บทที่ 4
ผลการทดลองและการวิเคราะห์ผล

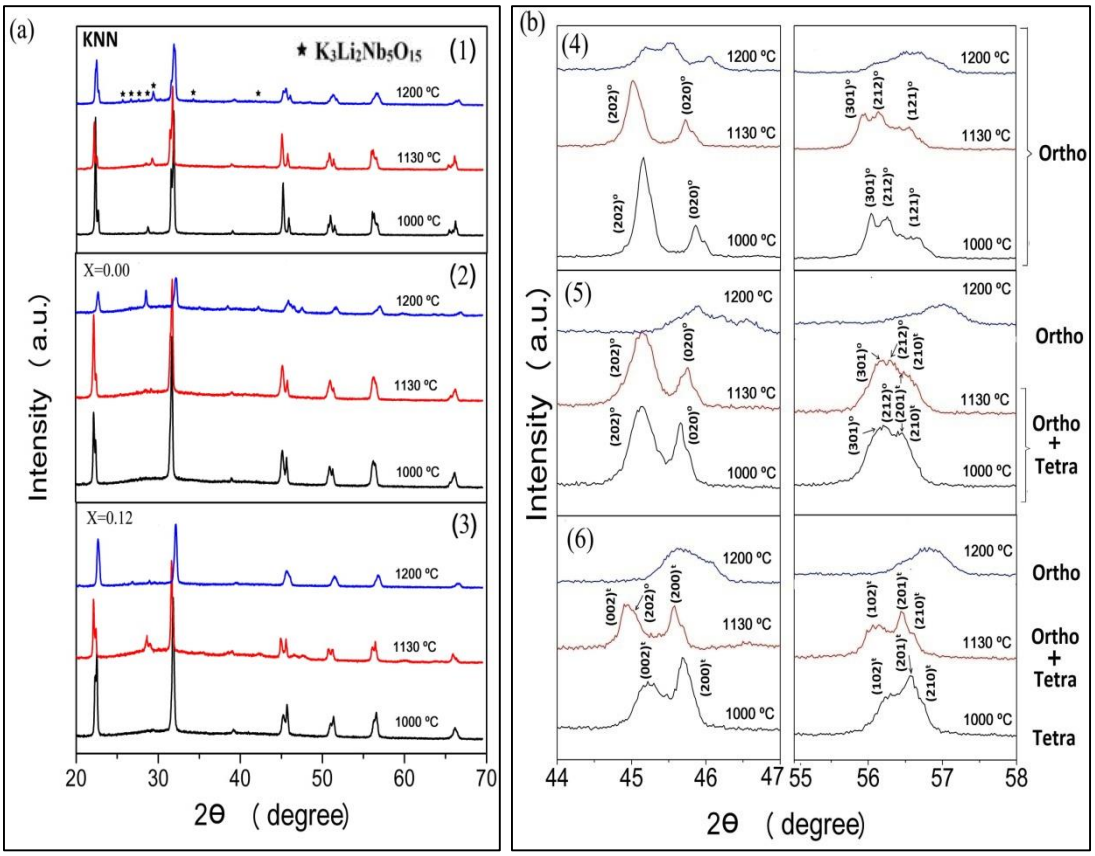
4.1 บทนำ

ในบทนี้เป็นส่วนของผลการทดลอง การวิเคราะห์วัฏภาค การวิเคราะห์โครงสร้างจุลภาค และพฤติกรรมการสับเปลี่ยนทิศทางของโดเมนเนื่องจากความล้าทางไฟฟ้า การเสื่อมสภาพ และผลของการเติมสารเจือแทนทาลัม ในเซรามิก KNN-LST ที่เกิดจากการทดสอบการเกิดความล้า ที่ปริมาณสารเจือแทนทาลัมต่าง ๆ คือ 0.00, 0.04, 0.08, และ 0.12 โมล เทียบกับ KNN ที่สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ต่อความหนา 1 มิลลิเมตร ความถี่ 50 Hz โดยสามารถวิเคราะห์ได้จากการศึกษารูปร่างของวงวนฮีสเทอรีซีส ค่าโพลาไรเซชันคงค้าง (P_r) ค่าสนามไฟฟ้าลบล้าง (E_c) ของวงวนฮีสเทอรีซีสที่เปลี่ยนแปลงไป จากผลการทดลองพบว่าเมื่อปริมาณของแทนทาลัมสูงขึ้นอัตราการเกิดความล้าจะมีค่าลดลงเมื่อเทียบกับปริมาณอื่นที่ทดสอบ ซึ่งการเกิดความล้าทางไฟฟ้านี้มีความเป็นไปได้จากสาเหตุ 2 ประการคือ ผลจากการตรึงของผนังโดเมน (Domain pinning effect) ซึ่งสามารถวิเคราะห์ได้โดยใช้เทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ (XRD) เปรียบเทียบสารตัวอย่างก่อนและหลังทดสอบความล้า อีกประการคือเกิดจากความเสียหายบนผิวอิเล็กโทรดซึ่งบ่งบอกได้จากภาพถ่ายโครงสร้างจุลภาคโดยใช้กล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนชนิดส่องกราด (SEM) โดยมีรายละเอียดดังต่อไปนี้

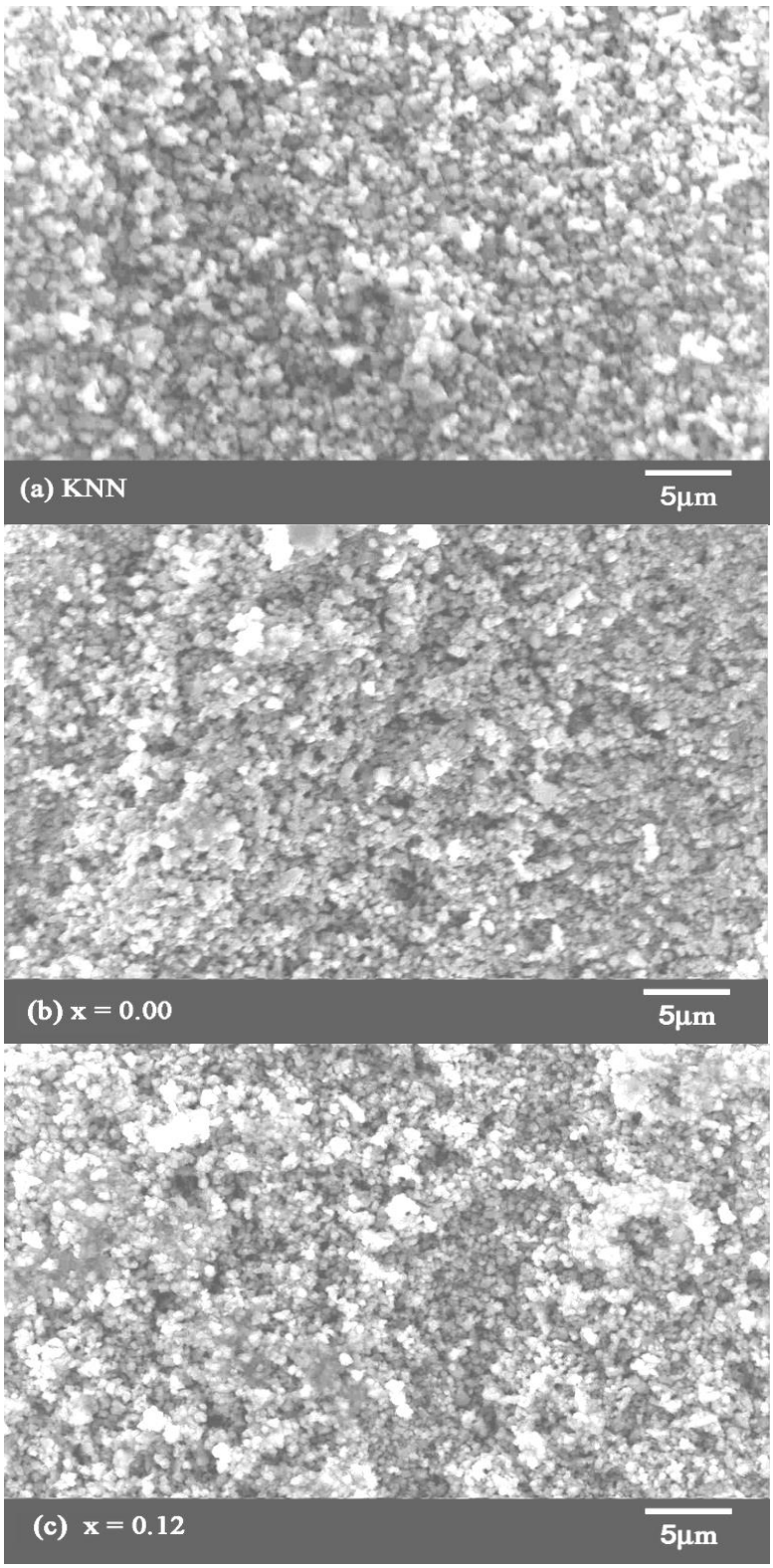
4.2 ทดสอบหาอุณหภูมิเผาผนึกที่เหมาะสม

หลังจากการสังเคราะห์สารตัวอย่างด้วยวิธี Solid state reaction แล้วนำสารตัวอย่างมาวิเคราะห์วัฏภาค ด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ (XRD) โดยการนำสารตัวอย่างที่มีองค์ประกอบทางเคมีต่างกันมาทดสอบคือ KNN สารตัวอย่างเซรามิกที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+} (x=0.00) และ สารตัวอย่างเซรามิกที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.12 โมล (x=0.12) เพื่อตรวจสอบผลการสังเคราะห์สารจากกราฟเอกซ์เรย์ดิฟแฟรกชันที่ 2θ=20-70º พบว่าสารตัวอย่างทั้งหมดมีโครงสร้างเป็นแบบเพอรอฟสไกต์ (perovskite) ทั้ง 3 อุณหภูมิเผาผนึกดังรูปที่ 4.1 และพบว่าเกิดวัฏภาคแปลกปลอม (second phase) คือ $K_3Li_2Nb_5O_{15}$ (JCPDS no. 34-0122) ซึ่งเป็นวัฏภาคที่เกิดจากสารตั้งต้นที่มีโพแทสเซียมคาร์บอเนต (K_2CO_3) มากเกินทำปฏิกิริยากับสารลิเทียมคาร์บอเนต (Na_2CO_3) และไนโอเบียมออกไซด์(Nb_2O_5) เกิดเป็นสารประกอบขึ้นมา ในสารตัวอย่าง KNN พบวัฏภาคแปลกปลอมได้อย่างชัดเจนทุกอุณหภูมิเผาผนึก ดังรูปที่ 4.1 (a-1 และ b-4) สารตัวอย่างเซรามิกที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+} พบที่อุณหภูมิเผาผนึก 1200 ºC ดังรูปที่ 4.1(a-2) และ สารตัวอย่างเซรามิกที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.12 โมล พบที่อุณหภูมิเผาผนึก 1130ºC และ 1200ºC ดังรูปที่ 4.1(a-3) เมื่อพิจารณาโครงสร้างจากกราฟ

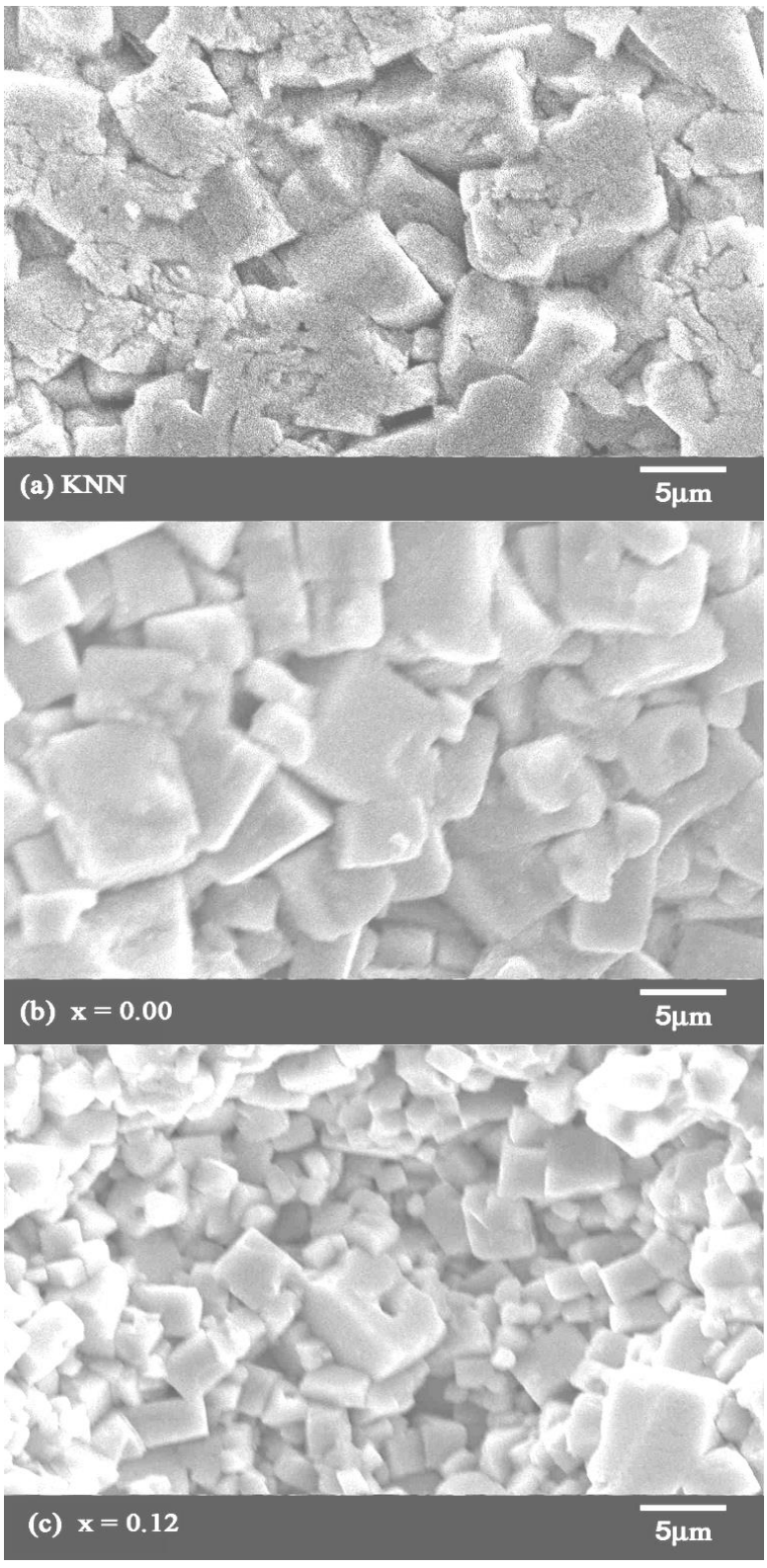
เอกซ์เรย์ดิฟแฟรกชันที่ 2θ=45-45º และ 2θ=55-58º จากรูปที่ 4.1(b) พบว่า KNN เป็นโครงสร้างผลึกแบบออร์โธรอมบิค (orthorhombic) ดังรูปที่ 4.1(b-4) สารตัวอย่างเซรามิกที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+} และสารตัวอย่างเซรามิกที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.12 โมล เป็นโครงสร้างผลึกแบบออร์โธรอมบิคที่อุณหภูมิ 1200 ºC และมีโครงสร้างผลึกแบบออร์โธรอมบิคผสมกับโครงสร้างผลึกแบบเตตระโกนอล (tetragonal) ที่อุณหภูมิ 1130 ºC ดังรูปที่ 4.1(b-5 และ b-6) ซึ่งเป็นโครงสร้างที่ต้องการเนื่องจากที่อุณหภูมินี้สามารถทำให้สารเกิดวัฏภาคผสม หรือ อยู่ระหว่างวัฏภาคทั้งสอง ทำให้มีความสามารถในการจัดเรียงตัวของโดเมนได้สูง ซึ่งจะกล่าวถึงรายละเอียดในหัวข้อการวิเคราะห์การเปลี่ยนแปลงวัฏภาค



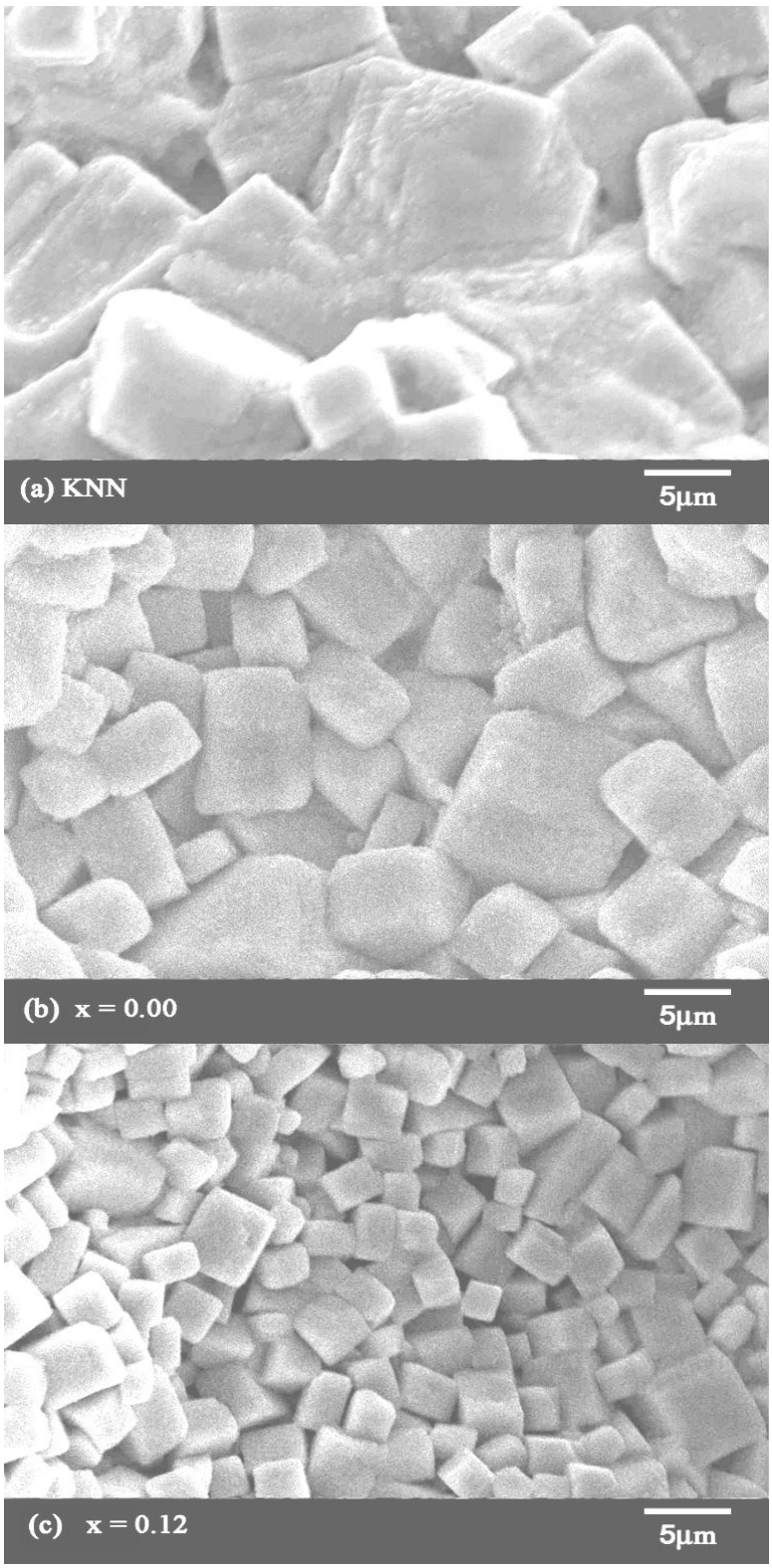
รูปที่ 4.1 กราฟเอกซ์เรย์ดิฟแฟรกชันของสารตัวอย่างเจือ Ta^{5+} (a) 2θ=20-70º
(b) กราฟ XRD อย่างละเอียด 2θ=44-47º และ 2θ=55-58º



รูปที่ 4.2 ภาพถ่าย SEM ของสาร (a) KNN (b) x= 0.00 (c) x=0.12 เมื่อ x คือปริมาณสารเจือ Ta^{5+} ที่อุณหภูมิเผาผนึก 1000 ºC



รูปที่ 4.3 ภาพถ่าย SEM ของสารตัวอย่าง (a) KNN (b) x= 0.00 (c) x=0.12 เมื่อ x คือปริมาณสารเจือ Ta^{5+} ที่อุณหภูมิเผาผนึก 1130 ºC



รูปที่ 4.4 ภาพถ่าย SEM ของสารตัวอย่าง (a) KNN (b) x= 0.00 (c) x=0.12 เมื่อ x คือปริมาณสารเจือ Ta^{5+} ที่อุณหภูมิเผาผนึก 1200 ºC

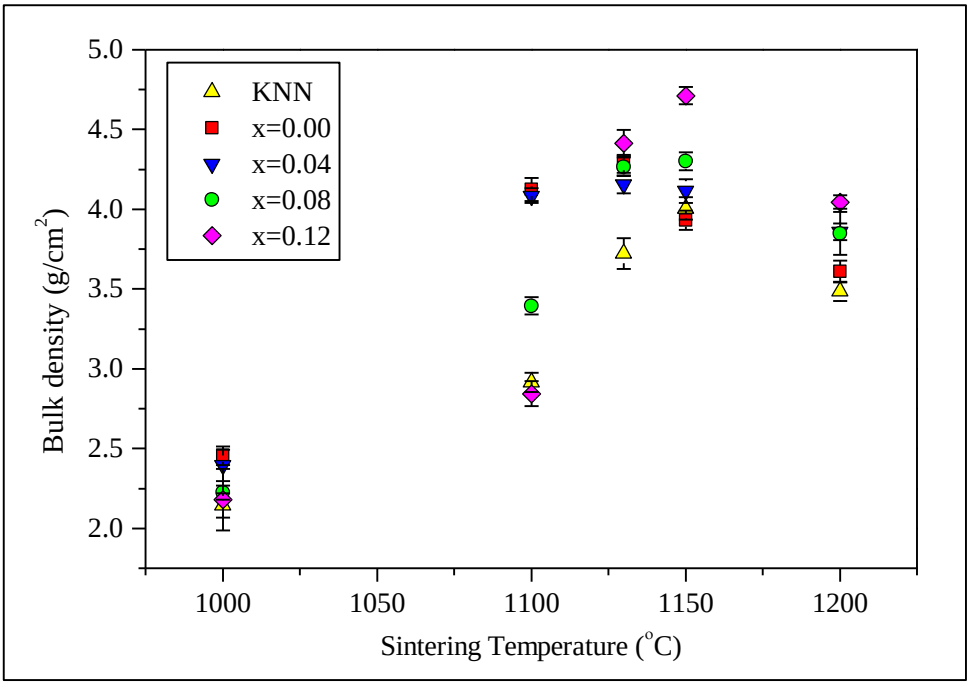
จากรูปที่ 4.2 ผลการถ่ายภาพโครงสร้างด้วยกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่งกราด (SEM) และตารางที่ 4.1 สารตัวอย่างทั้ง 3 ที่เผาผนึกในอุณหภูมิ 1000 ºC แสดงให้เห็นได้อย่างชัดเจนว่าการทำปฏิกิริยายังไม่สมบูรณ์ ไม่เกิดการก่อตัวของผลึก เมื่อพิจารณาในอุณหภูมิที่สูงขึ้นสามารถมองเห็นผลึกได้อย่างชัดเจน มีแนวโน้วไปในทิศทางเดียวกันคือขนาดเกรนใหญ่ขึ้นเมื่ออุณหภูมิสูงขึ้น ผลที่ได้คือสารตัวอย่าง KNN ที่เผาในอุณหภูมิ 1130 ºC-1200 ºC ดูรูปที่ 4.3(a) และรูปที่ 4.4(a) มีเกรนขนาดประมาณ 8.83 และ 12.91 ไมโครเมตร ตามลำดับ สารตัวอย่างเซรามิกที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+} ดูรูปที่ 4.3(b) และ รูปที่ 4.4(b) มีเกรนขนาดประมาณ 5.59 และ 6.94 ไมโครเมตรตามลำดับ ส่วนสารตัวอย่างเซรามิกที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.12 โมล ดูรูปที่ 4.3(b) และ รูปที่ 4.4(b) มีเกรนขนาดประมาณ 2.62 และ 2.85 ไมโครเมตร ตามลำดับ ที่อุณหภูมิ 1200 ºC ซึ่งมีขนาดเกรนที่เล็กที่สุดเมื่อเปรียบเทียบกับสารตัวอย่างเซรามิกอื่น จากข้อมูลนี้ทำให้ทราบว่าการเติมสารเจือ Li^{+}, Sb^{5+} และ Ta^{5+} มีผลให้ขนาดเกรนลดลง ซึ่งสอดคล้องกับผลการทดลองของ Yang และคณะ (Yang et al., 2007) และมีการกระจายขนาดออกเป็น 2 ขนาดได้อย่างชัดเจน เมื่อปริมาณสารเจือ Ta^{5+}เพิ่มขึ้น ทั้งนี้อาจเป็นเพราะจุดหลอมตัว (melting point) ของสารเจือ Ta^{5+} ที่สูงมาก ประมาณ 3016 ºC เมื่อเทียบกับสารอื่น เช่น K^{+} มีจุดหลอมตัวที่ 63.5 ºC, Sb^{5+} จุดหลอมตัวที่ 629 ºC และ Nb^{5+} มีจุดหลอมตัวที่ 2476 ºC เป็นต้น ซึ่งจากการเกิดปฏิกิริยาระหว่างการเผาผนึก จะมีความสัมพันธ์กับจุดหลอมตัวของสาร หากสารนั้นมีจุดหลอมตัวสูงกว่าอุณหภูมิเผาผนึก การโตของเกรนอาจจะมีโอกาสเกิดขึ้นได้น้อย เพราะเกิดวัฏภาคของเหลว (liquid phase) ได้น้อย การเชื่อมต่อและรวมตัวของผนังเกรนก็อาจจะเกิดได้น้อยกว่าสารที่มีจุดหลอมตัวน้อยกว่าอุณหภูมิเผาผนึก

ตารางที่ 4.1 ขนาดเกรนของสารตัวอย่างเซรามิกที่อุณหภูมิเผาผนึกต่าง ๆ

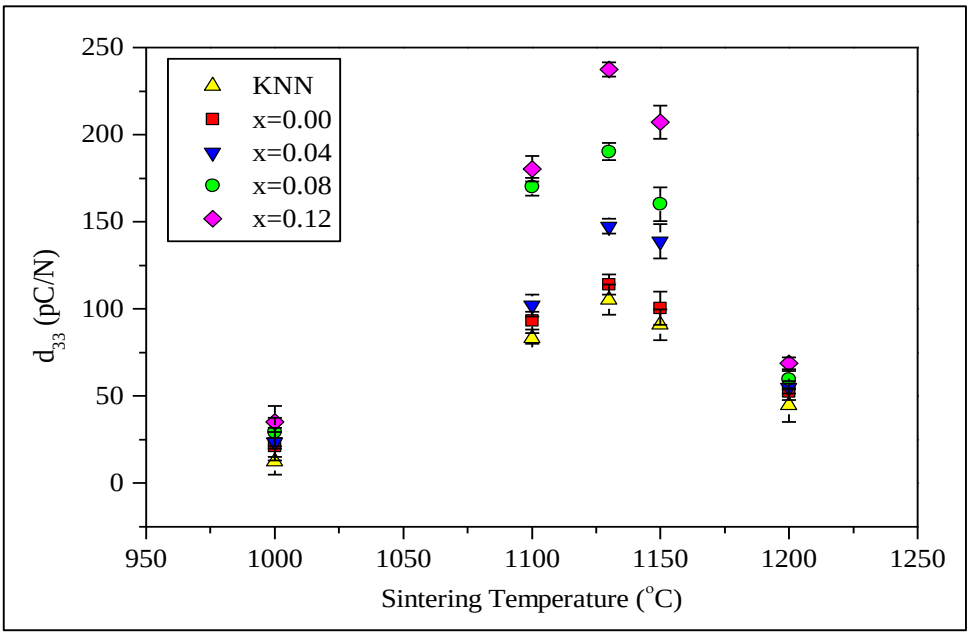
อุณหภูมิเผาผนึก (ºC)	ขนาดเกรน (μm)		
	KNN	x=0.00	x=0.12
1000	<1.00	<1.00	<1.00
1130	8.83 ±1.73	5.59 ±1.82	2.62 ±1.47
1200	12.91 ±2.45	6.94 ±1.98	2.85 ±1.36

จากผลกราฟเอกซ์เรย์ดิฟแฟรกชัน และภาพถ่าย SEM ทำให้สามารถบ่งชี้ได้เบื้องต้นว่าที่อุณหภูมิเผาผนึก 1130 ºC เหมาะสมสำหรับการเผาสารตัวอย่าง ดังนั้นเพื่อยืนยันผลการทดลองนี้จึงได้ทดลองเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1100 ºC และ 1150 ºC เพิ่มแล้วนำสารตัวอย่างทั้งหมดไปทดสอบหาค่าความหนาแน่นได้ผลดังรูปที่ 4.5 ผลการทดสอบค่าความหนาแน่น ที่

อุณหภูมิเผาผนึกต่าง ๆ และรูปที่ 4.6 ผลการทดสอบค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริกของสารตัวอย่าง KNN-LST ที่อุณหภูมิเผาผนึกต่าง ๆ พบว่าที่อุณหภูมิเผาผนึก 1130 ºC เหมาะสมสำหรับสารตัวอย่างทุกสารตัวอย่างเซรามิก เพราะมีค่าความหน่าแนนที่ไม่ต่ำจนเกินไปอยู่ระหว่าง 3.4-4.5 g/cm^3 และค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริก(d_{33}) ที่ค่อนข้างสูงที่สุดเมื่อเปรียบเทียบกับอุณหภูมิอื่น ซึ่งสอดคล้องกับผลการทดสอบก่อนหน้านี้



รูปที่ 4.5 ผลการทดสอบค่าความหนาแน่นของสารตัวอย่าง KNN-LST ที่อุณหภูมิเผาผนึกต่าง ๆ



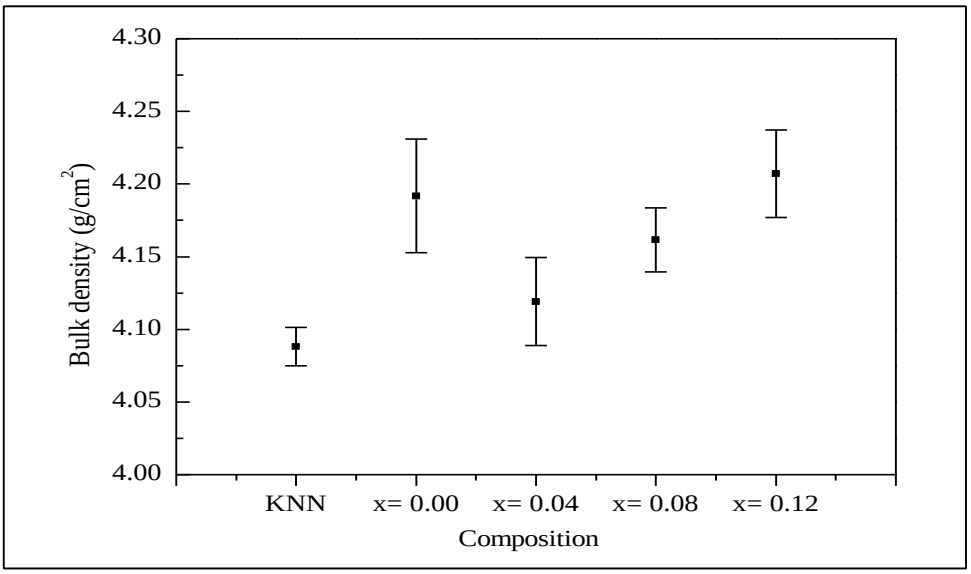
รูปที่ 4.6 ผลการทดสอบค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริกของสารตัวอย่าง KNN-LST ที่อุณหภูมิเผาผนึกต่าง ๆ

เมื่อได้อุณหภูมิเผาผนึกที่เหมาะสมกับสารตัวอย่างแต่ละสารตัวอย่างเซรามิกแล้วลำดับต่อไปคือการเผาผนึก ทดสอบสมบัติทางไพอิโซอิเล็กทริก มีรายละเอียดดังต่อไปนี้

4.3 ผลการทดสอบสมบัติทางไฟฟ้าของสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} ก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า

4.3.1 ผลการทดสอบค่าความหนาแน่น (Bulk density)

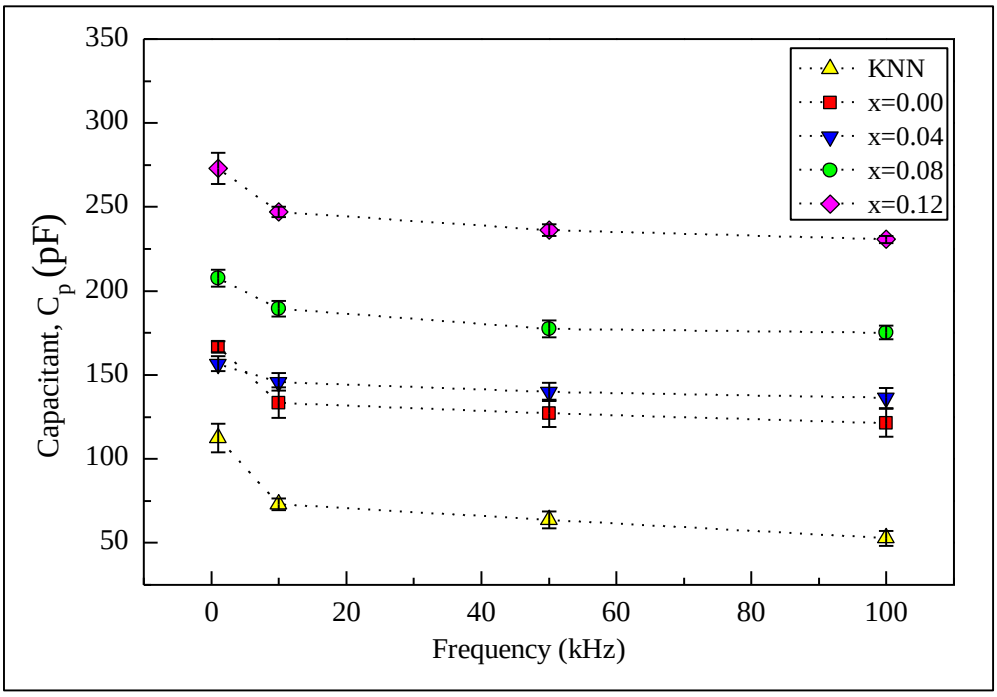
หลังจากที่ได้ทดสอบหาอุณหภูมิเผาที่เหมาะสมสำหรับแต่ละสารตัวอย่างแล้ว นำสารตัวอย่างชุดที่จะใช้ทดสอบจริงไปเผาที่อุณหภูมิ 1100 ºC สำหรับสารตัวอย่างเซรามิก KNNและสารตัวอย่างเซรามิกที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+} อุณหภูมิ 1130 ºC สำหรับสารตัวอย่างเซรามิกสารตัวอย่างเซรามิกที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.04, 0.08, และ 0.12 โมล จากนั้นนำไปทดสอบค่าความหนาแน่น ด้วยวิธีอาร์คิมิดิส (Archimedes method) ได้ผลว่าความหนาแน่นของสารตัวอย่างทั้งหมดอยู่ประมาณ 4.05-4.25 g/cm^3 ดังรูปที่ 4.7 จากรูปนี้แสดงให้เห็นว่าปริมาณสารเจือ Ta^{5+} เพิ่มขึ้น ค่าความหนาแน่นก็เพิ่มขึ้นเช่นเดียวกันเมื่อเปรียบเทียบกับสารตัวอย่างเซรามิกที่มีการเติมสารเจือเข้าไปเพราะสารเจือ Ta^{5+} เป็นสารตัวหนึ่งที่มีสมบัติในการเสริมการทำปฏิกิริยาระหว่างการเผาผนึกให้สมบูรณ์ยิ่งขึ้น (Rödel et al., 2009)



