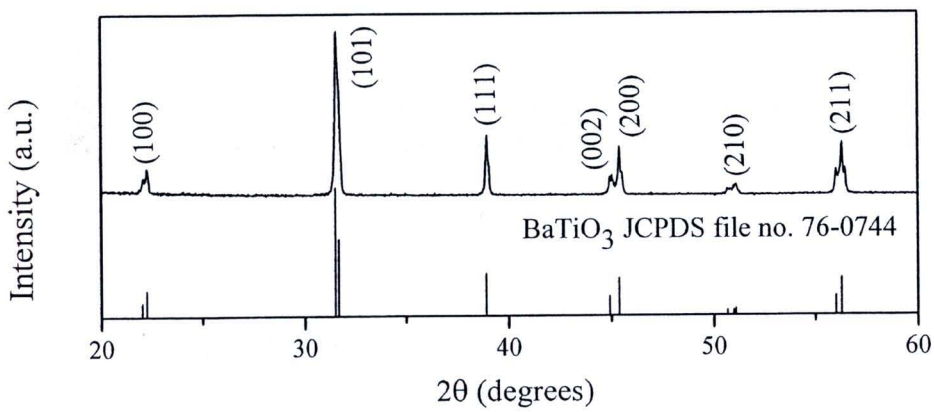
บทที่ 4
ผลการทดลองและอภิปรายผล

ในบทนี้จะนำเสนอผลการทดลองที่ได้จากการเตรียมผงและเซรามิกของ BT BMN รวมทั้งผงและเซรามิกในระบบ BT-BMN โดยจะแสดงถึงผลจากการตรวจสอบเฟสและสัณฐานของผง และผลจากการตรวจสอบเฟส สมบัติทางกายภาพ โครงสร้างจุลภาค และสมบัติทางไฟฟ้าของเซรามิกที่เตรียมได้พร้อมทั้งอภิปรายผลการทดลองที่ได้ ดังต่อไปนี้

4.1 สารแบเรียมไทเทเนต ($BaTiO_3$: BT)

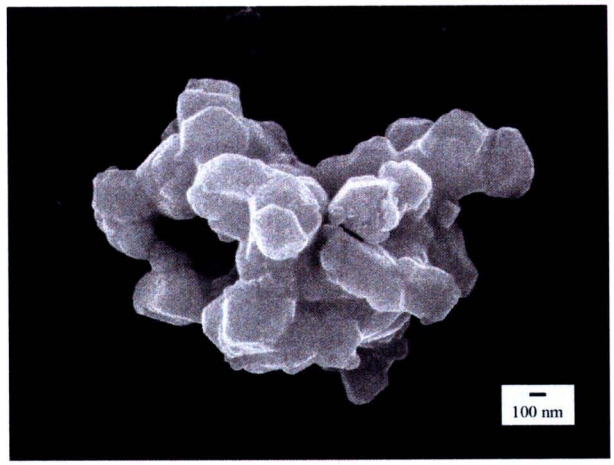
4.1.1 ผลการตรวจสอบผง BT

เมื่อทำการเตรียมผงแบเรียมไทเทเนตด้วยวิธีมิกส์ออกไซด์ และนำไปเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 1300 °ซ เป็นเวลา 2 ชั่วโมง โดยมีอัตราการขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 °ซ ต่อนาที [25] แล้วนำผงที่ได้ไปวิเคราะห์การเกิดเฟสด้วย XRD ดังแสดงในรูป 4.1 พบว่าผง BT ที่เตรียมได้ไม่มีเฟสแปลกปลอมเกิดขึ้น มีรูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์สอดคล้องกับข้อมูลของสาร BT ที่มีสูตรเป็น $BaTiO_3$ ในแฟ้มข้อมูล JCPDS หมายเลข 76-0744 [31] ซึ่งมีโครงสร้างเป็นแบบเพอรอพสไกด์ ในระบบผลึกเตตระโกนอล และมีขนาดแลตทิช a = 3.994 Å และ c = 4.033 Å ใน space group P4mm (99)



รูป 4.1 XRD ของผง BT ที่เผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 1300 °ซ เป็นเวลา 2 ชั่วโมง อัตราการขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 °ซ ต่อนาที เมื่อเทียบกับแฟ้มข้อมูล JCPDS หมายเลข 76-0744

