ห้องสมุดงานวิจัย สำนักงานคณะกรรมการวิจัยแห่งชาติ
E46269

PHASE TRANSITION IN NORMAL AND RELAXOR FERROELECTRIC MATERIALS

NATTAYA TAWICHAI

DOCTOR OF PHILOSOPHY
IN MATERIALS SCIENCE

THE GRADUATE SCHOOL
CHIANG MAI UNIVERSITY
OCTOBER 2011

b00256104

ห้องสมุดงานวิจัย สำนักงานคณะกรรมการวิจัยแห่งชาติ
E46269

PHASE TRANSITION IN NORMAL AND RELAXOR FERROELECTRIC MATERIALS

NATTAYA TAWICHAI

A THESIS SUBMITTED TO THE GRADUATE SCHOOL IN PARTIAL FULFILLMENT OF THE REQUIREMENTS FOR THE DEGREE OF DOCTOR OF PHILOSOPHY IN MATERIALS SCIENCE

THE GRADUATE SCHOOL
CHIANG MAI UNIVERSITY

OCTOBER 2011

PHASE TRANSITION IN NORMAL AND RELAXOR FERROELECTRIC MATERIALS

NATTAYA TAWICHAI

THIS THESIS HAS BEEN APPROVED
TO BE A PARTIAL FULFILLMENT OF THE REQUIREMENTS
FOR THE DEGREE OF DOCTOR OF PHILOSOPHY
IN MATERIALS SCIENCE

EXAMINING COMMITTEE

.....CHAIRPERSON
Assoc. Prof. Dr. Prasak Thavornyutikarn

.....MEMBER
Prof. Dr. Tawee Tunkasiri

.....MEMBER
Assoc. Prof. Dr. Gobwute Rujijanagul

.....MEMBER
Assoc. Prof. Dr. Jerapong Tontrakoon

.....MEMBER
Asst. Prof. Dr. Kamonpan Pengpat

THESIS ADVISORY COMMITTEE

.....ADVISOR
Assoc. Prof. Dr. Gobwute Rujijanagul

.....CO-ADVISOR
Prof. Dr. Tawee Tunkasiri

.....CO-ADVISOR
Assoc. Prof. Dr. Jerapong Tontrakoon

.....CO-ADVISOR
Asst. Prof. Dr. Kamonpan Pengpat

6 October 2011

© Copyright by Chiang Mai University

ACKNOWLEDGEMENTS

I would like to express my sincere gratitude to the following people without whom this thesis would not have been possible.

First of all, I immensely appreciate the novel and creative ideas that given by my supervisor, Assoc. Prof. Dr. Gobwute Rujijanagul, are indispensable to my research during the period of my Ph.D. candidate in the Department of Physics and Materials Science, Chiang Mai University.

I would like to express my heartfelt gratitude to my co-supervisors Prof. Dr. Tawee Tunkasiri, Assoc. Prof. Dr. Jerapong Tontrakoon and Asst. Prof. Dr. Kamonpan Pengpat, for their invaluable, guidance, inspiration, encouragement and their help in furnishing me with a chance to complete the course of my work.

I would also like to thank the external committee, Assoc. Prof. Dr. Prasak Thavornyutikarn for his advices, comments and suggestions about this thesis. My gratitude also goes to Prof. Dr. John Wang and his research group for being supportive, caring, and helpful in numerous ways during my visit to National University of Singapore, Singapore.

I am truly indebted to my friends and the members of electro-ceramics research group, those have been extremely helpful with their kind assistance and friendships. The active discussions throughout the study were most beneficial and resourceful.

I would also like to express my gratitude to the financial support provided by Office of the Higher Education Commission (OHEC).

Last but not least, I dedicate this Ph.D. thesis to my parents, Mr. Amnart and Mrs. Nittaya Tawichai, the two most special persons in my life. They, not only gave me life, but also fill it with love, kindness support and encourage me in every single way.

Nattaya Tawichai

Thesis Title Phase Transition in Normal and Relaxor Ferroelectric Materials

Author Miss Nattaya Tawichai

Degree Doctor of Philosophy (Materials Science)

Thesis Advisory Committee

Assoc. Prof. Dr. Gobwute Rujijanagul	Advisor
Prof. Dr. Tawee Tunkasiri	Co-advisor
Assoc. Prof. Dr. Jerapong Tontrakoon	Co-advisor
Asst. Prof. Dr. Kamonpan Pengpat	Co-advisor

ABSTRACT

E46269

Ferroelectric materials have been widely studied for various applications. Among many different types of ferroelectric materials, $Ba(Ti_{1-x}Sn_x)O_3$ (BTS) has been shown to possess very good characteristics against electric field and tunable properties. With varying Sn content, this material can exhibit either a normal ferroelectric or relaxor behavior. Therefore, it has attracted great attention recently.