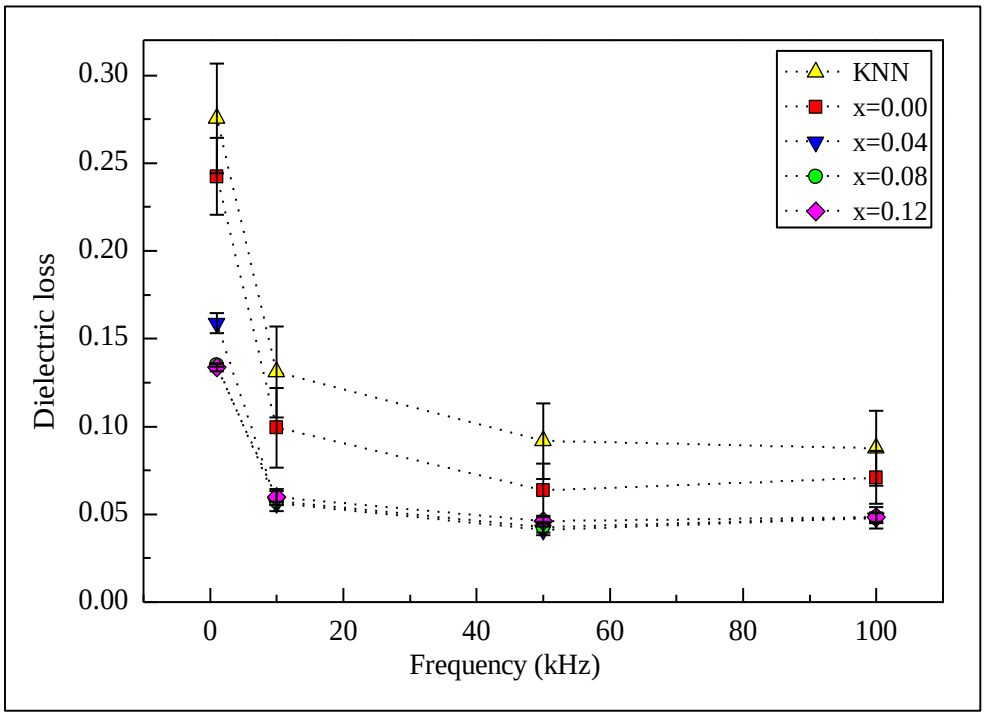
รูปที่ 4.7 ผลการทดสอบค่าความหนาแน่น (bulk density) ของสารตัวอย่าง KNN-LST

4.3.2 ผลการทดสอบค่าความจุไฟฟ้า (Capacitance: C_p) ค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (Dielectric constant: ε_r) และค่าสูญเสียไดอิเล็กทริก (Dielectric loss: Tan σ)

สารตัวอย่างทั้งหมดจะถูกนำมาทดสอบค่าความจุไฟฟ้า (Capacitance: C_p) ที่ความถี่ 1, 10, 50, และ 100 kHz พบว่าสารตัวอย่างค่าความจุไฟฟ้าสูงสุด ที่ค่าความถี่ 1 kHz โดยสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.12 โมลมีค่าสูงที่สุด 272.91 pF รองมาคือ 0.08 โมล 207.61 pF ต่อมาคือสารที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+} 166.77 pF และ 0.04 โมล 156.64 pF ต่ำที่สุดคือ KNN 112.50 pF ดังรูปที่ 4.8จากข้อมูลนี้พบว่าที่ความถี่นี้ สารตัวอย่างที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+} มีความสามารถในการเก็บประจุไฟฟ้าได้มากกว่าสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.04 โมล ดังนั้นสารตัวอย่างที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+}เหมาะกับการใช้งานที่ความถี่ 1 kHz มากกว่าสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.04 โมล แต่กระนั้นก็ยังน้อยกว่าสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.08 และ 0.12 โมล เมื่อพิจารณาที่ความถี่ 10, 50, 100 kHz พบว่าค่าความจุไฟฟ้าเพิ่มขึ้นไปในทิศทางเดียวกับปริมาณ Ta^{5+} ที่เพิ่มขึ้นแต่จะลดลงเมื่อความถี่เพิ่มขึ้น ดังรูปที่ 4.8 ผลการทดสอบค่าความจุไฟฟ้าของสารตัวอย่าง KNN-LST ที่ค่าความถี่ต่าง ๆและค่าสูญเสียไดอิเล็กทริกของสารตัวอย่างที่เติมสารเจือแทนทาลัมจะลดลงเมื่อปริมาณ Ta^{5+} เพิ่มขึ้น ดังรูปที่ 4.9



รูปที่ 4.8 ผลการทดสอบค่าความจุไฟฟ้าของสารตัวอย่าง KNN-LST ที่ค่าความถี่ต่าง ๆ



รูปที่ 4.9 ผลการทดสอบค่าสูญเสียไดอิเล็กทริกของสารตัวอย่าง KNN-LST ที่ค่าความถี่ต่าง ๆ

เพื่อศึกษาการเปลี่ยนแปลงวัฏภาคอันมีผลมาจากอุณหภูมิที่เปลี่ยนไป หรืออีกนัยหนึ่งคืออุณหภูมิที่สามารถทำให้วัสดุจะเกิดการเปลี่ยนวัฏภาคไปจากเดิม (Curie temperature: T_C) จึงได้ทำการทดสอบค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ε_r) โดยวัดค่าความจุไฟฟ้าของชิ้นสารตัวอย่างด้วยเครื่องLCR Meter (HP precision, 4284A) ซึ่งในการวัดค่านั้นจะจ่ายแรงดันไฟฟ้า 1 V ที่วัสดุ และใช้ความถี่ 1 kHz ให้แก่สารตัวอย่างที่อยู่ภายในเตาเผาพร้อมกับให้ความร้อน จากนั้นนำมาคำนวณหาค่าคงที่ไดอิเล็กทริกได้จากความสัมพันธ์

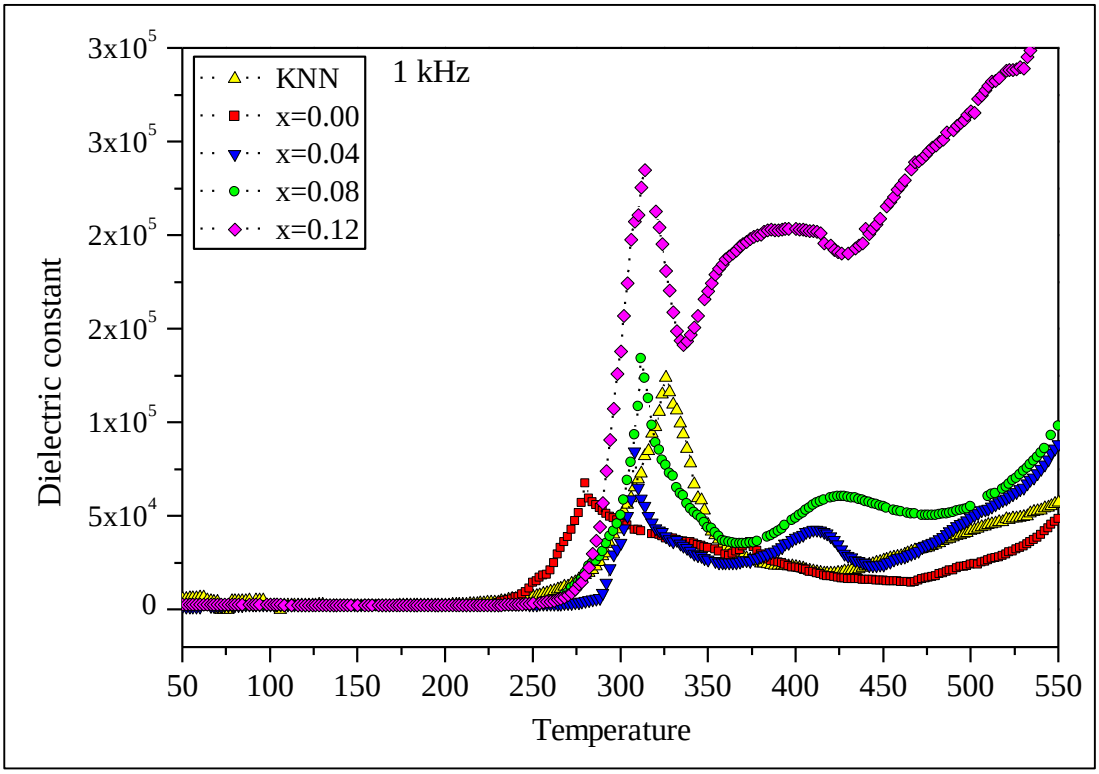
$$\varepsilon_r = \frac{Cd}{\varepsilon_0 A} \tag{4.1}$$

โดยที่ C คือ ค่าความจุของตัวเก็บประจุ (ฟารัด: F)

d คือ ความหนาของสารไดอิเล็กทริก (เมตร: m)

ε_0 คือ สภาพยอมทางไดอิเล็กทริกของสุญญากาศมีค่า 8.854 $\times 10^{-12}$ (ฟารัดต่อเมตร: F/m)

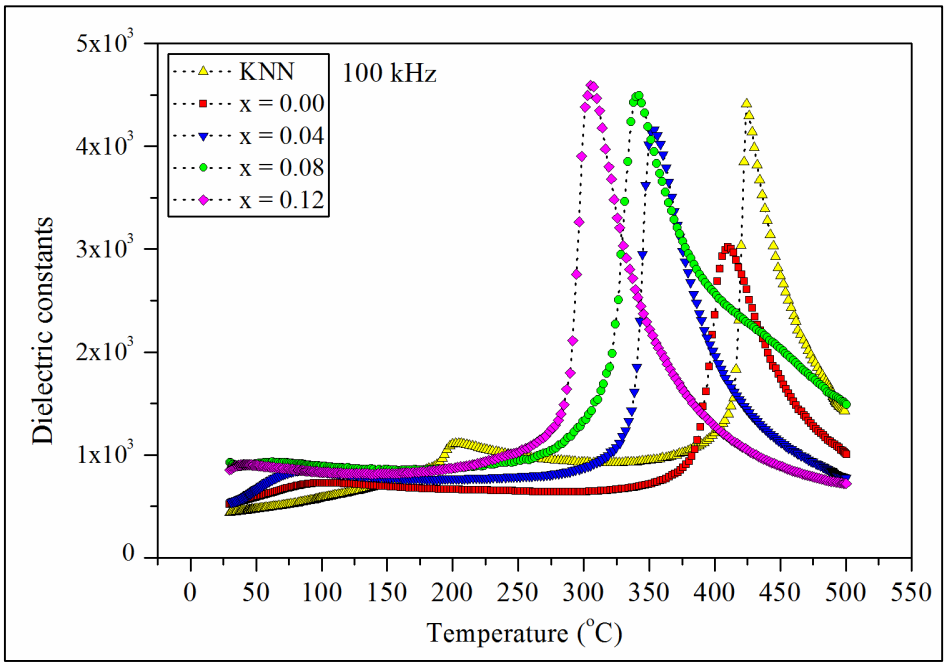
A คือ พื้นที่หน้าตัดของแผ่นไดอิเล็กทริก (ตารางเมตร: m^2)



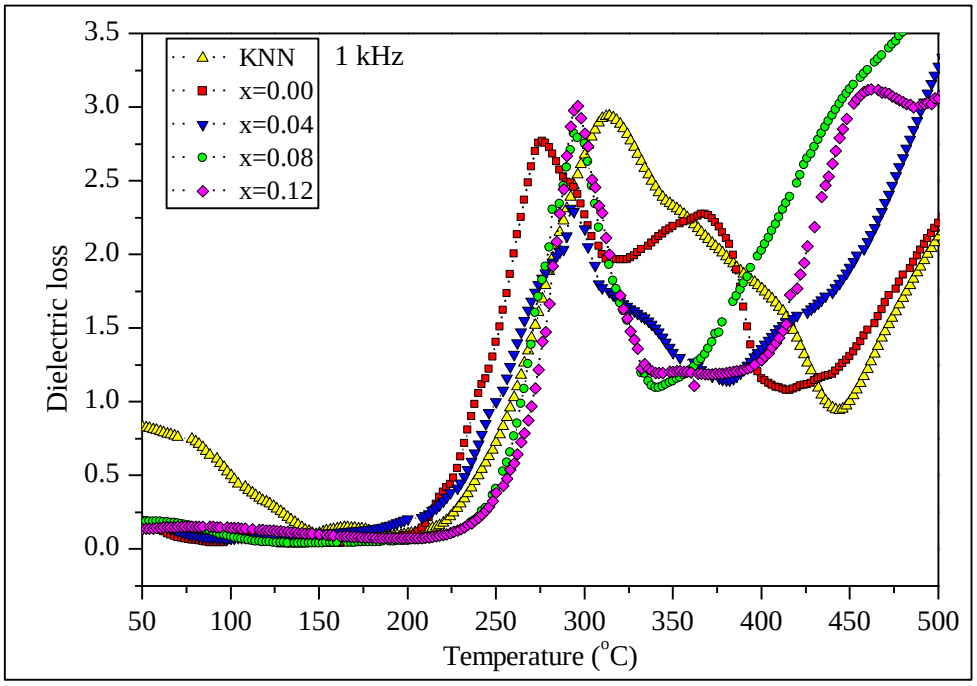
รูปที่ 4.10 ผลการทดสอบค่าคงที่ไดอิเล็กทริก ของสารตัวอย่าง KNN-LST ที่อุณหภูมิต่าง ๆ

จากผลการทดลองพบว่า T_c ของสารตัวอย่างอยู่ในช่วง 280-330 ºC โดยสารตัวอย่าง KNN มีอุณหภูมิคูรีอยู่ที่ 326 ºC ตัวอย่างที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+} มีอุณหภูมิคูรีอยู่ที่ 280 ºC เนื่องจากว่ามีผลของ Li^{2+}และ Sb^{5+} ที่สามารถช่วยลดอุณหภูมิคูรีให้ลดต่ำลงมาได้ สอดคล้องกับงานวิจัยของ Zang et al., (2006) Yang et al., (2007) Mgbemere et al., (2009) และ Muanghlua et al., (2011) ตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.04, 0.08, 0.12 โมล มีอุณหภูมิคูรีที่ใกล้เคียงกันอยู่ที่ 308 ºC, 310 ºC และ 313 ºCตามลำดับ ดังรูปที่ 4.10 แสดงให้เห็นว่าปริมาณ Ta^{5+} ที่เพิ่มขึ้นทำให้อุณหภูมิคูรีเพิ่มขึ้นตามไปด้วย (Hollenstein et al., 2005) และพบการเปลี่ยนแปลงในช่วง 400-450 ºC ซึ่งมีความเป็นไปได้ว่าเกิดจากความผิดพลาดของเครื่องมือ จึงทำการทดสอบซ้ำอีกครั้งด้วยความอนุเคราะห์ จาก อาจารย์ ดร.อธิพงศ์ งามจารุโรจน์ ภาควิชาฟิสิกส์-วัสดุศาสตร์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยเชียงใหม่ ผลการทดสอบค่าคงที่ไดอิเล็กทริกของสารตัวอย่าง KNN-LST ที่อุณหภูมิต่าง ๆ ดังรูปที่ 4.11 พบว่าสารตัวอย่าง KNN, 0.00, 0.04, 0.08 และ 0.12 โมล มีอุณหภูมิคูรีที่ลดลงตามลำดับ คือ 424 ºC,410 ºC, 353 ºC, 342 ºC และ 305 ºC ตามลำดับ ซึ่งมีแนวโน้มเดียวกับการทดลองที่ผ่านมา และไม่พบการเปลี่ยนแปลงในช่วง 400-450 ºC ดังที่เคยเกิดขึ้นแล้ว

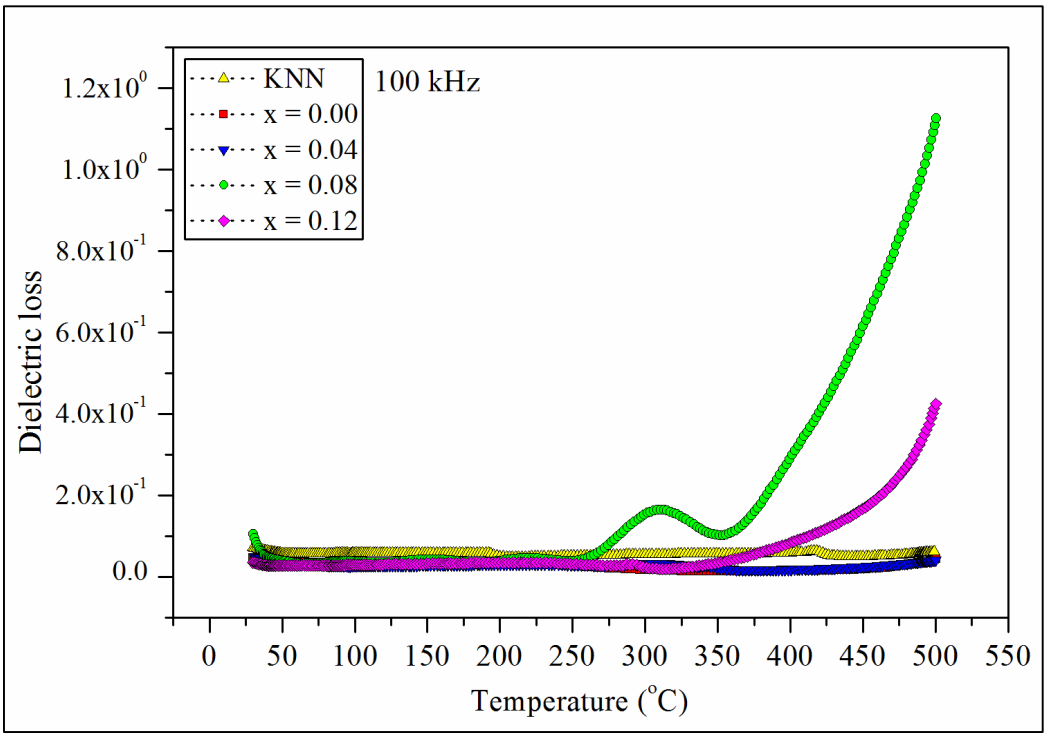
และเมื่อพิจารณาค่าสูญเสียไดอิเล็กทริกพบว่าที่อุณหภูมิคูรีตัวอย่างที่ไม่เติมสารเจือTa^{5+} มีค่าค่าสูญเสียไดอิเล็กทริกต่ำที่สุด ดังรูปที่ 4.12 ผลการทดลองนี้อาจมีความเป็นไปได้ว่าเกิดความผิดพลาดของเครื่องมือ เพราะข้อมูลไม่สามารถระบุแนวโน้มที่ชัดเจนได้ ซึ่งต่างจาก อาจารย์ดร. อธิพงศ์ งามจารุโรจน์ ดังรูปที่ 4.13 ที่มีค่าค่าสูญเสียไดอิเล็กทริกต่ำ และมีเพียงตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.08 และ 0.12 โมล ที่ค่อยเพิ่มสูงขึ้นหลังจากช่วง 250 ºC



รูปที่ 4.11 ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกของสารตัวอย่าง KNN-LST ที่อุณหภูมิต่าง ๆ
จากภาควิชาฟิสิกส์-วัสดุศาสตร์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยเชียงใหม่



รูปที่ 4.12 ผลการทดสอบค่าสูญเสียไดอิเล็กทริกของสารตัวอย่าง KNN-LST ที่อุณหภูมิต่าง ๆ

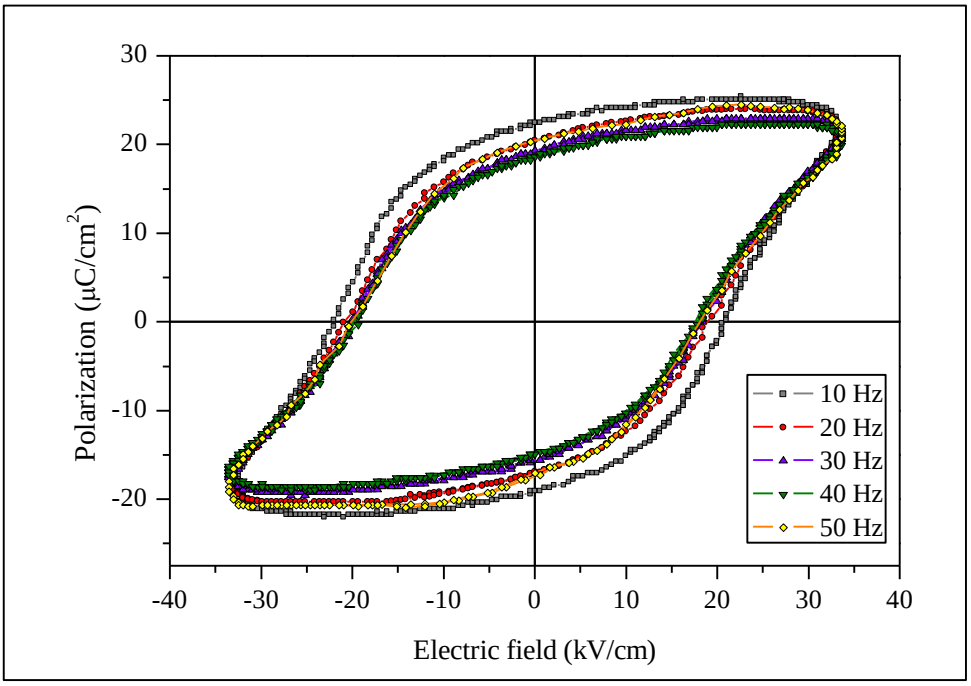


รูปที่ 4.13 สูญเสียไดอิเล็กทริกของสารตัวอย่าง KNN-LST ที่อุณหภูมิต่าง ๆ จากภาควิชาฟิสิกส์-วัสดุศาสตร์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยเชียงใหม่

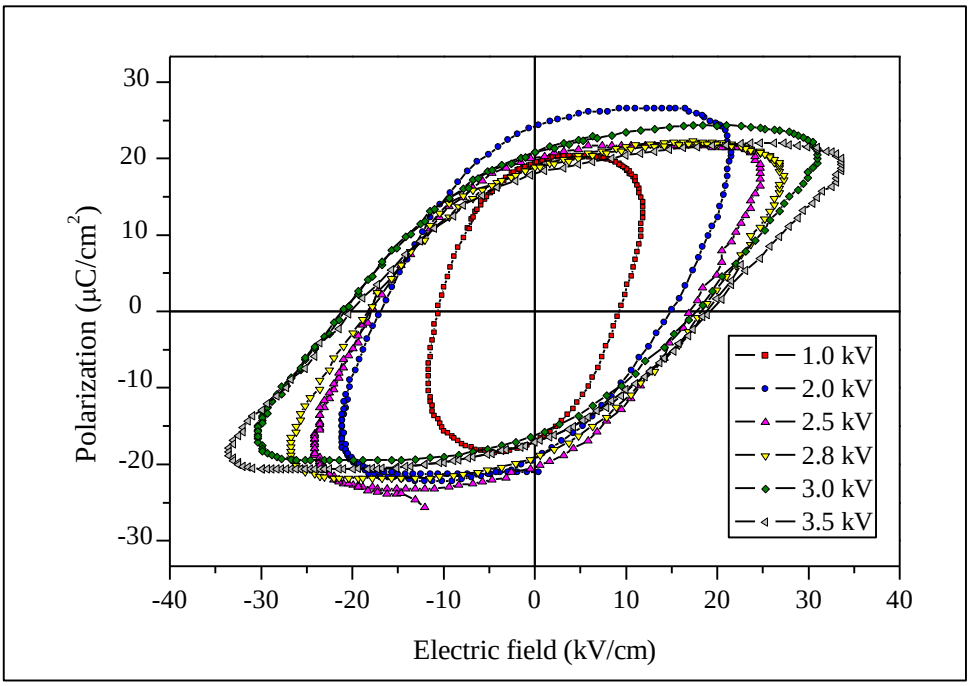
4.3.3 การทดสอบวงวนฮีสเทอรีซีสที่มีการเปลี่ยนแปลงค่าสนามไฟฟ้าและความถี่

สำหรับการทดลองนี้เป็นการนำสารตัวอย่างที่ยังไม่ได้ทำขั้วมาทดสอบเพื่อหาสภาวะที่เหมาะสมกับการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า โดยทั่วไปแล้วการทดสอบวงวนฮีสเทอรีซีสสามารถทดสอบได้หลายค่าความถี่ และหลายค่าสนามไฟฟ้า ดังนั้นจึงเริ่มต้นทดสอบด้วยการนำสารตัวอย่างที่การเติมสารเจือ Ta^{5+} 0.12 โมล มาให้สนามไฟฟ้า ±3.5 kV แล้วเปลี่ยนค่าความถี่ 10, 20,30, 40, และ 50 Hz ได้ผลดังรูปที่ 4.14 พบว่าที่ค่าความถี่ 10 Hz วงวนมีค่าโพลาไรเซชันสูงที่สุด และ40 Hz ต่ำที่สุด และสังเกตุได้ว่า ที่ค่าความถี่ 20 Hz และ 50 Hz วงวนมีค่าโพลาไรเซชันใกล้เคียงกันดังนั้นจึงเลือกใช้ค่าความถี่ 50 Hz ในการทดสอบเพราะเป็นค่าที่ทำให้ค่าโพลาไรเซชันไม่ต่ำจนเกินไปอีกทั้งเป็นความถี่ที่ใช้งานจริงตามบ้านเรือนและอุปกรณ์อิเล็กทรอนิกส์ทั่วไป จากนั้นจึงนำสารตัวอย่างที่มีการเติมสารเจือ Ta^{5+} 0.12 โมล ไปทดสอบวงวนฮีสเทอรีซีสของ ที่ความถี่ 50 Hzภายใต้สนามไฟฟ้าที่มีการเปลี่ยนแปลงตั้งแต่ ±1.0, ±2.0, ±2.5, ±2.8, ±3.0, และ ±3.5 kV ได้ผลการทดลองดังรูปที่ 4.15 แสดงให้เห็นว่ายิ่งค่าสนามไฟฟ้าเพิ่มขึ้นทำให้วงวนมีการอิ่มตัวมากขึ้น สังเกตได้จากส่วนปลายด้านข้างทั้ง

สองจะยืดยาวออก ดังนั้นที่สนามไฟฟ้า ±3.5 kV เหมาะสำหรับการใช้ทดสอบความล้าทางไฟฟ้า แต่ด้วยสารตัวอย่างเซรามิกอื่น ๆ ที่ใช้ทดสอบในวิจัยนี้ เกิดความความเสียหายได้ระหว่างการทดสอบอันเนื่องมาจากสนามไฟฟ้าที่ให้นั้นสูงเกินไปเกิดการเบรคดาวน์ (breakdown) ในสารตัวอย่าง จึงได้ทดสอบหาค่าสนามไฟฟ้าที่สามารถใช้ได้กับทุกสารตัวอย่างเซรามิก ผลปรากฏว่าที่สนามไฟฟ้า ±2.5 kV เป็นค่าที่ปลอดภัยที่สุดที่จะใช้ในการทดลองดังจะเห็นผลการทดสอบในหัวข้อการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า



รูปที่ 4.14 ผลการทดสอบวงวนฮีตเทอรีซีสของสารตัวอย่างที่มีการเติมสารเจือ Ta^{5+} 0.12 โมล ภายใต้สนามไฟฟ้า ±3.5 kV ที่มีการเปลี่ยนแปลงความถี่

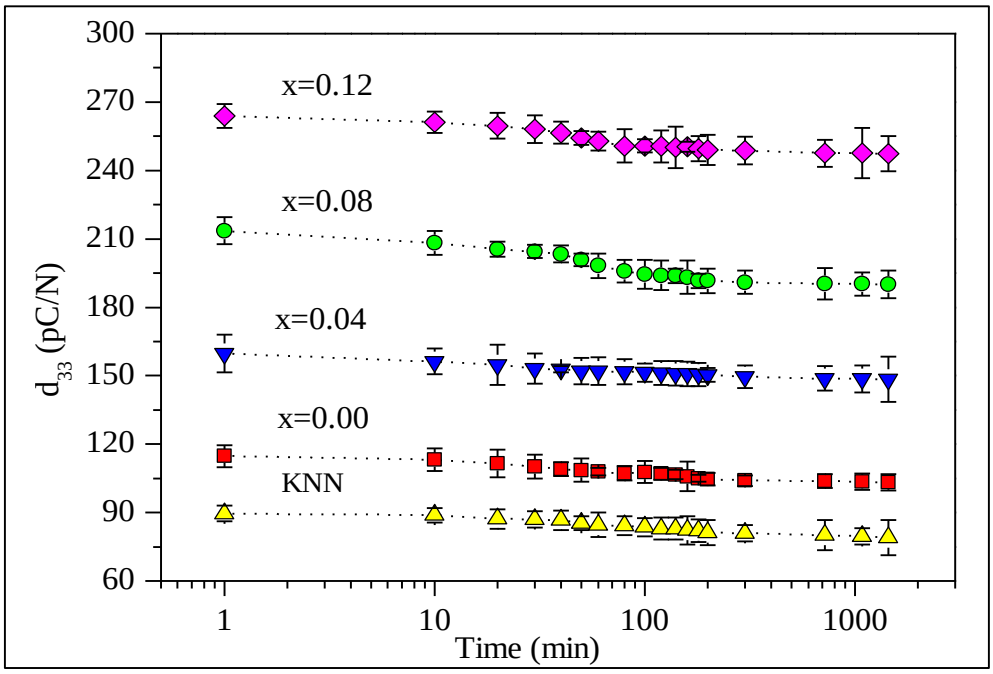


รูปที่ 4.15 ผลการทดสอบวงวนฮีตเทอรีซีสของสารตัวอย่างที่มีการเติมสารเจือ Ta^{5+} 0.12 โมล ที่ความถี่ 50 Hz ภายใต้สนามไฟฟ้าที่มีการเปลี่ยนแปลง

4.3.4 ผลการทดสอบค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริก

(Piezoelectric charge constant, d_{33})

โดยทั่วไปแล้วสารไพอิโซอิเล็กทริกที่ทำขั้วแล้วจะต้องทิ้งไว้ 24 ชั่วโมง เพื่อให้คุณสมบัติทางไพอิโซอิเล็กทริกมีความเสถียรก่อนนำไปวัดค่าค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริก การทดสอบนี้จึงเป็นการทดสอบเพื่อศึกษาการลดลงของค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริก ตั้งแต่หลังจากการทำขั้วเสร็จเรียบร้อยจนถึง 24 ชั่วโมง เพื่อเป็นแนวทางในการพัฒนางานวิจัยที่เกี่ยวข้องกับการเสื่อมสภาพ (aging) ตามเวลา ของสารตัวอย่างต่อไป



รูปที่ 4.16 ผลการทดสอบค่าความเสื่อมสภาพ (aging) ตามเวลา ของสารตัวอย่าง KNN-LST

การทดสอบนี้ทำโดยการนำสารตัวอย่างไปทำขั้วภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ที่อุณหภูมิ 200 ºC เป็นเวลา 20 นาที จากนั้นนำไปวัดค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริก ได้ผลดังรูปที่ 4.16พบว่าสารตัวอย่างมีค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริกสูงขึ้นตามปริมาณสารเจือที่เติมลงไป สารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.12 โมล มีค่าสูงที่สุด 263 pC/N 0.08 โมล มีค่า 213 pC/N 0.04 โมล มีค่า 159 pC/Nสารที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+} มีค่า 159 pC/N และ KNN มีค่าต่ำที่สุด 89 pC/N ที่ 1 นาทีแรกหลังจากการเหนี่ยวนำขั้ว ทั้งนี้การเพิ่มขึ้นของค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริก เป็นผลมาจากการเติมสารเจือ ของ Li^{2+} Sb^{5+} และTa^{5+} ซึ่งสอดคล้องกับงานวิจัยของ Zuo et al.,(2009) Rubio-Marcos et al.,(2007) Yang etal., (2007) เมื่อพิจารณาการลดลงเทียบกับเวลาที่ผ่านไปพบว่า สารตัวอย่าง KNN สารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.08 โมล สารที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+} สารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.04 โมล และ 0.12โมล มีการลดลงคิดเป็นร้อยละ 11.83, 11.00, 10.10, 7.13, และ 6.22 ตามลำดับ ดังตารางที่ 4.2 จากจุดนี้ชี้ให้เห็นว่าที่ 0.12 โมลของ Ta^{5+} มีการลดลงต่ำที่สุดดังนั้นจึงสันนิฐานได้เบื้องต้นที่สารเจือTa^{5+} ที่ปริมาณนี้สามารถช่วยลดการเสื่อมสภาพตามเวลาของสารตัวอย่างได้ ได้ เนื่องจากการเติมสารเจือ Ta^{5+} เข้าไปในโครงสร้างของสารเซรามิก KNN-LST ทำให้สารมีสภาพแนวโน้มแสดงลักษณะฮาร์ดเซรามิก (hard ceramic) เพิ่มขึ้นคือต้องใช้สนามไฟฟ้าที่สูงขึ้นในการทำให้เกิดโพราไรเซชัน และทำให้วงวนเกิดการอิ่มตัว การเสื่อมสภาพการมีขั้ว (depolarization)ก็จะเกิดขึ้นได้ยากกว่าซอร์ฟเซรามิก (Henderson, 2004)

ตารางที่ 4.2 ค่าความเสื่อมสภาพ (aging) ตามเวลา ของสารตัวอย่าง KNN-LST

สมบัติทางไฟฟ้า	ปริมาณการลดลงของสมบัติทางไฟฟ้า (ร้อยละ)				
	KNN	x=0.00	x=0.04	x=0.08	x=0.12
ค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริก (d_{33}) (pC/N)	11.83	11.00	10.10	7.83	6.22

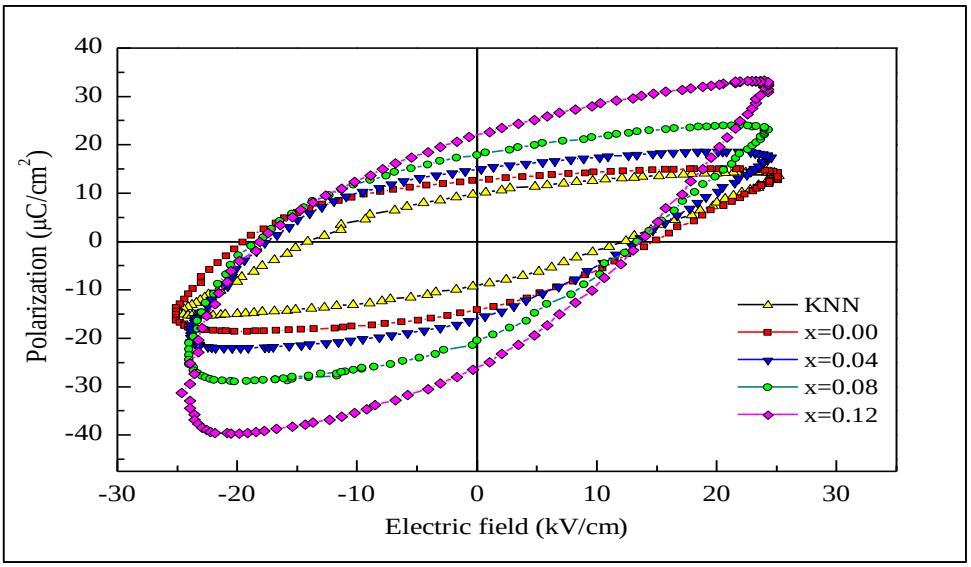
4.4 ผลการทดสอบสมบัติทางไฟฟ้าของสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} หลังทดสอบความล้าทางไฟฟ้า

ผลการทดลองวงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิส (polarization hysteresis loop) ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ความถี่ 50 Hz ตั้งแต่ 1,000-1,000,000 รอบโดยจะทำการวัดค่าสมบัติไพอิโซอิเล็กทริกที่จำนวนรอบต่าง ๆ ดังนี้ ค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริก ค่าคงที่ไดอิเล็กทริก ค่าสูญเสียไดอิเล็กทริก ค่าโพลาไรเซชันคงค้าง และค่าสนามไฟฟ้าลบล้าง มีรายละเอียดดังต่อไปนี้

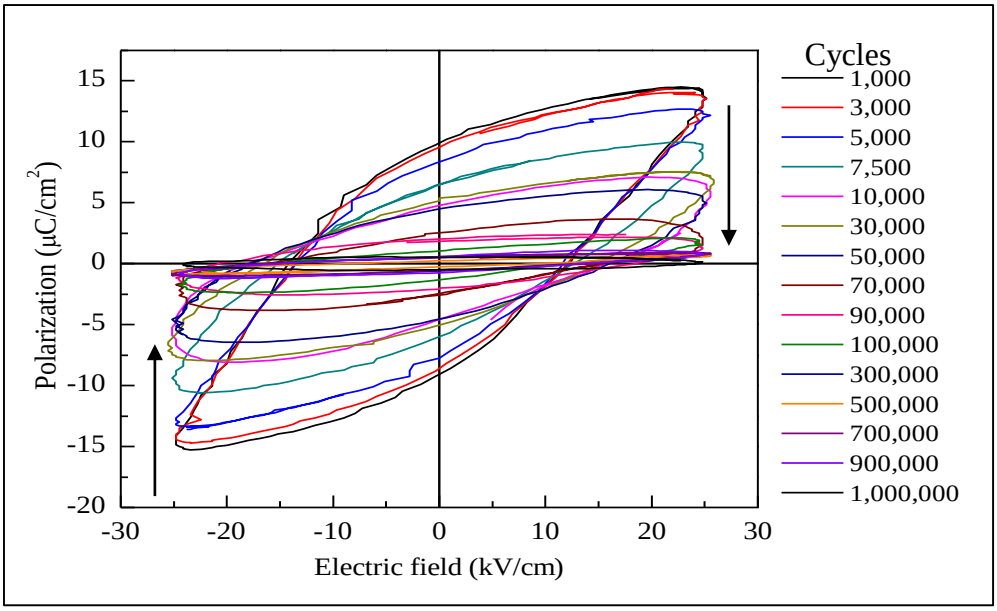
4.4.1 ผลของการเติมสารเจือแทนทาลัม (Ta^{5+}) ที่มีต่อวงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิส (polarization hysteresis loop)

สารตัวอย่าง KNN สารตัวอย่างที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+} และสารตัวอย่างที่เติมเจือ Ta^{5+} 0.04 0.08 และ 0.12 โมล ถูกทดสอบภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ความถี่ 50 Hz ตั้งแต่ 1,000-1,000,000 รอบ จากรูปที่ 4.17 ผลการทดสอบวงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิสก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า พบว่าสารตัวอย่าง KNN มีวงวนที่ค่อนข้างแคบเมื่อเปรียบเทียบกับสารตัวอย่างเซรามิก อื่น คือสามารถให้โพลาไรเซชันได้เมื่อสนามไฟฟ้าไม่สูงมาก มีการลดลงของโพลาไรเซชันรวดเร็วที่ช่วงจำนวน 3,000-7,500 รอบ และ 50,00-70,000 รอบได้ผลดังรูปที่ 4.18 (a) ต่อมาคือสารตัวอย่างที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+} และสารตัวอย่างที่เติมเจือ Ta^{5+} ในปริมาณที่เพิ่มขึ้น คือต้องใช้สนามไฟฟ้าที่สูงขึ้นในการทำให้เกิดโพลาไรเซชัน และทำให้วงวนเกิดการอิ่มตัว การเสื่อมสภาพการมีขั้ว (depolarization) (Henderson, 2004) สารตัวอย่างที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+}การลดลงของโพลาไรเซชันค่อนข้างสม่ำเสมอ ดังรูปที่ 4.18 (b) สารตัวอย่างที่เติมเจือ Ta^{5+} 0.04 โมล มีการลดลงของโพลาไรเซชันรวดเร็วที่ช่วงจำนวน 3,000-7,500 รอบ แล้วจะค่อย ๆ ลดลงอย่างสม่ำเสมอ ดังรูปที่4.18 (c) สารตัวอย่างที่เติมเจือ Ta^{5+} 0.08 โมล มีลักษณะวงวนคล้ายรูปใบไม้ด้านล่างมนส่วนด้านบนปลายเรียวซึ่งเป็นผลมาจากการที่สารตัวอย่างถูกทำขั้วมาแล้ว มีการลดลงของโพลาไรเซชันรวดเร็วที่ช่วงจำนวน 5,000-10,000 รอบ แล้วค่อยลดอย่างช้า ๆ และสม่ำเสมอดังรูปที่ 4.18 (d) และสารตัวอย่างที่เติมเจือ Ta^{5+} 0.12 โมล ช่วงจำนวน 1,000-7,500 รอบ มีการลดลงที่ต่ำมากแล้วรวดเร็วที่ช่วงจำนวน 7,500-10,000 รอบและ จำนวน 100,000-300,000 รอบ

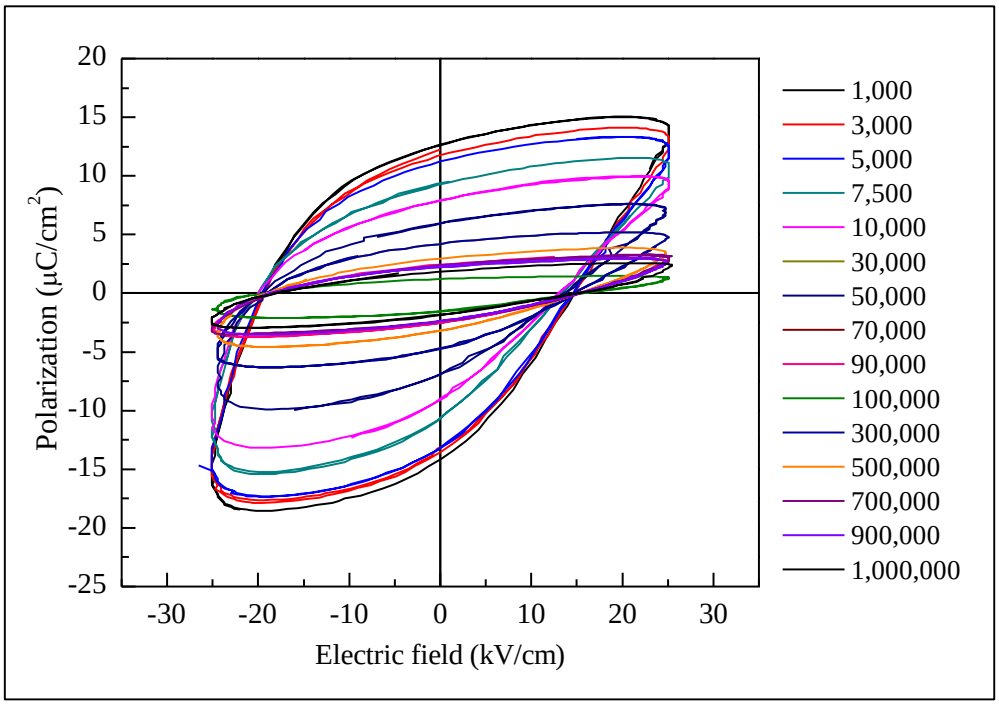
เพื่อแสดงให้เห็นถึงอัตราการลดลงของโพลาไรเซชันของสารตัวอย่างเซรามิกต่าง ๆ จะพิจารณาที่ค่าโพลาไรเซชันคงค้าง และค่าสนามไฟฟ้าลบล้าง ดังรายละเอียดในหัวข้อถัดไป



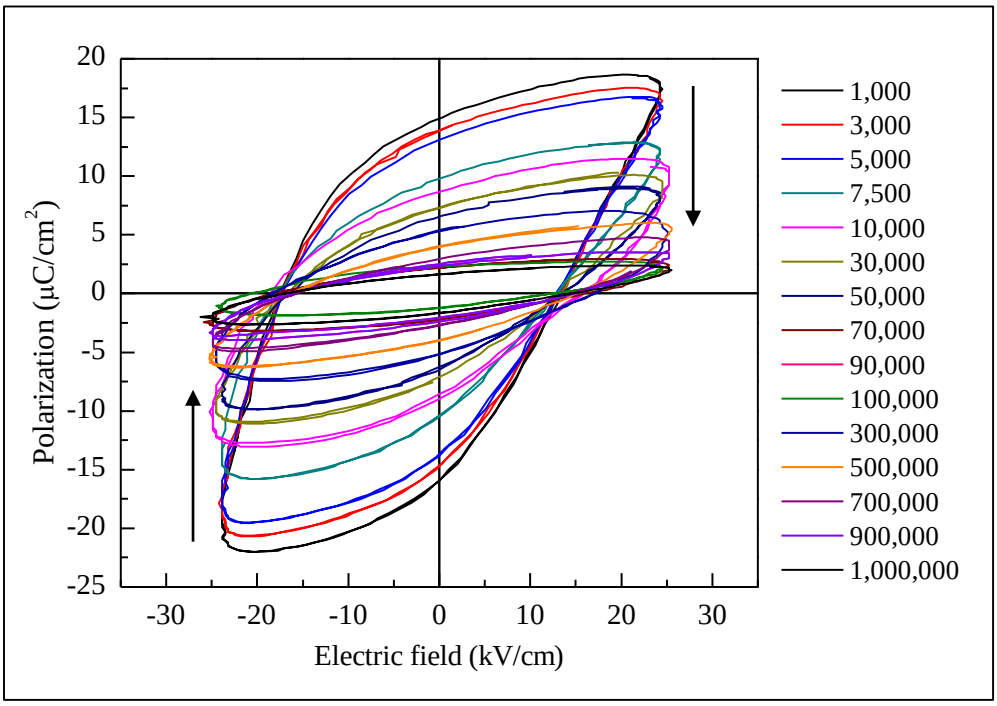
รูปที่ 4.17 วงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิส ของสารตัวอย่าง KNN-LST ก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ความถี่ 50 Hz



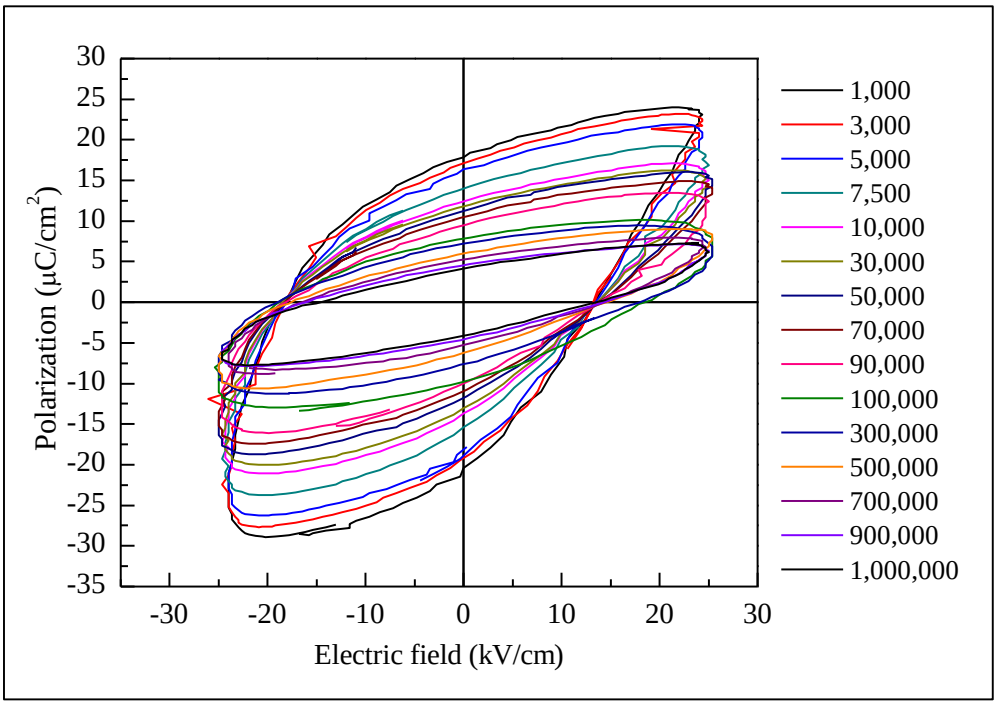
(a) วงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิส ของสารตัวอย่าง KNN



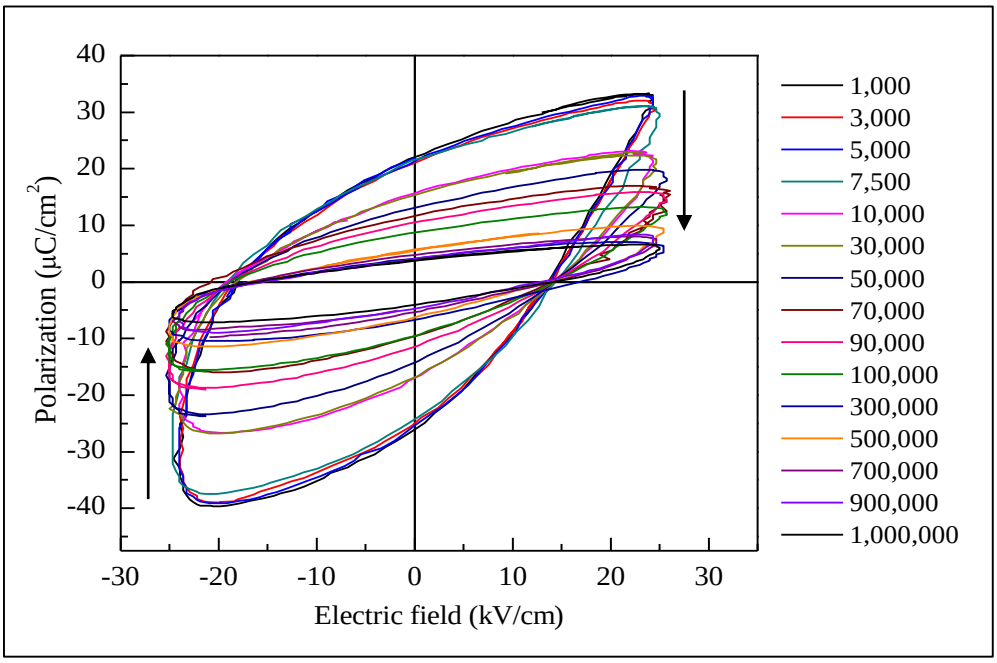
(b) วงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิส ของสารตัวอย่าง x = 0.00



(c) วงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิส ของสารตัวอย่าง x = 0.04



(d) วงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิส ของสารตัวอย่าง x = 0.08



(e) วงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิส ของสารตัวอย่าง x= 0.12

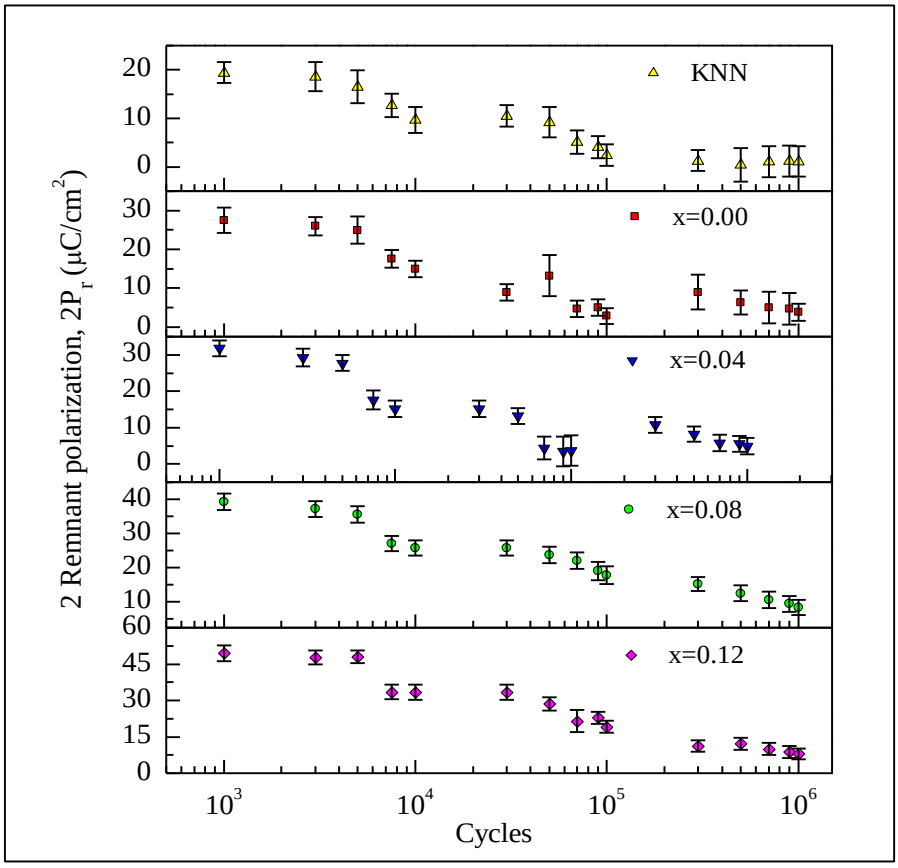
รูปที่ 4.18 วงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิส ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ความถี่ 50 Hz

4.4.2 ค่าโพลาไรเซชันคงค้าง (Remnant polarization, P_r) และค่าสนามไฟฟ้าลบล้าง (Coercive field, E_c)

จากรูปที่ 4.19 แสดงค่าโพลาไรเซชันคงค้าง (remnant polarization) ระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าที่จำนวนรอบต่าง ๆ เมื่อปริมาณ Ta^{5+} เพิ่มขึ้นและรูปที่ 4.20 แสดงค่าโพลาไรเซชันคงค้างแบบสัมพัทธ์ ระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าที่จำนวนรอบต่าง ๆ ของสารตัวอย่าง KNN-LST จากรูปที่ 4.19 พบว่าเมื่อจำนวนรอบเพิ่มขึ้น สารตัวอย่าง KNN และสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0-0.12 โมล ที่ 1-5,000 รอบ มีค่าโพลาไรเซชันคงค้างลดลงอย่างรวดเร็วยกเว้น Ta^{5+} ที่ 0.08 และ 0.12 โดยคิดการลดลงเป็นร้อยละ 15.09, 15.26, 15.25, 12.13, และ 3.73ตามลำดับ ซึ่งในช่วงนี้ปริมาณสารเจือ Ta^{5+} ที่เพิ่มขึ้นจะยังช่วยชะลอการลดปริมาณของค่าโพลไรเซชันคงค้างได้อย่างมากเมื่อเทียบกับสารตัวอย่างเซรามิกอื่น แต่เมื่อจำนวนรอบเพิ่มสูงถึง 50,000 รอบ ค่าโพลไรเซชันคงค้างลดลงในปริมาณที่ใกล้เคียงกันซึ่งคิดเป็นร้อยละ 56.15, 54.82, 57.90, 38.45, และ 40.04 ตามลำดับ และเมื่อจำนวนรอบเพิ่มสูงขึ้นถึง 1,000,000 รอบ สารตัวอย่าง KNNและสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.00-0.12 โมล มีปริมาณของค่าโพลาไรเซชันคงค้างลดลงคิดเป็นร้อยละ 94.53, 85.50, 84.65, 77.27, และ 82.73 แสดงให้เห็นว่าสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+}ช่วยให้ปริมาณการลดลงของค่าโพลไรเซชันคงค้างสอดคล้องกับผลการทดสอบค่าคงที่ไดอิเล็กทริกและค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริก ที่มีค่าลดลงเมื่อจำนวนรอบสนามไฟฟ้าเพิ่มมากขึ้น และจากการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าทั้งหมดตั้งแต่ 1-1,000,000 รอบ พบว่าสารตัวอย่างที่มีการลดลงของค่าโพลาไรเซชันคงค้าง ต่ำที่สุดคือ สารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.08 โมล ดังตารางที่ 4.3

ตารางที่ 4.3 การเปรียบเทียบปริมาณการลดลงของค่าโพลาไรเซชันคงค้าง ($+P_r$) ระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV/mm ความถี่ 50 Hz

Cycles	KNN		x=0.00		x=0.04		x=0.08		x=0.12	
	%decrease	error	%decrease	error	%decrease	error	%decrease	error	%decrease	Error
500	0.957	0.029	1.797	0.054	1.516	0.045	1.291	0.039	1.053	0.032
1000	1.919	0.058	3.595	0.108	3.033	0.091	2.581	0.077	2.106	0.063
5000	15.908	0.477	15.264	0.458	15.259	0.458	12.134	0.364	3.731	0.112
10000	50.520	1.516	68.613	2.058	52.296	1.569	35.544	1.066	31.542	0.946
50000	56.158	1.685	54.823	1.645	57.902	1.737	38.459	1.154	40.049	1.201
70000	76.055	2.282	82.850	2.486	85.937	2.578	42.767	1.283	47.955	1.439
100000	89.647	2.689	91.155	2.735	84.962	2.549	57.071	1.712	59.997	1.800
500000	97.473	2.924	77.248	2.317	73.739	2.212	67.283	2.018	74.238	2.227
700000	95.584	2.868	81.739	2.452	80.799	2.424	71.481	2.144	78.562	2.357
1000000	94.530	2.836	85.509	2.565	84.657	2.540	77.276	2.318	82.737	2.482



รูปที่ 4.19 ค่าโพลาไรเซชันคงค้าง (remnant polarization) ระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าที่จำนวนรอบต่าง ๆ เมื่อปริมาณ Ta^{5+} ที่เพิ่มขึ้น

การลดลงของโพลาไรเซชันคงค้างเนื่องจากความล้าทางไฟฟ้า สามารถคำนวณได้จากสมการลอการิทึม (Logarithmic fatigue) ด้วยโปรแกรม Origin lab ซึ่งเขียนได้ดังนี้

$$P_N = P_0 - A\ln(N+B)$$ [ดัดแปลงมาจาก (Brennan et al., 1993)] (4.2)

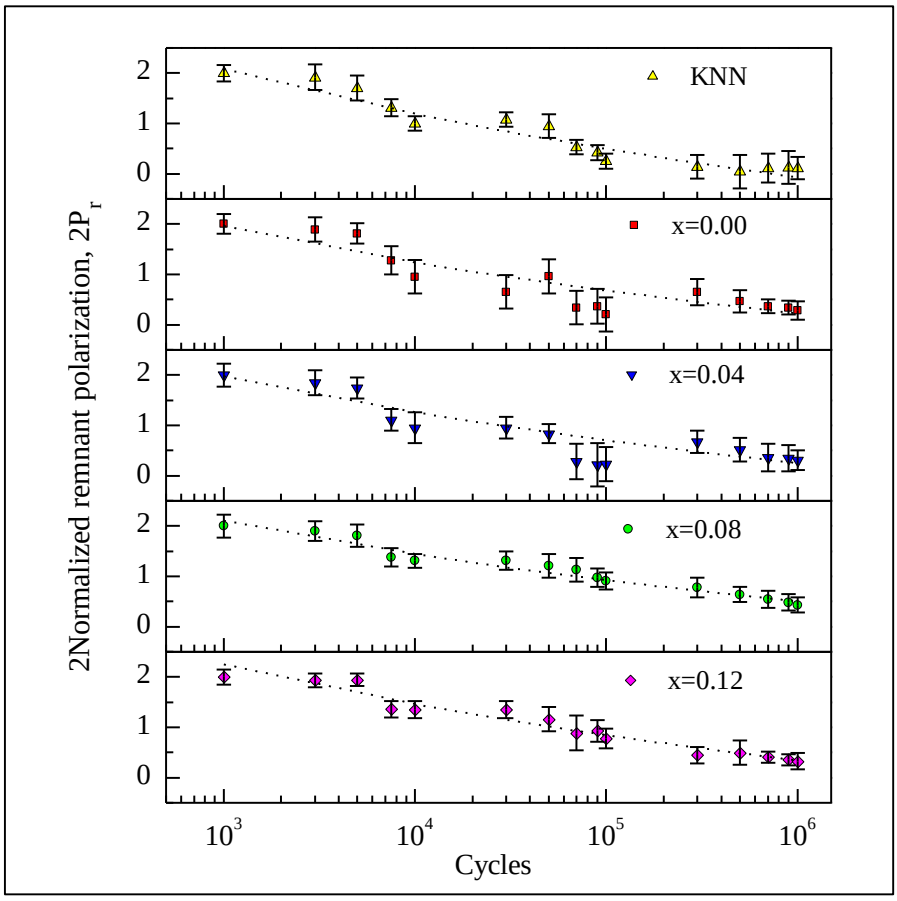
เมื่อ A, B คือ ค่าพารามิเตอร์ของสมการที่สารตัวอย่างเซรามิก KNN-LST

N คือ จำนวนรอบของสนามไฟฟ้า

P_0 คือ โพลาไรเซชันตั้งต้น

ตารางที่ 4.4 ค่าพารามิเตอร์การลดลงของโพลาไรเซชันคงค้างของสารตัวอย่าง KNN-LST

สารตัวอย่าง	P_0		A		B	
	$+P_r$	$-P_r$	$+P_r$	$-P_r$	$+P_r$	$-P_r$
KNN	19.66	-18.15	1.45	-1.33	-428.00	-353.83
x=0.00	18.94	-21.94	1.29	-1.51	-899.80	-891.95
x=0.04	23.58	-25.62	1.56	-1.75	-821.71	-844.88
x=0.08	31.63	-37.68	1.96	-2.40	-100.30	-171.46
x=0.12	46.45	-53.33	3.13	-3.60	762.19	-20.25

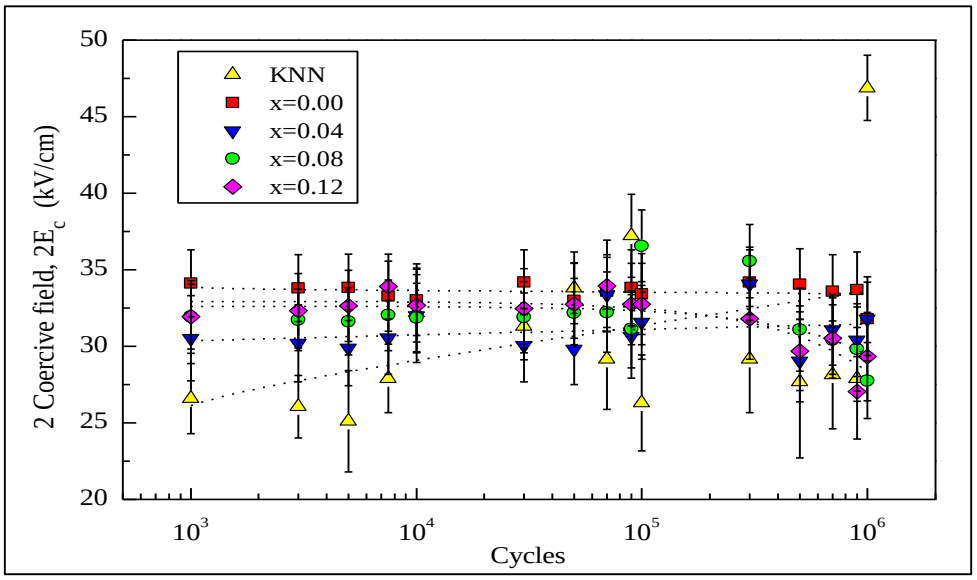


รูปที่ 4.20 ค่าโพลาไรเซชันคงค้างแบบสัมพัทธ์ ระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าที่จำนวนรอบต่าง ๆ ของสารตัวอย่าง KNN-LST
(เส้นประ ได้จากการคำนวณสมการลอการิทึม (Logarithmic fatigue))

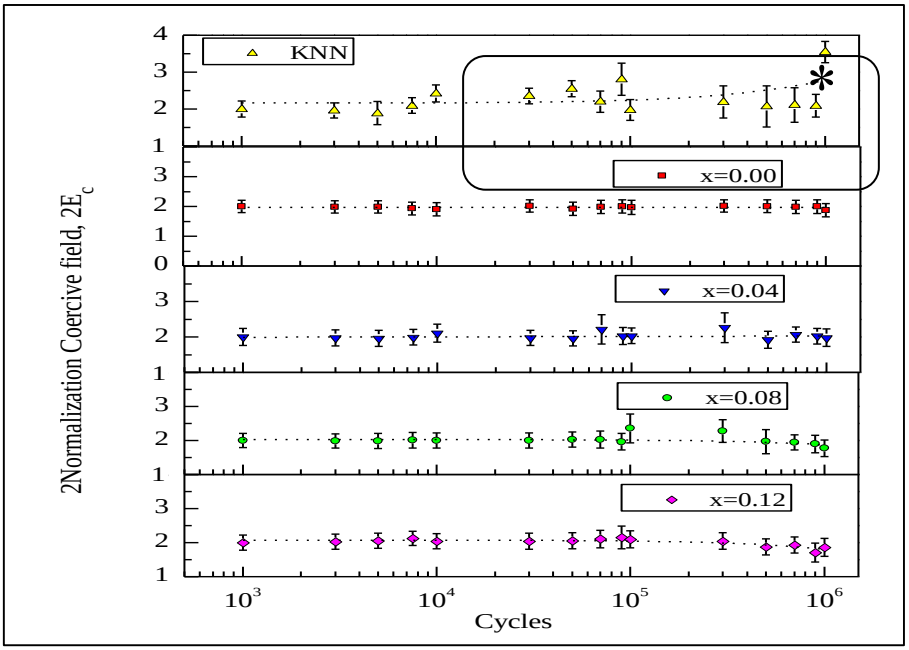
สำหรับการเปลี่ยนแปลงของค่าสนามไฟฟ้าลบล้างสามารถพิจารณาได้จากรูปที่ 4.21 ที่จำนวนรอบต่าง ๆ และรูปที่ 4.22 ซึ่งพบว่า เมื่อจำนวนรอบเพิ่มขึ้น สารตัวอย่าง KNN และสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0-0.12 โมล ที่ 1-5,000 รอบ ค่าสนามไฟฟ้าลบล้างมีค่าลดลงเพียงเล็กน้อย จนเกือบคงที่ สารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} ทั้งหมดมีค่าสนามไฟฟ้าลบล้างลดลงในปริมาณที่ใกล้เคียงกัน โดยสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.12 โมล มีการลดลงต่ำเมื่อเทียบกับสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} ด้วยกัน ในขณะที่สารตัวอย่าง KNN ที่ไม่เตอทสารเจือมีการเปลี่ยนแปลงค่าสนามไฟฟ้าลบล้างน้อย และยังพบอีกว่าสารตัวอย่าง KNN ที่จำนวน 10,000 70,000 500,000

และ1,000,000 รอบ ไม่แสดงรูปแบบวงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิส แต่มีรูปร่างคล้ายวงรีแบนราบตามแนวแกนสนามไฟฟ้า (แกน x) (ดูรูปที่ 4.18a) เนื่องจากความเสื่อมสภาพ ณ จุดนี้สารตัวอย่างจะไม่แสดงสมบัติเฟร์โรอิเล็กทริกและไดอิเล็กทริก จึงไม่สามารถวัดค่าสนามไฟฟ้าลบล้างได้ ดังนั้นค่าสนามไฟฟ้าลบล้างของสารตัวอย่าง KNN ที่ช่วงจำนวนรอบ 10,000 - 1,000,000 รอบ จึงไม่สามารถนำมาใช้เป็นตัวแทนได้ และค่าไพอิโซอิเล็กทริกมีค่าต่ำมากจนเข้าใกล้ศูนย์ ดังรูปที่ 4.26 อีกทั้งยังสอดคล้องกับผลการวิเคราะห์โครงสร้างจุลภาค ที่พบว่าเกิดรอยแตกร้าวทั่วทั้งชิ้นสารตัวอย่างมีรายละเอียดอธิบายไว้ในหัวข้อที่ 4.6 ผลการวิเคราะห์โครงสร้างจุลภาคด้วยกล้องจุลทรรศ์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด

(SEM) สำหรับสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0-0.04 โมล เมื่อจำนวนรอบเพิ่มสูงขึ้นถึง 1,000,000 รอบ ค่าสนามไฟฟ้าลบล้างเพิ่มขึ้นจากตอนก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้าในคิดเป็นร้อยละ1.93 และ 3.08 แสดงให้เห็นว่าสารตัวอย่างทั้งสองแสดงสมบัติใกล้เคียงกับสารตัวอย่าง KNN แต่มีการเปลี่ยนแปลงในทางลบที่น้อยกว่า สำหรับสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.08-0.12 โมล ค่าสนามไฟฟ้าลบล้างลดลงจากตอนก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้าในคิดเป็นร้อยละ 1.78 และ 0.26 หากค่าสนามไฟฟ้าลบล้างนี้เพิ่มขึ้นนั่นหมายความว่า ในการทำให้เกิดการเปลี่ยนทิศทางโดเมน อาจเกิดจากมี defect ที่มาขัดขวางการเปลี่ยนทิศทางโดเมน ดังนั้นจึงต้องใช้สนามไฟฟ้าที่เพิ่มขึ้น และที่สนามไฟฟ้าที่เพิ่มขึ้นสนามไฟฟ้าลบล้างลดลงหลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้านั้น ไม่ได้หมายความว่าการเปลี่ยนทิศทางโดเมนที่ง่ายขึ้นแต่เป็นเพราะค่าความเป็นเฟร์โรอิเล็กทริกลดลงจะเห็นได้จากโพลาไรเซชันที่ลดลงจนแทบไม่เป็นวงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิสซึ่งสนามไฟฟ้าลบล้างที่วัดได้นั้น อาจสามารถแสดงถึงค่าสนามไฟฟ้าที่ใช้ในการทำให้เกิดการเปลี่ยนทิศทางโดเมนได้ทั้งหมด