จากนั้นนำผงที่ได้มาวิเคราะห์ลักษณะสัณฐานเบื้องต้นด้วยกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด (SEM) ดังรูป 4.2 พบว่าลักษณะโดยทั่วไปเป็นอนุภาคที่มีรูปร่างไม่แน่นอน มีการเกาะตัวกันเป็นกลุ่มก้อน โดยผง BT ที่เตรียมได้นี้มีขนาดอนุภาคเฉลี่ยเท่ากับ 0.48 ไมโครเมตร และมีช่วงขนาดอนุภาคเท่ากับ 0.14 ถึง 1.51 ไมโครเมตร ซึ่งสอดคล้องกับงานวิจัยก่อนหน้านี้ [32]



สำนักงานคณะกรรมการวิจัยแห่งชาติ ห้องสมุดงานวิจัย

รูป 4.2 SEM ของผง BT ที่เผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 1300 °ซ เป็นเวลา 2 ชั่วโมง โดยมีอัตราการขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 °ซ ต่อนาที

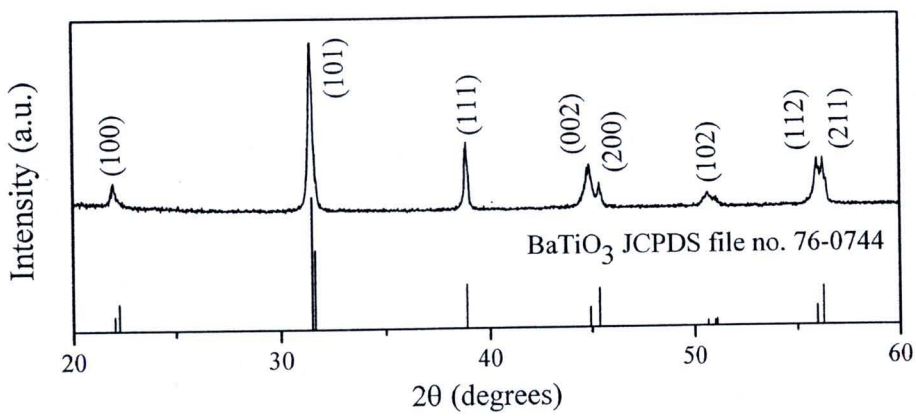
4.1.2 ผลการตรวจสอบเซรามิก BT

เมื่อนำผง BT มาทำการขึ้นรูปเป็นเซรามิก และนำไปเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิต่างๆ แล้วนำไปหาค่าความหนาแน่นโดยใช้หลักการแทนที่น้ำของอาร์คีมีดีส (Archimedes) เปอร์เซ็นต์การหดตัวและเปอร์เซ็นต์ของน้ำหนักที่สูญเสียไป (ตาราง 4.1) พบว่าเซรามิกมีค่าความหนาแน่นประมาณ 81-91 % เมื่อเปรียบเทียบกับความหนาแน่นทางทฤษฎีของ BT ที่มีโครงสร้างแบบเตตระโกนอล ในแฟ้มข้อมูล JCPDS หมายเลข 76-0744 [31] ซึ่งมีค่าความหนาแน่นประมาณ 6.018 g/cm^3 จากผลการทดลอง พบว่าเมื่อใช้อุณหภูมิในการเผาซินเตอร์ 1250 °ซ จนถึง 1350 °ซ เซรามิกมีความหนาแน่นสูงขึ้นเรื่อยๆ และเมื่อเพิ่มอุณหภูมิในการเผาซินเตอร์จนถึง 1400 °ซ พบว่าความหนาแน่นมีค่าลดลง ซึ่งสอดคล้องกับเปอร์เซ็นต์การหดตัวที่มีค่าลดลงเมื่ออุณหภูมิซินเตอร์เท่ากับ 1400 °ซ แต่จะตรงกันข้ามกับเปอร์เซ็นต์ของน้ำหนักที่สูญเสียไป ที่มีค่าสูงขึ้นเมื่ออุณหภูมิซินเตอร์เพิ่มขึ้น ซึ่งสาเหตุที่ค่าความหนาแน่นของเซรามิกลดลงนั้นคาดว่าเป็นผลจากอุณหภูมิที่ใช้สูงเกินไป ทำให้เซรามิกเกิดการแข็งตัว (coarsening) และมีรูพรุนเกิดขึ้น