In the present work, lead-free ceramics of $Ba(Ti_{0.9}Sn_{0.1})O_3$: BTS10 with B_2O_3 addition were prepared by a conventional solid state sintering method. The various amounts of B_2O_3 (0.5, 1.0, 2.0 and 3.0 wt.%) were mixed in BTS10 powder and

E46269

sintered with different temperatures. Dielectric and piezoelectric properties of the ceramics were investigated as a function of sintering temperature. Although density of the ceramics was observed to decrease with increasing the sintering temperature, the sample sintered at 1350°C showed maximum dielectric constant of 13900 at the phase transition temperature ~36°C. Higher relative tunability of 83% was also observed at the same condition. But, the ceramics showed a lower piezoelectric coefficient (d_{33}) at a higher sintering temperature.

The phase transition and electrical properties of $Ba(Ti_{0.9}Sn_{0.1})O_3$ ceramics with B_2O_3 added were investigated to explore the effect of B_2O_3 addition on enhanced densification and dielectric constant of these ceramics. With increasing B_2O_3 content, a linear reduction of ferroelectric to paraelectric transition temperature was observed. In addition, higher B_2O_3 concentrations enhanced a ferroelectric relaxor behavior in the ceramics. Changes in this behavior were related to densification, second-phase formation and compositional variation of the ceramics.

Moreover, the posted sintered annealing method was applied for B_2O_3 doped $Ba(Ti_{0.9}Sn_{0.1})O_3$ ceramics. The ceramics were fabricated via a solid state reaction method: sintered at 1350°C for 24h followed by annealing at 1100°C for 4-32 h. Many electrical properties of the ceramics annealed at various annealing times were investigated with a variety of methods. Annealing for 4h produced a sharper phase transition with high dielectric constant. The high dielectric constant of 27,000 was recorded at ferroelectric to paraelectric phase transition temperature of 38°C. This sample also showed a high dielectric tunability of 70%. Ferroelectric performance of

E46269

the sample was also improved. The improvements in electrical properties were related to the chemical homogeneity of the sample after annealing.

Finally, the wide ranges of frequency (0.1 Hz-1MHz) and temperature (20-280°C) dependence of the impedance relaxation were investigated. The impedance study indicates the presence of dielectric relaxation both grain and grain boundary effects in the material. The relaxation times for grain and grain boundary estimated from Col-Cole plots varied with temperature according to the Arrhenius relation. The activation energy for grain and grain boundary were estimated to be 0.73 and 0.85 eV, respectively.

ชื่อเรื่องวิทยานิพนธ์ การเปลี่ยนวัฏภาคในวัสดุเฟร์โรอิเล็กทริกแบบปกติและแบบรีแลกเซอร์

ผู้เขียน นางสาวณัฐยา ต๊ะวิไชย

ปริญญา วิทยาศาสตรดุษฎีบัณฑิต (วัสดุศาสตร์)

คณะกรรมการที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์

รศ.ดร.กอบวุฒิ รุจิจนากุล	อาจารย์ที่ปรึกษาหลัก
ศ.ดร.ทวี ตันฑศิริ	อาจารย์ที่ปรึกษาร่วม
รศ.ดร.จีระพงษ์ ตันตระกูล	อาจารย์ที่ปรึกษาร่วม
ผศ.ดร.กมลพรรณ เพ็งพัด	อาจารย์ที่ปรึกษาร่วม

บทคัดย่อ

E46269

การศึกษาสารเฟร์โรอิเล็กทริกเพื่อประยุกต์ใช้ในอุปกรณ์ต่างๆเป็นไปอย่างแพร่หลาย จากจำนวนสารเฟร์โรอิเล็กทริกที่มีมากมายหลายกลุ่ม แบเรียมสแทนเนตทิทาเนต $Ba(Ti_{1-x}Sn_x)O_3$ เป็นอีกหนึ่งวัสดุที่แสดงสมบัติเฉพาะและความสามารถในการเปลี่ยนแปลงที่ดีภายใต้อิทธิพลของสนามไฟฟ้า วัสดุชนิดนี้สามารถแสดงพฤติกรรมของทั้งสารเฟร์โรอิเล็กทริกแบบปกติและแบบรีแลกเซอร์ตามการเปลี่ยนแปลงปริมาณดีบุก ซึ่งทำให้สารชนิดนี้ได้รับความสนใจเป็นอย่างมาก

