

# 溶胶-凝胶法制备的高压电常数 ( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}$ ) $_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$ 系无铅压电陶瓷\*

赵明磊 王春雷 王矜奉 陈洪存 钟维烈

(山东大学物理与微电子学院, 晶体材料国家重点实验室 济南 250100)

(2003 年 2 月 28 日收到 2003 年 8 月 8 日收到修改稿)

测量了使用溶胶-凝胶工艺制备的( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}$ ) $_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$ ( $x = 0.00, 0.04, 0.06, 0.08, 0.12$ )系陶瓷的介电、压电、铁电和热释电性能. 由于使用了溶胶-凝胶工艺制备的粉料, 因此所有样品的压电性能都得到了较大提高. 其中( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}$ ) $_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$ 系陶瓷具有该系列最大的压电常数,  $d_{33} = 173 \times 10^{-12} \text{C/N}$ , 与传统工艺相比,  $d_{33}$ 提高了近 40%. 同时, 在一定范围内, 随 Ba 含量的增加, 材料的剩余极化  $P_r$  和矫顽场  $E_c$  逐渐减小, 退极化温度逐渐降低. 对于( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}$ ) $_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$ 系陶瓷, 剩余极化和矫顽场分别为  $25 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  和  $28 \text{kV}/\text{cm}$ , 退极化温度约为  $80^\circ\text{C}$ .

关键词: 溶胶-凝胶, 压电常数, 剩余极化, 矫顽场

PACC: 7740, 7760, 7780

## 1. 引言

目前, 压电陶瓷的实用配方主要是以  $\text{PbTiO}_3$ ,  $\text{PZrO}_3$  为基的二元系、三元系材料, 其中  $\text{PbO}$  的含量高达 60% 以上. 铅是一种有毒的、且在高温下易挥发的物质. 在陶瓷的高温烧结过程中大量铅的挥发势必造成环境的污染, 直接危害人类的健康. 因此, 近年来, 随着人们环保意识的增强, 无铅压电陶瓷的研究成为一个热点<sup>[1-3]</sup>. 在此背景下, 钛酸铋钠( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ )作为一种具有钙钛矿结构的铁电体, 由于具有较强的压电性, 因而引起人们越来越多的注意<sup>[4-10]</sup>. 目前, 对于钛酸铋钠系无铅压电陶瓷的研究重点主要集中在传统工艺下的各种取代及掺杂改性, 公认的性能最好的组分为室温处于三角-四方准同型相界(MPB)附近的( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}$ ) $_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$ , 其压电常数  $d_{33}$  为  $125 \times 10^{-12} \text{C/N}$ <sup>[1]</sup>. 为了寻找提高  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  系压电陶瓷性能的新的途径, 我们曾尝试着使用溶胶-凝胶工艺制备的粉料来烧结  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  系陶瓷<sup>[10]</sup>. 实验发现, 使用溶胶-凝胶工艺制备的  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  系陶瓷与传统工艺制备的陶瓷相比, 其压电性能有了较大的提高, 压电常数  $d_{33}$  从传

统的  $(47-74) \times 10^{-12} \text{C/N}$  一下提高到  $102 \times 10^{-12} \text{C/N}$ <sup>[4,7,10]</sup>. 因此我们认为, 在陶瓷工艺中使用溶胶-凝胶工艺制备的粉料对于提高钛酸铋钠系压电陶瓷的性能应是十分有效的.

本文在文献 [10] 工作的基础上, 利用基本同样的工艺置备了( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}$ ) $_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷. 通过介电、压电、铁电和热释电性能的测量, 得到了用这种新工艺制备的( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}$ ) $_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷的一系列有意义的结果.

## 2. 实验过程

制备( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}$ ) $_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$ ( $x = 0.00, 0.04, 0.06, 0.08, 0.12$ )微粉所用的原料为纯度 99% 的硝酸铋( $\text{Bi}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ )、醋酸铋( $\text{CH}_3\text{COONa} \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ )、钛酸四丁脂( $\text{C}_{16}\text{H}_{36}\text{O}_4\text{Ti}$ )和纯度为 99.9% 的氢氧化钡( $\text{Ba}(\text{OH})_2$ ). 同时, 用冰醋酸做溶剂, 乙二醇乙醚( $\text{C}_4\text{H}_{10}\text{O}_2$ )做稳定剂. 制备( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}$ ) $_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$ ( $x = 0.00, 0.04, 0.06, 0.08, 0.12$ )微粉的工艺过程与文献 [10] 制备  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  微粉的过程类似. 值得一提的是, 实验中发现, 在  $\text{Bi}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{CH}_3\text{COONa} \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Ba}(\text{OH})_2$  同时溶于冰醋酸的过程中, 由于 Ba

\* 国家重点基础研究发展规划项目(批准号: G1998061408)资助的课题.