ตาราง 4.1 เปอร์เซ็นต์ความหนาแน่น เปอร์เซ็นต์การหดตัวและเปอร์เซ็นต์ของน้ำหนักที่สูญเสียไปของเซรามิก BT ที่เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิต่างๆ

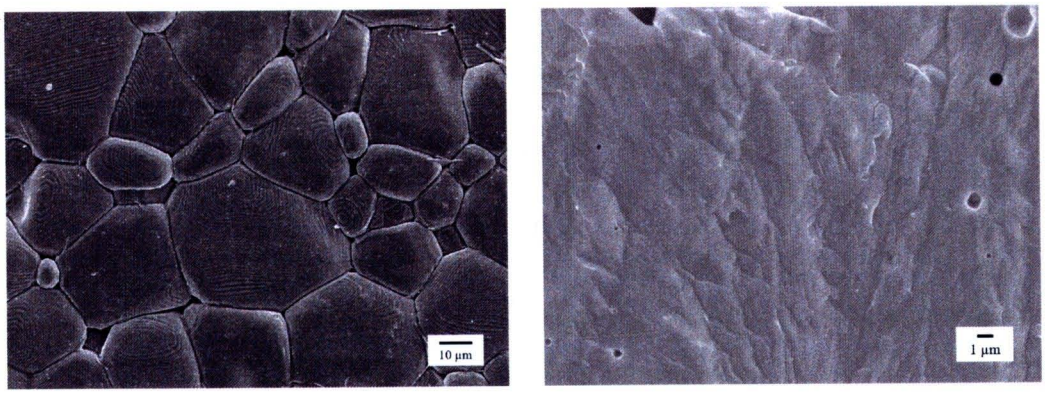
อุณหภูมิซินเตอร์ (°ซ)	ความหนาแน่น (%)	การหดตัว (%)	น้ำหนักที่สูญเสีย (%)
1250	81.49	14.03	0.82
1300	91.47	14.53	0.67
1350	91.69	16.09	36.14
1400	89.54	15.43	42.46
1450	88.83	13.94	54.10
1500	88.72	13.83	56.14

จากนั้นนำเซรามิกที่มีความหนาแน่นสูงที่สุดซึ่งจะถือว่าเป็นเซรามิกที่ดีที่สุด คือเซรามิกที่ใช้อุณหภูมิในการเผาซินเตอร์ 1350 °ซ เป็นเวลา 2 ชั่วโมง โดยมีอัตราการขึ้น/ลงของอุณหภูมิ 5 °ซ ต่อนาทีไปวิเคราะห์เฟสที่เกิดขึ้นด้วยเทคนิค XRD และตรวจสอบโครงสร้างทางจุลภาคด้วยเทคนิค SEM พบว่ารูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ของเซรามิก BT สอดคล้องกับผง BT ซึ่งมีโครงสร้างเป็นแบบเพอรอพสไกด์ ในระบบผลึกเตตระโกนอลตามแฟ้มข้อมูลมาตรฐานหมายเลข 76-0744 ดังรูป 4.3 และไม่พบเฟสแปลกปลอมใดๆ จากการวิเคราะห์ด้วยเทคนิค XRD



รูป 4.3 รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ของเซรามิก BT ที่เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1350 °ซ เมื่อเทียบกับแฟ้มข้อมูล JCPDS หมายเลข 76-0744

