งานวิจัยนี้ทำการเตรียมและศึกษาความสัมพันธ์ระหว่างกระบวนการผลิต โครงสร้าง และสมบัติทั้งทางไฟฟ้าและเชิงกลของสารเฟร์โรอิเล็กทริกนาโนคอมโพสิต โดยการเสริมแรงให้แก่เซรามิกเฟร์โรอิเล็กทริกในระบบ PZT ด้วยอนุภาคขนาดนาโนของเซรามิก เช่น WO_3, ZnO, NiO โดยใช้กระบวนการผลิตทั้งแบบดั้งเดิม กล่าวคือ การผสมออกไซด์ที่มีต้นทุนในการผลิตต่ำ และกระบวนการทางเคมี ได้แก่ ซอล-เจลที่ให้วัสดุคุณภาพสูงแต่ก็มีต้นทุนการผลิตค่อนข้างสูงด้วยเช่นกัน นอกจากเซรามิกนาโนคอมโพสิต PZT งานวิจัยนี้ยังทำการเตรียมและปรับปรุงเซรามิกเฟร์โรอิเล็กทริกระบบไร้สารตะกั่วชนิดใหม่ๆ เช่น เซรามิกโครงสร้างแบบชั้นบิสมัทด้วยวิธีการเตรียมเป็นคอมโพสิตกับสารประกอบ PZT และการเจือด้วยไอออนหลากหลายชนิด เพื่อใช้เป็นสารตั้งต้นสำหรับเตรียมเซรามิกเฟร์โรอิเล็กทริกคุณภาพสูงต่อไป ในรายงานผลการวิจัยฉบับสมบูรณ์ของโครงการฉบับนี้ จะนำเสนอผลการวิจัยที่ดำเนินการแล้วเสร็จอย่างสมบูรณ์ไว้เพียง 3 ส่วน ดังนี้คือ

งานวิจัยส่วนที่ 1 ศึกษาความสัมพันธ์ระหว่างกระบวนการผลิต โครงสร้าง และสมบัติของเซรามิกเลดเซอร์โคเนทไทเทเนตที่เติมด้วยอนุภาคนาโนทังสเตนออกไซด์ (PZT/$x$$WO_3$) เมื่อ x = 0, 0.1, 0.5, 1 และ 3 ร้อยละโดยน้ำหนัก งานวิจัยนี้ศึกษาการเตรียมเซรามิก PZT/WO_3 จากผงที่เตรียมด้วยกระบวนการไตรออลซอล-เจล โดยเงื่อนไขในการแคลไซน์และซินเทอร์ที่เหมาะสม คือ 600 องศาเซลเซียส 4 ชั่วโมง และ 1100 องศาเซลเซียส 6 ชั่วโมง ตามลำดับ การเติมอนุภาคนาโน WO_3 ส่งผลให้เซรามิกมีค่าความเป็นเททระโกนัลลดลง จนเกือบจะเป็นโครงสร้างแบบรอมโบฮีดรอลโดยสมบูรณ์ที่การเติม WO_3 เท่ากับร้อยละ 3 โดยน้ำหนัก ส่วนที่ปริมาณการเติม WO_3 เท่ากับร้อยละ 0.1 โดยน้ำหนักจะให้เซรามิกที่มีเกรนจะมีขนาดใหญ่กว่าขนาดเกรนของเซรามิก PZT บริสุทธิ์ แต่เมื่อปริมาณการเติม WO_3 มากขึ้นเป็นร้อยละ 0.5, 1 และ 3 โดยน้ำหนัก ขนาดเกรนจะมีแนวโน้มลดลงตามลำดับ จากการศึกษาสมบัติทางกายภาพ พบว่า ค่าความหนาแน่นสูงสุดอยู่ที่ปริมาณการเติม WO_3 ในปริมาณ 3 ร้อยละโดยน้ำหนัก และมีค่าความหนาแน่นต่ำที่สุดที่ปริมาณการเติม WO_3 เท่ากับ 0.1 ร้อยละโดยน้ำหนัก เมื่อตรวจสอบสมบัติทางไฟฟ้าของเซรามิก พบว่า ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกที่อุณหภูมิสูงจะลดลงเมื่อปริมาณการเติม WO_3 มากขึ้น แต่ค่าแฟกเตอร์การสูญเสียไดอิเล็กทริกกลับมีแนวโน้มต่ำลง นอกจากนี้ยังพบว่าการเติมอนุภาคนาโน WO_3 จะช่วยลดอุณหภูมิคูรีของสาร PZT ได้ และเมื่อตรวจสอบสมบัติ