离子的存在而产生了少量的白色难溶物.经分析,我们认为沉淀应是溶液中的  $\text{Ba}^{2+}$  离子和  $\text{NO}_3^-$  离子产生的难溶于醋酸的硝酸钡沉淀.由于溶解过程中难溶物的产生,将可能影响到溶胶-凝胶的反应过程.因此,实际的反应过程与理想的溶胶-凝胶过程相比可能存在一定的差距.尽管不溶物  $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$  的产生对于制备成分均匀的微粉可能不利,但在加入少量 Ba 的条件下,利用这种微粉烧结出的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  ( $x = 0.02, 0.04, 0.06, 0.08, 0.12$ ) 系陶瓷仍然具有较高的致密度.同时,与传统工艺制备的同种材料相比,这些陶瓷的压电性能仍然获得了较大提高.对于实验中的样品,使用 JXA-8800R 型电子探针进行了元素定性、定量分析.样品采用烧银法制备电极.电滞回线的测量采用 RT6000HVS 铁电测试系统,介电、压电、热释电性能的测量系统由 HP4192A 型低频阻抗分析仪、准静态  $d_{33}$  测量仪、Keithley 642 型静电计和智能温控仪等组成.

### 3. 实验结果与讨论

本文使用 JXA-8800R 型电子探针对制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  系陶瓷样品进行了元素定性、定量分析.由图 1 可见样品中只含 Na, Bi, Ba, Ti, O 5 种元素,不含杂质.实验得到的该样品中 Ti 离子与 Ba 离子的摩尔比为  $\text{Ti}:\text{Ba} = 1:0.058$ ,可见本工艺对于控制 Ba 离子的含量非常准确.