ในงานนี้ ได้ทำการเตรียมเซรามิกปลอดสารตะกั่วในระบบ $Ba(Ti_{0.9}Sn_{0.1})O_3$ หรือเรียกว่า BTS10 ที่เจือด้วยออกไซด์ของโบรอน ด้วยวิธีผสมของแข็งแบบดั้งเดิม ผง BTS10 ผสมกับผงออกไซด์ของโบรอน ในปริมาณร้อยละ 0.5 1.0 2.0 และ 3.0 โดยน้ำหนัก และทำการเผาผนึกด้วยอุณหภูมิต่างๆกัน จากนั้นศึกษาสมบัติไดอิเล็กทริกและไพอิโซอิเล็กทริกของเซรามิกที่ได้เทียบกับอุณหภูมิเผาผนึก พบว่าค่าความหนาแน่นของเซรามิกลดลงเมื่ออุณหภูมิเผาผนึกสูงขึ้น ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกสูงสุดที่ 13900 พบได้ในชิ้นงานที่เผาผนึกด้วยอุณหภูมิ 1350 องศาเซลเซียส ณ อุณหภูมิการ

E46269

เปลี่ยนวัฏภาคที่ประมาณ 36 องศาเซลเซียส ค่าความสามารถในการปรับเปลี่ยนได้สัมพัทธ์ (relative tunability) มีค่าสูงสุดร้อยละ 83 ในชิ้นงานที่เผาผนึกด้วยอุณหภูมิเดียวกัน แต่ค่าสัมประสิทธิ์ไพอิโซอิเล็กทริก (d_{33}) มีค่าลดลงเมื่ออุณหภูมิเผาผนึกสูงขึ้น

เมื่อศึกษาการเปลี่ยนวัฏภาคและสมบัติทางไฟฟ้าของเซรามิกปลอดสารตะกั่วในระบบ $Ba(Ti_{0.9}Sn_{0.1})O_3$ เปลี่ยนแปลงตามปริมาณออกไซด์ของโบรอน พบว่าการเติมออกไซด์ของโบรอนกระตุ้นให้เกิดการแน่นตัวของเซรามิกมากขึ้น นอกจากนี้ปริมาณออกไซด์ของโบรอนที่เพิ่มขึ้นทำให้อุณหภูมิการเปลี่ยนวัฏภาคจากเฟร์โรอิเล็กทริกเป็นพาราอิเล็กทริกลดลงแบบเชิงเส้น นอกจากนี้ปริมาณออกไซด์ของโบรอนที่มากขึ้นส่งผลให้เกิดพฤติกรรมแบบรีแลกเซอร์ในเซรามิก การเปลี่ยนแปลงเหล่านี้สัมพันธ์กับค่าความหนาแน่น การเกิดวัฏภาคที่สองและการเปลี่ยนแปลงองค์ประกอบในเซรามิกปลอดสารตะกั่วในระบบ $Ba(Ti_{0.9}Sn_{0.1})O_3$

นอกเหนือจากอุณหภูมิเผาผนึกและปริมาณออกไซด์ของโบรอนที่มีผลต่อเซรามิกแล้ว กระบวนการอบอ่อนหลังการเผาผนึกมีผลเป็นอย่างมากต่อเซรามิกปลอดสารตะกั่วในระบบ $Ba(Ti_{0.9}Sn_{0.1})O_3$ เซรามิกที่ผ่านการเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1350 องศาเซลเซียส เป็นเวลานาน 24 ชั่วโมง จากนั้นทำการอบอ่อนที่อุณหภูมิ 1100 องศาเซลเซียส เป็นเวลานาน 4-32 ชั่วโมง เมื่อทำการศึกษาสมบัติทางไฟฟ้าของเซรามิกที่ผ่านการอบอ่อนพบว่า ชิ้นงานที่ผ่านการอบอ่อนเป็นเวลานาน 4 ชั่วโมง ทำให้เกิดการเปลี่ยนวัฏภาคอย่างฉับพลันและทำให้ชิ้นงานมีค่าไดอิเล็กทริกสูง ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกสูงสุดที่ 27000 พบ ณ อุณหภูมิการเปลี่ยนวัฏภาคจากเฟร์โรอิเล็กทริกเป็นพาราอิเล็กทริกที่ประมาณ 38 องศาเซลเซียส ค่าความสามารถในการปรับเปลี่ยนได้สัมพัทธ์ มีค่าสูงสุดร้อยละ 70 ในชิ้นงานที่ผ่านการอบอ่อนด้วยเงื่อนไขเดียวกัน การปรับปรุงสมบัติทางไฟฟ้าสัมพันธ์กับความเป็นเนื้อเดียวกันขององค์ประกอบทางเคมีของชิ้นงานที่ผ่านการอบอ่อน

