บทคัดย่อ

รหัสโครงการ : MRG5380225

ชื่อโครงการ : การประดิษฐ์และการหาลักษณะเฉพาะของเซรามิก เลดนิกเกิลไนโอเบต-เลดเซอร์โคเนตไทเทเนต โดยใช้เทคนิคการเผาซินเทอร์แบบสองขั้นตอน

ชื่อนักวิจัย : ดร. อรวรรณ คำมั่น

ภาควิชาฟิสิกส์และวัสดุศาสตร์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยเชียงใหม่

e-mail address: orawankhamman@yahoo.com

ระยะเวลาโครงการ : 15 มิถุนายน 2553 – 14 มิถุนายน 2555

ในงานวิจัยนี้ได้ทำการศึกษาผลของการใช้เทคนิคการเผาผนึกแบบสองขั้นตอน (two-stage sintering) ที่มีต่อการเกิดเฟส ลักษณะโครงสร้างทางจุลภาค และสมบัติไดอิเล็กทริกของเซรามิกเลดนิกเกิลไนโอเบต-เลดเซอร์โคเนตไทเทเนต ((1-*x*)Pb($Ni_{1/3}Nb_{2/3}$)O_3-*x*Pb($Zr_{1/2}Ti_{1/2}$)O_3 หรือ (1-*x*)PNN-*x*PZT) เมื่อ x = 0.6, 0.7, 0.8, 0.9 และ 1.0 เซรามิกดังกล่าวจะถูกเตรียมด้วยวิธีผสมออกไซด์ (mixed oxide) เริ่มจากการนำผงผสมไปทำการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 950 °C เป็นเวลานาน 4 ชั่วโมง ด้วยอัตราขึ้น/ลงของอุณหภูมิ 5 °C/min ในส่วนของการเผาผนึกแบบธรรมดา (normal sintering) จะทำการเผาที่อุณหภูมิเดียว คือ 1200 °C แต่สำหรับการเผาด้วยเทคนิค two-stage sintering จะใช้อุณหภูมิในการเผาครั้งแรกในช่วงอุณหภูมิ 850-1150 °C และอุณหภูมิในการเผาครั้งที่สอง จะเผาที่อุณภูมิ 1200 °C เท่านั้น ในเซรามิกทุกๆ อัตราส่วนผสม

การศึกษาการเกิดเฟสในเซรามิก จะอาศัยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ (*X*-ray diffraction technique; XRD) ในการวิเคราะห์ผลการทดลอง พบว่า เซรามิกที่

มีเฟสเดียว (single phase) จะได้จากการเตรียมที่อาศัยการเผาด้วยเทคนิค two-stage sintering เท่านั้น ดังนั้นเทคนิคนี้ อาจเป็นวิธีที่เลี่ยงทำให้ไม่เกิดการเกิดเฟสไพโรคลอร์ (pyrochlore) สำหรับการหาค่าความหนาแน่นของชิ้นงานนั้น จะอาศัยหลักการอาร์คีมิดีส (Archimedes) พบว่า เมื่อทำการเพิ่มอุณภูมิในการเผาซินเทอร์ครั้งแรกในสูงขึ้น จะมีผลทำให้ค่าความหนาแน่นของชิ้นงานมีค่าลดลง สำหรับขนาดของเกรนและโครงสร้างจุลภาคของเซรามิกที่เตรียมโดยวิธีการเผาด้วยเทคนิค two-stage sintering นั้น จะมีค่าเพิ่มขึ้นเมื่อมีปริมาณของสาร PZT ในระบบที่มากขึ้น จึงสรุปได้ว่า เซรามิกที่มีความบริสุทธิ์และมีความแน่นตัวสูงจะสามารถเตรียมได้จากเทคนิคการเผาด้วยเทคนิค two-stage sintering สำหรับสมบัติทางไดอิเล็กทริกของเซรามิกที่เตรียมได้ จะทำการวัดที่อุณหภูมิและความถี่ต่างๆ พบว่า ผลการทดลองที่ได้เป็นลักษณะเฉพาะของสารเฟร์โรอิเล็กทริก ซึ่งมีทั้งแบบ normal และ relaxor ผสมกัน และอุณหภูมิการเปลี่ยนเฟสของสารระบบนี้ จะอยู่ที่ประมาณ 281 ºC ที่อัตราส่วน $x = 0.8$ ซึ่งมีค่าคงที่ไดอิเล็กทริก เท่ากับ 25064 ณ ความถี่ 1 kHz จากผลการทดลองทั้งหมดงานวิจัยนี้พบว่า เงื่อนไขการเผาซินเทอร์ที่ดีที่สุด เพื่อให้ได้เซรามิกที่มีความแน่นตัวสูง คือที่เงื่อนไขการเผาซินเทอร์ที่อุณหภูมิ 850/1200 ºC เป็นเวลานาน 2 ชั่วโมง และใช้อัตราขึ้น/ลงของอุณหภูมิ 5 ºC /min ด้วยเทคนิคการเผาแบบ two-stage sintering