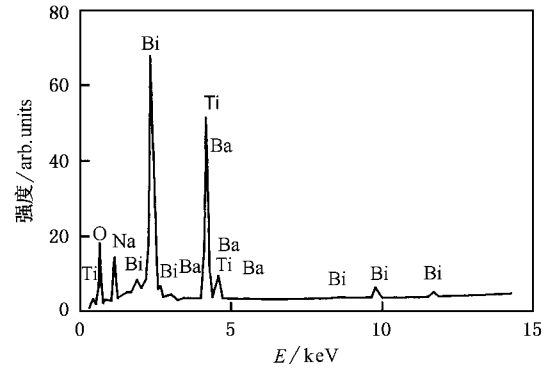


图 1  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  系陶瓷的电子探针元素定性分析

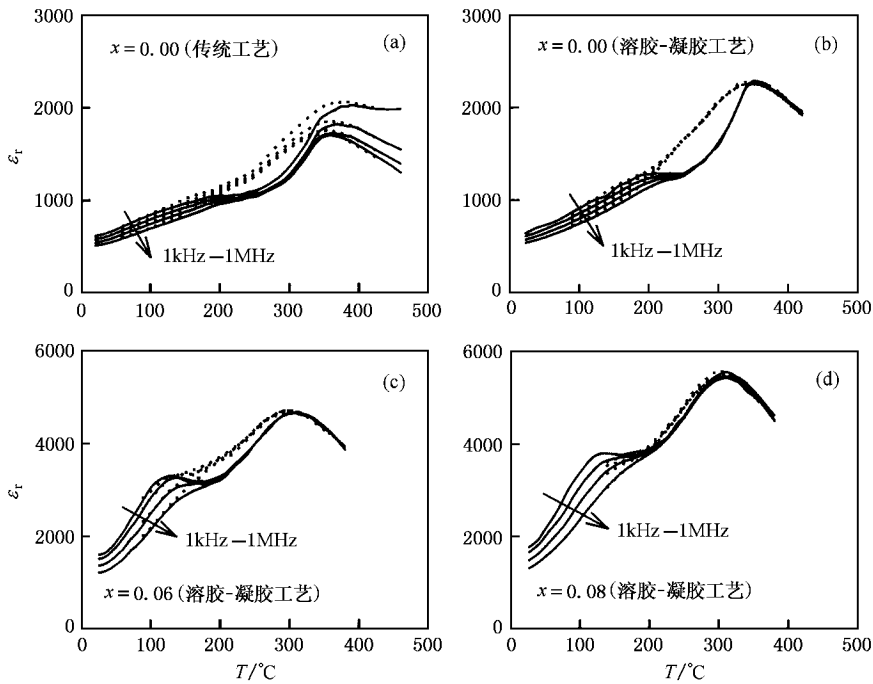


图 2 溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷在 1, 10 和 100kHz, 1MHz 频率下的升降温介电温谱 ——为升温, ---为降温

图 2 示出溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷在 1, 10 和 100kHz, 1MHz 频率下的升降温介电温谱.从图 2 可以看出,使用这种工艺制备

的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷与我们使用传统工艺制备的  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  系陶瓷相比具有相似的介电特征.随温度的升高,图 2 所有样品都先在  $100^\circ\text{C}$ —

250℃范围出现一个反常的介电平台,然后在300℃附近呈现出较宽的介电峰,但介电峰值温度和出现介电平台的温度都在一定范围内随Ba含量的增加而降低.在反常介电平台温度以下,所有样品都呈现出弛豫型铁电体的典型特征.对于传统工艺制备  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  系陶瓷,由于在较高温度时电导率相对较大,所以较高温度时电导率的影响使得低频测量的介电常数偏大.而对于我们使用溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷,样品在较高温度时的介电测量结果非常理想,几乎看不出电导率的影响.所以我们认为,图2中溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷的介电温谱反应了该类材料最为真实的介电特征.不过,与传统工艺制备的该系陶瓷相比,溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷具有稍大的介电常数.

图3示出利用溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷室温时1kHz下的相对介电常数.从图3可以看出,无论极化前还是极化后,该工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷的介电常数都在  $x = 0.06—0.08$  范围内达到最大值.一般认为,处于相界附近的组分由于自发极化具有更多的可能取向,因此有利于极化的转向,这也往往造成介电常数在相界附近达到最大值.最早报道关于  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷的文献[1]指出,该系列陶瓷在  $x = 0.06—0.07$  附近存在三角-四方准同型相界.根据我们的介电测量结果,用溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷的三角-四方相界处于  $x = 0.06—0.08$  范围内,这与使用传统工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷的结果基本一致.

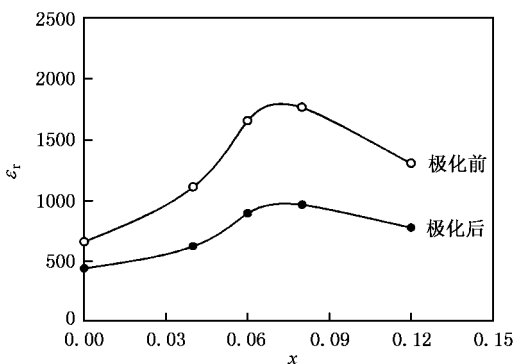


图3 溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷室温时1kHz下的相对介电常数 ○为极化前,●为极化后

$\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷室温时的电滞回线.我们曾经提到,溶胶-凝胶工艺制备的  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  系陶瓷在100kV/cm低频交流电场下可以获得较大的剩余极化,同时矫顽场得到一定降低,室温时其  $P_r$  和  $E_c$  分别为  $32\mu\text{C}/\text{cm}^2$  和  $61\text{kV}/\text{cm}$ <sup>[10]</sup>.用溶胶-凝胶工艺制备的Ba改性  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  系陶瓷与用同种工艺制备的  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  系陶瓷相比,矫顽场和饱和反转电场都得到了较大的降低.从图4可以看出,对于该工艺制备的  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  系陶瓷,室温时,施加60kV/cm的交变电场只能得到  $4\mu\text{C}/\text{cm}^2$  左右的剩余极化,但对于  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  和  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.92}\text{Ba}_{0.08}\text{TiO}_3$  系陶瓷,只需施加45kV/cm的交变电场,就可得到饱和的电滞回线,得到二者的剩余极化分别为25和  $18\mu\text{C}/\text{cm}^2$ ,矫顽场分别为28和11kV/cm.