ในตอนท้าย ได้ทำการตรวจสอบอิมพิแดนซ์รีแลกเซชั่นของเซรามิกปลอดสารตะกั่วในระบบ $Ba(Ti_{0.9}Sn_{0.1})O_3$ เทียบกับความถี่ในช่วง 0.1 เฮิร์ซ ถึง 1 เมกะเฮิร์ซ และอุณหภูมิระหว่าง 20 องศาเซลเซียส ถึง 280 องศาเซลเซียส พบว่าเกิดไดอิเล็กทริกรีแลกเซชั่นทั้งในเกรนและขอบเกรน เวลาที่เกิดรีแลกเซชั่นในเกรนและขอบเกรนสามารถประมาณได้จากกราฟ Cole-Cole ที่เปลี่ยนแปลงตามอุณหภูมิและเป็นไปตามความสัมพันธ์ของอาร์เรเนียส (Arrhenius relation)

E46269

พลังงานก่อกัมมันต์ (Activation energy) ของเกรนและขอบเกรนมีค่าประมาณ 0.73 และ 0.85 อิเล็กตรอนโวลต์ ตามลำดับ

TABLE OF CONTENTS

		Page
ACKNOWLEDGEMENT		iii
ABSTRACT (ENGLISH)		v
ABSTRACT (THAI)		viii
LIST OF TABLES		xv
LIST OF FIGURES		xvi
ABBREVIATIONS AND SYMBOLS		xxiii
CHAPTER 1	**INTRODUCTION**	
	1.1 Background	1
	1.2 The scope of thesis	2
	1.3 References	3
CHAPTER 2	**LITERATURE REVIEW**	
	2.1 Dielectric response of materials	6
	2.2 Piezoelectricity	10
	2.3 Ferroelectricity	11
	2.4 Phase transition in ferroelectrics and relaxor materials	13
	2.5 Tunable devices	18
	2.6 Impedance spectroscopy	20
	2.7 Perovskite-oxide type	25
	2.8 Barium stannate titanate ceramics: $Ba(Ti_{1-x}Sn_x)O_3$ ceramics	26

	2.9	References	29
CHAPTER 3	**EXPERIMENTAL TECHNIQUES**		
	3.1	Sample preparation	33
	3.2	Sample characterization	35
		3.2.1 The X-ray diffraction technique (XRD)	35
		3.2.2 Densification analysis	36
		3.2.3 Scanning electron microscopy (SEM)	37
		3.2.4 Hardness measurement	38
		3.2.5 Dielectric measurement	39
		3.2.6 Piezoelectric measurement	40
		3.2.7 Ferroelectric measurement	40
		3.2.8 Complex impedance spectroscopy	40
	3.3	References	41
CHAPTER 4	**INFLUENCE OF SINTERING TEMPERATURE ON DIELECTRIC AND PIEZOELECTRIC PROPERTIES OF B_2O_3 DOPED $Ba(Ti_{0.9}Sn_{0.1})O_3$ CERAMICS**		
	4.1	Introduction	42
	4.2	Experimental	43
	4.3	Results and discussion	44
	4.4	Conclusions	61
	4.5	References	62
CHAPTER 5	**INFLUENCE OF B_2O_3 ON ELECTRICAL PROPERTIES AND PHASE TRANSITION OF LEAD-FREE $Ba(Ti_{0.9}Sn_{0.1})O_3$ CERAMICS**		
	5.1	Introduction	63

