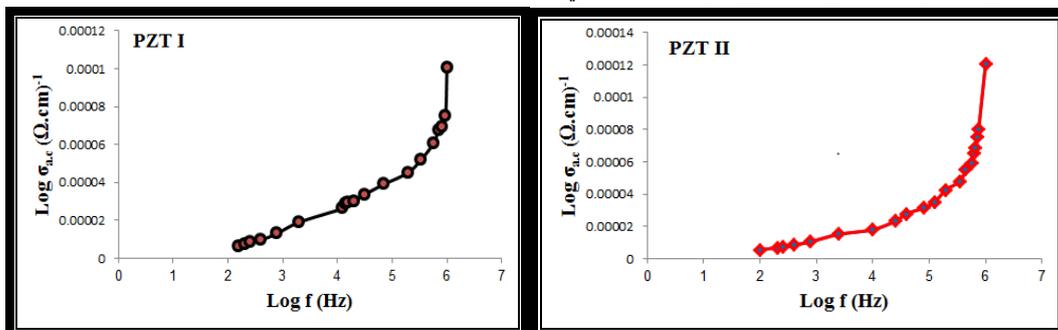
الشكل (8) : تغيير ظل زاوية الفقد مع التردد

مقياس للقدرة المفقودة، أي هي مقياس للحرارة التي قد تتولد نتيجة دوران ثنائيات الأقطاب في مواضعها أو إهتزاز الشحنات بتغير إتجاه المجال المتناوب لذلك يعد التردد هو الأساس الذي تعتمد عليه التوصيلية الكهربائية المتناوبة [24].

باستخدام العلاقة التالية:

$$\sigma_{AC} = 2\pi f \epsilon_0 \epsilon'' \dots \dots (13)$$

لحساب التوصيلية الكهربائية للنماذج جميعها، لوظ أن قيم التوصيلية المتناوبة تزداد مع زيادة تردد التيار المستخدم [23] إن التردد يلعب دوراً كبيراً في تحديد زيادة التوصيلية. وكذلك فإن التوصيلية هنا هي



الشكل (9) : تغيير التوصيلية الكهربائية المتناوبة مع التردد

المصادر

15. NIRANJAN, SAHU, "Study of crystal structure and electrical properties on lead titanate and lead zirconate titanate based ceramic oxids", Doctor of Philosophy, 2011.
16. B. V. Hiremath, A. I Kingon, J.V. Biggers, J. Am. Ceram. Soc. 66 (1983) 790.
17. عباس كريم , "دراسة الخواص الكهربائية لمواد سيراميكية وتطبيقاتها" وزارة التعليم العالي والبحث العلمي , الجامعة المستنصرية (كلية العلوم) 2004 .
18. S. Kumar and R. Chandra: Temperature dependent studies of CdS nanoparticles in viscous matrix. Optical Materials. 27 , 1346, (2005).
19. دراسة الخصائص التركيبية والبصرية لأغشية NIO ، أسامة زيد عبد , 2012
20. النانوية SnO₂ تأثير حرارة التلدين على الخواص التركيبية والبصرية والتحسسية لأغشية 2014 ، علي احمد يوسف ، أمير أبراهيم خداداد ، C2O₂ و NH₃ الغازي
21. Studies of pure and doped lead zirconate titanate ceramics and pulsed laser deposited lead zirconate titanate thin films, M. PRABU, 2013
22. I.H. Gul, A. Maqsood, Journal of Magnetism and Magnetic Materials 316 ,13-18. (2007).
23. A. M. M. Farea, Shalendra Kumar, Khalid Mujasam Batoo, Ali Yousef, Chan GyuLee, Alimuddin, J. Alloys Comp. 469 , 451-457, (2009).
24. S. Sindhu, M. R. Anathuraman, Bindu. P. Thampi, K. A. Malini and Philip Kuriam; Bull. Mater. Sci, 25, 599-607, (2000).
1. D.meyer hofer, Transition to the ferroelectric state in barium titanate, physical review.112, 2,11,58 .
2. Damjanovic D,S science of Hysteresis ,ed. G Bertotti and I. Mayergoyz, Elsevier, 76 241 (1987).
3. A. Ballato , IEEE T. Ultrason. Ferr. 42 916 (1965) .
4. سليمان , محمد أمين باشا, أحمد فؤاد وخيري, شريف أحمد (فيزياء الجوامد), سلسلة الفكر العربي لمراجع العلوم الأساسية.
5. B.D. Cullity "Introduction to Magnetic Materials", Wesley, Massachusetts , U.S.A , (1972) .
6. Annual Book of ASTM Standards 13 , 180-182, (1979).
7. Paul Barnes, T.C., Simon Jacques Advanced Certificate in Powder Diffraction on the Web. Bragg's Law, (2006).
8. P. Mitra, Khan, "Materials chemistry and physics", (2008) 986.
9. S. Kumar and R. Chandra: Temperature dependent studies of CdS nanoparticles in viscous matrix. Optical Materials. 27 , 1346, (2005).
10. R P, Mahajan, Ph. D. Thesis, Shivaji University, Kolhapur 2000.
11. I.H. Gul, Abbasi, A. Z , F. Amin, Anis-ur-Rehman, M., Maqsood, A., J. Magn. Magn. Matter.311, 494-499, (2007).
12. Rajeh kumar, Neeraj khare, Vijay kumar, and Bhalla, Applied Surface Science, 7(2008) 254.
13. A.Beiser. Concepts of Modern physics. Mc Graw-Hill Kogakusha, LTD, 2nd edition 1980
14. Y.Siroton and M. Shaskolskya, Fundamentals of Crystal. Physics", Mir Pub., Moscow 1982.

Manufacturing and study the structural and electrical properties of the compounds Pb (Zr, Ti)O₃ prepared in a manner Powders

Abdel Samie Fawzi Abdul Aziz¹, Morning Jalal Fathi², Najwa Abdul-Jabbar Jassim¹

¹ Department of Physics, College of Education for pure science, University of Tikrit , Tikrit , Iraq

² Department of Physics , College of Science , Kirkuk University , Kirkuk , Iraq

Email: abdulsamee_Fawzi@yahoo.com

Abstract

Was prepared lead Zirconate titanate compounds with the chemical formula Pb (Zr_{1-x} Ti_x) O₃ as (x = 0.5, 0.48) and using technology the way powders were prepared Plasticizer models at a temperature (1000°C) and for (6hr). physical tests of the models were conducted, where it was the study of the structural properties, in terms of X-ray diffraction measurements as results showed that all models were four-wheel installation (Tetragonal) with Miller transactions (001), (100), (110), (111), (002), (200), (210), (211), (220), (221), (103) and that the prevailing trend is (110) and the results of plasticity microwave very close sense of distance intra-convergent also relatively few crystalline defects. Increasing the bulk density of the true density of altered concentration of zirconium and titanium. Results of the examination microscope-mail also showed that the particle size (D_{nm}) be tight between the models and the homogeneity of the granules, as well as increasing the homogeneity of compositional structure, causing an improvement in the physical properties and A mechanical. shown technique results EDAX compound of the interacting elements of the composition and there is little difference between the real weight and the weight is noticeable. To study the electrical properties as included electrical properties study both the dielectric constant true of both types (ε) and fantasy (ε) as well as the loss of the separation (tanδ) and connectivity alternating (σ_{ac})

Keywords: XRD, SEM, dielectric properties, Chemical co-precipitation, Perovskite, Ferroelectrics