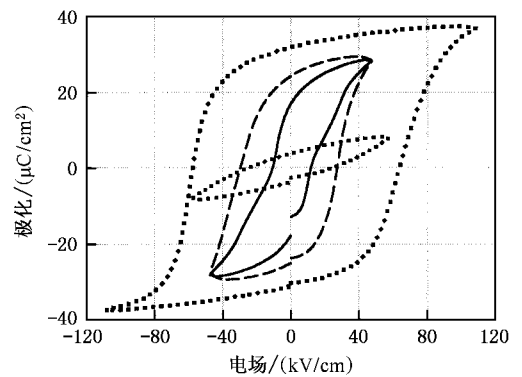


图4 溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷室温时的电滞回线 ····为  $x = 0.00$ , ---为  $x = 0.06$ , —为  $x = 0.08$

由于溶胶-凝胶工艺制备的Ba改性  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  系陶瓷的矫顽场得到了大大降低,并且同时仍可获得较大的剩余极化,所以该类材料应具有较好的压电性能,且易于充分极化.图5示出溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷室温时的压电常数  $d_{33}$  随Ba含量的变化.从图5可以看出,使用溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷与用传统工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷相比,尽管二者的烧结过程和烧结工艺完全相同,但由于前者使用了新的粉料制备工艺,所以压电性能得到很大的提高.对于这种新工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  系陶瓷,由于室温处于三角-四方准同型相界附近,所以其具有该系列最大的压电常数  $d_{33} = 173 \times 10^{-12} \text{C}/\text{N}$ .此外,对于新工艺制备的

图4示出溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}$

( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\lambda_{0.92}\text{Ba}_{0.08}\text{TiO}_3$  系陶瓷, 其压电常数  $d_{33}$  也可达  $150 \times 10^{-12} \text{C/N}$  左右. 据我们所知, 目前报道的压电性能最好的 ( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\lambda_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  系陶瓷) 的压电常数  $d_{33}$  约为  $125 \times 10^{-12} \text{C/N}$ , 而我们使用新的粉料制备工艺后将这一性能参数提高了约 40%. 因此, 在制备  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  系无铅压电陶瓷的过程中, 使用新的粉料制备工艺将会大大提高该系列材料的压电性能. 同时我们相信, 随粉料制备工艺和烧结工艺过程的不断完善,  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  系陶瓷的压电性能在此基础上还应有较大的提高空间.

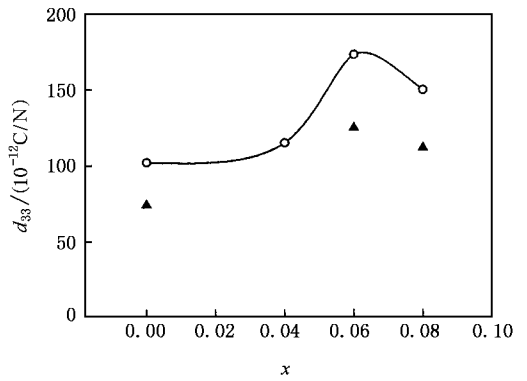


图 5 溶胶-凝胶工艺制备的( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\lambda_{-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷室温时的压电常数  $d_{33}$  随 Ba 含量的变化 ○为溶胶-凝胶工艺制备的样品, ▲为传统工艺制备的样品, 取自文献 [4, 6]