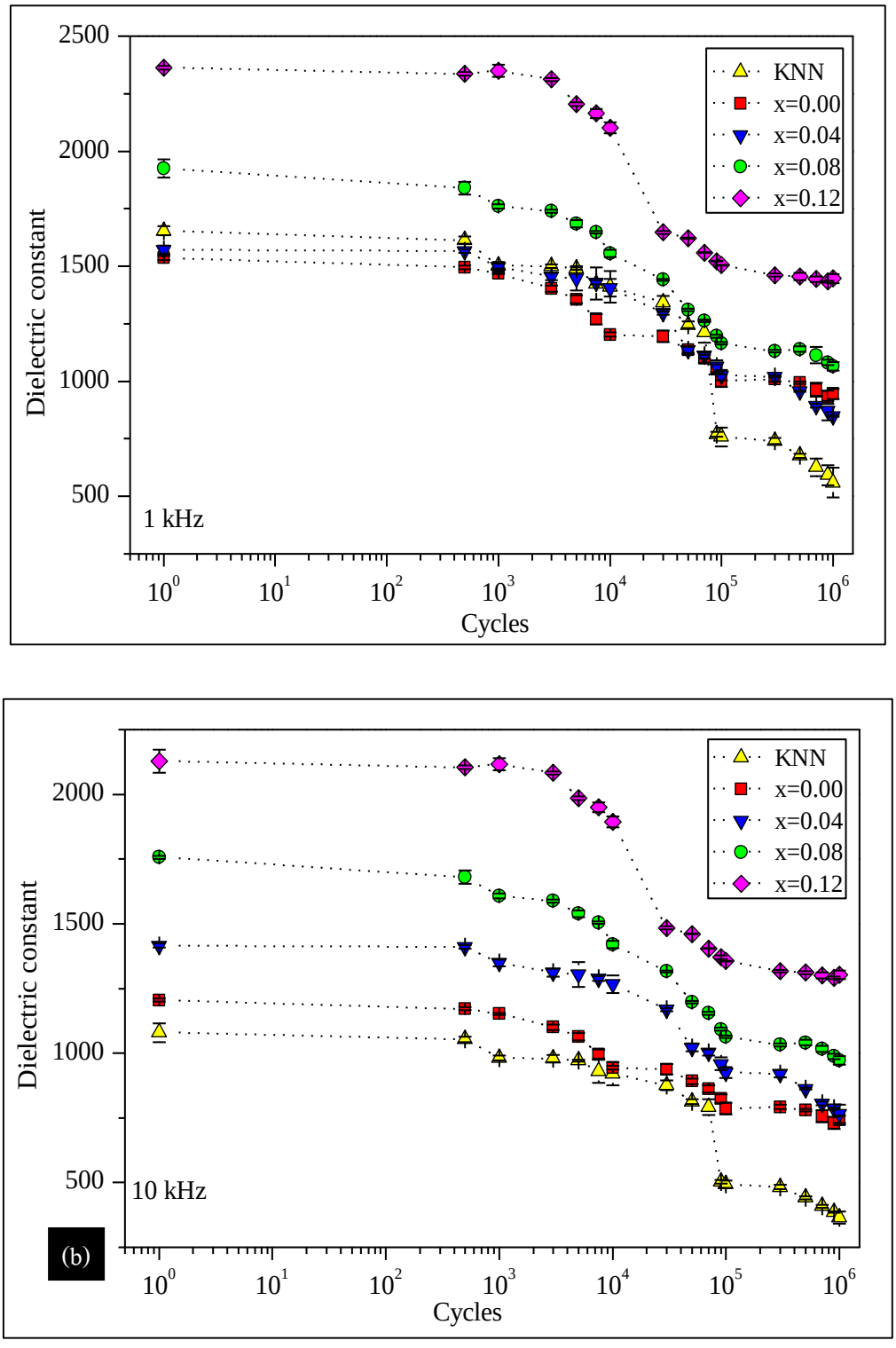
รูปที่ 4.21 ค่าสนามไฟฟ้าลบล้างระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าของสารตัวอย่าง KNN-LST (เส้นประ ได้จากการคำนวสมการลอการิทึม (Logarithmic fatigue))



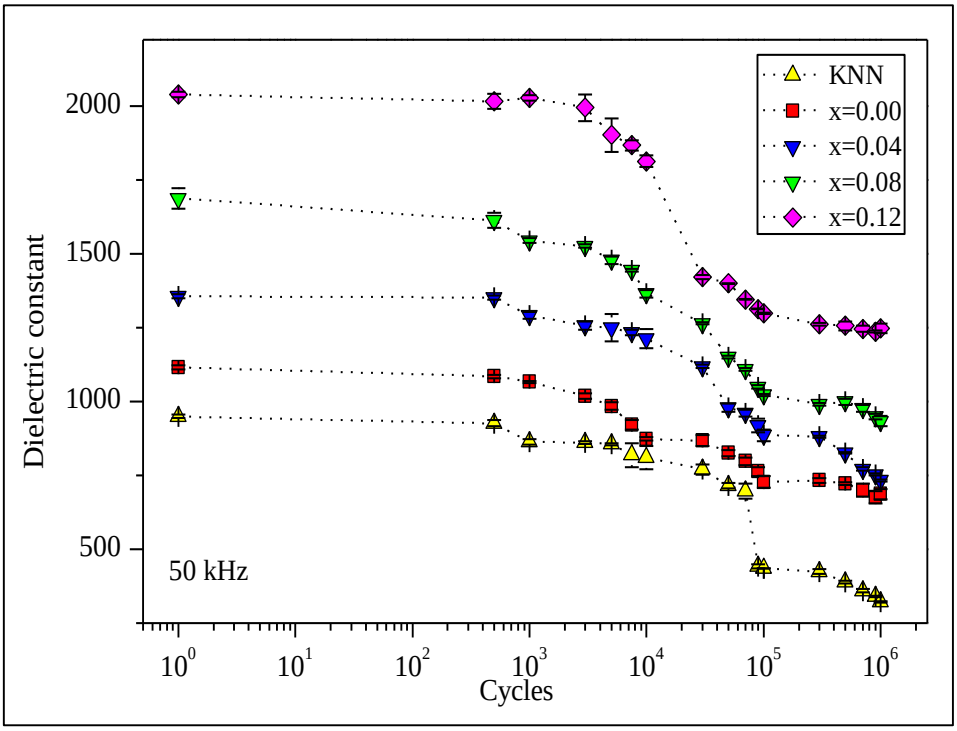
รูปที่ 4.22 ค่าสนามไฟฟ้าลบล้างแบบสัมพัทธ์ระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าของสารตัวอย่าง KNN-LST (เส้นประ ได้จากการคำนวณสมการลอการิทึม (Logarithmic fatigue)) (*ค่าสนามไฟฟ้าลบล้างของสารตัวอย่าง KNN ที่ช่วงจำนวนรอบ 10,000-1,000,000 รอบ จึงไม่สามารถนำมาใช้เป็นตัวแทนได้)

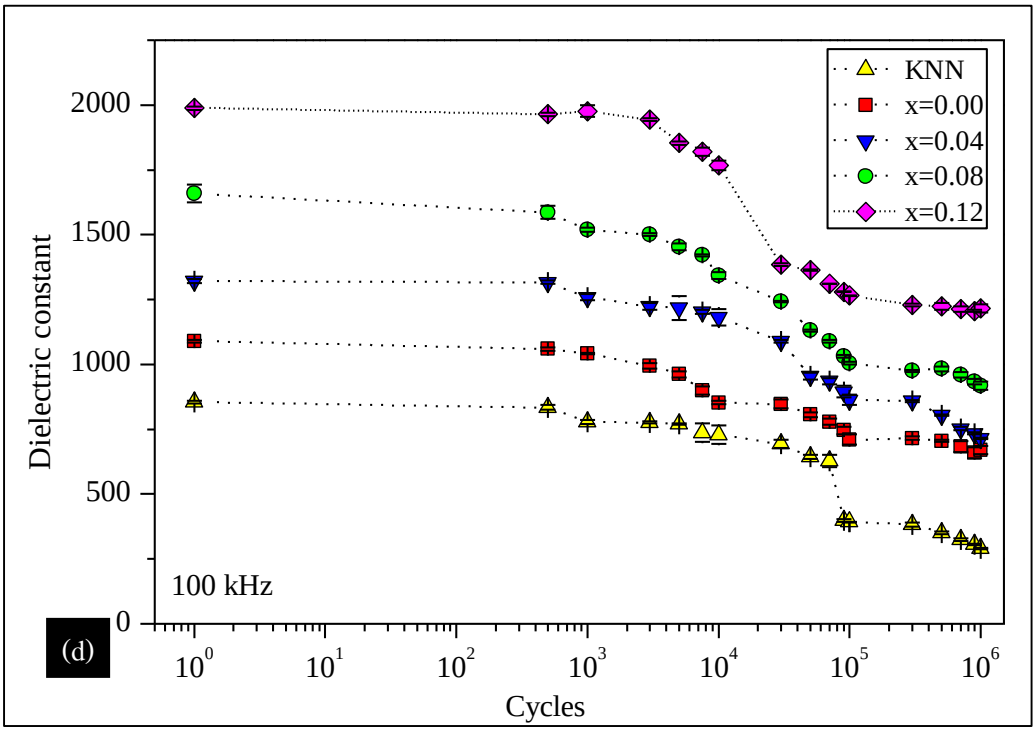
4.4.3 ผลการทดสอบค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (Dielectric constant)

จากรูปที่ 4.23 ผลการทดสอบค่าคงที่ไดอิเล็กทริก ระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า และรูปที่ 4.25 ปริมาณการลดลงของค่าคงที่ไดเล็กทริกระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าเทียบกับก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่จำนวนรอบต่าง ๆ พบว่า เมื่อจำนวนรอบเพิ่มขึ้น สารตัวอย่าง KNN และสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0-0.12 โมล (ดูตารางที่ 4.5) ที่ 1-500 รอบค่าคงที่ไดอิเล็กทริกมีค่าลดลงจากก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้าไม่มากนักคิดเป็นร้อยละ 2.42, 2.74, 0.34, 4.14, และ 1.15 ตามลำดับ สังเกตได้ว่าที่ปริมาณสารเจือ Ta^{5+} 0.04 โมล มีการลดลงที่น้อยมากเมื่อเทียบกับสารตัวอย่างเซรามิกอื่น ๆ แต่ในขณะที่จำนวนรอบเพิ่มสูงขึ้น ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกกลับลดลงในปริมาณที่ใกล้เคียงกัน ดังที่ 5,000 และ 50,000 รอบ อยู่ระหว่างร้อยละ 7-12 และ24-31 ตามลำดับ เมื่อจำนวนรอบเพิ่มสูงขึ้นถึง 100,000 รอบ ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกกลับลดลงในปริมาณที่กลับกันจากช่วงแรก คือ สารตัวอย่าง KNN มีปริมาณลดลงอย่างรวดเร็วมากคิดเป็นร้อยละ54.18 ต่างกับสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0-0.12 โมล มีปริมาณลดลงที่ใกล้เคียงกันคิดเป็นร้อยละ 34.75, 34.67, 39.45, และ 36.32 ตามลำดับ เมื่อจำนวนรอบเพิ่มสูงขึ้นจนถึง 1,000,000 รอบ พบว่าสารตัวอย่าง KNN มีปริมาณลดลงอย่างมากคิดเป็นร้อยละ 66.16 และสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.04-0.12 โมล ปริมาณการลดลงของค่าคงที่ไดอิเล็กทริกมีค่าแปรผันแบบผกผันกับปริมาณสารเจือTa^{5+} ที่เพิ่มขึ้นคิดเป็นร้อยละ 45.95, 44.67, และ 38.81 ตามลำดับ แสดงให้เห็นว่าสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} ช่วยให้ปริมาณการลดลงของค่าคงที่ไดอิเล็กทริกสอดคล้องกับผลการทดสอบวงวนฮีสเทอรีซีสและค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริก และจากการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าทั้งหมดตั้งแต่ 1-1,000,000 รอบ พบว่าสารตัวอย่างที่มีการลดลงของค่าคงที่ไดอิเล็กทริกมากที่สุดคือ สารตัวอย่าง KNN ซึ่งอาจเป็นผลมาจากความเสียหายที่เกิดขึ้นบนชิ้นงานพบเพียงที่ขอบผิวด้านนอก ซึ่งมีรายละเอียดในหัวข้อที่ 4.6.2



รูปที่ 4.23 ผลการทดสอบค่าคงที่ไดอิเล็กทริก ระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าที่จำนวนรอบต่าง ๆ โดยใช้ความถี่ (a) 1 kHz (b) 10 kHz (c) 50 kHz (d) 100 kHz ณ อุณหภูมิห้อง (เส้นประ คือ guide line)

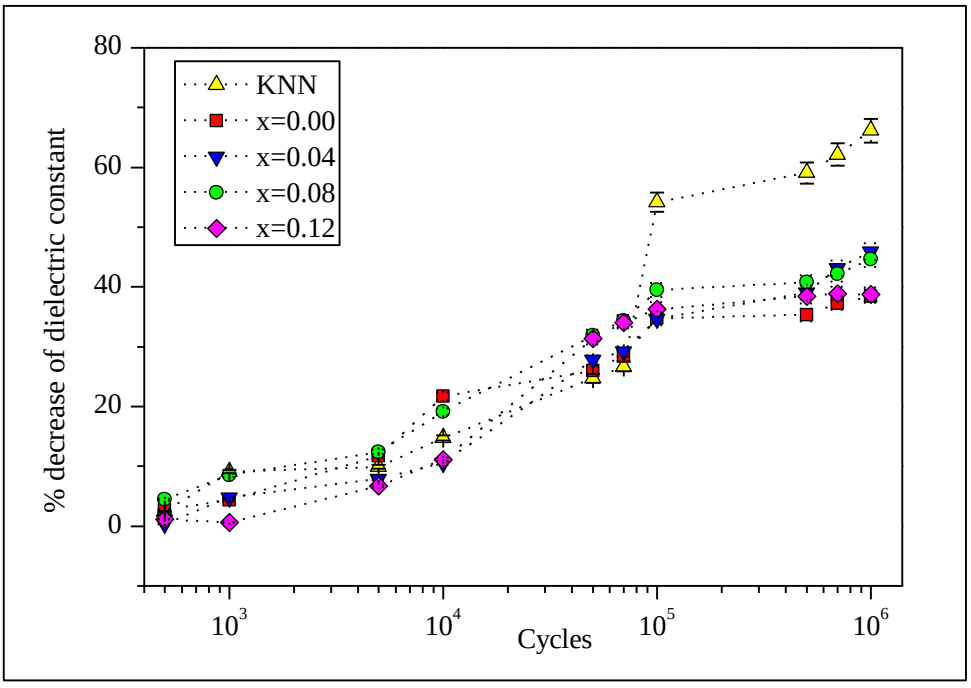




รูปที่ 4.24 ผลการทดสอบค่าคงที่ไดอิเล็กทริก ระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าที่จำนวนรอบต่าง ๆ โดยใช้ความถี่ (a) 1 kHz (b) 10 kHz (c) 50 kHz (d) 100 kHz ณ อุณหภูมิห้อง (เส้นประ คือ guide line) (ต่อ)

ตารางที่ 4.5 แสดงปริมาณการการลดลงของค่าคงที่ไดเล็กทริกระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า เทียบกับก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้าที่จำนวนรอบต่าง ๆ ที่ความถี่ 100 kHz ณ อุณหภูมิห้อง

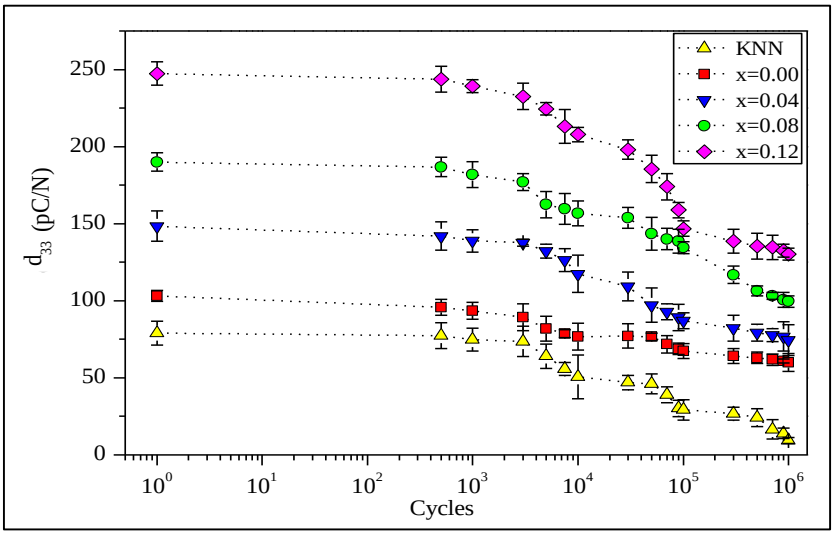
Cycles	KNN		x=0.00		x=0.04		x=0.08		x=0.12	
	%decrease	error	%decrease	error	%decrease	error	%decrease	error	%decrease	error
500	2.423	0.073	2.746	0.082	0.345	0.010	4.414	0.132	1.152	0.035
1000	9.079	0.272	4.389	0.132	4.756	0.143	8.496	0.255	0.589	0.018
5000	9.954	0.299	11.701	0.351	7.910	0.237	12.429	0.373	6.740	0.202
10000	14.768	0.443	21.671	0.650	10.550	0.316	19.148	0.574	11.087	0.333
50000	24.703	0.741	26.011	0.780	27.786	0.834	31.864	0.956	31.381	0.941
70000	26.648	0.799	28.492	0.855	29.218	0.877	34.315	1.029	34.042	1.021
100000	54.185	1.626	34.750	1.043	34.672	1.040	39.454	1.184	36.323	1.090
500000	59.078	1.772	35.288	1.059	39.068	1.172	40.790	1.224	38.414	1.152
700000	62.160	1.865	37.299	1.119	43.098	1.293	42.134	1.264	38.907	1.167
1000000	66.160	1.985	38.467	1.154	45.954	1.379	44.678	1.340	38.802	1.164



รูปที่ 4.25 ปริมาณการลดลงของค่าคงที่ไดเล็กทริกระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า เทียบกับก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่จำนวนรอบต่าง ๆ ที่ความถี่ 50 Hz (เส้นประ คือ guide line)

4.4.4 ผลการทดสอบค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริก (Piezoelectric charge constant, d_{33})

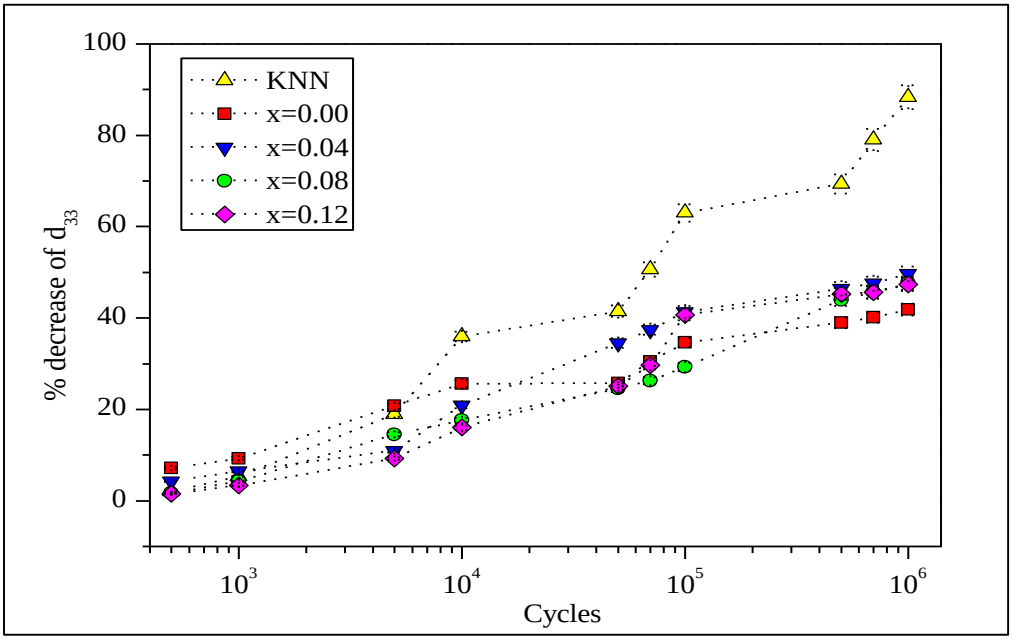
จากรูปที่ 4.25 ผลการทดสอบค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริกระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า และรูปที่ 4.27 ปริมาณการการลดลงของค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริกระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าเทียบกับก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่จำนวนรอบต่าง ๆ พบว่าเมื่อจำนวนรอบเพิ่มขึ้น สารตัวอย่าง KNN และสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0-0.12 โมล (ดูตารางที่ 4.6) ที่ 1-500 รอบ ค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริก มีค่าลดลงจากก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้าไม่มากนักคิดเป็นร้อยละ 2.05, 7.71, 4.31,1.68, และ 1.53 ตามลำดับ สังเกตได้ว่าที่ปริมาณสารเจือ Ta^{5+} 0.12 โมล มีการลดลงที่น้อยมากเมื่อเทียบกับสารตัวอย่างเซรามิกอื่น ๆ แต่พอที่จำนวนรอบเพิ่มสูงขึ้นที่จำนวน 5,000 50,000 และ 500,000 รอบ สารตัวอย่าง KNN มีปริมาณลดลงมากถึงร้อยละ 18.98, 41.51, และ 69.36 ตามลำดับ ในขณะที่สารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0-0.12 โมล ลดลงเพียงร้อยละ 38-46 เมื่อพิจารณาที่จำนวนรอบเพิ่มสูงขึ้นถึง 1,000,000 รอบ สารตัวอย่าง KNNมีค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริกลดลงอย่างมากคิดเป็นร้อยละ 88.35 ต่างกับสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0-0.12 โมล มีค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริกลดลงที่ใกล้เคียงกันคิดเป็นร้อยละ 41.86, 49.73, 47.37, และ47.33 ตามลำดับ จากข้อมูลนี้ชี้ให้เห็นว่าปริมาณการลดลงของค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริกมีค่าแปรผันแบบผกผันกับปริมาณสารเจือ Ta^{5+} ช่วยให้ปริมาณการลดลงของค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริกลดน้อยลงสอดคล้องกับผลการทดสอบวงวนฮีสเทอรีซีสและค่าคงที่ไดอิเล็กทริก และจากการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าทั้งหมดตั้งแต่ 1-1,000,000 รอบ



รูปที่ 4.26 ผลการทดสอบค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริกระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าที่จำนวนรอบสนามไฟฟ้าต่าง ๆ (เส้นประ คือ guide line)

ตารางที่ 4.6 ปริมาณการการลดลงของค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริกระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า เทียบกับก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่จำนวนรอบต่าง ๆ

จำนวนรอบ	KNN		x=0.00		x=0.04		x=0.08		x=0.12	
	%decrease	error	%decrease	error	%decrease	error	%decrease	error	%decrease	Error
500	2.025	0.061	7.171	0.215	4.313	0.129	1.684	0.051	1.536	0.046
1000	5.316	0.159	9.302	0.279	6.469	0.194	4.316	0.129	3.314	0.099
5000	18.987	0.570	20.736	0.622	10.916	0.327	14.526	0.436	9.297	0.279
10000	35.949	1.078	25.581	0.767	20.889	0.627	17.579	0.527	16.006	0.480
50000	41.519	1.246	25.775	0.773	34.501	1.035	24.526	0.736	25.061	0.752
70000	50.633	1.519	30.426	0.913	37.466	1.124	26.316	0.789	29.669	0.890
100000	63.038	1.891	34.690	1.041	41.375	1.241	29.263	0.878	40.663	1.220
500000	69.367	2.081	38.953	1.169	46.496	1.395	44.000	1.320	45.271	1.358
700000	78.987	2.370	40.116	1.203	47.574	1.427	45.684	1.371	45.594	1.368
1000000	88.354	2.651	41.860	1.256	49.730	1.492	47.579	1.427	47.373	1.421



รูปที่ 4.27 ปริมาณการการลดลงของค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริกระหว่างการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าเทียบกับก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่จำนวนรอบต่าง ๆ
(เส้นประ คือ guide line)

4.5 ผลการศึกษาและการวิเคราะห์วัฏภาคด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนรังสีเอ็กซ์ (XRD)

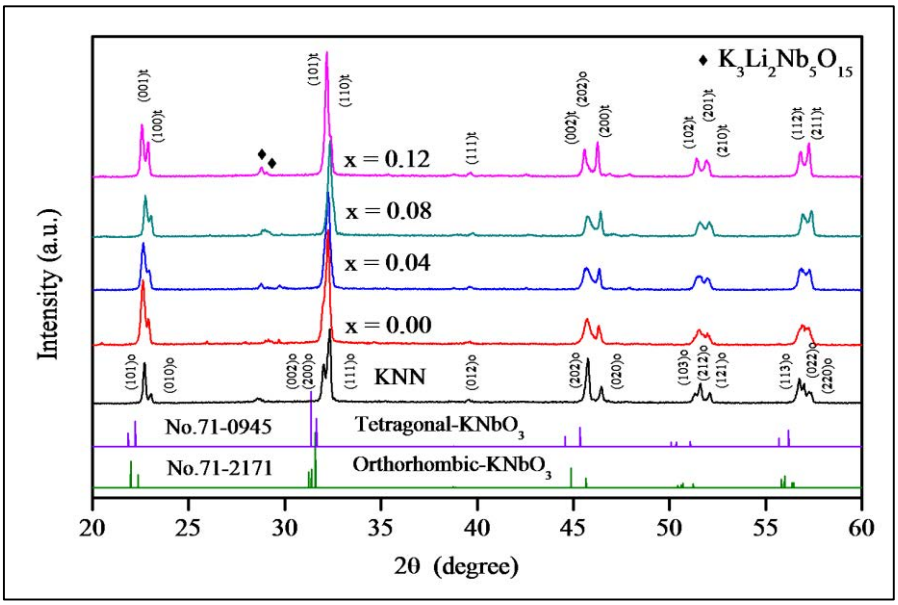
ในส่วนนี้เป็นการวิเคราะห์วัฏภาค ด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ (XRD) เพื่อตรวจสอบโครงสร้างจากกราฟเอกซ์เรย์ดิฟแฟรกชันที่ 2θ=20-70º เพื่อศึกษาโครงสร้างวัฏภาคโดยรวมและ 2θ=45-47º เพื่อศึกษาวิเคราะห์การเติมสารเจือแทนทาลัม (Ta^{5+}) ที่มีต่อการเปลี่ยนทิศทางของโดเมนในสารตัวอย่างก่อนการเหนี่ยวนำขั้ว (Unpoled sample) ก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า (Unfatigued) และสารตัวอย่างที่ทดสอบความล้าทางไฟฟ้าแล้ว (Fatigued sample)

4.5.1 ผลการวิเคราะห์วัฏภาค ในสารตัวอย่างก่อนการเหนี่ยวนำขั้ว (Unpoled sample) ก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า (Unfatigued) และสารตัวอย่างที่ทดสอบความล้าทางไฟฟ้าแล้ว (Fatigued sample)

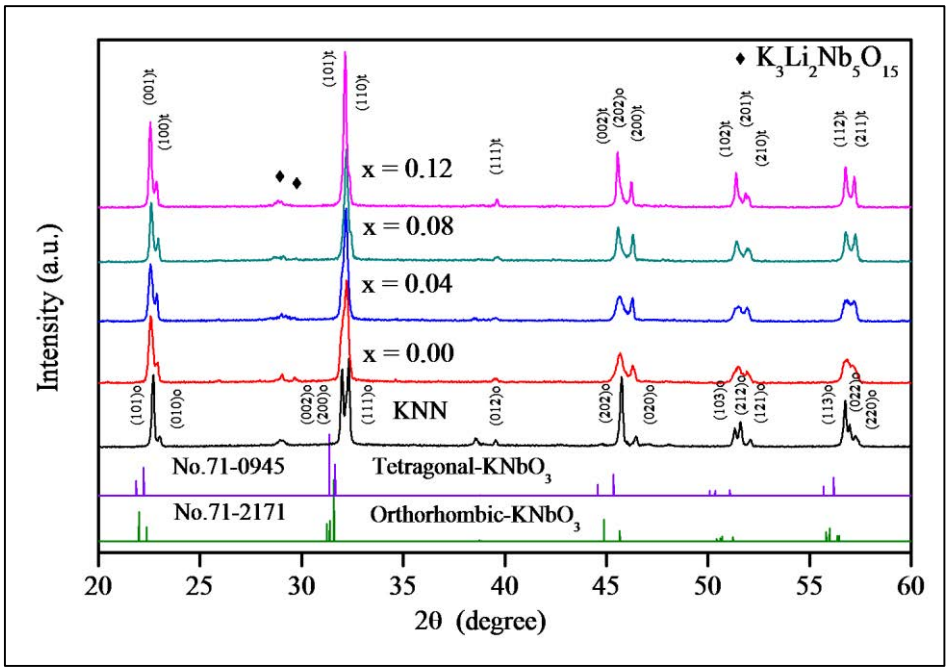
สารตัวอย่าง KNN และสารตัวอย่างที่ไม่มีการเติมสารเจือ Ta^{5+} ถูกเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1100 ºC และสารตัวอย่างที่มีการเติมสารเจือ Ta^{5+} 0.04, 0.08, 0.12 โมล ถูกเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1130 ºC ด้วยอัตราให้ความร้อน 5 ºC/นาที และคงอุณหภูมิไว้ 4 ชั่วโมง จากนั้นนำไปขัดเตรียมผิวสำหรับทดสอบก่อนการทำขั้วก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า และสารตัวอย่างที่ทดสอบความล้าทางไฟฟ้าแล้ว ผลปรากกฏว่าทั้งหมดยังมีโครงสร้างเป็นแบบเพอรอฟสไกต์ (perovskite) ทั้งหมด ดังรูปที่ 4.28-4.29 และยังพบเกิดวัฏภาคแปลกปลอม(second phase) คือ $K_3Li_2Nb_5O_{15}$ (PDF no. 34-0122) ซึ่งเป็นวัฏภาคที่เกิดจากสารตั้งต้นที่มีโพแทสเซียมคาร์บอเนต (K_2CO_3) มากเกินทำปฏิกิริยากับสารลิเทียมคาร์บอเนต (Li_2CO_3) และไนโอเบียมออกไซด์ (Nb_2O_5) เกิดเป็นสารประกอบขึ้นมาในสารตัวอย่าง สารตัวอย่างเซรามิก KNN มีวัฏภาคผลึกแบบออร์โธรอมบิค (orthorhombic) (PDF no. 71-2171) และค่อย ๆ เปลี่ยนแปลงไปเป็นแบบเตตระโกนอล (tetragonal) (PDF no. 71-0945) เมื่อปริมาณสารเจือ Ta^{5+} เพิ่มขึ้น ซึ่งสามารถสังเกตได้จากอัตราส่วนความสูงและลำดับของระนาบที่เปลี่ยนไปได้อย่างชัดเจน ในช่วง 2θ= 22-24º และ 45-47º เมื่อสารตัวอย่างถูกทำขั้วเรียบร้อยภายในโครงสร้างจะเกิดเปลี่ยนแปลง โดเมนภายในจะพยายามจัดเรียงตัวไปตามทิศทางของสนามไฟฟ้าที่ให้ สังเกตได้จากความสูง peak XRD ของระนาบ (101) (202) ของสารตัวอย่างที่เป็นผลึกแบบออร์โธรอมบิค และระนาบ (001) (002) ของสารตัวอย่างที่เป็นผลึกแบบเตตระโกนอลที่สูงขึ้นอย่างเห็นได้ชัดดังรูปที่ 4.29 เพราะค่าความสูงของ peak XRD จะแปรผกผันกับสัดส่วนของระนาบของผลึก จึงเป็นเหตุผลที่ว่าระนาบ (001) และ (002) จึงสูงขึ้นหลังจากทำขั้วแล้วดังรูปที่ 4.31 แบบจำลองการเปลี่ยนแปลงทิศทางของโดเมนที่มีความสัมพันธ์กับการวิเคราะห์ด้วยเทคนิค XRDของผลึกที่มีวัฏภาคแบบเตตระโกนอล (a) ก่อนเหนี่ยวนำขั้ว (b) ก่อนทดสอบความ

ล้าทางไฟฟ้า (c) หลังทดสอบความล้าทางไฟฟ้าแต่หลังจากทดสอบความล้าทางไฟฟ้าแล้วจะพบว่าความสูง peak XRD ของระนาบ (101) ของสารตัวอย่างที่เป็นผลึกแบบออร์โธรอมบิค และระนาบ (001) ของสารตัวอย่างที่เป็นผลึกแบบเตตระโกนอล จะลดต่ำลงอันเนื่องมาจากความล้า หลังทดสอบความล้าแล้วและรูปที่ 4.30 กราฟเอ็กเรย์ดิฟแฟรกชันของสารตัวอย่าง KNN-LST หลังการทดสอบ

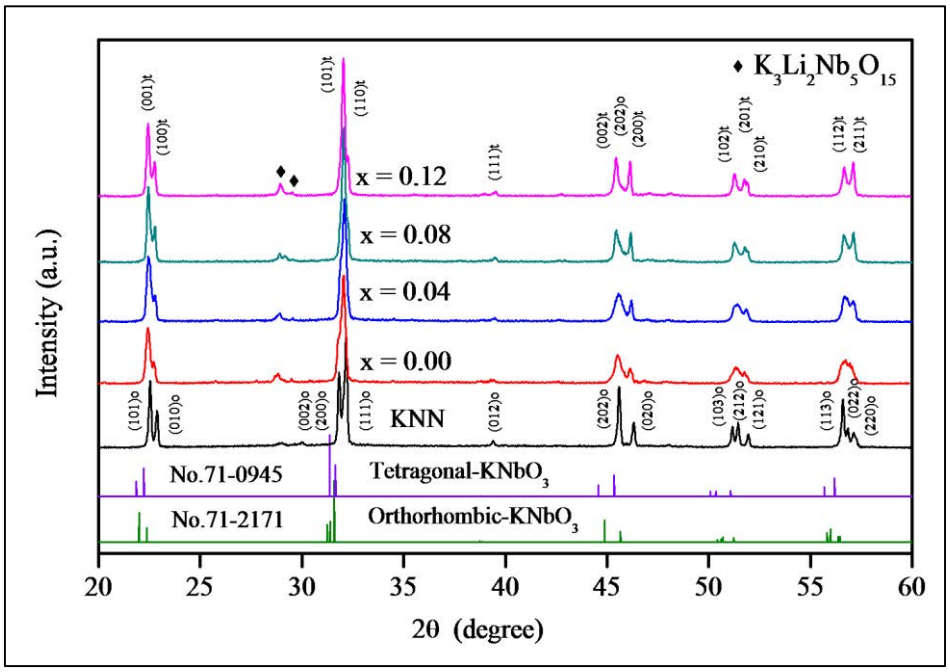
ความล้าทางไฟฟ้า กล่าวคือโดเมนภายในมีความสามารถในการกลับทิศตามสนามไฟฟ้าที่ให้ได้ หรือกลับทิศไปได้ไม่ทั้งหมดคงเหลือส่วนที่วางตัวในแนวทิศอื่น จากเดิมที่แนวแกน a หันขึ้นมาบนพื้นผิว เมื่อรังสีเอกซ์ตกกระทบที่ผิวก็จะเจอส่วนแนวแกน a ผสมกับแนวแกน c ที่เพิ่มขึ้น ดังรูปที่ 4.31 (c) ความสูงpeak XRD ของระนาบ (001) (002) จึงลดต่ำลง หากเปรียบเทียบให้เข้าใจอย่างง่ายคือการที่คนเราวิ่งกลับไปมาจากจุดหนึ่งไปยังจุดหนึ่งเป็นจำนวนหลาย ๆ รอบ ร่างกายก็เหนื่อยล้า ระยะทางที่สามารถวิ่งได้ก็สั้นลง เช่นเดียวกับโดเมนที่ควรจะต้องกลับทิศได้ 180º แต่ด้วยความล้านี้จึงสามารถกลับได้เพียง 90º ทั้งนี้เนื่องมาจากโดเมนบางส่วนไม่สามารถเคลื่อนที่ได้ซึ่งอาจเกิดเนื่องมาจากถูกตรึงด้วยมลทินที่มีประจุ (Charged defects) หรือ ช่องว่างออกซิเจน (Oxygen vacancy) ซึ่งปรากฏการณ์นี้เรียกว่า ผลการตรึงของโดเมน (Domain pinning effect) ส่งผลทำให้โพลาไรเซชัน หรือ โดเมนภายสารตัวอย่าง ไม่สามารถเปลี่ยนทิศทางได้ตามทิศทางของสนามไฟฟ้า และทำให้ผนังของโดเมนไม่สามารถเคลื่อนที่ได้ดี (Park et al., 1997 ; Brennan et al., 1998) จึงทำให้โพลาไรเซชันคงค้างมีค่าลดลง