	5.2	Experimental	65
	5.3	Results and discussion	66
		5.3.1 Phase formation and densification	66
		5.3.2 Dielectric properties	69
		5.3.3 Phase transition studies	71
		5.3.4 Ferroelectrics and piezoelectric properties	73
	5.4	Conclusions	76
	5.5	References	77
CHAPTER 6	**THE EFFECT OF ANNEALING TREATMENT ON THE ELECTRICAL PROPERTIES AND PHASE TRANSITION OF B_2O_3 DOPED LEAD-FREE $Ba(Ti_{0.9}Sn_{0.1})O_3$ CERAMICS**		
	6.1	Introduction	81
	6.2	Experimental	82
	6.3	Results and discussion	83
	6.4	Conclusions	92
	6.5	References	92
CHAPTER 7	**FERROELECTRIC RELAXOR BEHAVIOUR AND IMPEDANCE SPECTROSCOPY OF B_2O_3 -DOPED $BATI_{0.9}SN_{0.1}O_3$ CERAMICS**		
	7.1	Introduction	95
	7.2	Experimental procedure	97
	7.3	Results and discussion	97
		7.3.1 Structural properties	97
		7.3.2 Relaxation behavior	99
	7.4	Conclusions	110

7.5 References 111

CHAPTER 8 CONCLUSION 115

CURRICULUM VITAE 117

LIST OF TABLES

Table		Page
3.1	Specifications of the starting powders used in this study	33
4.1	Electrical properties of 1.0 wt.% B_2O_3 doped-BTS10 ceramics.	53
5.1	Electrical properties of B_2O_3 doped BTS10 ceramics	71
7.1	Calculated parameters from the Cole-Cole plots at 280°C.	108
7.2	Activation energies of B_2O_3 doped-BTS10 ceramics.	110

LIST OF FIGURES

Figure		Page
2.1	Schematic representations of electronic polarization.	7
2.2	Schematic representations of ionic polarization.	7
2.3	Schematic representations of dipolar polarization.	8
2.4	Schematic representations of space charge polarization.	9
2.5	Polarization mechanisms vary with different frequency.	9
2.6	Piezoelectric effects; (a) direct effect, (b) converse effect.	10
2.7	A typical hysteresis loop illustrating the coercive field E_c, spontaneous polarization P_s and remanent polarization P_r.	12
2.8	Temperature dependence of reciprocal dielectric constant and polarization in (a) first order transition and (b) second order transition.	15
2.9	Temperature dependence of relative dielectric constant of ferroelectrics at transition temperature.	16
2.10	Contrast between the properties of (a) normal FEs and (b) relaxors.	17
2.11	Characteristic properties of DPT and relaxor ferroelectrics.	18
2.12	Schematic view of a typical tunable device.	19
2.13	The equivalent circuit model; R_s is electrode's resistance; R_p is material's resistance; C is material's capacitance.	22

2.14	Cole-Cole plot of an ideal non-polar dielectric material.	23
2.15	The equivalent circuit of a complex dielectric material; R_g: resistance of grain interior, C_g: capacitance of grain interior, R_{gb} resistance of grain boundary, C_{gb}: capacitance of grain boundary, R_e resistance of electrode, C_e: capacitance of electrode.	24
2.16	Cole-Cole plot of a complex dielectric material.	24
2.17	Cubic perovskite structure represented as (a) unit cell of ABO_3 and (b) network of BO_6 octahedra.	26
2.18	$BaTiO_3$ exhibits dielectric behavior with temperature change.	27
3.1	Schematic diagram of the experimental procedure of BTS10 sample.	34
4.1	X-ray diffraction patterns of 0.5 wt.% B_2O_3 doped BTS10.	45
4.2	X-ray diffraction patterns of 1.0 wt.% B_2O_3 doped BTS10.	45
4.3	X-ray diffraction patterns of 2.0 wt.% B_2O_3 doped BTS10.	46
4.4	SEM of the 0.5 wt.% B_2O_3doped BTS10 .	46
4.5	Grain size and density as a function of sintering temperature for 0.5 wt.% B_2O_3 doped-BTS10 ceramics.	47
4.6	Bulk density as a function of sintering temperature for 1.0 wt.% B_2O_3 doped-BTS10 ceramics.	48
4.7	SEM of the 1.0 wt.% B_2O_3 doped-BTS10 ceramics sintered at: (a)1250°C, (b)1350°C and (c)1450°C.	49