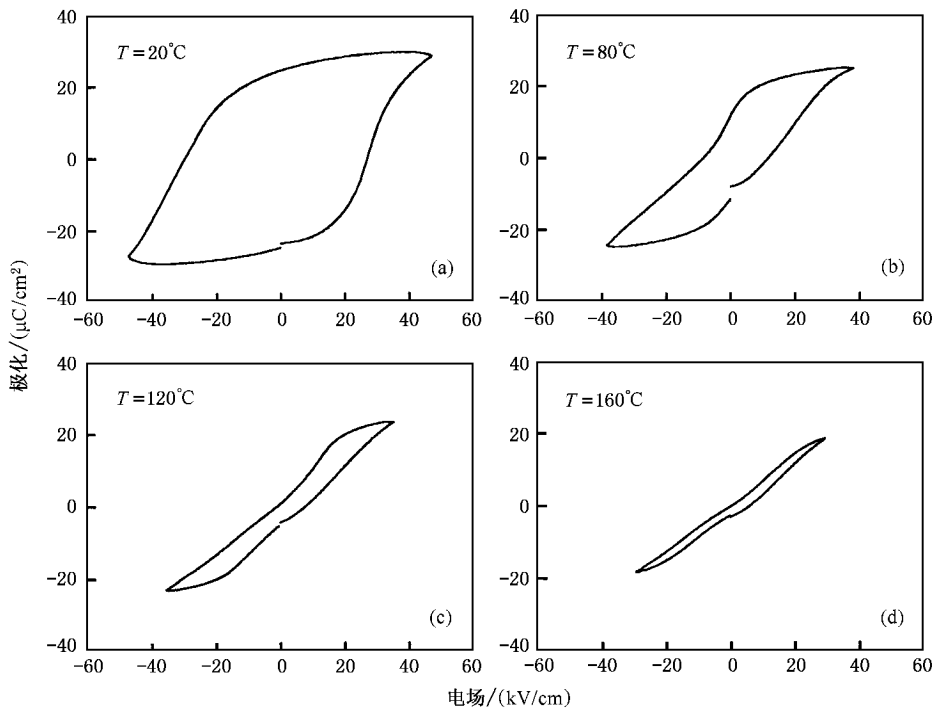


图 6 溶胶-凝胶工艺制备的( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\lambda_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  系陶瓷不同温度时的电滞回线

图 6 示出溶胶-凝胶工艺制备的( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\lambda_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  系陶瓷不同温度时的电滞回线. 虽然( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\lambda_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  系陶瓷在室温附近具有很强的压电性, 但从图 5 可以看出 ( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\lambda_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  系陶瓷的剩余极化  $P_r$  和矫顽场  $E_c$  随温度的升高下降也较快. 在  $80^\circ\text{C}$  附近, 剩余极化约降到  $11 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ , 在  $120^\circ\text{C}$  附近, 剩余极化只有  $3 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  左右. 电滞回线的测量表明, 溶胶-凝胶工艺制备的( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\lambda_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  系陶瓷在  $100^\circ\text{C}$  以上铁电性已很微弱, 这

必然导致材料在  $100^\circ\text{C}$  以上的压电性的逐渐消失. 值得一提的是, 在本文实验中, 直到温度升高到  $160^\circ\text{C}$ , 也没有观测到文献 [1] 中曾报道的双电滞回线, 因此我们认为  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  系材料在较高温度时, 可能不存在反铁电相<sup>[9, 10]</sup>. 此外, 在最新的关于  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  结构相变的报道中<sup>[11]</sup>, 精细的中子衍射分析也没有发现反铁电相存在的证据, 这一结果与本文的测量结论一致.

图 7 示出溶胶-凝胶工艺制备的( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\lambda_{-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷的热释电系数随温度的变化. 从图 7

可以看出,对于用溶胶-凝胶工艺制备的  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  ( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}$ )<sub>0.94</sub> $\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  和 ( $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}$ )<sub>0.92</sub> $\text{Ba}_{0.08}\text{TiO}_3$  系陶瓷,其热释电峰分别出现在 130℃、80℃ 和 60℃ 附近.这一实验结果反映出该三种样品的退极化温度分别在 130℃、80℃ 和 60℃ 附近,且在一定范围内,  $\text{Ba}^{2+}$  取代  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})^+$  的增加使得材料的退极化温度降低.然而,从我们电滞回线的测量结果来看<sup>[10]</sup> 样品在退极化温度附近仍具有较大的剩余极化,似乎退极化温度应该更高一些.分析其中的原因,我们认为,由于  $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$  系陶瓷在介电平台

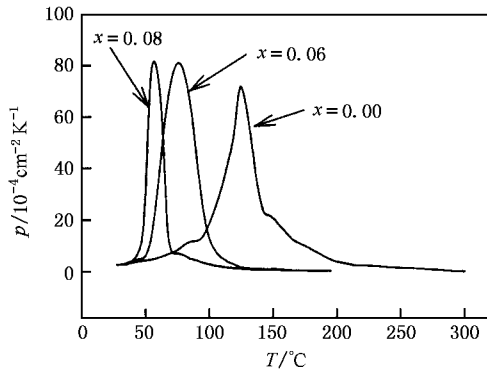


图 7 溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷的热释电系数  $p$  随温度的变化

温度以下呈现出弛豫型铁电体的特征<sup>[12,13]</sup>,因而电畴的稳定性较差,这种稳定性较差的电畴是该类材料退极化温度较低的根源.