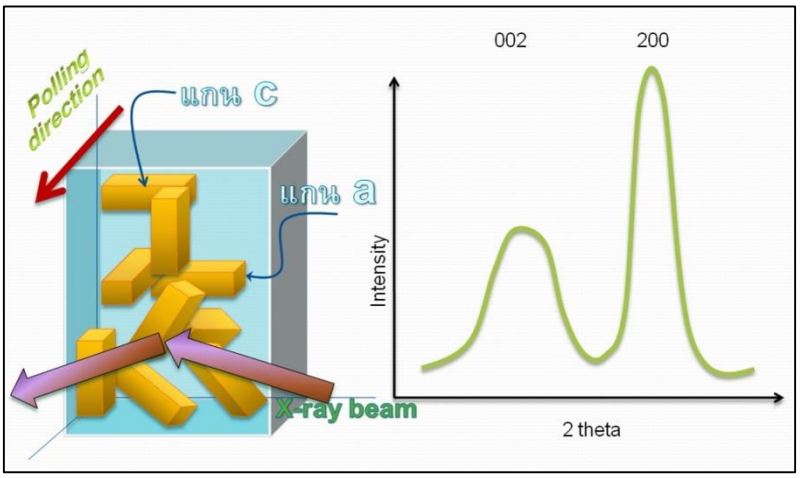
รูปที่ 4.28 กราฟเอ็กเรย์ดิฟแฟรกชันของสารตัวอย่าง KNN-LST ก่อนการทำขั้ว

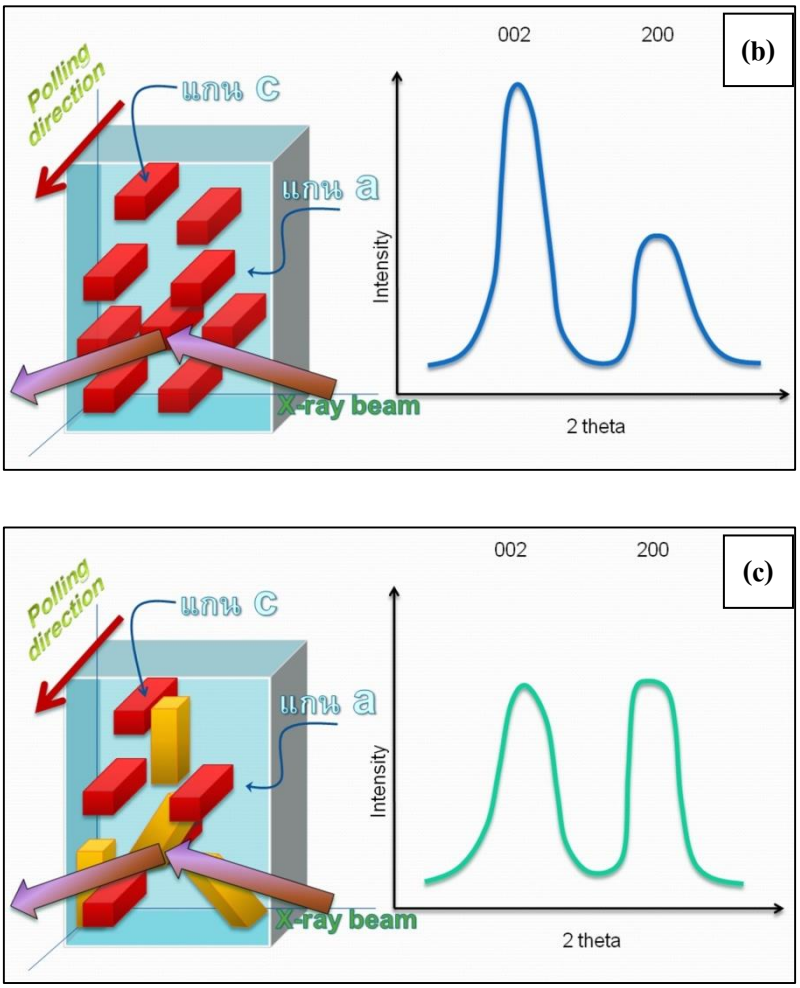


รูปที่ 4.29 กราฟเอ็กเรย์ดิฟแฟรกชันของสารตัวอย่าง KNN-LST หลังเหนี่ยวนำขั้ว และก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า



รูปที่ 4.30 กราฟเอ็กเรย์ดิฟแฟรกชันของสารตัวอย่าง KNN-LST หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า





รูปที่ 4.31 แบบจำลองการเปลี่ยนแปลงทิศทางของโดเมนที่มีความสัมพันธ์กับการวิเคราะห์ด้วยเทคนิค XRD ของผลึกที่มีวัฏภาคแบบเตตระโกนอล (a) ก่อนเหนี่ยวนำขั้ว (b) ก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า (c) หลังทดสอบความล้าทางไฟฟ้า

ค่าความหนาแน่นของขั้วโพลาไรเซชัน (Pole density) เป็นค่าตัวเลขเชิงปริมาณที่ใช้ในการบ่งชี้สัดส่วนของโดเมน (โพลาไรเซชันเรียงตัวในแนวแกน c ของ unit cell) ที่มีทิศของโพลาไรเซชันเรียงตัวไปในแนวเดียวกับสนามไฟฟ้า ค่าความหนาแน่นขั้วโพลาไรเซชัน มีหน่วยเรียกว่า multiple of a random distribution (m.r.d) มีลักษณะแบบจำลองการจัดเรียงตัวดังรูปที่ 4.32ซึ่งสามารถคำนวณได้จากสูตรดังต่อไปนี้ (Jones et al., 2005)

$$\text{Pole density} = \frac{3\left(A_{002}/A^{R}_{002}\right)}{\left(A_{002}/A^{R}_{002}\right)+2\left(A_{200}/A^{R}_{200}\right)} \quad \text{m.r.d} \qquad (4.3)$$

เมื่อ Pole density = 0 m.r.d หมายถึง มีการจัดเรียงตัวของโดเมนแบบสุ่ม

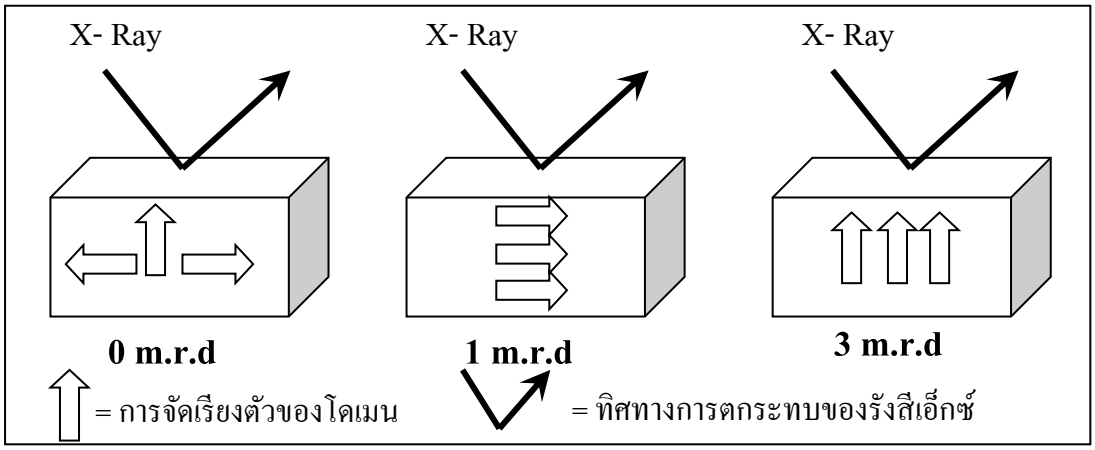
(random orientation)

Pole density = 1 m.r.d หมายถึง มีการจัดเรียงตัวของโดเมนในทิศทางที่ตั้งฉากกับสะท้อนของรังสีเอ็กซ์เรย์ (Prefered orientation)

Pole density = 3 m.r.d หมายถึง มีการจัดเรียงตัวของโดเมนในทิศทางที่ขนานกับแนวสะท้อนของรังสีเอ็กซ์เรย์

โดย A_{002} และ A_{200} คือ พื้นที่ใต้กราฟที่มีจุดยอดมุม $2\theta \cong 45.25$ และ 46 (สำหรับสารตัวอย่างที่ใช้ในการทดลองนี้)

A^R_{002} และ A^R_{200} คือ พื้นที่ใต้กราฟของสารตัวอย่าง ที่มีการจัดเรียงตัวของโดเมนแบบสุ่ม (หรือสารตัวอย่างที่ใช้ในการทดลองนี้) ทำให้ค่าโพลาไรเซชันมีค่าเป็นศูนย์

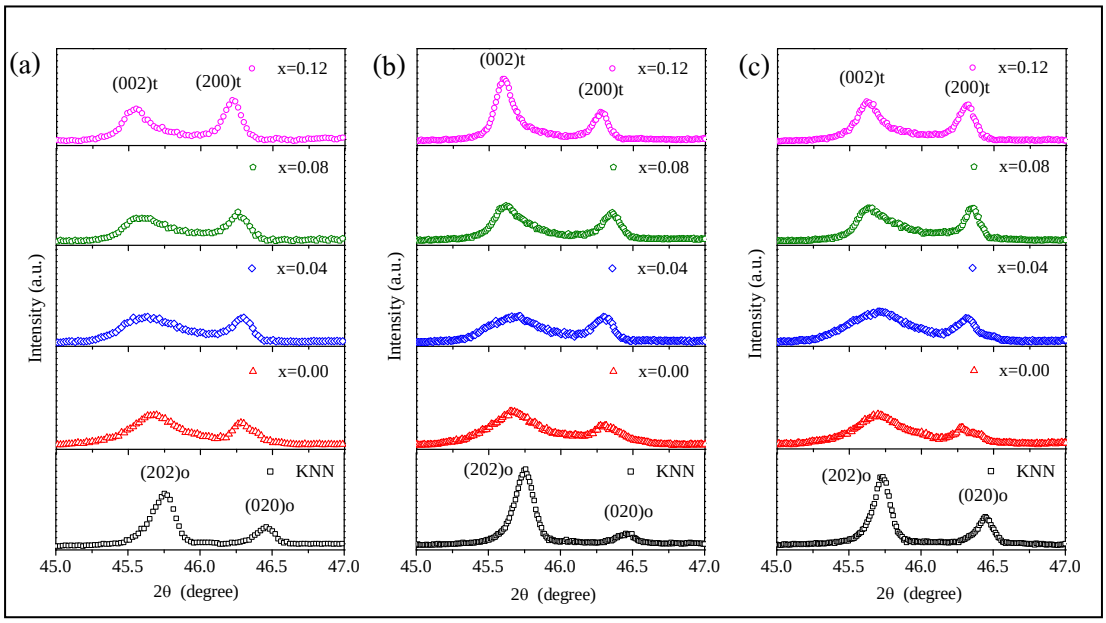


รูปที่ 4.32 แบบจำลองลักษณะการจัดเรียงตัวโดเมนของ Pole density ที่เท่ากับ 0, 1, และ 3 m.r.d

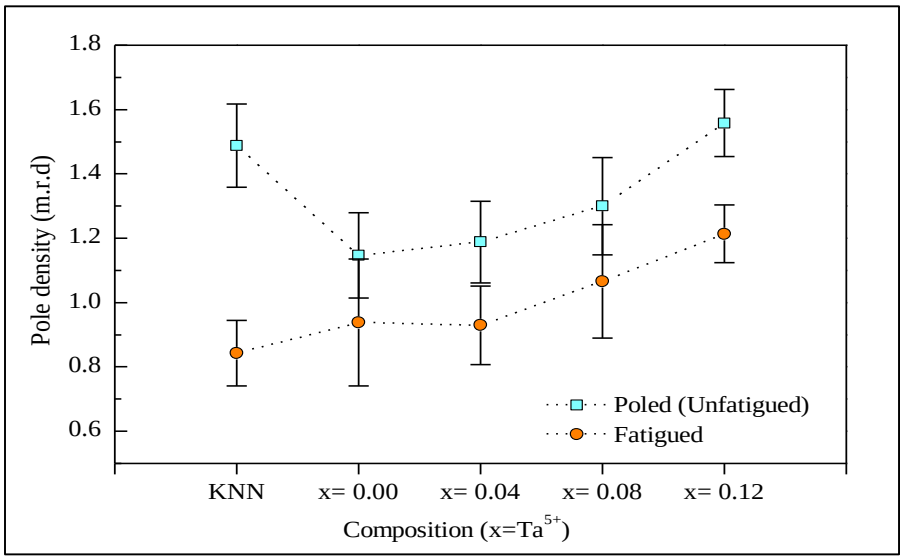
โดยเลือกช่วง 2θ:45-47º ดังรูปที่ 4.32 ที่สามารถมองเห็นการเปลี่ยนแปลงของโดเมนได้อย่างชัดเจนมากที่สุดมาคำนวณตามสมการที่ 4.3 และได้ผลการคำนวณดังรูปที่ 4.34 ความหนาแน่นขั้วโพลาไรเซชัน ที่เกิดขึ้นในแนวตั้งฉากกับพื้นผิวอิเล็กโทรดก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ภายใต้สนามไฟฟ้า ± 2.5 kV ต่อความหนา1 มิลลิเมตร และหลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า จำนวน 10^6รอบที่ความถี่ 50 Hz ของสารตัวอย่างเซรามิกรูปที่ 4.34 ความหนาแน่นขั้วโพลาไรเซชัน จากข้อมูลข้างต้นทำให้ทราบว่าเมื่อสารตัวอย่างถูกทำขั้วเรียบร้อยภายในโครงสร้างจะเกิดเปลี่ยนแปลง โดเมนภายในจะพยายามจัดเรียงตัวไปตามทิศทางของสนามไฟฟ้าที่ให้ค่า ความหนาแน่นขั้วโพลาไรเซชันในส่วนนี้จึงมีค่าอยู่ระหว่าง 1.0-1.6 m.r.d แต่หากสารตัวอย่างถูกทดสอบด้วยการจ่ายสนามไฟฟ้าอย่างซ้ำ ๆ เปรียบเทียบได้กับการใช้งานวัสดุอย่างซ้ำ ๆ ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ที่ความถี่ 50 Hz

จำนวน 1,000,000 รอบ สังเกตได้ว่าความสูง peak XRD ของระนาบ (101) (202) ของสารตัวอย่างที่เป็นผลึกแบบออร์โธรอมบิค และระนาบ (001) (002) ของสารตัวอย่างที่เป็นผลึกแบบเตตระโกนอลที่ลดลงอย่างเห็นได้ชัดดังรูปที่ 4.34 ค่าความหนาแน่นขั้วโพลาไรเซชัน ในส่วนนี้จึงมีค่าอยู่ระหว่าง 0.8-1.2 m.r.d ซึ่งต่ำกว่าเมื่อเปรียบเทียบกับก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า

จากผลการทดลองและการวิเคราะห์ที่กล่าวมาข้างต้นจึงสามารถสรุปได้ว่าการเปลี่ยนแปลงของโดเมนดังกล่าวตั้งแต่ก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า และหลังทดสอบความล้าทางไฟฟ้ามีค่าโพลาไรเซชั่น และ ความหนาแน่นขั้วโพลาไรเซชัน ลดลงมีผลประการหนึ่งมาจากการตรึงของผนังโดเมน (Domain pinning effect) ในลำดับต่อไปจะเป็นการอธิบายถึงผลของสารเจือ Ta^{5+} ที่มีผลต่อการเปลี่ยนทิศทางของโดเมนในสารตัวอย่างเซรามิก



รูปที่ 4.33 กราฟเอ็กเรย์ดิฟแฟรกชันอย่างละเอียดที่ 2θ:45-47° ของสารตัวอย่าง KNN-LST (a) ก่อนการเหนี่ยวนำขั้ว (b) ก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า (c) หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า



รูปที่ 4.34 ค่า pole density ที่เกิดขึ้นในแนวตั้งฉากกับพื้นผิวอิเล็กโทรดก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ภายใต้สนามไฟฟ้า ± 2.5 kV ต่อความหนา 1 มิลลิเมตร และหลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า จำนวน 10^6 รอบที่ความถี่ 50 Hz ของสารตัวอย่างเซรามิกส์ (เส้นประ คือ guide line)

4.5.2 ผลวิเคราะห์การเติมสารเจือแทนทาลัม (Ta^{5+}) ที่มีต่อการเปลี่ยนทิศทางของโดเมน

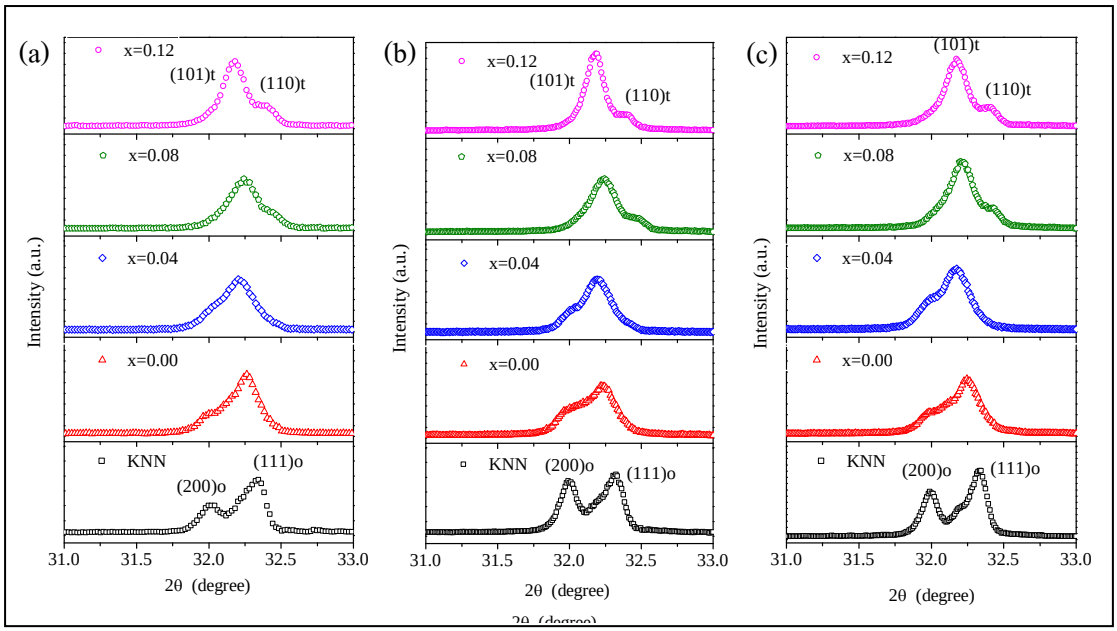
สำหรับวัสดุเฟร์โรอิเล็กทริกเซรามิกส์ เมื่อทำขั้วให้สารตัวอย่างจะเกิดการจัดเรียงขั้วของแต่ละ unit cell โดยเรียงตัวตามทิศทางของสนามไฟฟ้า ซึ่งการจัดเรียงตัวของขั้วในแต่ละ unit cell นี้นำไปสู่การกลับขั้วของโดเมน (domain switching) และการเคลื่อนที่ของผนังโดเมนในแต่ละเกรนภายในวัสดุ หลังจากการนำสนามไฟฟ้าออกโดเมนส่วนใหญ่ยังจะเรียงตัวในทิศทางใกล้เคียงทิศทางสนามไฟฟ้า กระบวนการนี้เป็นการทำให้โดเมนเรียงตัวตามทิศทางที่ต้องการซึ่งเรียกกระบวนการนี้ว่า poling process ดังจะเห็นจากกราฟเอ็กเรย์ดิฟแฟรกชันข้างต้นมาแล้วหากพิจารณากราฟเอ็กเรย์ดิฟแฟรกชันอย่างละเอียดดังรูปที่ 4.35 ที่ช่วง 2θ=31-33º ความสูง peak XRD ของระนาบสารที่สามารถสังเกตุได้อย่างชัดเจนคือสารตัวอย่าง KNN ก่อนทำขั้ว ระนาบ (200) ต่ำกว่า (111) เนื่องจากโดเมนภายในยังไม่มีการจะเรียงตัวในทิศทางใดทิศทางหนึ่ง อยู่ในสภาวะแบบสุ่ม แต่หลังจากทำขั้วแล้วโดเมนจะพยายามจัดเรียงตัวโดยการหันทิศไปตามสนามไฟฟ้า ความสูง peak XRD ของระนาบที่ ระนาบ (200) จึงมีความสูงใกล้เคียงกับระนาบ (111) และเมื่อถูกทดสอบความล้าความสูง peak XRD ของระนาบทั้งสองก็จะกลับมาอยู่ในสภาพใกล้เคียงกับก่อนทำขั้ว ในทำนองเดียวกับสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.12 โมล ระนาบ (101) จะสูงขึ้นหลังจากทำขั้วแล้วและกลับมาใกล้เคียงสภาพเดิมหลังจากทดสอบความล้าทางไฟฟ้า การเปลี่ยนแปลงทิศทางของ

โดเมนยังสามารถสังเกตได้จาก 2θ=50-53º ดังรูปที่ 4.36 แต่ในช่วงนี้จะมีการเปลี่ยนแปลงถึง 3 ระนาบ ดูรูปที่ 4.38 ซึ่งค่อนข้างยากต่อการวิเคราะห์เนื่องจากมีความซับซ้อนในการหาอัตราส่วนการเปลี่ยนทิศโดเมนทั้ง 3 ระนาบให้มีความสัมพันธ์กัน ดังนั้นงานวิจัยนี้จึงเลือกช่วง 2θ=45-47 มาใช้ในการคำนวนการเปลี่ยนทิศทางกาจัดเรียงตัวของโดเมน โดยอาศัยการคำนวนหาอัตราส่วนพื้นที่ใต้กราฟของระนาบที่ 1 และ 2 ใน 2θ=45-47º ดังสมการที่ 4.4 และรูปที่ 4.37

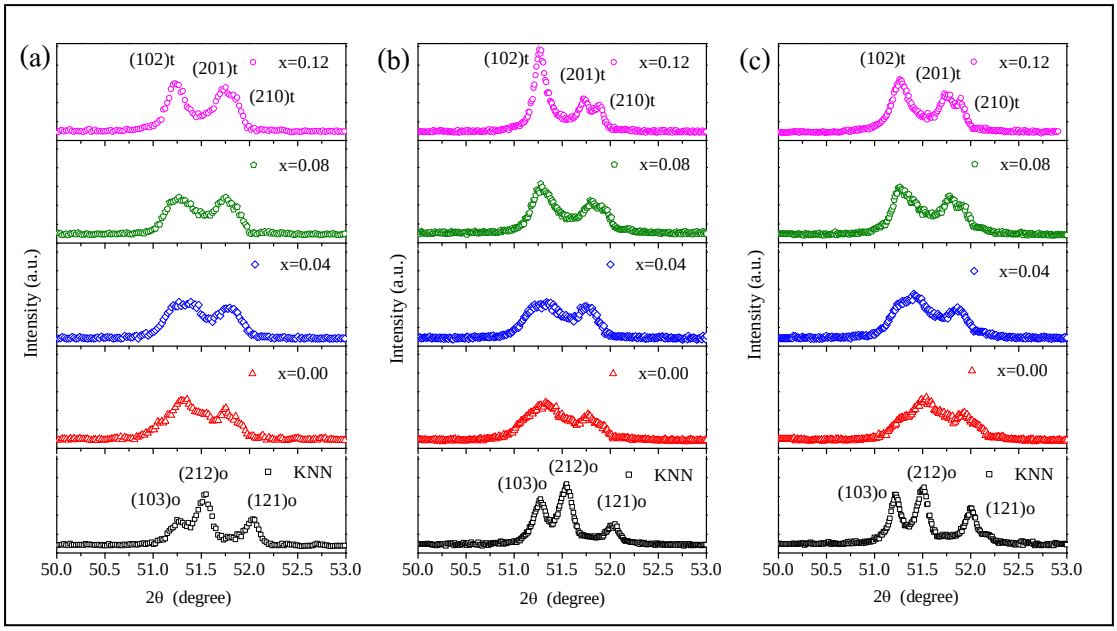
อัตราส่วนการจัดเรียงตัวของโดเมนในทิศทางตั้งฉากกับ (*00l*) หรือ (*h0l*) ต่อ (*h00*) หรือ (*0k0*) เท่ากับ $\frac{A_1}{A_2}$ (4.4)

โดย A_1 คือ พื้นที่ใต้กราฟที่มีจุดยอดมุม $2\theta \cong$ 45º-45.75º ใช้เป็นตัวแทนของ (*00l*) หรือ (*h0l*)

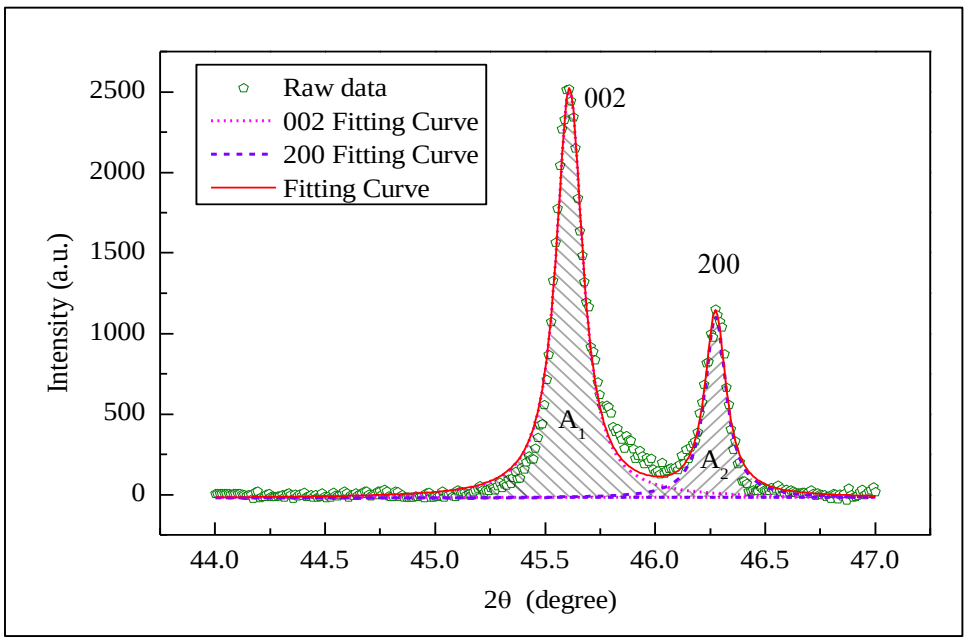
A_2 คือ พื้นที่ใต้กราฟที่มีจุดยอดมุม $2\theta \cong$ 46º-46.5º ใช้เป็นตัวแทนของ (*h00*) หรือ (*0k0*)



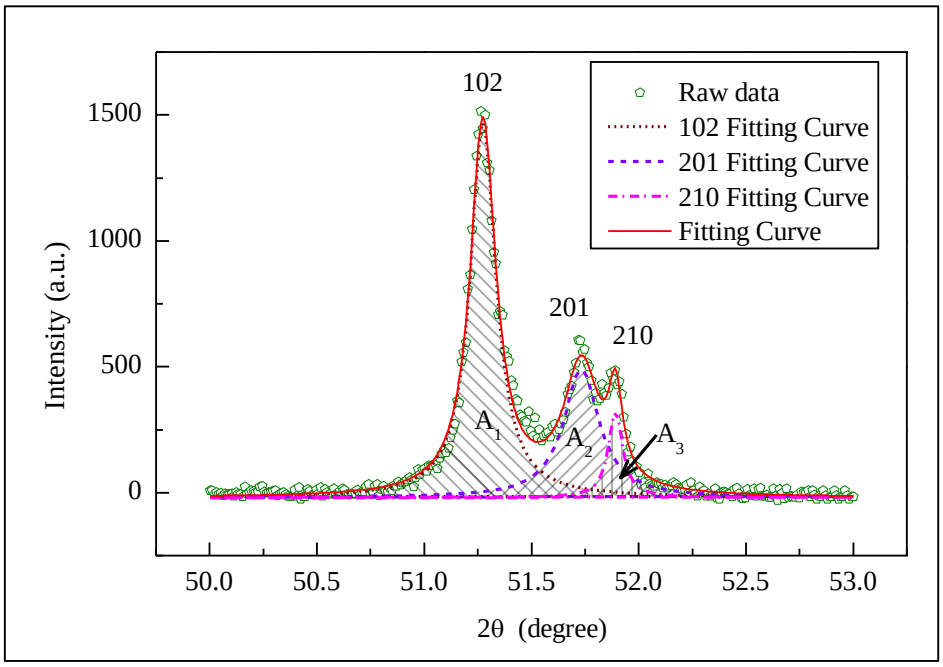
รูปที่ 4.35 กราฟเอ็กเรย์ดิฟแฟรกชันอย่างละเอียดที่ 2θ:31-33º ของสารตัวอย่าง KNN-LST เมื่อ x=0-0.12 (a) ก่อนการเหนี่ยวนำขั้ว (b) ก่อนทดสอบ (c) หลังการทดสอบ



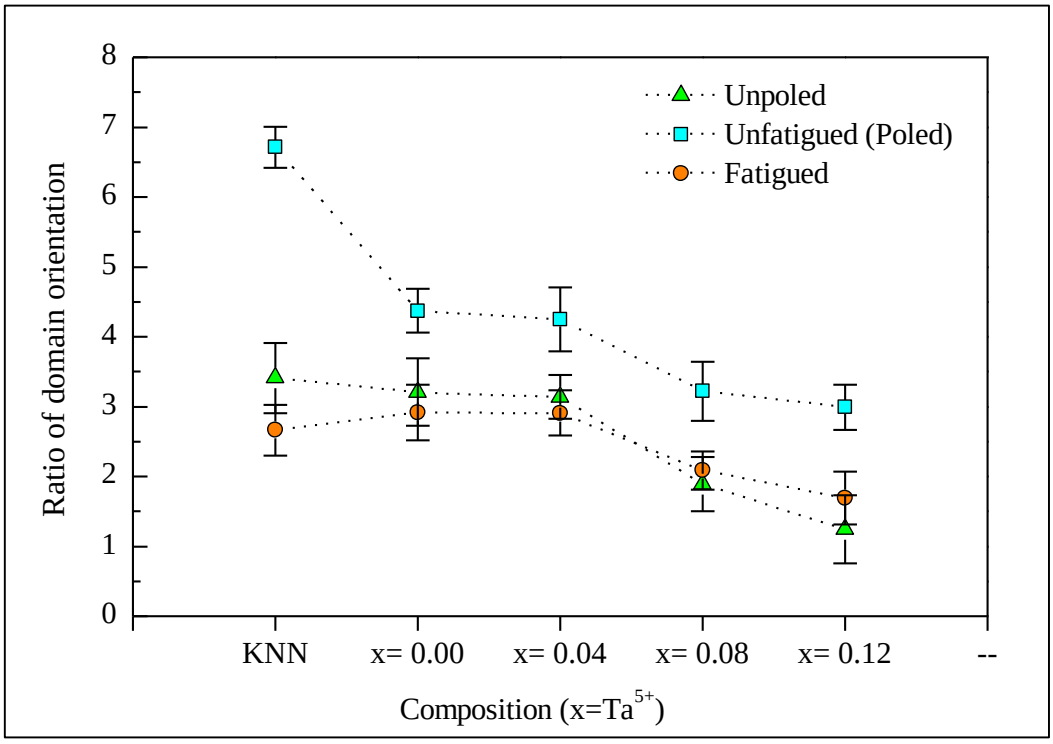
รูปที่ 4.36 กราฟเอ็กเรย์ดิฟแฟรกชันอย่างละเอียดที่ 2θ:50-53° ของสารตัวอย่าง KNN-LST เมื่อ x=0-0.12 (a) ก่อนการเหนี่ยวนำขั้ว (b) ก่อนทดสอบ (c) หลังการทดสอบ



รูปที่ 4.37 ตัวอย่างการหาพื้นที่ใต้กราฟของ peak (002) และ (200) ที่ 2θ = 45-47° ของสารตัวอย่าง x=0.12 จาก Fiting curve ด้วย Lorentzian function



รูปที่ 4.38 ตัวอย่างการหาพื้นที่ใต้กราฟของ peak (102), (201) และ (210) ที่ 2θ = 50-53° ของสารตัวอย่าง x=0.12 จาก Fiting curve ด้วย Lorentzian function



รูปที่ 4.39 อัตราส่วนพื้นที่ใต้กราฟของระนาบที่ 1 และ 2 ในช่วง 2θ:45-47° ของสารตัวอย่าง ก่อนเหนี่ยวนำขั้ว ก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้าและหลังทดสอบความล้าทาง

ไฟฟ้า

จากรูปที่ 4.39 แสดงให้เห็นถึงอัตราส่วนการจัดเรียงตัวของโดเมนในทิศทางตั้งฉากกับ (*00l*) ต่อ (*h00*) สำหรับโครงสร้างเททระโกนอล และ (*h0l*) ต่อ (*0k0*) สำหรับโครงสร้างออโธรอมบิค ก่อนทำขั้ว ก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้าและหลังทดสอบความล้าทางไฟฟ้า จะเห็นได้ว่าสารตัวอย่างที่ทำขั้วแล้วทุกสารตัวอย่างเซรามิกจะมีอัตราส่วนที่เพิ่มขึ้นจากก่อนทำขั้ว เพราะโดนเมนจัดเรียงตัวตามทิศของสนามไฟฟ้าและต่ำลงเมื่อสารตัวอย่างถูกทดสอบความล้าทางไฟฟ้าดังที่ได้อธิบายไปแล้ว หลังจากการทำขั้วการเปลี่ยนแปลงอัตราส่วนการจัดเรียงตัวโดเมนของ KNN มีค่ามากที่สุดในขณะที่สุด ในขณะที่การเปลี่ยนแปลงดังกล่าวมีใกล้เคียงกันสำหรับตัวอย่างอื่น ๆ เช่นเดียวหลังทดสอบความล้า

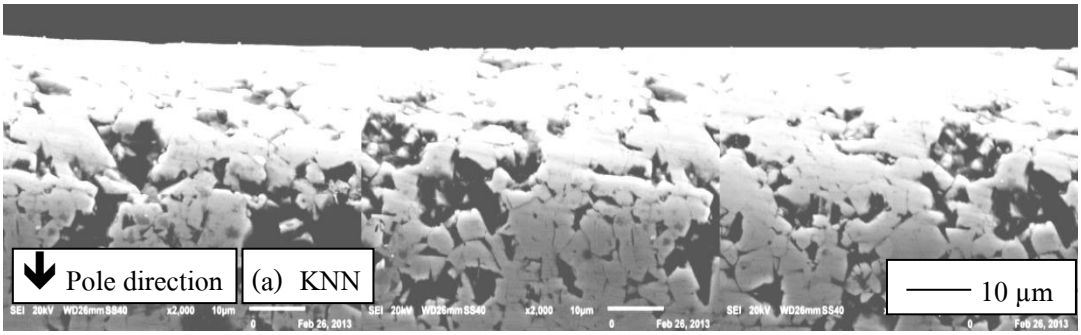
จากข้อมูลที่กล่าวมาสามารถสรุปได้ว่าสารเจือ Ta^{5+} มีผลต่อการเปลี่ยนทิศทางโดเมน ช่วยให้เปลี่ยนทิศทางได้ดีขึ้น อีกทั้งช่วยลดความเสื่อมสภาพหรือความล้าภายในสารตัวอย่างได้ ผลจากความล้าทางไฟฟ้านี้ก็ให้เกิดกระทบต่อสารตัวอย่างในด้านโครงสร้างจุลภาค ซึ่งสามารถตรวจสอบได้จากกล้องจุลทรรศ์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด (SEM) ซึ่งมีรายละเอียดดังต่อไปนี้

4.6 ผลการวิเคราะห์โครงสร้างจุลภาคด้วยกล้องจุลทรรศ์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด (SEM)