คำหลัก : เฟร์โรอิเล็กทริก, การเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์, เทคนิคการเผาซินเทอร์แบบสองขั้นตอน

Abstract

Project Code : MRG5380225

Project Title : Fabrication and Characterizations of Lead Nickel Niobate-Lead Zirconate Titanate Ceramics by Using Two-stage Sintering Technique

Investigator : Dr. Orawan Khamman

Department of Physics and Materials Science, Faculty of Science, Chiang Mai University

E-mail Address : orawankhamman@yahoo.com

Project Period : 15 June 2011 – 14 June 2012

This research studied the effects of a two-stage sintering technique on phase formation, microstructure and dielectric properties of lead nickel niobate-lead zirconate titanate ((1-*x*)Pb($Ni_{1/3}Nb_{2/3}$)O_3-*x*Pb($Zr_{1/2}Ti_{1/2}$)O_3 or (1-*x*)PNN-*x*PZT) ceramics when x = 0.6, 0.7, 0.8, 0.9 and 1.0 The ceramics were prepared using mixed-oxide method. The mixed powders were calcined at 950 ºC for 4 h with heating/cooling rates of 5 ºC /min. The normal sintering technique was carried out at a 1200 ºC single temperature. For the two-stage sintering, the first sintering temperature (T_1) was varied from 850 ºC to 1150 ºC whereas the second sintering temperature (T_2) was assigned at 1200 ºC for all cases.

The phase formation of the ceramics was investigated using *X*-ray diffraction technique (XRD). It was found that the single phase of (1-*x*)PNN-*x*PZT ceramics in all composition can be obtained via only two-stage sintering

technique. Therefore, this two-stage sintering method was also able to avoid the pyrochlore formation. Densities of the sintered products were determined by using the Archimedes principle. It was evident that the first sintering temperature (T_1) increased, the density of almost all the samples decreased. The grain size and microstructure of the ceramics were examined by scanning electron microscopy (SEM). The grain size of two-stage sintered ceramics was found to increase with an increasing PZT content. The pure and highly dense ceramics with two-stage sintering were better than those obtained from the normal sintering. The dielectric properties of these ceramics were measured as functions of both temperature and frequency. It was found that the results exhibited a mixture of both normal and relaxor characteristics. The maximum transition temperature of this system was 281 ºC at the composition x = 0.8 with the relative permittivity of 25064 at 1 kHz. Consequently, this work suggested that the optimum condition for forming the highly dense (1-x)PNN-xPZT ceramics was double-sintering temperatures at 850/1200 ºC, 2 h dwell time, and 5 ºC /min heating/cooling rates.