เฟร์โรอิเล็กทริกจากลักษณะของวงวนฮีสเทอรีซีส พบว่า เซรามิก PZT/5wt%WO_3 จะมีค่าสภาพคงเหลือของโพลาไรเซชันสูงที่สุด และมีค่าความเป็นเหลี่ยมของวงวนฮีสเทอรีซีสสูงที่สุดเช่นกัน

งานวิจัยส่วนที่ 2 ศึกษาความสัมพันธ์ระหว่างกระบวนการผลิต โครงสร้าง และสมบัติของเซรามิก PZT ที่เติมด้วยอนุภาคนาโนของ ZnO (PZT/xZnO เมื่อ x = 0, 0.1, 0.5 และ 1 ร้อยละโดยน้ำหนัก) ที่เตรียมด้วยวิธีผสมออกไซด์ จากผลการตรวจสอบเฟสของผง พบว่า ผง PZT ที่เตรียมได้มีความบริสุทธิ์สูง มีเฟสผสมระหว่างเฟสเททระโกนัลและรอมโบฮีดรอล แต่เมื่อเติม ZnO จะทำให้ความเป็นเฟสเททระโกนัลของเซรามิกลดลง ความหนาแน่นของเซรามิกมีแนวโน้มเพิ่มขึ้น ส่วนขนาดเกรนโดยเฉลี่ยจะมีแนวโน้มลดลงเมื่อเติม ZnO แต่จะมีค่าใกล้เคียงกันที่ทุกๆ ปริมาณการเติม ZnO สำหรับผลการศึกษาสมบัติเชิงกลของเซรามิกที่เผาซินเทอร์ที่อุณหภูมิ 1200 องศาเซลเซียส พบว่า เซรามิกจะมีความแข็งมากขึ้นเมื่อมีการเติม ZnO โดยเซรามิก PZT ที่มีอัตราส่วนการเติม ZnO เท่ากับ 0.5 ร้อยละโดยน้ำหนัก จะมีความแข็งสูงที่สุด ส่วนการเติม ZnO จะทำให้ค่าความต้านทานต่อการแตกลดลง แต่จะมีแนวโน้มเพิ่มขึ้นเล็กน้อยเมื่อปริมาณการเติมมากขึ้น และเมื่อตรวจสอบสมบัติทางไฟฟ้า พบว่า การเติม ZnO จะส่งผลให้ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกลดลง อีกทั้งยังลดอุณหภูมิคูรีลงเล็กน้อย สำหรับสมบัติเฟร์โรอิเล็กทริก พบว่า การเติม ZnO ใน ปริมาณ < 0.5 ร้อยละโดยน้ำหนักไม่เปลี่ยนแปลงสมบัติเฟร์โรอิเล็กทริก แต่เมื่อเติม ZnO มากขึ้นจะส่งผลให้สมบัติเฟร์โรอิเล็กทริกลดลง จากงานวิจัยนี้จะเห็นได้ว่าการเติมอนุภาคขนาดนาโน ZnO ในปริมาณที่เหมาะสม ($\leq$ 0.5 ร้อยละโดยน้ำหนัก) สามารถปรับปรุงสมบัติเชิงกลในแง่ของความแข็งให้ดีขึ้น และคงสมบัติเฟร์โรอิเล็กทริกให้ใกล้เคียงกับของเซรามิก PZT บริสุทธิ์ไว้ได้