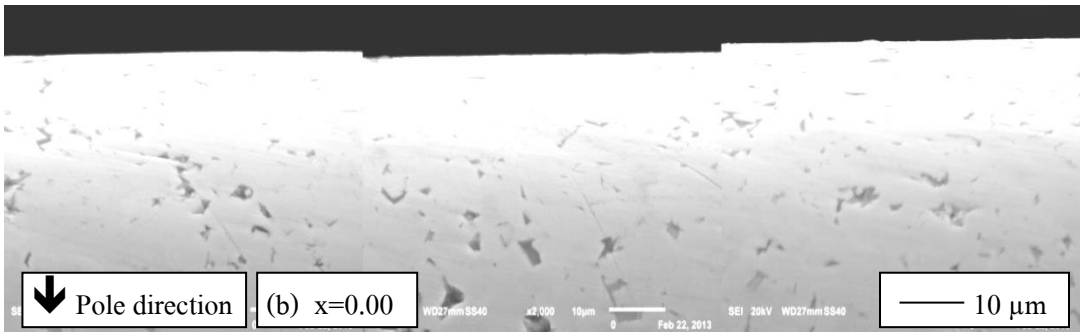
ในส่วนนี้จะชี้ให้เห็นว่าความเสียหายที่เกิดขึ้นอันเนื่องมาจากความล้าทางไฟฟ้านั้นเกิดในลักษณะใดและการเติมสารเจือ Ta^{5+} เข้าไปในโครงสร้างนั้นสามารถช่วยลดความล้าทางไฟฟ้าหรือความเสียหายได้อย่างไร

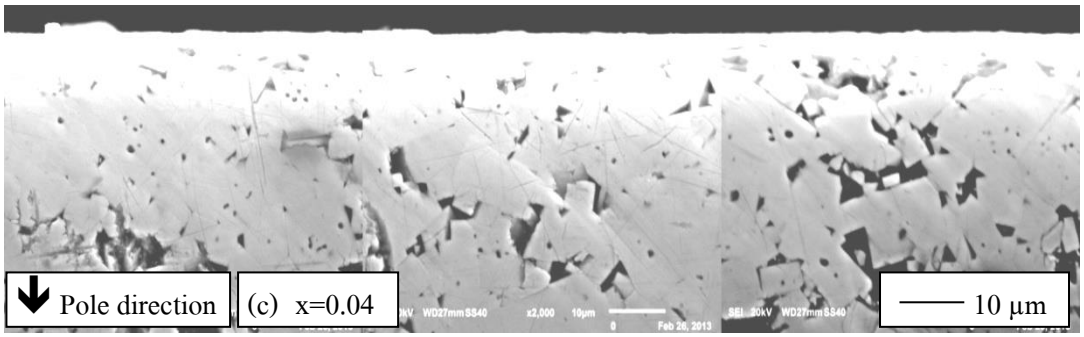
4.6.1 ผลของการเติมสารเจือ Ta^{5+} ในสารตัวอย่างก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า (Poled / Unfatigued)

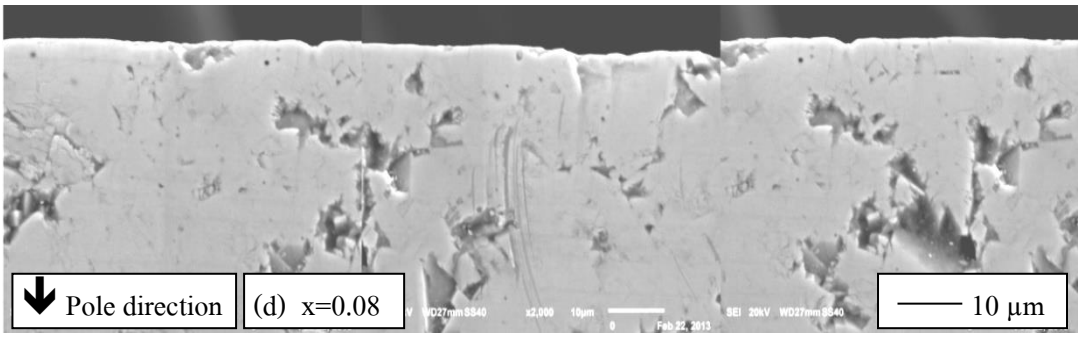
สารตัวอย่างทุกชิ้นถูกขัดเตรียมผิวหน้าตัดให้เรียบเสมอกันเพื่อนำมาตรวจสอบความเปลี่ยนแปลงที่เกิดขึ้น ที่กำลังขยาย 2000 เท่า พบว่าบริเวณขอบพื้นผิวยังไม่เกิดร้อยแตกร้าวบริเวณขอบ จะมีเพียงรอยต่อ ดังรูปที่ 4.41 (a-e) พื้นผิวส่วนใหญ่ของสารตัวอย่าง KNN เต็มไปด้วยรูพรุนที่มากกว่าสารตัวอย่างเซรามิกอื่น ๆ ส่วนภายในของสารตัวอย่างถ่ายภาพที่กำลังขยาย 400 เท่าเพื่อที่จะสามารถมองเห็นได้เป็นบริเวณกว้างดังรูปที่ 4.44 ก็พบเพียงรอยต่อ กับริ้วรอยจากการขัดเตรียมเช่นเดียวกัน และยังพบว่าสารตัวอย่าง KNN สามารถมองเห็นขอบเกรนแต่ละเกรนได้อย่างชัดเจนดังรูปที่ 4.44 (a) ซึ่งต่างจากสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} พื้นผิวส่วนอื่นจะเห็นได้ว่ามีความหนาแน่นมากมีผิวเรียบเป็นเนื้อเดียวกันดังรูปที่ 4.44 (c-e)

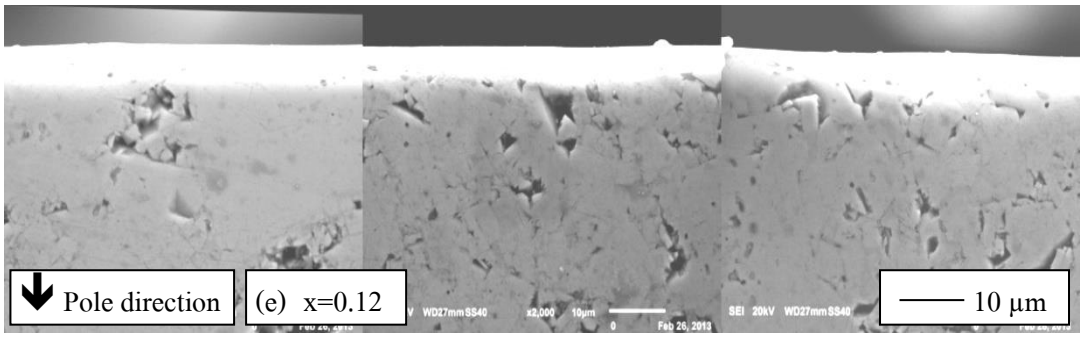


รูปที่ 4.40 ภาพถ่าย SEM พื้นผิวบริเวณขอบของชิ้นสารตัวอย่าง KNN-LST ก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่กำลังขยาย 2000 เท่า (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12

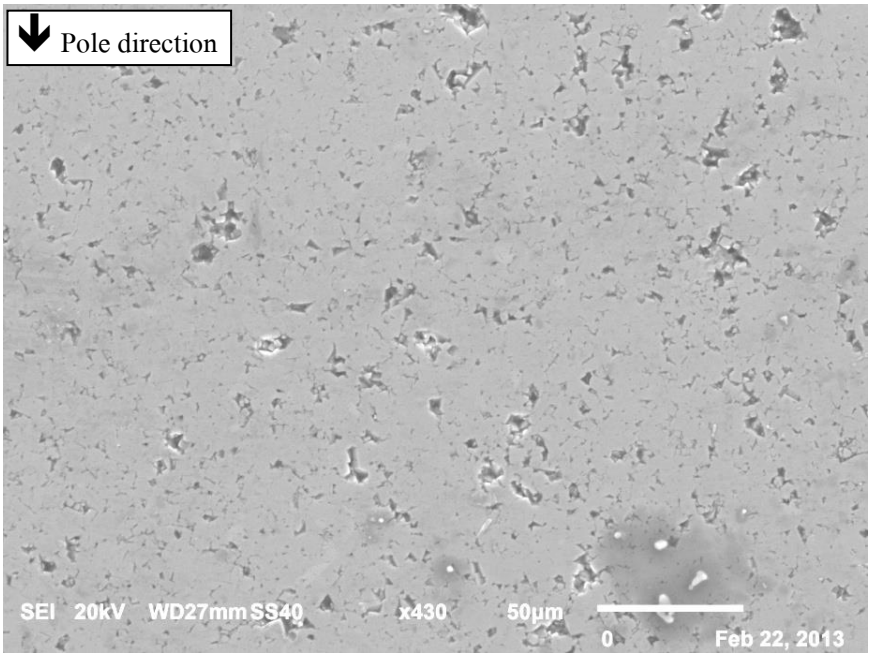




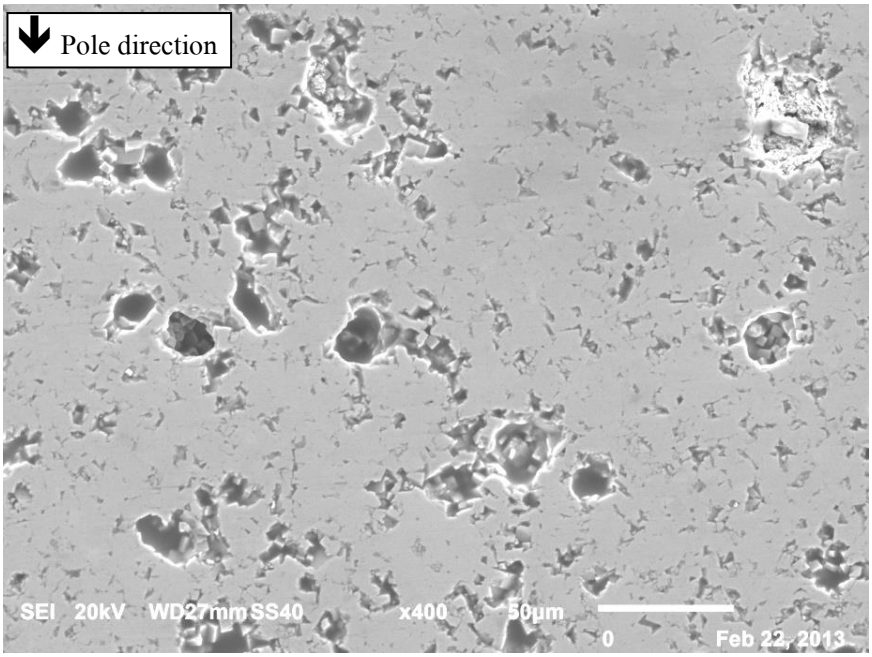




รูปที่ 4.41 ภาพถ่าย SEM พื้นผิวบริเวณขอบของชิ้นสารตัวอย่าง KNN-LST ก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่กำลังขยาย 2000 เท่า (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12 (ต่อ)

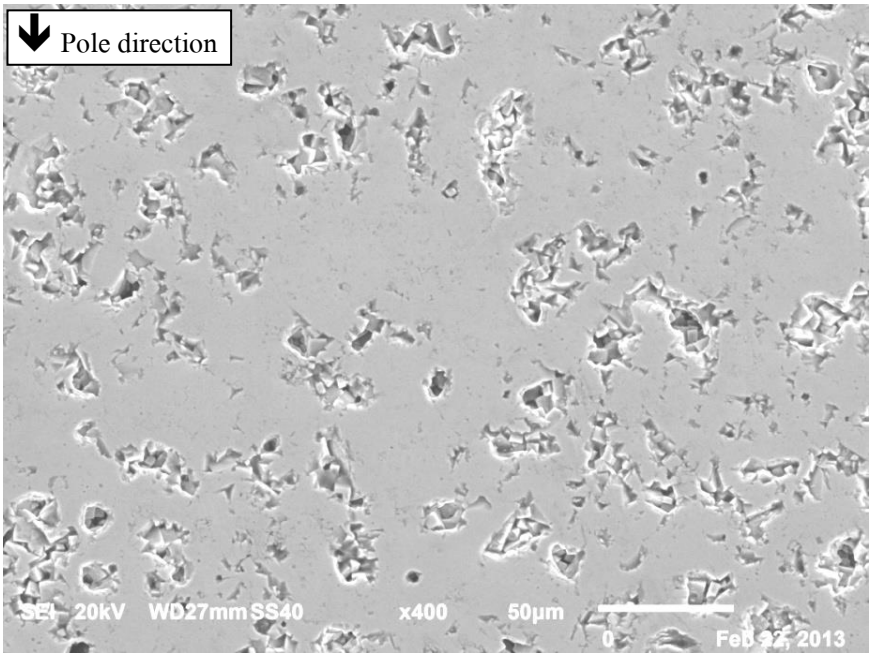


(a) ภาพถ่าย SEM พื้นผิวชิ้นสารตัวอย่าง KNN

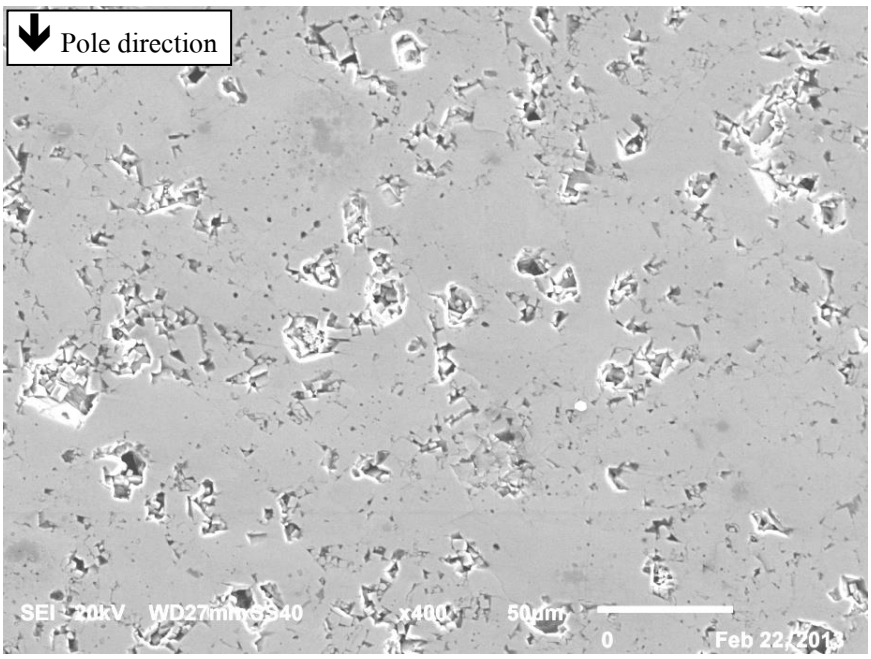


(b) ภาพถ่าย SEM พื้นผิวชิ้นสารตัวอย่าง x = 0.00 โมล

รูปที่ 4.42 ภาพถ่าย SEM พื้นผิวบริเวณกลางของชิ้นสารตัวอย่าง KNN-LST ก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่กำลังขยาย 400 เท่า

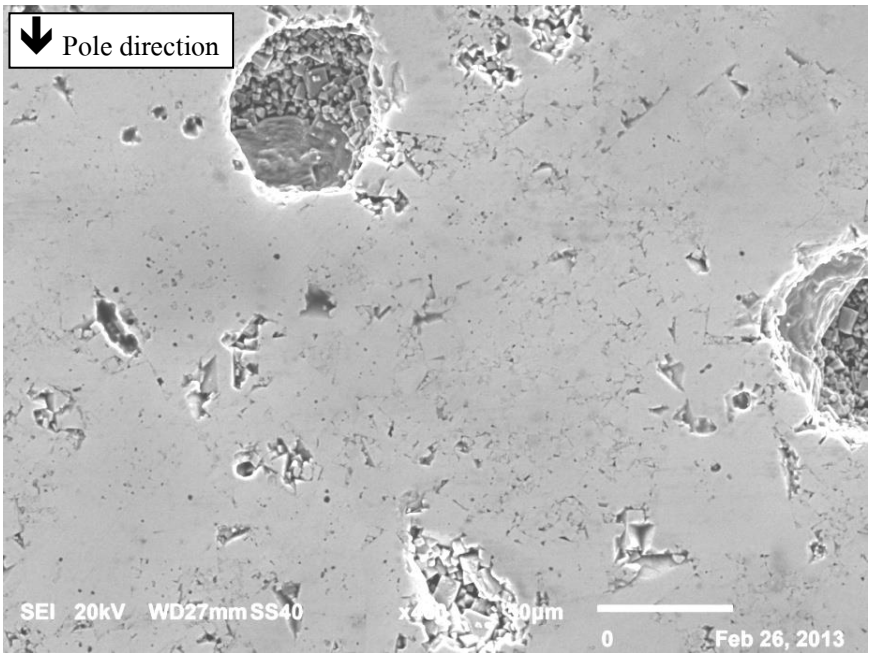


(c) ภาพถ่าย SEM พื้นผิวชิ้นสารตัวอย่าง x = 0.04 โมล



(d) ภาพถ่าย SEM พื้นผิวชิ้นสารตัวอย่าง x = 0.08 โมล

รูปที่ 4.43 ภาพถ่าย SEM พื้นผิวบริเวณกลางของชิ้นสารตัวอย่าง KNN-LST ก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่กำลังขยาย 400 เท่า (ต่อ)



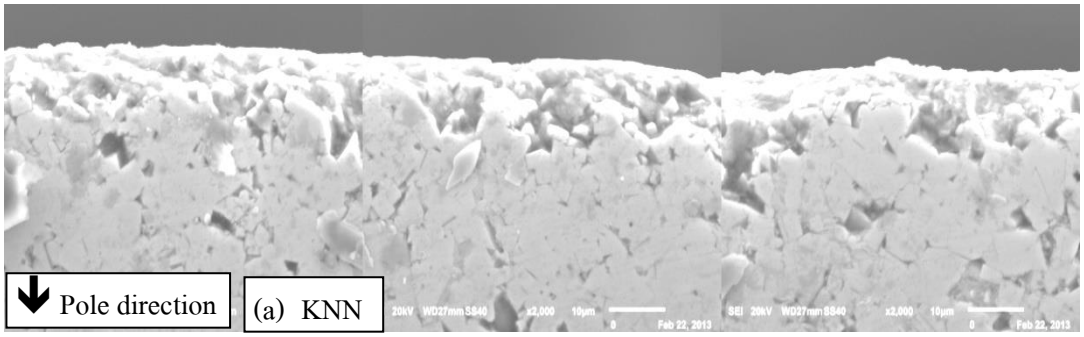
(e) ภาพถ่าย SEM พื้นผิวชิ้นสารตัวอย่าง x = 0.12 โมล

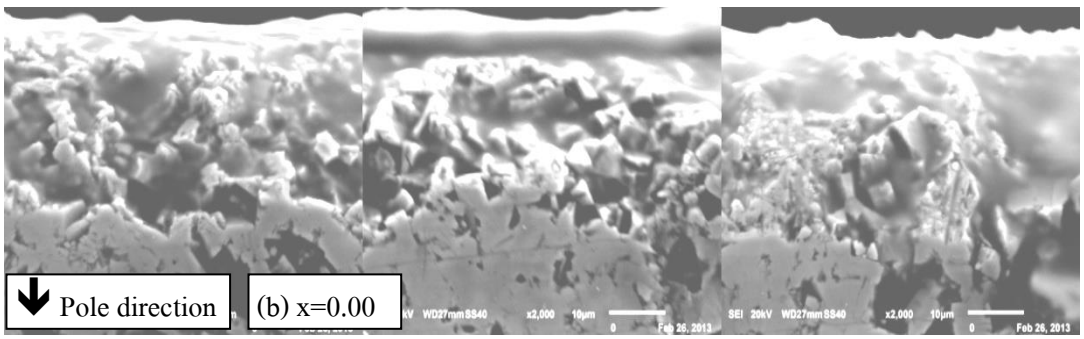
รูปที่ 4.44 ภาพถ่าย SEM พื้นผิวบริเวณกลางของชิ้นสารตัวอย่าง KNN-LST ก่อนทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่กำลังขยาย 400 เท่า (ต่อ)

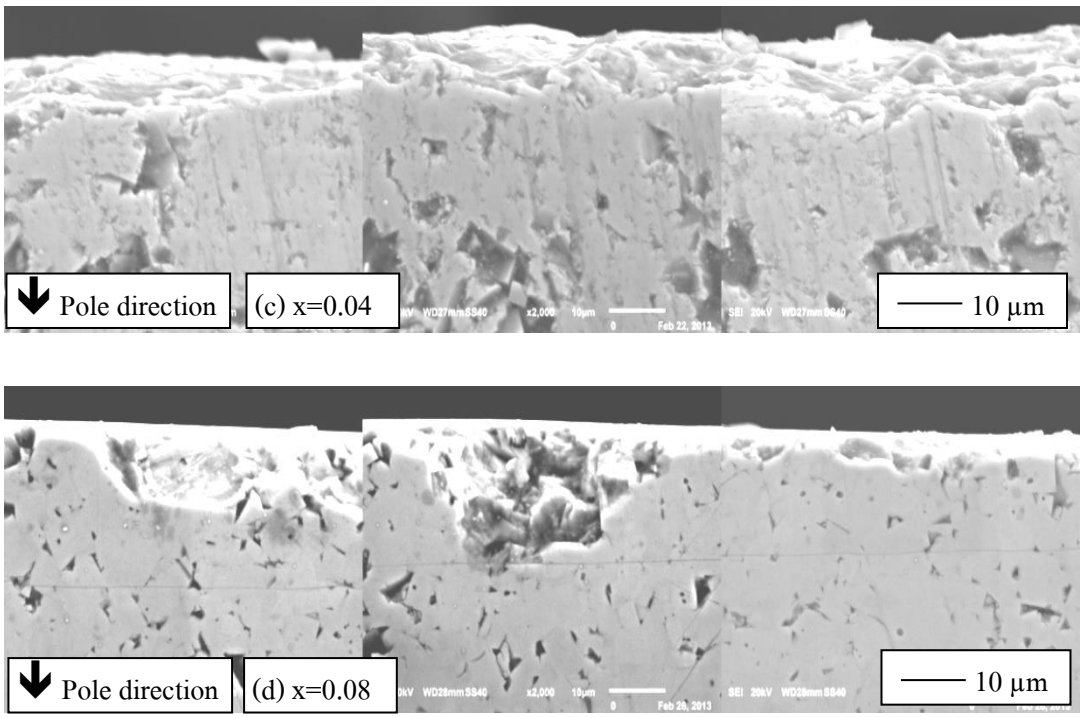
4.6.2 ผลของการเติมสารเจือ Ta^{5+} ในสารตัวอย่างที่ทดสอบความล้าทางไฟฟ้าแล้ว (Fatigued)

สารตัวอย่างหลังจากทำขั้วจะถูกทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ที่ความถี่ 50 Hz จำนวน 1,000,000 รอบ ผลปรากกฏว่าเกิดความเสียหายที่ผิวของชิ้นสารตัวอย่าง บริเวณขอบและภายในของชิ้นสารตัวอย่าง จากรูปที่ 4.46 (a) สารตัวอย่าง KNN ที่ขอบมีการแตกและหลุดร่อนออกไปอย่างเห็นได้ชัด เช่นเดียวกับ รูปที่ 4.46 (b) ของสารตัวอย่างที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+} ส่วนสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} ทั้ง 3 นั้นพบความเสียหายน้อยกว่าเมื่อเทียบกับKNN ดังรูปที่ 4.46 (c-d) และเมื่อพิจารณาภายในรูปที่ 4.46 (e) ซึ่งแสดงลักษณะภายในของสารตัวอย่าง KNN พบว่าเกิดรอยแตกร้าวไปตามขอบเกรนเป็นช่วง ๆ กระจายอยู่ทั่วทั้งชิ้น พร้อมทั้งรอยต่อระหว่างเกรนก็ขยายเพิ่มมากขึ้นจนสามารถมองเห็นเป็นรูปทรงคล้ายสี่เหลี่ยมผืนผ้าเรียงตัวต่อกันเนื่องจากผลการตรึงของผนังโดเมน มีความเครียดเกิดขึ้น โดเมนบางส่วนไม่สามารถเคลื่อนที่ได้ทำให้เกิดความเครียดสะสมมากขึ้นที่บริเวณดังกล่าวจนทำให้สารตัวอย่างเกิดรอยแตกขึ้น ต่อมาเมื่อมีรอยแตกร้าวเกิดขึ้นที่บริเวณดังกล่าวจะมีความเค้นสะสมเกิดขึ้นมากทำให้วัสดุถูกทำลายได้ง่ายโดยจะมีการขยายตัวของรอยร้าวกลายเป็นรอยแตกซึ่งจะเห็นได้ในช่วง 1,000,000 รอบ ในช่วงนี้สารตัวอย่าง ไม่มีคุณสมบัติความเป็นเฟร์โรอิเล็กทริก โดยสังเกตได้จากวงวนฮีสเทอรีซีสที่มีรูปร่างคล้ายกับวงรี ดังรูปที่ 4.18 (a) ขนานกับแกน x (แกนสนามไฟฟ้า) โดยในช่วงนี้ค่าสนามไฟฟ้าลบล้างมีค่าใกล้เคียงกับค่าสนามไฟฟ้าที่ป้อนให้ และค่าสนามไฟฟ้าลบล้างเกือบเป็นศูนย์ ณ จุดนี้ไม่สามารถทำให้โดเมนในสารตัวอย่างสามารถเปลี่ยนทิศได้ หรือเปลี่ยนทิศได้น้อยมาก จากรูปที่ 4.46 (b) คือสารตัวอย่างที่ไม่เติมสารเจือ Ta^{5+} พบรอยแตกร้าวภายในไม่มาก แต่พบความแตกร้าวของผลึกเล็กกระจายวงออกจากรูพรุน รูปที่ 4.46 (c-d) คือสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.04-0.08 โมลเกิดรอยแตกร้าวไปตามขอบเกรนเป็นช่วง ๆ กระจายอยู่ทั่วอย่างเห็นได้ พร้อมทั้งรอยต่อระหว่างเกรนก็ขยายเพิ่มมากขึ้น ขอบเกรนนูนและยุบลงเหลื่อมกันอย่างชัดเจน แต่สารตัวอย่างที่เติมสารเจือTa^{5+} 0.08 โมลเสียหายน้อยกว่า ส่วนError! Reference source not found. (e) คือสารตัวอย่างที่เติมสารเจือ Ta^{5+} 0.12 โมล พบร่องรอยการแตกร้าวน้อยที่สุด ไม่มีรอยร้าวเล็กกระจายทั่วทั้งชิ้น แต่จะเป็นรอยแตกร้าวเป็นทางยาวไปตามขอบเกรน ในทิศทางขนานกับสนามไฟฟ้าที่ให้ จากผลการทดลองข้างต้นแสดงให้ถึงผลของสารเจือ Ta^{5+} ที่มีส่วนช่วยในการลดความเสียหายอันเนื่องมากจากความล้าทางไฟฟ้า ซึ่งสอดคล้องกับผลการวิเคราะห์วัฏภาคด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์

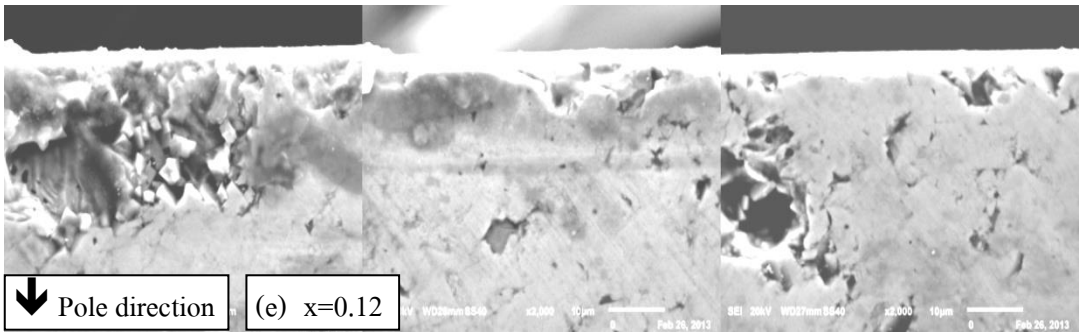
การทดสอบความล้าทางไฟฟ้าจะก่อให้เกิดความเครียดสะสมเนื่องจากผลการตรึงของโดเมนมีมากขึ้นเมื่อจำนวนรอบเพิ่มขึ้นจึงทำให้รอยร้าวแพร่ขยายตัวได้เร็วและมากขึ้น ส่งผลให้พื้นผิวของสารตัวอย่างเสียหายเพิ่มขึ้น ซึ่งสอดคล้องกับผลงานวิจัยของ Jiang และคณะ (1994) ที่ได้อธิบายไว้ว่า การเปลี่ยนทิศทางของโดเมนจะทำให้เกิดการเปลี่ยนแปลงรูปร่างเกรนเป็นอย่างมากความล้าทางไฟฟ้าในรูปแบบนี้จะไม่สามารถย้อนกลับได้ จึงเกิดเป็นรอยแตกร้าวบนพื้นผิว และทำให้ค่าโพลาไรเซชันที่วัดได้มีค่าลดลงอย่างเห็นได้ชัดเจน โดยสามารถอธิบายได้ในรูปที่ 4.19ความเสียหายที่เกิดบนพื้นผิวอิเล็กโทรดทั้งสองด้านก็จะส่งผลให้ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกรวมลดลงสอดคล้องกับงานวิจัยของศิริรัตน์ กำภูศิริ ค่าโพลาไรเซชันจึงมีการลดลงตามไปด้วย รอยแตกร้าวเกิดขึ้นส่งผลสารตัวอย่างเกิดช่องว่างอากาศ รวมไปถึงความบกพร่องทางการทดลองต่าง ๆ ส่งผลให้สภาพยอมสัมพัทธ์รวมมีค่าลดลง ซึ่งแปรผันตรงกับค่าโพลาไรเซชันส่งผลทำให้ค่าโพลาไรเซชันมีค่าลดลง อัตราการเกิดความล้าจึงมีค่ามาก



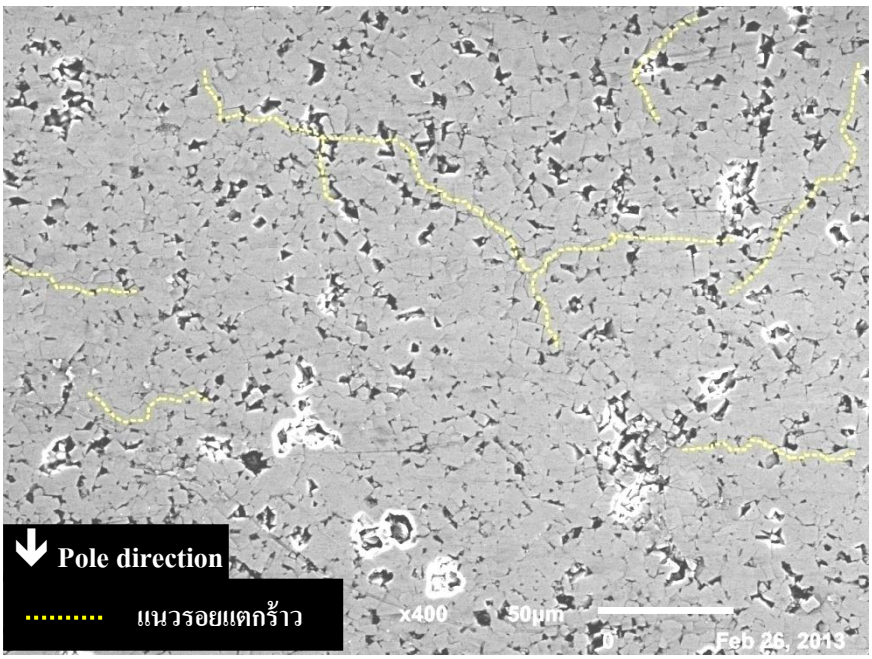




รูปที่ 4.45 ภาพถ่าย SEM พื้นผิวบริเวณขอบของชิ้นสารตัวอย่าง KNN-LST หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่กำลังขยาย 2000 เท่า (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12

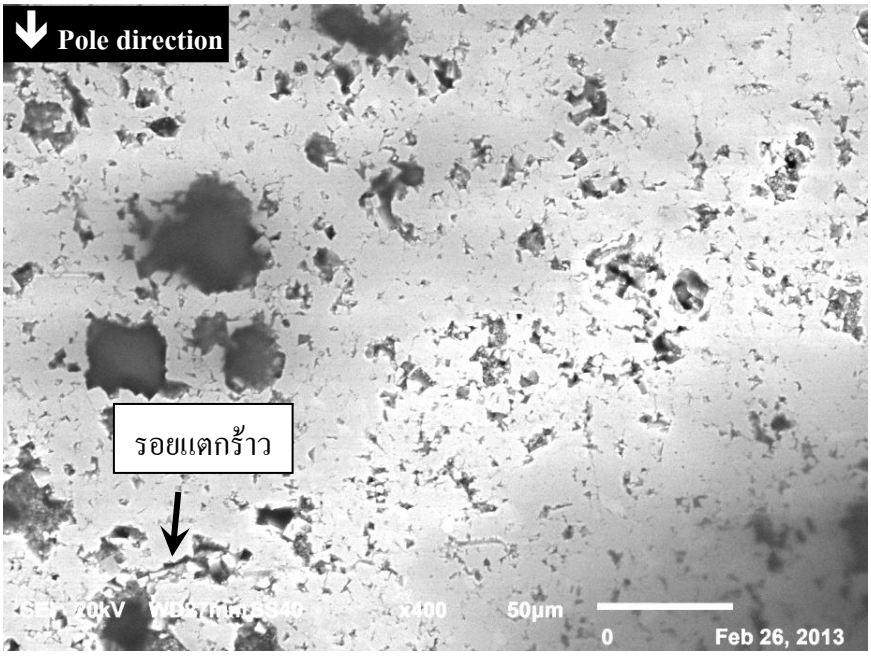


รูปที่ 4.46 ภาพถ่าย SEM พื้นผิวบริเวณขอบของชิ้นสารตัวอย่าง KNN-LST หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่กำลังขยาย 2000 เท่า (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12 (ต่อ)

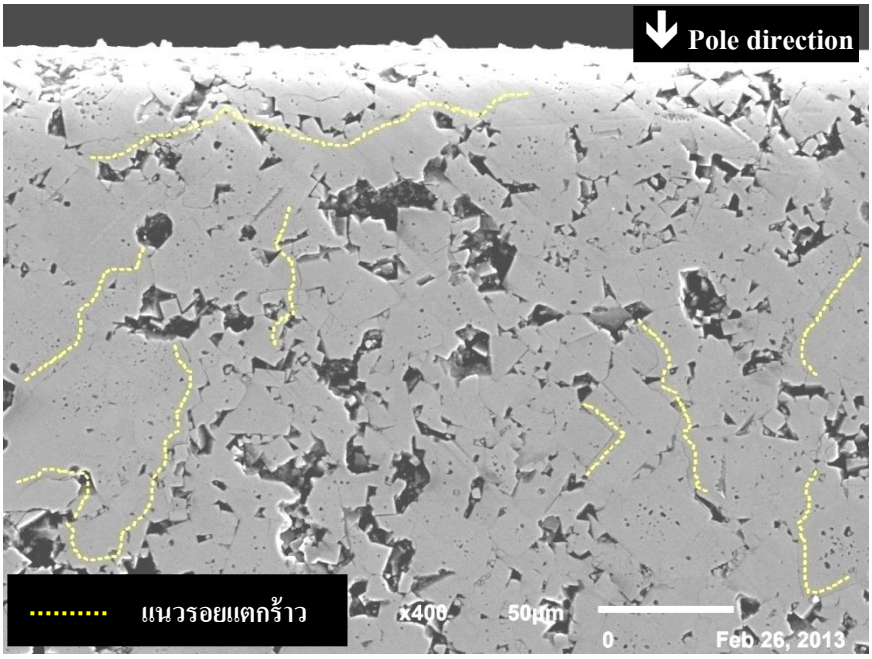


(a) ภาพถ่าย SEM พื้นผิวชิ้นสารตัวอย่าง KNN

รูปที่ 4.47 ภาพถ่าย SEM ที่พบรอยแตกร้าวบนพื้นผิวบริเวณขอบและส่วนกลางของชิ้นสารตัวอย่าง KNN-LST หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่กำลังขยาย 400 เท่า (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12