Keywords : ferroelectrics, *X*-ray diffraction, two-stage sintering technique

Executive Summary

โครงการวิจัยนี้มุ่งทำการศึกษาการประดิษฐ์และการหาลักษณะเฉพาะของเซรามิกเลดนิกเกิลไนโอเบต-เลดเซอร์โคเนตไทเทเนต ($(1-x)Pb(Ni_{1/3}Nb_{2/3})O_3$-$xPb(Zr,Ti)O_3$ หรือ (1-*x*)PNN-*x*PZT) โดยอาศัยเทคนิคการเผาซินเทอร์แบบสองขั้นตอน (two-stage sintering) เป็นองค์ประกอบหลัก พร้อมทั้งศึกษาอิทธิพลของเทคนิคและเงื่อนไขของการเผาซินเทอร์ที่มีต่อเฟส ความแน่นตัว โครงสร้างจุลภาค และสมบัติไดอิเล็กทริกของเซรามิกที่เตรียมได้ ซึ่งจากการทบทวนเอกสารทางวิชาการที่เกี่ยวกับการเผาซินเทอร์แบบ two-stage sintering ในสารระบบอื่นที่ใกล้เคียงนั้น พบว่า เทคนิคดังกล่าวเป็นวิธีที่สามารถเตรียมเซรามิกให้มีความหนาแน่นเพิ่มขึ้นได้ เนื่องจากทำให้การสูญเสียของเลดออกไซด์ (PbO) ลดลง ในระบบสารที่มีเลดออกไซด์เป็นส่วนประกอบ จึงส่งผลให้ความหนาแน่นเซรามิกเพิ่มมากขึ้น อีกทั้งยังส่งผลทำให้ค่าไดอิเล็กทริกที่วัดได้ มีค่าสูงกว่าการเผาซินเทอร์แบบธรรมดา (normal sintering) ซึ่งมีงานวิจัยจำนวนมากที่สามารถยืนยันผลดังกล่าวแล้ว

จากการศึกษาการเตรียมเซรามิก (1-*x*)PNN-*x*PZT ที่อัตราส่วน x = 0.6, 0.7, 0.8, 0.9 และ 1.0 ของงานวิจัยนี้ พบว่า เทคนิคการเผาแบบ two-stage sintering สามารถเตรียมเซรามิก (1-*x*)PNN-*x*PZT ที่มีความบริสุทธิ์สูงได้ และชิ้นงานที่เตรียมได้มีความแน่นตัวมากกว่าเซรามิกที่เตรียมด้วยเทคนิค normal sintering ซึ่งพบว่าชิ้นงานที่เตรียมได้มีค่าความหนาแน่นสูงสุด ที่อัตราส่วน x = 0.6 และเมื่อชิ้นงานมีปริมาณ PZT ในระบบที่มากขึ้น พบว่า เซรามิกจะมีค่าความหนาแน่นที่ลดลง และเมื่อทำการใช้อุณหภูมิการเผาครั้งแรก (T_1) ที่สูงขึ้น จะยิ่งทำให้ค่าความหนาแน่นลดลงเช่นเดียวกัน สำหรับโครงสร้างจุลภาคของเซรามิก (1-*x*)PNN-*x*PZT ที่เตรียมได้จากสองเทคนิคการเผาซินเทอร์นั้น พบว่า ขนาดของเกรนจะเพิ่มขึ้นตามปริมาณของ PZT และยิ่งเมื่อใช้เทคนิค two-stage sintering จะให้เซรามิกที่มีรูพรุนน้อยกว่า อีกทั้งเมื่อใช้อุณหภูมิเผาซินเทอร์ครั้งแรก (T_1) ที่เพิ่มขึ้น พบว่า ขนาดเกรนมีแนวโน้มเพิ่มมากขึ้น สำหรับสมบัติทางไดอิเล็กทริกของเซรามิกที่เผาด้วยเทคนิค two-stage sintering นั้น จะมีค่าคงที่ทางไดอิเล็กทริก (ε_r) ที่สูงกว่าเซรามิกที่เตรียมจากเทคนิค normal sintering เล็กน้อย จากผลการวิจัยสรุปได้ว่าเทคนิคและเงื่อนไขในการเผาซินเทอร์มีความสำคัญต่อคุณภาพของเซรามิก (1-*x*)PNN-*x*PZT ทั้งด้านความสามารถในการขึ้นรูป ความบริสุทธิ์ ความหนาแน่น ลักษณะโครงสร้างทางจุลภาค และสมบัติไดอิเล็กทริกของชิ้นงาน