งานวิจัยส่วนที่ 3 ศึกษาความสัมพันธ์ระหว่างกระบวนการผลิต โครงสร้าง และสมบัติของเซรามิก PZT ที่เติมด้วยอนุภาคนาโนของ NiO (PZT/xNiO เมื่อ x = 0, 0.1, 0.5 และ 1 ร้อยละโดยน้ำหนัก) ด้วยวิธีผสมออกไซด์ จากผลการตรวจสอบเฟสของผงด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ พบว่า ผง PZT ที่เตรียมได้มีความบริสุทธิ์สูงและมีเฟสผสมระหว่างเฟสเททระโกนัลและเฟสรอมโบฮีดรอล เมื่อเติม NiO มากขึ้นจะทำให้ความเป็นเฟสเททระโกนัลของเซรามิกมีแนวโน้มลดลง จากการศึกษาสมบัติทางกายภาพ พบว่า ความหนาแน่นของเซรามิกจะมีแนวโน้มเพิ่มขึ้น ส่วนขนาดเกรนโดยเฉลี่ยจะมีแนวโน้มลดลงเมื่อมีการเติมอนุภาคนาโน NiO แต่ความหนาแน่นและขนาดเกรนจะใกล้เคียงกันที่ทุกๆ ปริมาณการเติม สำหรับการศึกษาสมบัติเชิงกลของเซรามิกที่เผาซินเทอร์ที่อุณหภูมิ 1250 องศาเซลเซียส พบว่า เซรามิกจะมีค่าความแข็งเพิ่มขึ้นเมื่อมีการเติม NiO โดยเซรามิก PZT ที่มีอัตราส่วนการเติม NiO เท่ากับ 0.1 ร้อยละโดยน้ำหนัก จะมีความแข็งและความต้านทานต่อรอยแตกสูงที่สุด และเมื่อตรวจสอบสมบัติทางไฟฟ้า พบว่า การเติม NiO เพียงร้อยละ 0.1 โดยน้ำหนัก จะส่งผลให้ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกที่อุณหภูมิห้องดีขึ้น แต่ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกที่อุณหภูมิคูรีจะลดลงตามปริมาณการเติม NiO และจากการศึกษาสมบัติเฟร์โรอิเล็กทริก พบว่า การเติม NiO ในปริมาณ < 0.5 ร้อยละโดยน้ำหนัก เซรามิกจะมีสมบัติเฟร์โรอิเล็กทริกที่ดี และมีแนวโน้มลดลงเมื่อเพิ่มปริมาณ NiO มากขึ้น จากงานวิจัยนี้จะเห็นได้ว่าการเติมอนุภาคขนาดนาโน NiO สามารถปรับปรุงสมบัติเชิงกลให้ดีขึ้นได้ และคงสมบัติเฟร์โรอิเล็กทริกที่ดีไว้ได้

232049

งานวิจัยนี้โดยสรุปประสบความสำเร็จในการเตรียม ศึกษาความสัมพันธ์ระหว่างกระบวนการผลิต โครงสร้าง และสมบัติต่างๆ ของเซรามิกเฟร์โรอิเล็กทริกนาโนคอมโพสิตชนิดใหม่ ซึ่งผลการทดลองที่ได้นี้ทำให้เข้าใจพฤติกรรมการเปลี่ยนแปลงสมบัติของเซรามิกเหล่านี้ ตามสภาวะการเตรียมและปริมาณเฟสที่ใช้ในการเสริมแรง และช่วยชี้แนะแนวทางในการทำวิจัยต่อและพัฒนาเซรามิกระบบเหล่านี้ให้ดียิ่งขึ้น เพื่อการประยุกต์ใช้งานในอุตสาหกรรมอิเล็กทรอนิกส์ได้จริงในอนาคต ผลพลอยได้ที่สำคัญอีกประการหนึ่ง คือ บทความตีพิมพ์ในวาสารวิชาการระดับนานาชาติจำนวน 19 เรื่อง ระดับชาติจำนวน 2 เรื่อง ผลงานนำเสนอในที่ประชุมสัมมนาวิชาการระดับนานาชาติและระดับชาติรวมทั้งสิ้น 49 เรื่อง และตลอดช่วงเวลา 3 ปีในการทำวิจัย โครงการนี้ได้สร้างเครือข่ายความร่วมมือทางการวิจัยทั้งกับนักวิจัยระดับประเทศและต่างประเทศอย่างเป็นรูปธรรม อีกทั้งยังสามารถผลิตบัณฑิตได้ทั้งในระดับปริญญาตรี จำนวน 7 คน ระดับปริญญาโท จำนวน 2 คน ระดับปริญญาเอก จำนวน 6 คน (จบการศึกษาแล้ว จำนวน 1 คน และที่กำลังศึกษาอยู่ 5 คน ตามลำดับ) โดยนักศึกษาส่วนใหญ่ได้รับทุนจากหลากหลายแหล่งทุน ไม่ว่าจะเป็นโครงการปริญญาเอกกาญจนาภิเษก (คปก.) โครงการพัฒนาอาจารย์ในสถาบันอุดมศึกษาจาก สกอ. โครงการเครือข่ายเชิงกลยุทธ์เพื่อการผลิตและพัฒนาอาจารย์ในสถาบันอุดมศึกษาจาก สกอ. และโครงการ IRPUS เป็นต้น

This research studied fabrication and relations between fabrication, structure and both mechanical and electrical properties of ferroelectric nanocomposites. Ferroelectric PZT ceramic was reinforced with nano-particles of WO_3, ZnO and NiO using not only a conventional process i.e. a mixed-oxide method which has known as a low capital cost processing method, but also chemical method i.e. sol-gel which has known to provide materials with high quality compared to the conventional method but its drawback is rather an expensive method. Apart from these PZT nanocomposite ceramics, this research also prepared and improved properties of new non-lead ferroelectric ceramics such as Bi-layered structure ceramics using composite method with PZT compound and doping method via different ions, for being further used as starting materials for preparation of other high quality ferroelectric ceramics. This report, however, will present only 3 research parts that were completely done which are shown below.