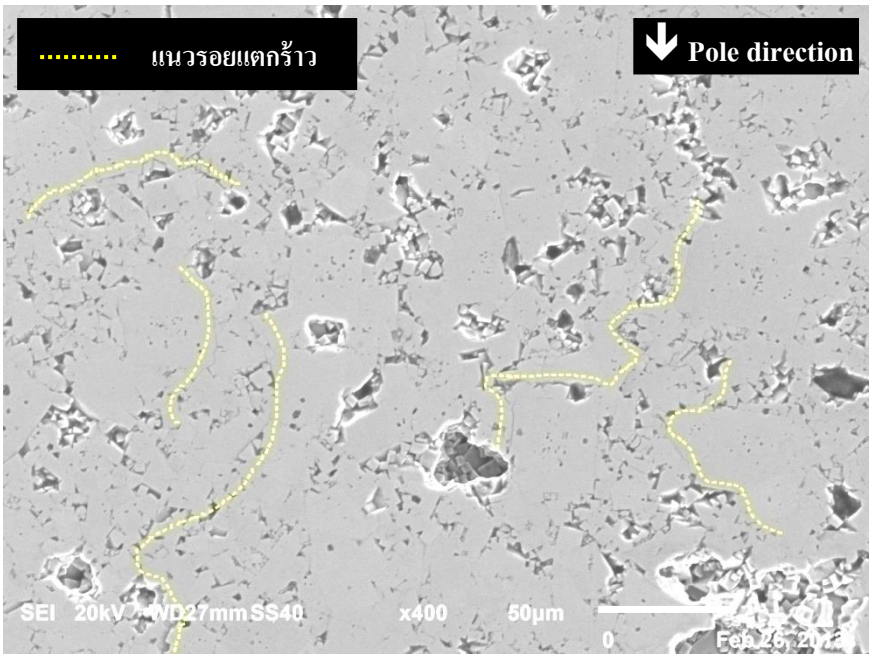


(b) ภาพถ่าย SEM พื้นผิวชิ้นสารตัวอย่าง x = 0.00 โมล



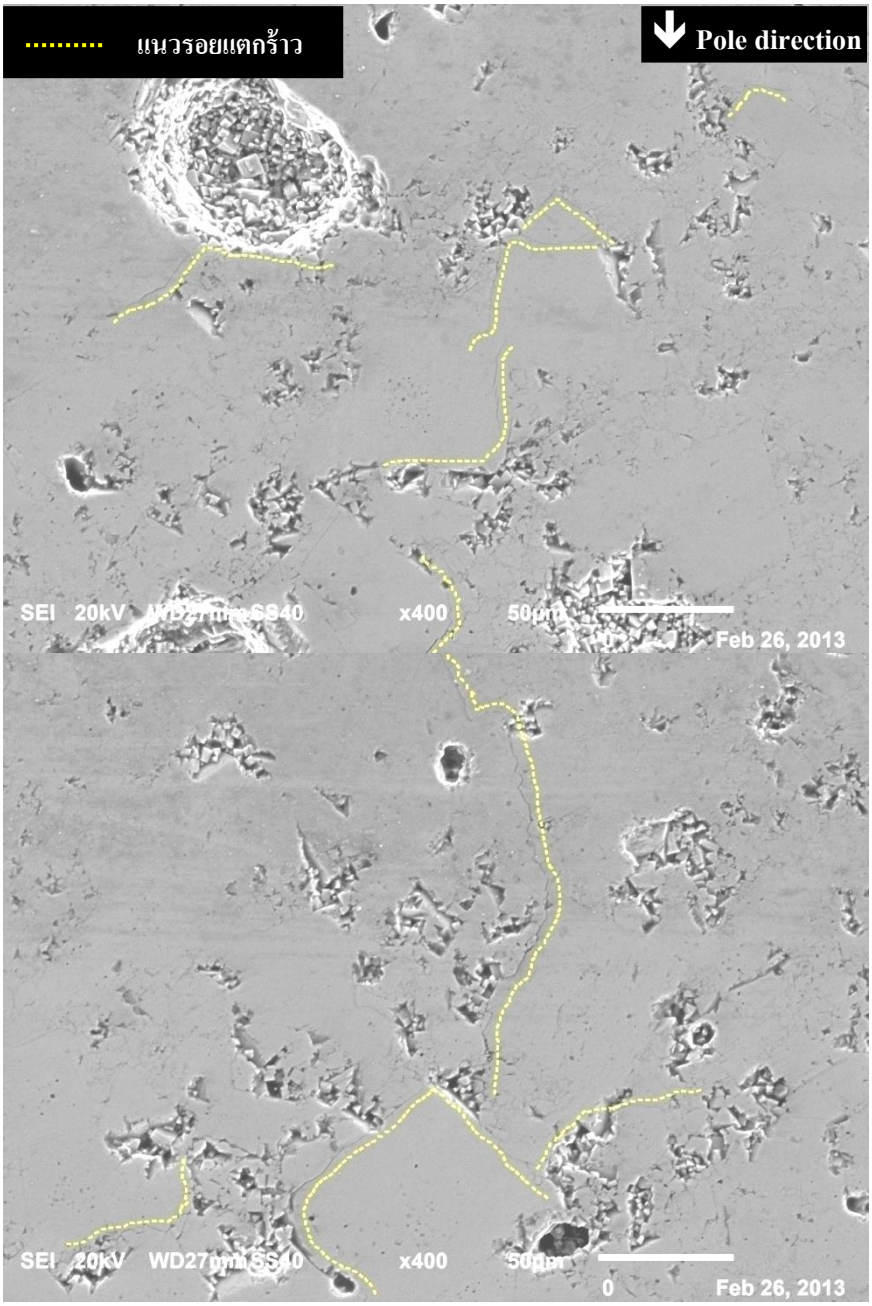
(c) ภาพถ่าย SEM พื้นผิวชิ้นสารตัวอย่าง x = 0.04 โมล

รูปที่ 4.48 ภาพถ่าย SEM ที่พบรอยแตกร้าวบนพื้นผิวบริเวณขอบและส่วนกลางของชิ้นสารตัวอย่าง KNN-LST หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่กำลังขยาย 400เท่า (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12 (ต่อ)



(d) ภาพถ่าย SEM พื้นผิวชิ้นสารตัวอย่าง x = 0.08 โมล

รูปที่ 4.49 ภาพถ่าย SEM ที่พบรอยแตกร้าวบนพื้นผิวบริเวณขอบและส่วนกลางของชิ้นสารตัวอย่าง KNN-LST หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่กำลังขยาย 400เท่า (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12 (ต่อ)



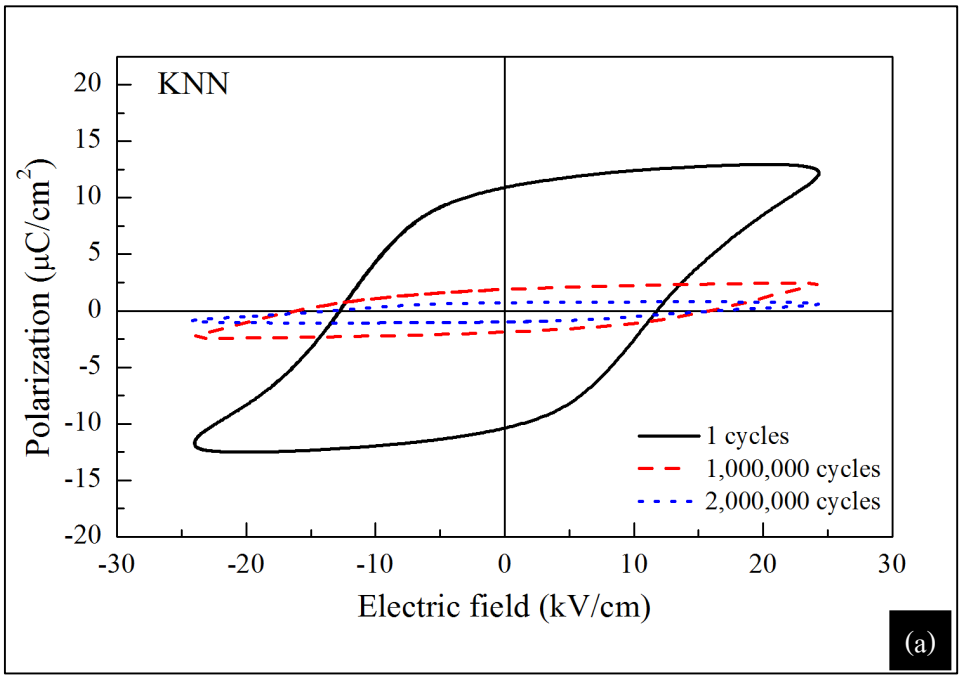
(e) ภาพถ่าย SEM พื้นผิวชิ้นสารตัวอย่าง x = 0.12 โมล

รูปที่ 4.50 ภาพถ่าย SEM ที่พบรอยแตกร้าวบนพื้นผิวบริเวณขอบและส่วนกลางของชิ้นสารตัวอย่าง KNN-LST หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ที่กำลังขยาย 400 เท่า (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12 (ต่อ)

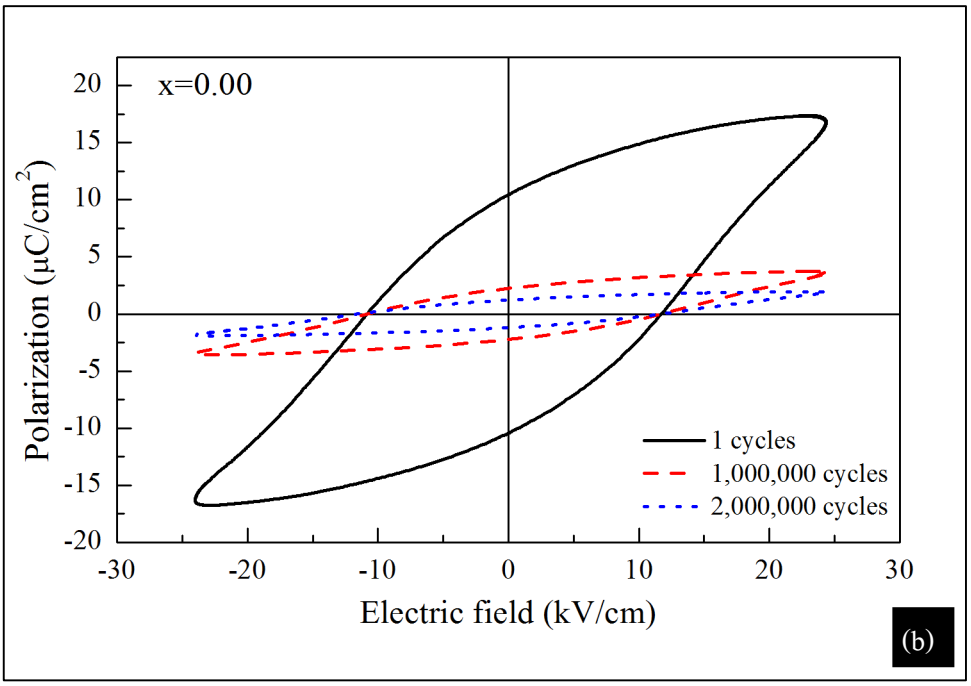
4.7 ผลการทดลองซ้ำ

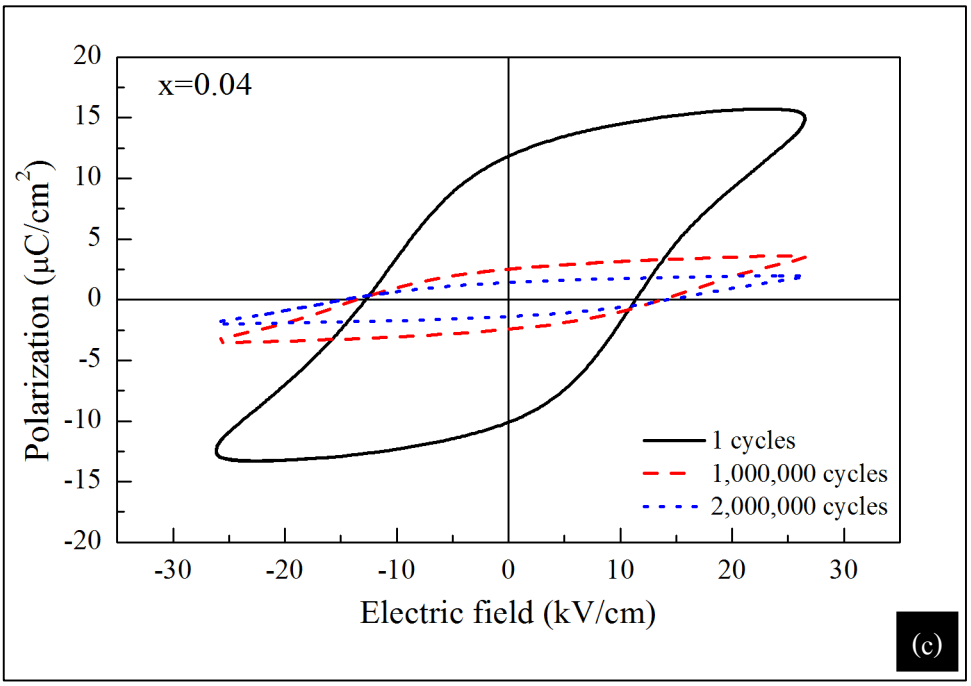
จากการทดสอบพฤติกรรมความล้าทางไฟฟ้าของชิ้นตัวอย่าง KNN-LST เมื่อจำนวนรอบสนามไฟฟ้าเพิ่มจำนวนสูงขึ้นนั้น จะเกิดรอยแตกร้าวขึ้นภายในเนื้อชิ้นตัวอย่าง ซึ่งรอยแตกร้าวที่เกิดขึ้นนั้นเป็นผลมาจากการเปลี่ยนเปลงทิศทางของโดเมนกลับทิศไปมา อันก่อให้เกิดความเครียดสะสมภายในเนื้อชิ้นงานดังหัวข้อที่ผ่านมา และเพื่อยืนยันผลการทดลองนี้ จึงได้ทำการทดสอบพฤติกรรมความล้าอีกครั้ง ในการทดลองนี้ จะทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ภายใต้สนามไฟฟ้า±2.5 kV ที่ความถี่ 50 Hz เช่นเดียวกันการทดลองอื่น ๆ จำนวน 2,000,000 รอบ พร้อมกับบันทึกวงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิส ที่ 1, 10^6 และ 2×10^6 รอบ และถ่ายภาพด้วยกล้องสเตอริโอแกรมเพื่อวิเคราะห์การเปลี่ยนแปลงก่อนและหลังทดสอบความล้าทางไฟฟ้า

จากการทดลองดังกล่าว วงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิส ดังรูปที่ 4.43 มีพฤติกรรมการลดลงของค่าโพลาไรเซชันคงค้างใกล้เคียงและสอดคล้องกับผลการทดลองในหัวข้อที่ 4.6 ค่าโพลาไรเซชันคงค้าง ดังตารางที่ 4.7 มีแนวโน้มไปในทิศทางเดียวกับผลการทดลองที่ผ่านมาในหัวข้อที่ 4.42

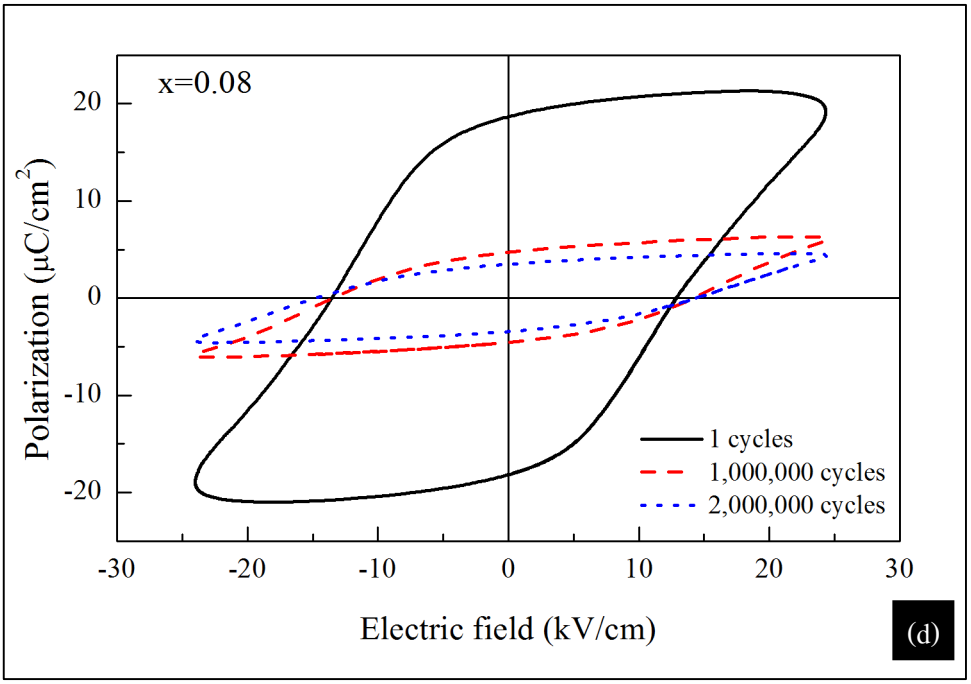


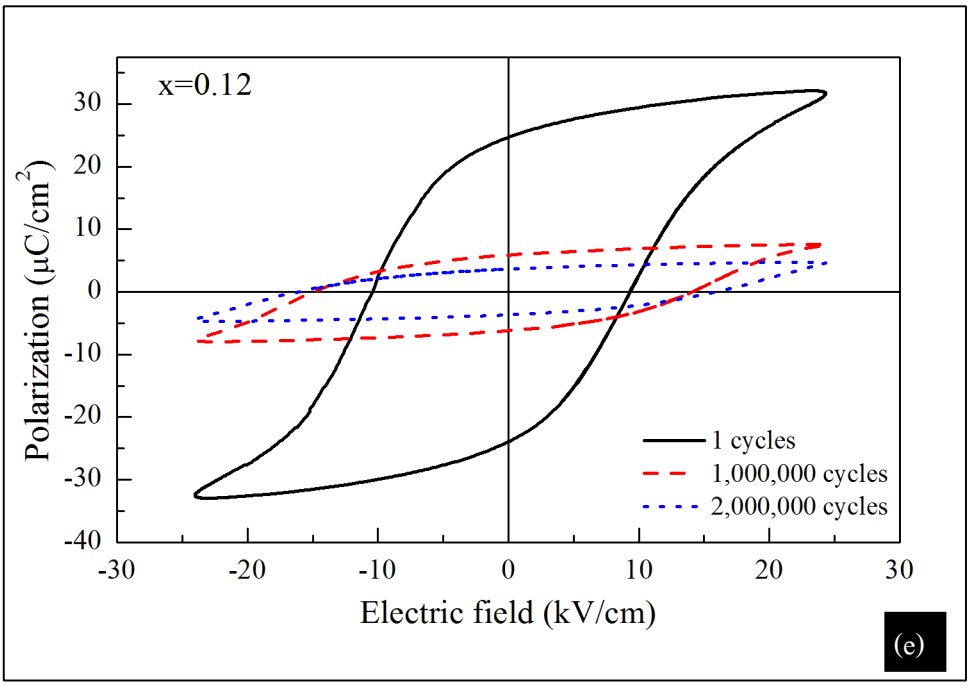
รูปที่ 4.51 วงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิสของ KNN-LST ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ความถี่ 50 Hz (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12





รูปที่ 4.52 วงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิสของ KNN-LST ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ความถี่ 50 Hz (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12 (ต่อ)





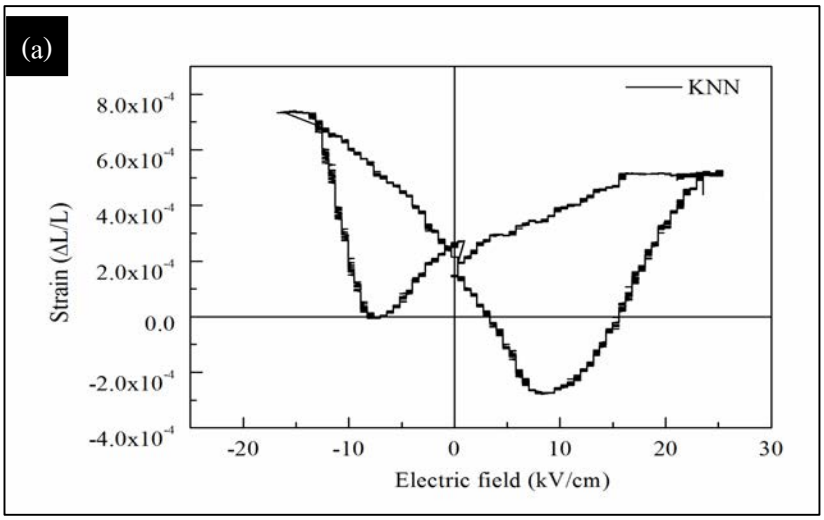
รูปที่ 4.53 วงวนโพลาไรเซชันฮีสเทอรีซิสของ KNN-LST ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ความถี่ 50 Hz (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12 (ต่อ)

ตารางที่ 4.7 ค่าโพลาไรเซชันคงค้างในการทดลองซ้ำ ของสารประกอบ KNN-LST

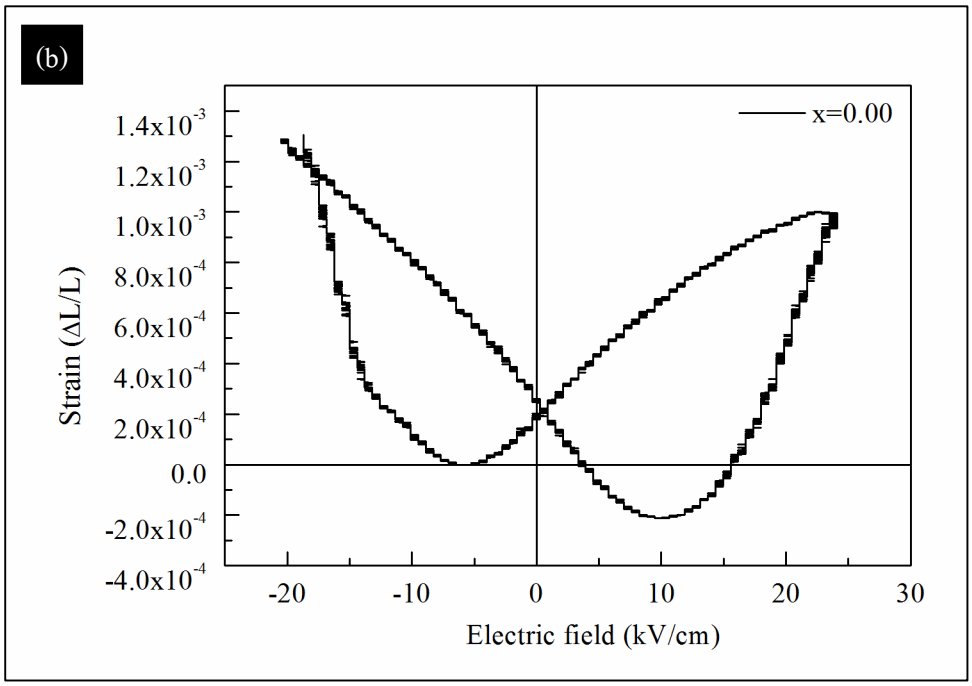
ตัวอย่าง	P_r ที่ 1 รอบ (μC/cm^2)		P_r ที่ 10^6 รอบ (μC/cm^2)		P_r ที่ 2×10^6 รอบ (μC/cm^2)	
	$+P_r$	$-P_r$	$+P_r$	$-P_r$	$+P_r$	$-P_r$
KNN	10.38	-10.35	1.89	-1.89	0.71	-0.98
x=0.00	10.79	-10.39	2.24	-2.21	1.22	-1.19
x=0.04	11.89	-10.09	2.51	-2.42	1.42	-1.38
x=0.08	18.71	-18.17	4.71	-4.52	3.49	-3.41
x=0.12	24.85	-23.95	5.88	-6.18	3.65	-3.66

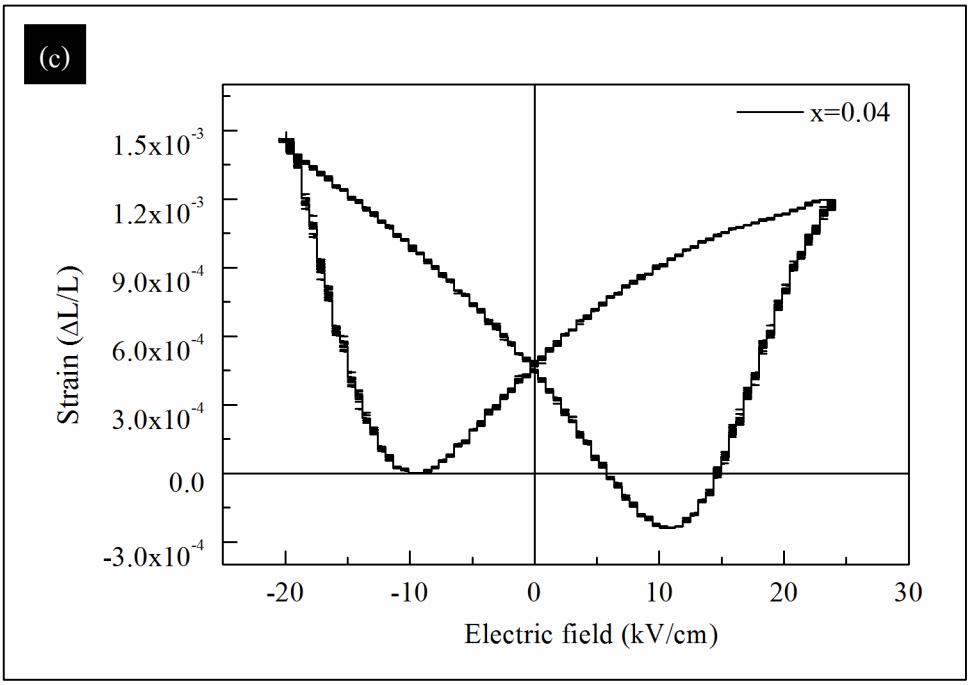
สำหรับผลการทดสอบวงวนปีกผีเสื้อ (butterfly loop) ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV

ความถี่50 mHz ก่อนการทดสอบความล้าทางไฟฟ้าของชิ้นตัวอย่าง KNN-LST เมื่อ x=0.00-0.12 โมล ของสารเจือ Ta^{5+} ดังรูปที่ 4.44 พบว่ารูปร่างของวงวนปีกผีเสื้อของทุกสารตัวอย่างไม่สมมาตร ซึ่งเกิดจากการที่ชิ้นงานตัวอย่างได้ถูกทำขั้วมาแล้ว ค่าความเครียดสูงสุดของวงวนปีกผีเสื้อมีเพิ่มขึ้นเมื่อปริมาณสารเจือ Ta^{5+} เพิ่มขึ้น (ดังแสดงในตารางที่ 4.8) ซึ่งเป็นผลมาจากการมีสมบัติไพอิโซอิเล็กทริกที่ดีขึ้นซึ่งสอดคล้องกับผลการทดสอบในหัวข้อที่ผ่านมา

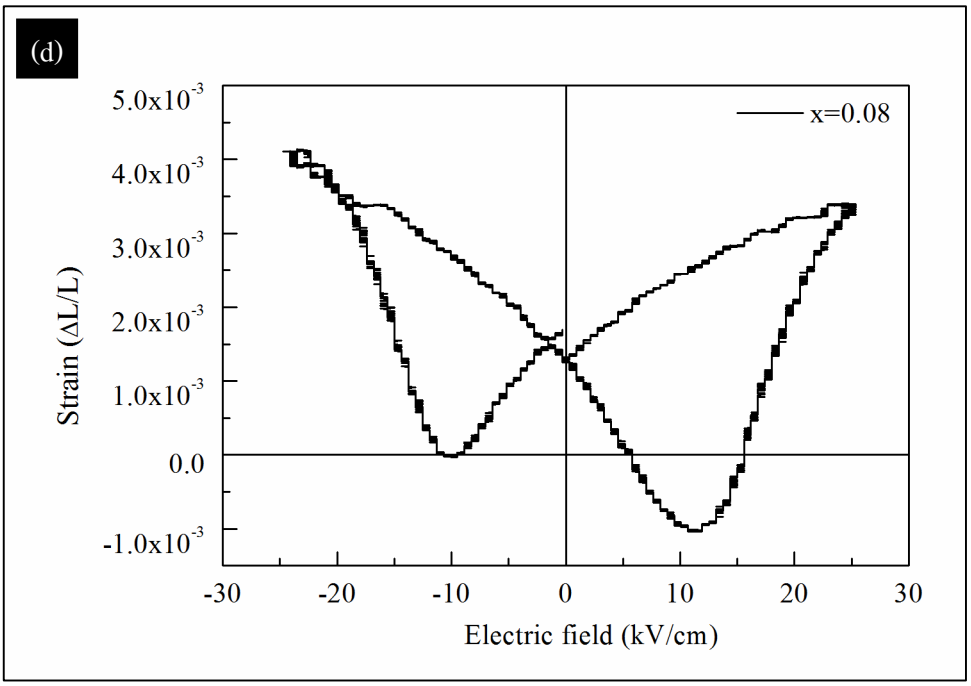


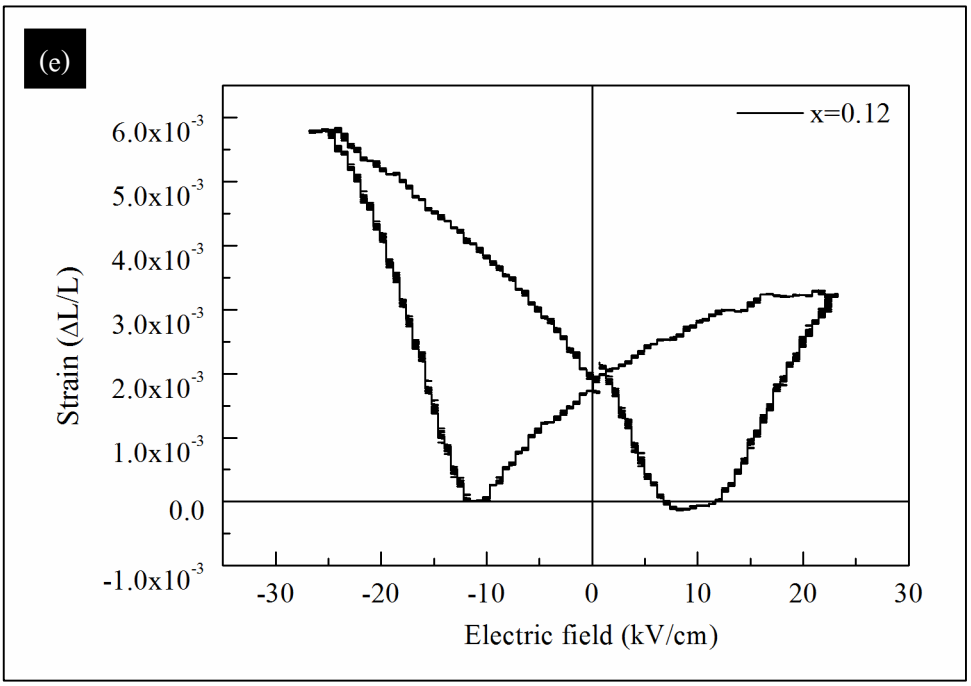
รูปที่ 4.54 วงวนปีกผีเสื้อของ KNN-LST ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ความถี่ 50 mHz ก่อนการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12





รูปที่ 4.55 วงวนปีกผีเสื้อของ KNN-LST ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ความถี่ 50 mHz ก่อนการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12 (ต่อ)

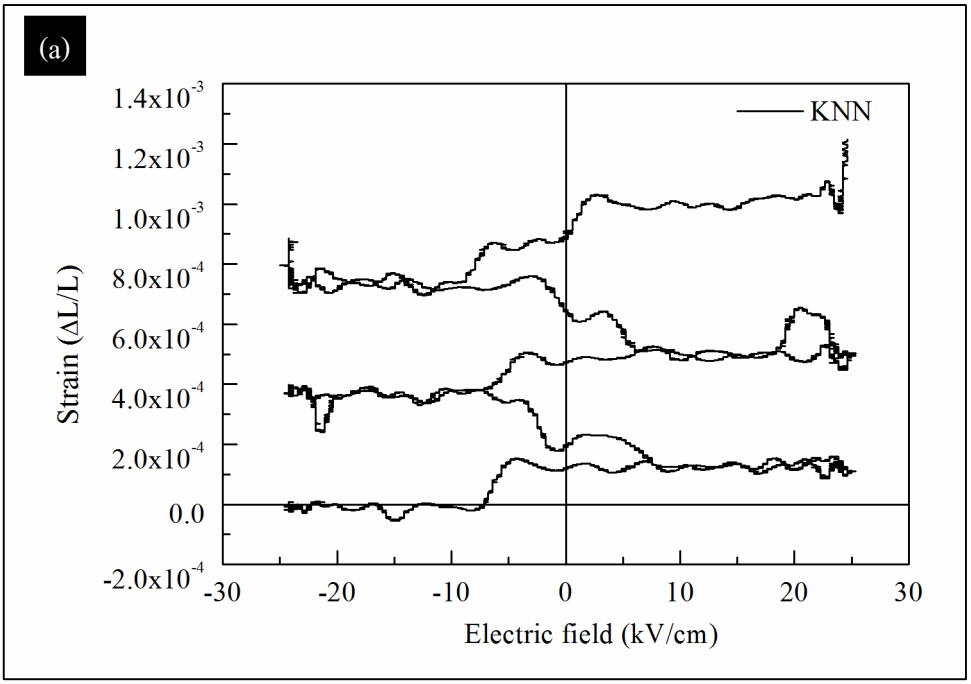




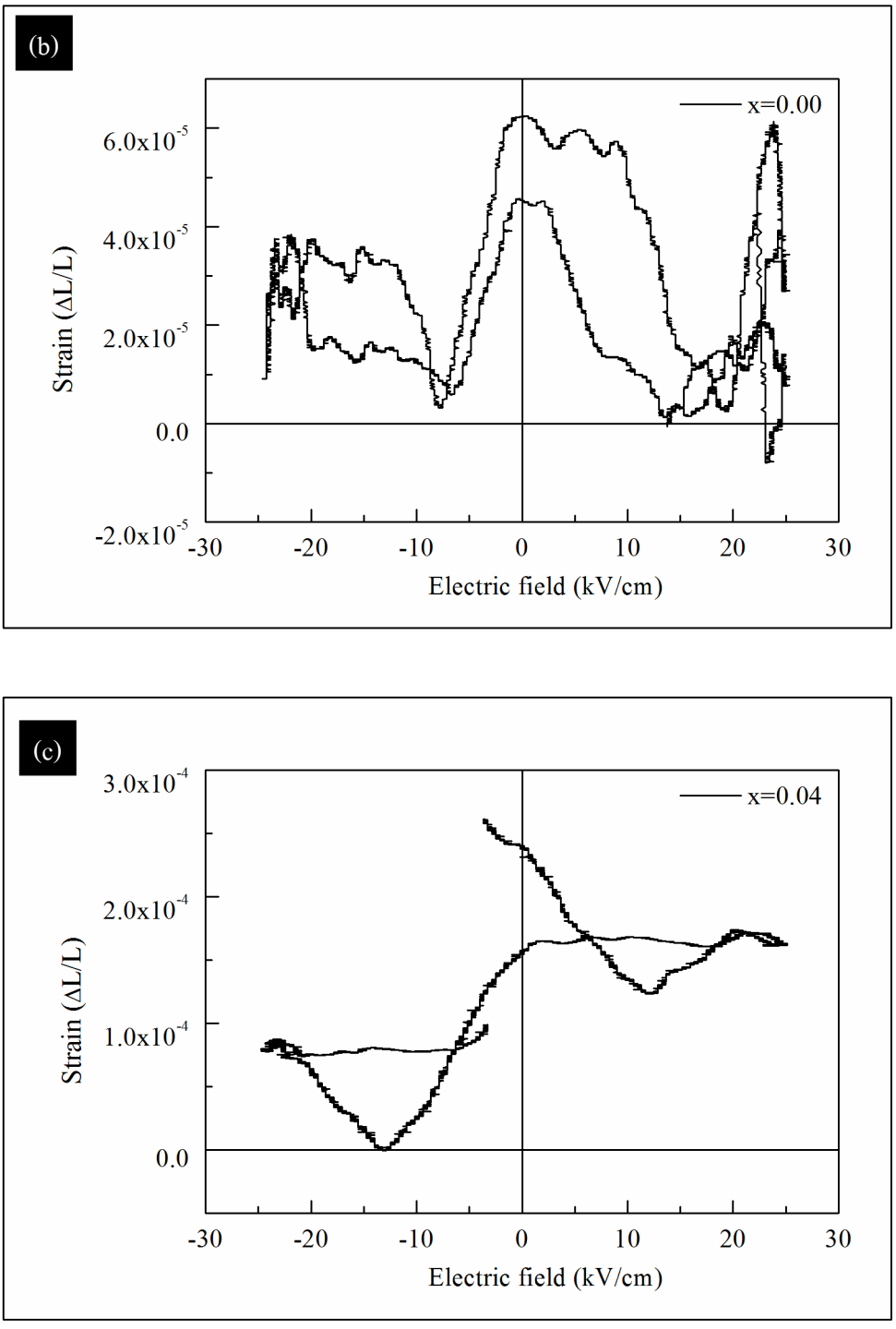
รูปที่ 4.56 วงวนปีกผีเสื้อของ KNN-LST ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ความถี่ 50 mHz ก่อนการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12 (ต่อ)