## 4. 结 论

本文研究了使用溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系无铅压电陶瓷.研究发现,尽管 Ba 的掺杂使得溶胶-凝胶过程受到一定的影响,但用这种工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  系陶瓷仍然显示出超过传统工艺制备的陶瓷的压电性能.用这种工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  系陶瓷具有较大的剩余极化,  $P_r = 25 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  和较小的矫顽场,  $E_c = 28 \text{kV}/\text{cm}$ , 并因为室温处于三角-四方准同型相界附近而具有该系列材料最大的压电常数.在  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  系陶瓷中获得的压电常数  $d_{33}$  为  $173 \times 10^{-12} \text{C}/\text{N}$ , 这一数值比传统工艺制备的样品提高了接近 40%. 不过,尽管使用溶胶-凝胶工艺制备的  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  系陶瓷的介电峰值处于 300℃ 附近,但由于该材料在 120℃ 附近发生类似于弛豫型铁电体的介电反常,从而使得该材料的退极化温度较低,约为 80℃.

[1] Takenaka T, Maruyama K and Sakata K 1991 *Japan. J. Appl. Phys.* **30** 2236  
 [2] Sasaki A, Chiba T, Mamiya Y and Otsuki E 1999 *Japan. J. Appl. Phys.* **38** 5564  
 [3] Zhao M L, Wang C L, Zhong W L, Wang J F and Chen H C 2002 *Japan. J. Appl. Phys.* **41** 1455  
 [4] Herabut A and Safar A 1997 *J. Am. Ceram. Soc.* **80** 2954  
 [5] Takenaka T 1999 *Ferroelectrics* **230** 87  
 [6] Chu B J et al 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 2012 (in Chinese) [ 初宝进等 2001 物理学报 **50** 2012 ]

[7] Kuharuangrong S 2001 *J. Mater. Sci.* **36** 1727  
 [8] Suchanicz J 2001 *J. Mater. Sci.* **36** 1981  
 [9] Zhao M L et al 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1856 (in Chinese) [ 赵明磊等 2002 物理学报 **51** 1856 ]  
 [10] Zhao M L et al 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 229 (in Chinese) [ 赵明磊等 2003 物理学报 **52** 229 ]  
 [11] Jones G O and Thomas P A 2002 *Acta Cryst. B* **58** 168  
 [12] Cross L E 1987 *Ferroelectrics* **76** 241  
 [13] Yao X, Chen Z L and Cross L E 1983 *J. Appl. Phys.* **54** 3399

# Enhanced piezoelectric properties of $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$ lead-free ceramics by sol-gel method<sup>\*</sup>

Zhao Ming-Lei Wang Chun-Lei Wang Jin-Feng Chen Hong-Cun Zhong Wei-Lie

(School of Physics and Microelectronics and State Key Laboratory of Crystal Materials, Shandong University, Jinan 250100, China)

(Received 28 February 2003; revised manuscript received 8 August 2003)

## Abstract

The dielectric, piezoelectric, ferroelectric and pyroelectric properties of  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{1-x}\text{Ba}_x\text{TiO}_3$  ( $x = 0.00, 0.04, 0.06, 0.08, 0.12$ ) ceramics prepared by sol-gel method were investigated. It was found that all the samples in this experiment show improved piezoelectric properties, obtained by using this chemical method. For  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  ceramic, as its composition is near the morphotropic phase boundary (MPB), it shows the largest piezoelectric constant,  $d_{33} = 173 \times 10^{-12} \text{C/N}$ , which is about 40% improvement compared to the conventional processed ceramics in this system. In addition, from the ferroelectric and pyroelectric measurements, the remanent polarization  $P_r$ , coercive field  $E_c$  and depolarization temperature  $T_d$  of the  $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.94}\text{Ba}_{0.06}\text{TiO}_3$  ceramic were found to be  $25 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ ,  $28 \text{kV}/\text{cm}$ , and  $80^\circ\text{C}$ , respectively.

**Keywords:** sol-gel, piezoelectric constant, remanent polarization, coercive field

**PACC:** 7740, 7760, 7780

<sup>\*</sup> Project supported by the State Key Development Program for Basic Research of China (Grant No. G1998061408).