The first part of this research studied relations between fabrication, structure and properties of nano-WO_3 added PZT ceramics (PZT/$x$$WO_3$ when x = 0, 0.1, 0.5, 1 and 3 wt%). This research studies fabrication of PZT/WO_3 ceramics from powders prepared by a triol sol-gel method. The suitable calcination and sintering conditions were found to be 600^{o}C for 4 h and 1100^{o}C for 6 h, respectively. An addition of WO_3 nano-particles reduced tetragonality of the ceramics, closed to complete rhombohedral structure (at 3 wt% addition). The 0.1 wt% WO_3 added sample provided ceramic with larger grain compared to that of pure PZT sample. Further increase in WO_3 added content to 0.5, 1 and 3 wt%, the grain size tended to gradually reduce. Physical property studies showed that maximum density can be achieved at 3 wt% WO_3 added sample, while the minimum value was found for 0.1 wt% WO_3 added sample. Investigation of electrical properties showed that high temperature dielectric constant and dielectric loss values reduced with increasing WO_3 content. Curie temperature of PZT was also found to reduce with WO_3 nano-particles additions. Ferroelectric properties were observed via P-E hysteresis loops. The results showed that PZT/5wt%WO_3 ceramic had maximum remanant polarization and loop squareness value.

The second part of this research studied relations between fabrication, structure and properties of nano-ZnO added PZT ceramics (PZT/*x*ZnO when x = 0, 0.1, 0.5, and 1 wt%) prepared by mixed-oxide method. Phase analysis results showed high purity as-received PZT powder with mixture of tetragonal and rhombohedral phases. An addition of ZnO nano-particles reduced tetragonality, increased density and reduced grain size of the ceramics compared to those of pure PZT ceramic. However, within ZnO added samples, the grain sizes were rather similar. Mechanical properties investigation was carried out for the sample sintered at 1200°C. It was found that an addition of ZnO increased hardness of the ceramics and the maximum value was achieved at 0.5 wt% ZnO added sample. On the other hand, fracture toughness values were reduced with an addition of ZnO. Within ZnO added samples, however, the fracture toughness was found to increase with increasing content of ZnO. Electrical properties investigation showed that an addition of ZnO reduced dielectric constant and was slightly lower Curie temperature. An addition of < 0.5 wt% ZnO did not significantly change ferroelectric properties; however, these properties were degraded at higher content of ZnO. Based on this investigation, it seems that the optimum limit of ZnO addition was $\leq$ 0.5 wt% due to its superior mechanical properties, i.e. high hardness and comparable ferroelectric properties compared to that of pure PZT ceramic.

The third part of this research studied relations between fabrication, structure and properties of nano-NiO added PZT ceramics (PZT/*x*NiO when x = 0, 0.1, 0.5, and 1 wt%) prepared by mixed-oxide method. Phase analysis results showed high purity as-received PZT powder with mixture of tetragonal and rhombohedral phases. An addition of NiO nano-particles reduced tetragonality, increased density and reduced grain size of the PZT ceramics. However, within NiO added samples, both density and grain size values were rather similar. Mechanical properties investigation was carried out for the sample sintered at 1250°C. It was found that an addition of NiO increased hardness of the ceramics. The maximum hardness and fracture toughness values were achieved at 0.1 wt% NiO added sample. Electrical properties investigation showed that an addition of only 0.1 wt% NiO into PZT improved dielectric constant measured at room temperature but the values measured at Curie temperature were reduced with increasing NiO content. Improved ferroelectric properties were observed for the sample with < 0.5 wt% NiO addition. Based on this investigation, an addition of NiO nano-particles could improve mechanical properties and maintained acceptable ferroelectric properties of PZT ceramic.

To conclude, this research was successful in preparation, study of relations between fabrication, structure and properties of new nanocomposite ferroelectric ceramics. The results provided insight understanding of property changes upon processing condition and amount of reinforcement phases. This research suggested further research direction and development of these ceramic systems for actual applications in electronic industries.

232049

The most important outputs of this research were 19 international publications, 2 national publications and 49 presentations in the international and national conferences. Throughout 3 year research, this project has truly created both nationally and internationally corroborations. This project played an important part in production of 7 BSc, 2 MSc and 6 PhD students. Most of these students were granted by different National scholarships such as the Royal Golden Jubilee PhD program (RGJ), the Office of the Higher Education Commission (OHEC) under the program Strategic Scholarships for Frontier Research Network for the Ph.D. Program Doctoral degree and the Industrial Research Projects for Undergraduate Students (IRPUS) project.