ตารางที่ 4.8 ค่าความเครียดสูงสุด (maximum strain) ของสารประกอบ KNN-LST ก่อนการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า

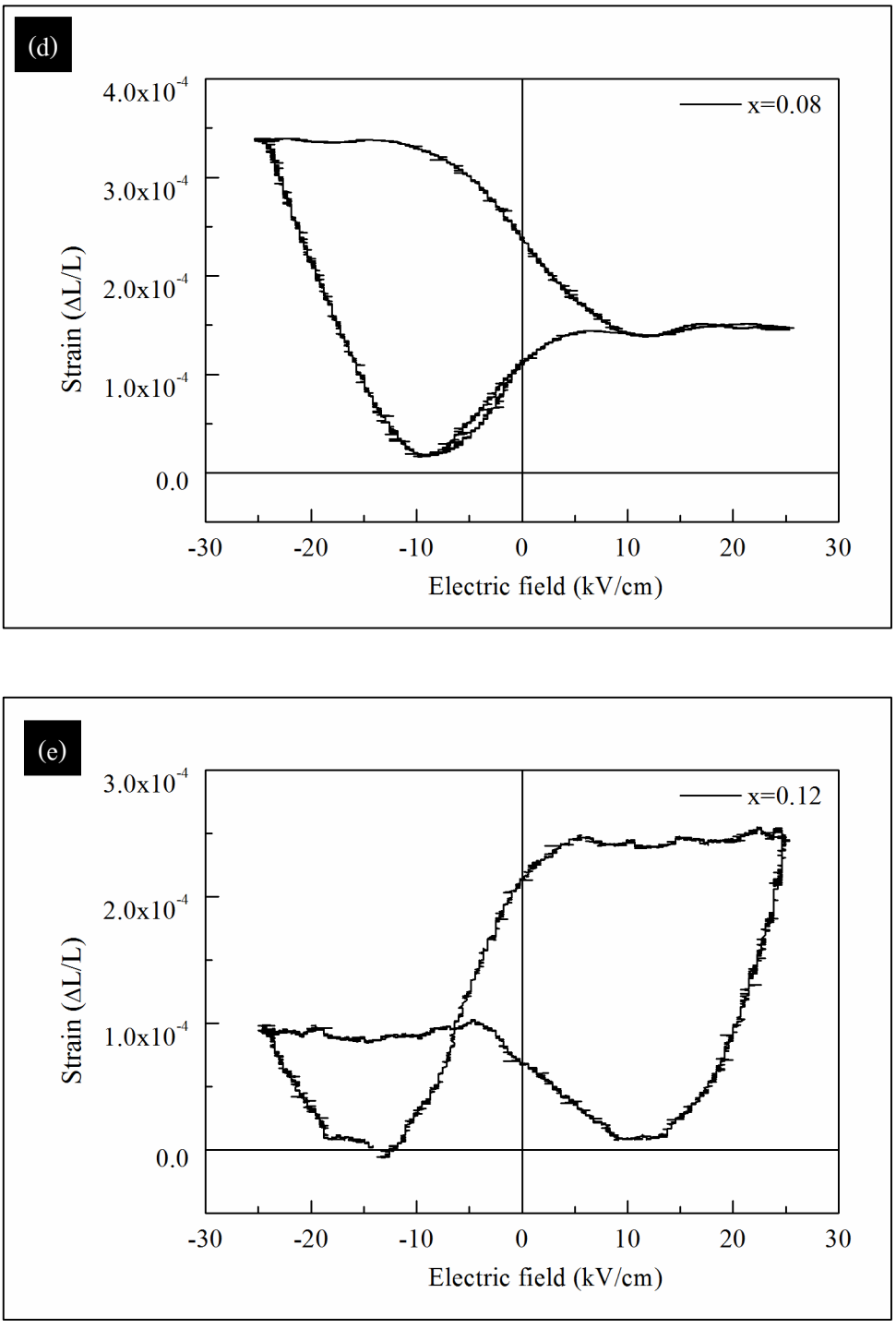
ตัวอย่าง	ค่าความเครียดสูงสุด (maximum strain)
KNN	7.50×10^{-4}
x=0.00	1.30×10^{-3}
x=0.04	1.50×10^{-3}
x=0.08	4.50×10^{-3}
x=0.12	6.00×10^{-3}



รูปที่ 4.57 วงวนปีกผีเสื้อของ KNN-LST ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ความถี่ 50 mHz หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12

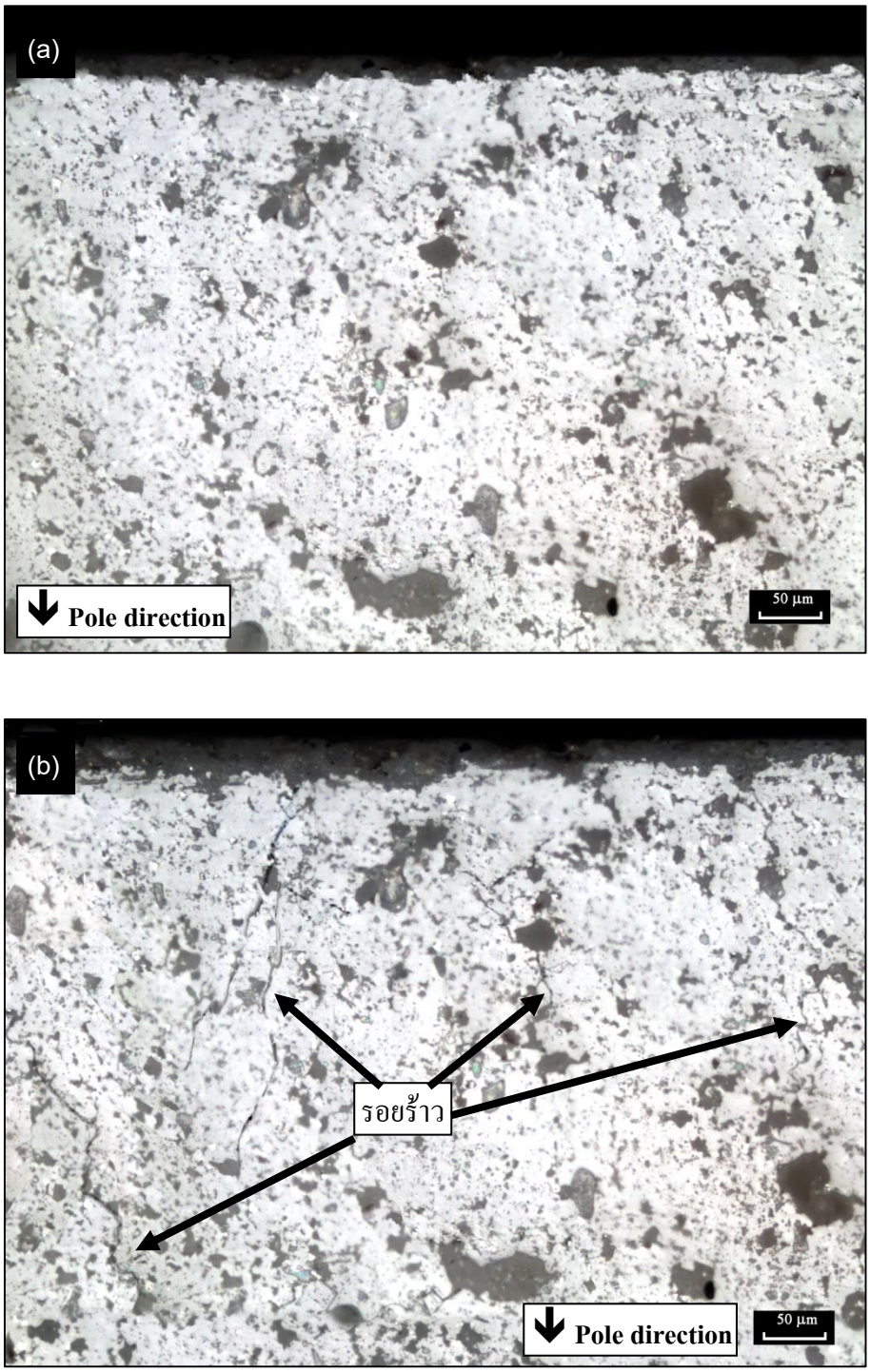


รูปที่ 4.58 วงวนปีกผีเสื้อของ KNN-LST ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ความถี่ 50 mHz หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12 (ต่อ)

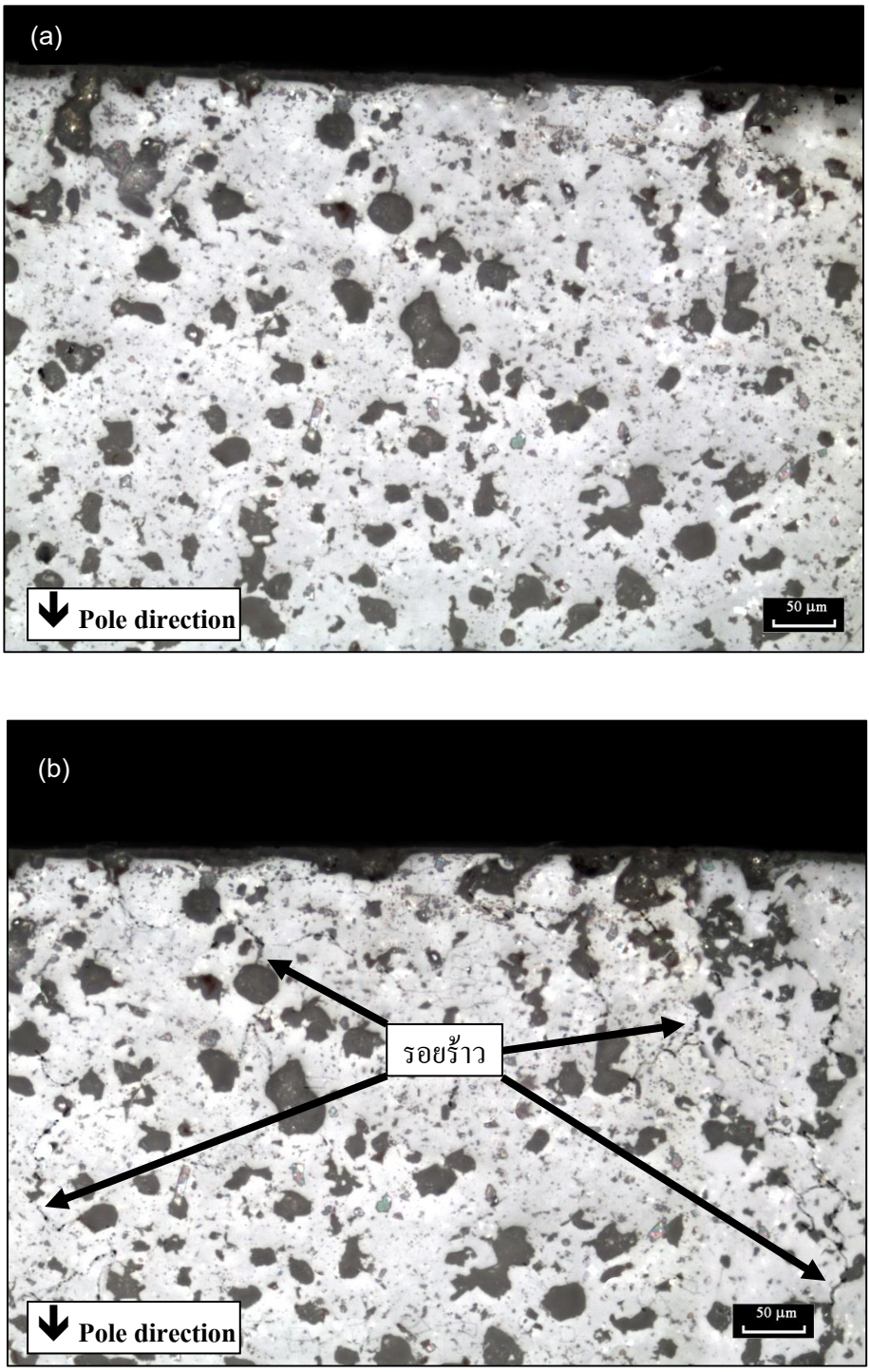


รูปที่ 4.59 วงวนปีกผีเสื้อของ KNN-LST ภายใต้สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ความถี่ 50 mHz หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า (a) KNN (b) x=0.00 (c) x=0.04 (d) x=0.08 (e) x=0.12 (ต่อ)

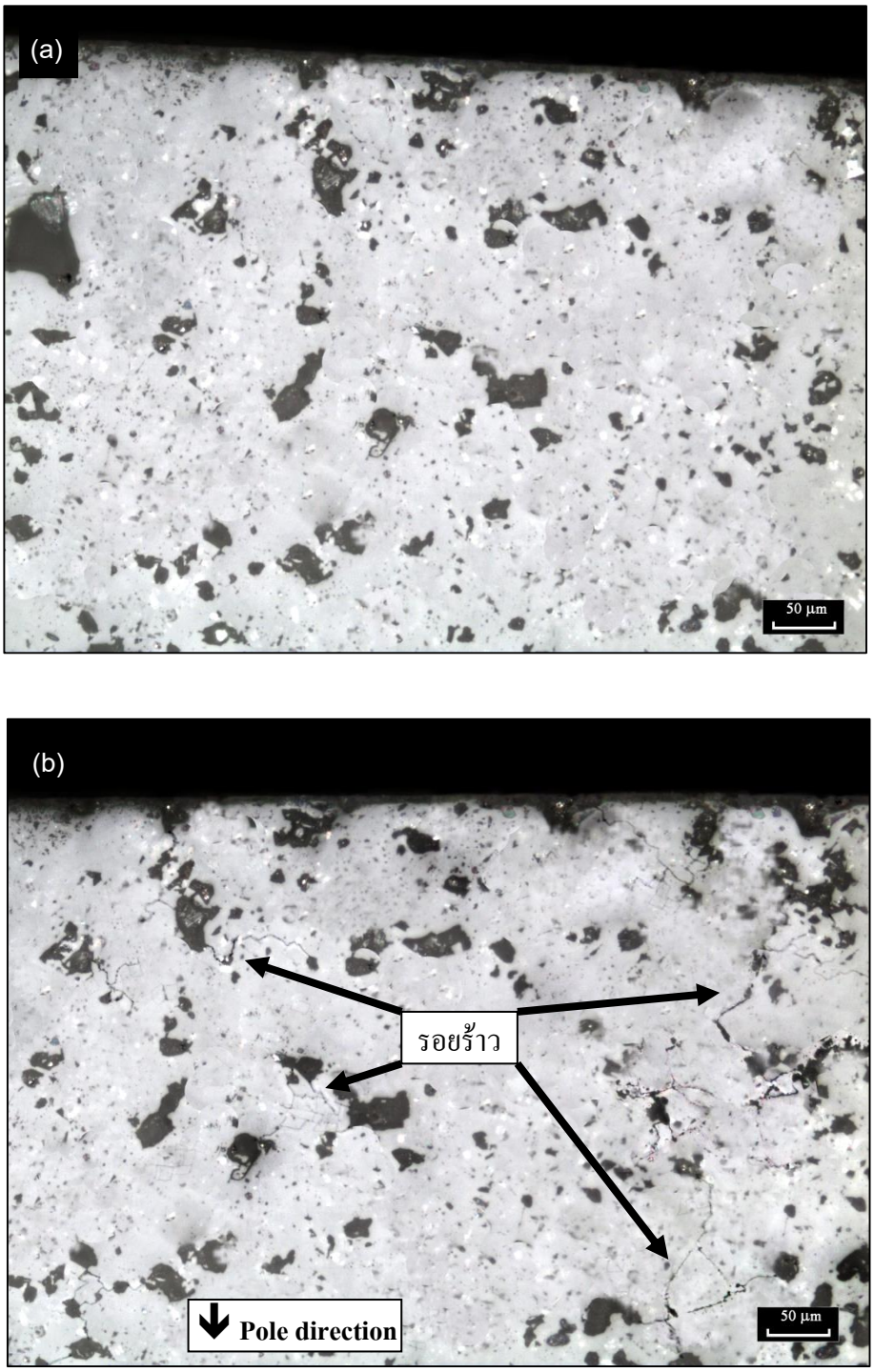
สำหรับการแปลี่ยนแปลงทางด้านกายภาพของชิ้นงานสามารถดูได้จากการเปรียบเทียบภาพก่อนและหลังทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ซึ่งพบรอยแตกร้าวบนพื้นผิวในทุกชิ้นตัวอย่าง ดังรูปที่4.45-4.47 สำหรับชิ้นตัวอย่าง KNN, x = 0.00 และ 0.04 จะพบรอยแตกร้าวเป็นเส้นเล็ก ๆ ไปตามรูพรุน และขอบเกรน จากบริเวณขอบเข้าไปไปถึงกลางชิ้นตัวอย่าง ส่วนชิ้นตัวอย่าง x = 0.08 และ0.12 ดังรูปที่ 4.48-4.49 จะสามารถมองเห็นรอยแตกร้าวที่เกิดขึ้นได้อย่างชัดเจน รอยแตกที่เกิดมีลักษณะเป็นรอยร้าวที่กว้าง และยาว แต่มีจำนวนรอยแตกร้าวที่พบน้อยกว่า ตัวอย่าง KNN, x = 0.00 และ 0.04 ซึ่งสังเกตุได้ว่า รอยแตกร้าวลดลงตามปริมาณสารเจือ Ta^{5+} ที่เพิ่มขึ้น



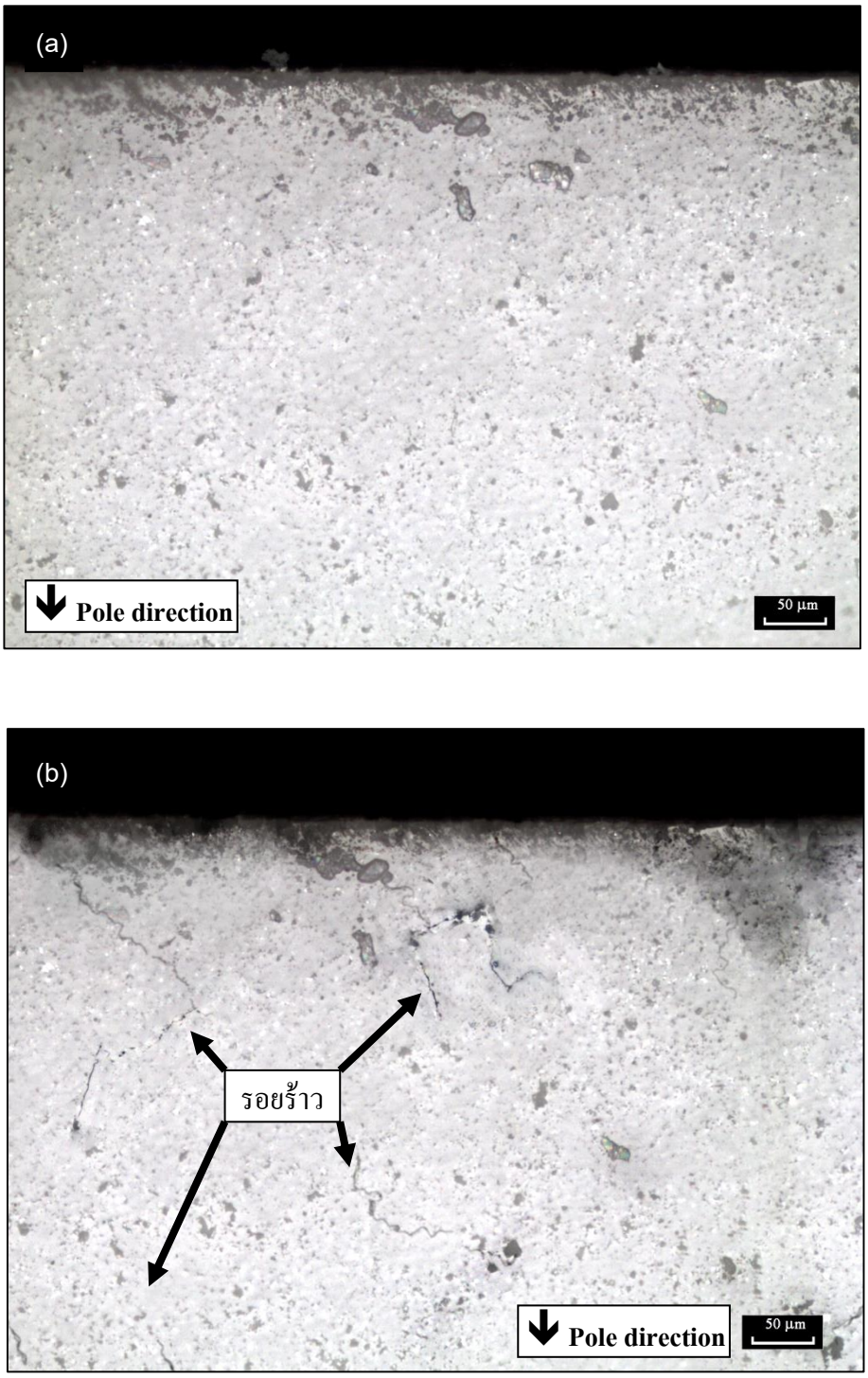
รูปที่ 4.60 ภาพถ่ายพื้นผิวบริเวณขอบชิ้นสารตัวอย่าง KNN ที่กำลังขยาย 200 เท่า (a) ก่อนทดสอบ (b) หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า (ต่อ)



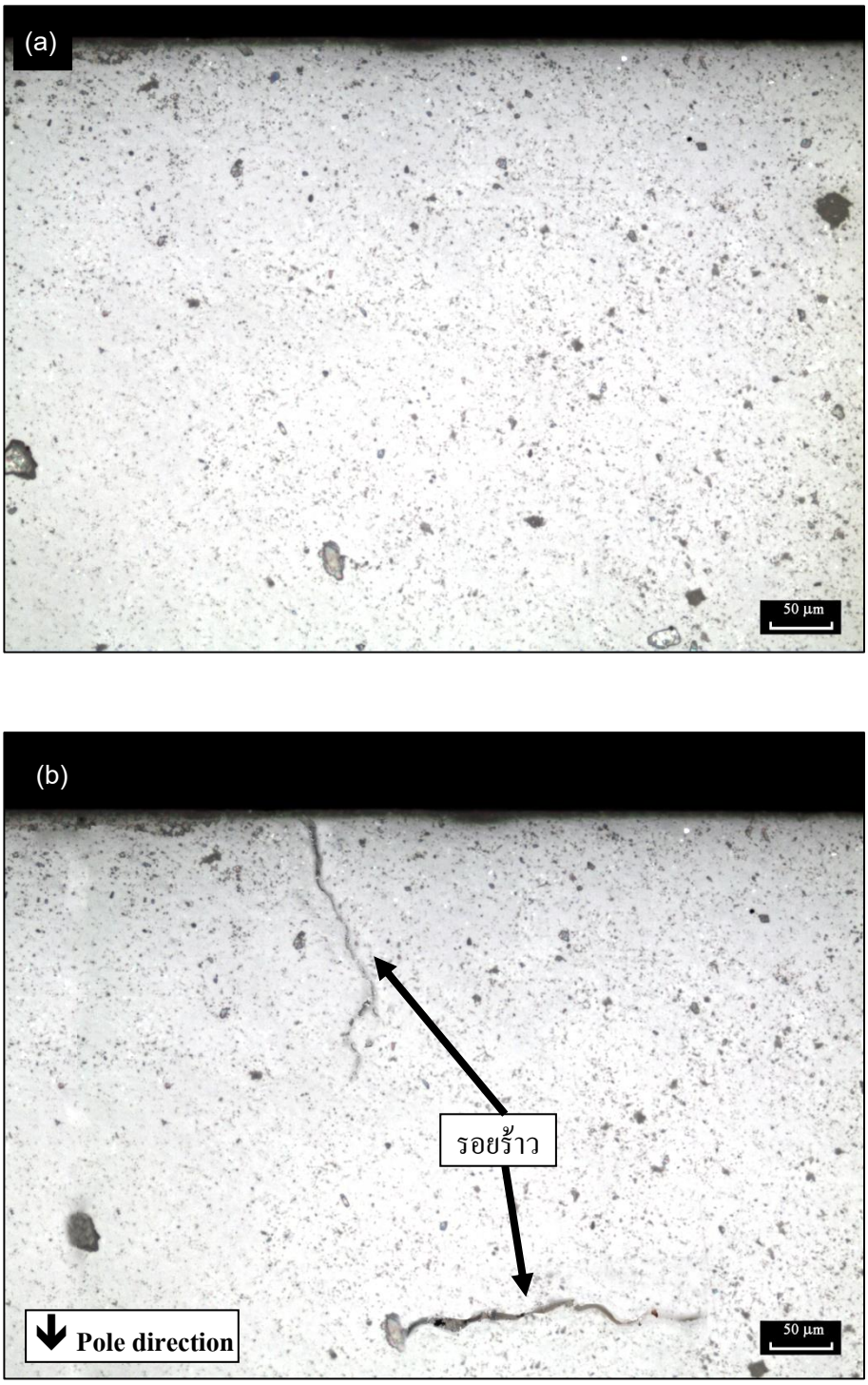
รูปที่ 4.61 ภาพถ่ายพื้นผิวบริเวณขอบชิ้นสารตัวอย่าง x=0.00 ที่กำลังขยาย 200 เท่า (a) ก่อนทดสอบ (b) หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า



รูปที่ 4.62 ภาพถ่ายพื้นผิวบริเวณขอบชิ้นสารตัวอย่าง x=0.04 ที่กำลังขยาย 200 เท่า
(a) ก่อนทดสอบ (b) หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า



รูปที่ 4.63 ภาพถ่ายพื้นผิวบริเวณขอบชิ้นสารตัวอย่าง x=0.08 ที่กำลังขยาย 200 เท่า (a) ก่อนทดสอบ (b) หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า



รูปที่ 4.64 ภาพถ่ายพื้นผิวบริเวณขอบชิ้นสารตัวอย่าง x=0.12 ที่กำลังขยาย 200 เท่า
(a) ก่อนทดสอบ (b) หลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า

4.8 สรุป

จากผลการทดลองและการวิเคราะห์ สามารถสรุปผลการเสื่อมสภาพของสารประกอบ KNN-LST $(K_{0.50}Na_{0.46}Li_{0.04})(Nb_{(0.96-x)}Sb_{0.04}Ta_x)O_3$ ที่เกิดจากการทดสอบการเกิดความล้าจากการเปลี่ยนขั้วภายในสารตัวอย่าง เมื่อ x=0.00, 0.04, 0.08 และ 0.12 ที่สนามไฟฟ้า ±2.5 kV ต่อความหนา 1 มิลลิเมตร ความถี่ 50 Hz ได้ดังตารางที่ 4.9-4.11 โดยสามารถวิเคราะห์ได้จากการศึกษาขนาดของวงวนฮีสเทอรีซีส ค่าโพลาไรเซชันคงค้าง ค่าสนามไฟฟ้าลบล้างของวงวนฮีสเทอรีซีสที่เปลี่ยนแปลงไป ความล้าทางไฟฟ้าที่เกิดขึ้นมีความเป็นไปได้ที่จะมาจากสาเหตุ 2 ประการคือ (1) เกิดจากการตรึงของผนังโดเมนซึ่งอาจสามารถวิเคราะห์ได้จากผลของเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ (2) เกิดจากความเสียหายบนผิวอิเล็กโทรดซึ่งตรวจสอบได้จากภาพถ่ายโครงสร้างจุลภาคโดยใช้กล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด จากผลการทดสอบพบว่าเมื่อปริมาณสารเจือ Ta^{5+} ที่เพิ่มขึ้นอัตราการเกิดความล้าจะมีค่าลดลง โดยเมื่อปริมาณสารเจือ Ta^{5+} สูงขึ้นการตรึงของผนังโดเมนเกิดได้น้อย (เกิดยาก) โดเมนสามารถเปลี่ยนทิศไปตามทิศของสนามไฟฟ้าได้ดีขึ้นส่งผลให้อัตราการลดลงของค่าโพลาไรเซชันมีการลดลงน้อย แต่ก็ยังพบความเสียหายที่เกิดขึ้นบนผิวและภายในเนื้อ เนื่องจากความเครียดที่เกิดขึ้น ทำให้เกิดรอยร้าวหรือรอยแตกของพื้นผิว ส่งผลให้ค่าไดอิเล็กทริกลดลง เนื่องจากเกิดช่องว่างอากาศ และมลทินต่าง ๆ ที่แทรกเข้าไปในช่องว่างนั้น และยังพบว่าที่ 0.08 โมล นั้นเป็นปริมาณที่เหมาะสมที่สุด เมื่อเปรียบเทียบกับจากค่าโพลาไรเซชันคงค้างหลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า ดังตารางที่ 4.10 เนื่องจากมีปริมาณการลดลงน้อยที่สุดเมื่อเทียบกับสารตัวอย่าง KNN-LST อื่น ๆ

ตารางที่ 4.9 สรุปผลการเติมสารเจือ Ta^{5+} ใน KNN-LST ที่มีต่อสมบัติการเปลี่ยนทิศโดเมน

อัตราส่วนการจัดเรียงตัวของโดเมน (A_1/A_2)	สารตัวอย่าง				
	KNN	x=0.00	x=0.04	x=0.08	x=0.12
ก่อนทำขั้ว	3.408	3.208	3.139	1.891	1.245
ก่อนทดสอบความล้า	6.713	4.373	4.250	3.220	2.991
หลังทดสอบความล้า	2.662	2.919	2.908	2.085	1.692
ค่า Pole density ก่อนทดสอบความล้า (m.r.d)	1.488	1.147	1.118	1.30	1.558
ค่า Pole density หลังทดสอบความล้า (m.r.d)	0.842	0.937	0.929	1.066	1.213

ตารางที่ 4.10 สรุปผลการเติมสารเจือ Ta^{5+} ใน KNN-LST ที่มีต่อสมบัติทางไฟฟ้าก่อนการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า

สมบัติทางไฟฟ้า	สารตัวอย่าง					เงื่อนไขการวัด
	KNN	x=0.00	x=0.04	x=0.08	x=0.12	
ค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริก (d_{33}) (pC/N)	81.2	104.6	150.4	191.6	249	-
ความหนาแน่น (ρ) (g/cm^3)	4.088	4.191	4.119	4.161	4.207	อาร์คิมิดิส
อุณหภูมิคูรี (T_C) (C)	424	410	353	342	305	1 V 1 kHz
ค่าความจุไฟฟ้า (C_P) (pF)	52.83	121.52	136.75	175.31	230.65	1 V 100 kHz
ค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ε_r)	855.46	1089.26	1322.03	1659.6	1987.73	
ค่าโพลาไรเซชันคงค้าง ($+P_r$) ($\mu C/cm^2$)	10.34	13.30	15.77	18.53	22.70	±2.5kV/mm 50 Hz
ค่าโพลาไรเซชันคงค้าง ($-P_r$) ($\mu C/cm^2$)	-9.79	-15.15	-17.05	-21.75	-27.80	
สนามไฟฟ้าลบล้าง ($+E_C$) (kV/cm)	12.75	14.86	13.49	13.63	14.00	
สนามไฟฟ้าลบล้าง ($-E_C$) (kV/cm)	-14.83	-20.26	-18.04	-19.29	-18.92	

หมายเหตุ จากการทดสอบที่ ±2.5 kV/mm 50 Hz
เครื่องหมายลบ (-) แสดงการเปลี่ยนแปลงที่ลดลง
เครื่องหมายบวก (+) แสดงการเปลี่ยนแปลงที่เพิ่มขึ้น

ตารางที่ 4.11 สรุปผลการเติมสารเจือ Ta^{5+} ใน KNN-LST ที่มีต่อสมบัติทางไฟฟ้าหลังการทดสอบความล้าทางไฟฟ้า (1,000,000 รอบ)

สมบัติทางไฟฟ้า	ปริมาณการเปลี่ยนแปลงสมบัติทางไฟฟ้า (ร้อยละ)				
	KNN	x=0.00	x=0.04	x=0.08	x=0.12
ค่าคงที่ไพอิโซอิเล็กทริก (d_{33}) (pC/N)	-88.35	-41.86	-49.73	-47.58	-47.37
ค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ε_r) ที่ 1 V 100 kHz	-66.16	-38.46	-45.95	-44.67	-38.80
ค่าโพลาไรเซชันคงค้าง ($+P_r$) ($\mu C/cm^2$)	-94.53	-85.50	-84.65	-77.27	-82.73
ค่าโพลาไรเซชันคงค้าง ($-P_r$) ($\mu C/cm^2$)	-94.57	-87.54	-85.47	-80.77	-85.24
สนามไฟฟ้าลบล้าง ($+E_C$) (kV/cm)	+38.16*	-1.94	-3.08	-1.78	-0.26
สนามไฟฟ้าลบล้าง ($-E_C$) (kV/cm)	+32.09*	-7.79	-7.15	-8.11	-0.62

หมายเหตุ จากการทดสอบที่ ±2.5 kV/mm 50 Hz
เครื่องหมายลบ (-) แสดงการเปลี่ยนแปลงที่ลดลง
เครื่องหมายบวก (+) แสดงการเปลี่ยนแปลงที่เพิ่มขึ้น
*ไม่สามารถวัดได้เนื่องจากไม่แสดงสมบัติเฟร์โรอเล็กทริก