4.8	Grain size as a function of sintering temperature for 2.0 wt.% B_2O_3 doped BTS10 ceramics.	49
4.9	Temperature dependence of the dielectric constant and loss for the 0.5wt.% B_2O_3 doped-BTS10 ceramics for various sintering temperatures.	51
4.10	Temperature dependence of the dielectric constant and loss for the 1.0wt.% B_2O_3 doped-BTS10 ceramics for various sintering temperatures.	52
4.11	Temperature dependence of the dielectric constant and loss for the 2.0wt.% B_2O_3 doped-BTS10 ceramics for various sintering temperatures.	53
4.12	T_{max} and $\varepsilon_{r,max}$ for the 2.0 wt.% B_2O_3doped-BTS10 ceramics.	54
4.13	Diffuseness parameter calculated from the ln $(\varepsilon_{r,max}/\varepsilon_r)$ versus $(T- T_m)^2$ curve.	55
4.14	ε_r-E characteristics of 0.5 wt.% B_2O_3 doped-BTS10 ceramics.	56
4.15	Tunability and relative tunability measured of the 0.5 wt.% B_2O_3 doped-BTS10 ceramics sintered at various temperatures.	57
4.16	Tunability and relative tunability measured of the 2.0 wt.% B_2O_3 doped-BTS10 ceramics sintered at various temperatures.	58
4.17	Piezoelectric constant (d_{33}) of BTS10 ceramics doped with 0.5 wt.% B_2O_3 for various sintering temperatures.	59

4.18	Sintering temperature dependence of Vicker hardness.	61
5.1	XRD patterns at room temperature of BTS10 ceramics as a function of B_2O_3.	67
5.2	Variation of lattice parameter as a function of B_2O_3 content.	68
5.3	Density and porosity of sintered samples as a function of B_2O_3 content.	69
5.4	Dielectric constant versus temperature for BTS10 ceramics with differing amounts of B_2O_3 contents	70
5.5	Transition temperature (T_m) and maximum dielectric constant ($\varepsilon_{r,max}$) of the ceramics as a function of B_2O_3 content.	72
5.6	Dependence of the polarization versus electric field (*P-E*) loop on the B_2O_3 dopant concentration.	74
5.7	Leakage current density as a function of voltage for B_2O_3-doped BTS10 ceramics.	75
5.8	Variation of Vickers hardness number with B_2O_3 content.	76
6.1	X-ray powder diffraction patterns of BTS10 - 1wt.% B_2O_3 at room temperature as a function of annealing time. Impurity phases are indicated by (*).	84
6.2	(a)-(d) Variation of the dielectric constant and loss with temperature and frequency for the ceramics annealing at various times.	85

6.3	The maximum dielectric constant and transition temperature of BTS10-1wt% B_2O_3 as a function of annealing time.	86
6.4	Quadratic dependence of temperature on logarithmic dielectric of the samples at 1 kHz as a function of annealing time.	87
6.5	Capacitance-applied voltage characteristics of the ceramics annealed at various times.	88
6.6	Relative tunability and density as a function of annealing time of the samples.	89
6.7	Dependence of the polarization versus electric field (*P-E*) loop of the samples.	90
6.8	Variation of remanent polarization, P_r and coercive field, E_c of ceramics annealed at various times.	91
7.1	Surface morphology of barium stannate titanate ceramics with different B_2O_3 addition.	98
7.2	Frequency depencence of imaginary part of complex impedance Z″ for 0wt.%B_2O_3-doped BTS10 ceramic at different temperatures.	100
7.3	Frequency depencence of imaginary part of complex impedance Z″ for 2wt.%B_2O_3-doped BTS10 ceramic at different temperatures.	101
7.4	Frequency depencence of imaginary part of complex impedance Z″ for 3wt.%B_2O_3-doped BTS10 ceramic at different temperatures.	101

7.5	Frequency dependence of imaginary part of electrical modulus M″ for 3wt.%B_2O_3-doped BTS10 ceramic at different temperatures.	102
7.6	Combined spectroscopic plots of the imaginary components of impedance Z'' and electric modulus M'' for 3wt.%B_2O_3-doped BTS10 ceramic at 280°C.	103
7.7	Complex impedance plane plots for 3wt.%B_2O_3-doped BTS10 ceramic at different temperatures.	105
7.8	The model of equivalent circuit used for fitting of complex impedance plane plots for 3 wt.%B_2O_3-doped BTS10 ceramic at 280°C.	106
7.9	Complex impedance plane plots for different compositions of B_2O_3-doped BTS10 ceramic at 280°C.	107
7.10	Arrhenius plot of grain relaxation time for B_2O_3-doped BTS10 ceramic at 280°C.	109
7.11	Arrhenius plot of grain boundary relaxation time for B_2O_3-doped BTS10 ceramic at 280°C.	109