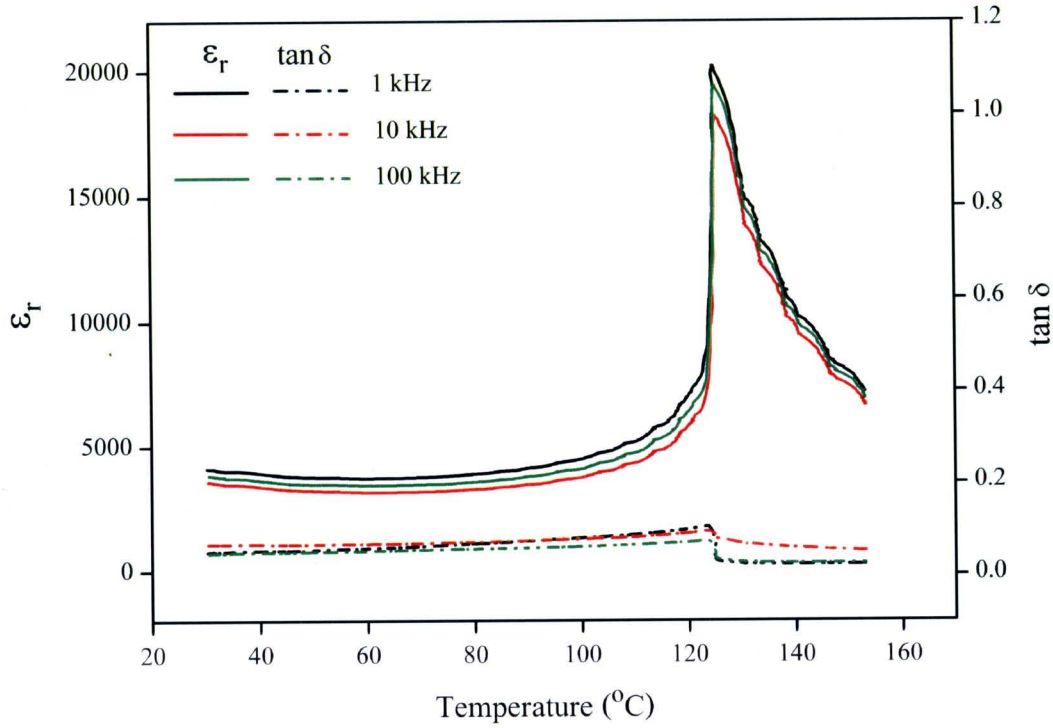
ภาพผิวหน้าและรอยแตกของเซรามิก BT ที่มีความหนาแน่นสูงสุดเมื่อวิเคราะห์ด้วย SEM แสดงในรูป 4.4 จากผลการทดลองพบว่าเกรนมีขนาดไม่สม่ำเสมอและมีเกรนที่เกิดการโตอย่างผิดปกติเกิดขึ้น ซึ่งเป็นผลมาจากกระบวนการเผาซินเตอร์แบบสถานะของแข็งรวมทั้งสารองค์ประกอบภายในโครงสร้างมีการกระจายตัวอย่างไม่สม่ำเสมอ [33-34] โดยมีขนาดเกรนเฉลี่ยเท่ากับ 23 ไมโครเมตร และช่วงขนาดเกรนมีค่าประมาณ 8-45 ไมโครเมตร พบรูพรุนเกิดขึ้นบริเวณรอยต่อของเกรน ซึ่งรูพรุนนี้เองส่งผลให้เซรามิกมีความหนาแน่นต่ำ และเมื่อสังเกตจากรอยแตกพบว่าเป็นรอยแตกแบบผ่าเกรน แสดงถึงแรงยึดเกาะระหว่างเกรนมีค่ามากกว่าแรงยึดเกาะภายในเกรน



(ก) (ข)

รูป 4.4 ภาพ SEM (ก) ผิวหน้า (ข) รอยแตก ของเซรามิก BT ที่อุณหภูมิเผาซินเตอร์ 1350 °ซ เวลา 2 ชั่วโมง อัตราการขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 °ซ

หลังจากนั้นนำเซรามิกที่ได้มาทดสอบสมบัติทางไฟฟ้า ซึ่งกราฟระหว่างค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ε_r) และค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริก (tan δ) กับอุณหภูมิที่ความถี่ต่างๆ ของเซรามิก BT แสดงในรูป 4.5 จากกราฟพบว่าเซรามิก BT มีอุณหภูมิคูรีเท่ากับ 125 °ซ มีค่าคงที่ไดอิเล็กทริกและค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริกที่ความถี่ 1 kHz เท่ากับ 20,174 และ 0.034 ตามลำดับ ส่วนที่อุณหภูมิห้อง (30 °ซ) มีค่าคงที่ไดอิเล็กทริก และค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริกที่ความถี่ 1 kHz เท่ากับ 4,100 และ 0.05 ตามลำดับ จากผลการทดลองพบว่าเซรามิก BT มีค่าคงที่ไดอิเล็กทริกค่อนข้างสูงแต่ก็มีค่าการสูญเสียที่สูงตามไปด้วย เนื่องจากเกรนมีขนาดที่ไม่สม่ำเสมอและมีรูพรุนเป็นจำนวนมากเมื่อสังเกตจากภาพถ่ายโครงสร้างทางจุลภาค



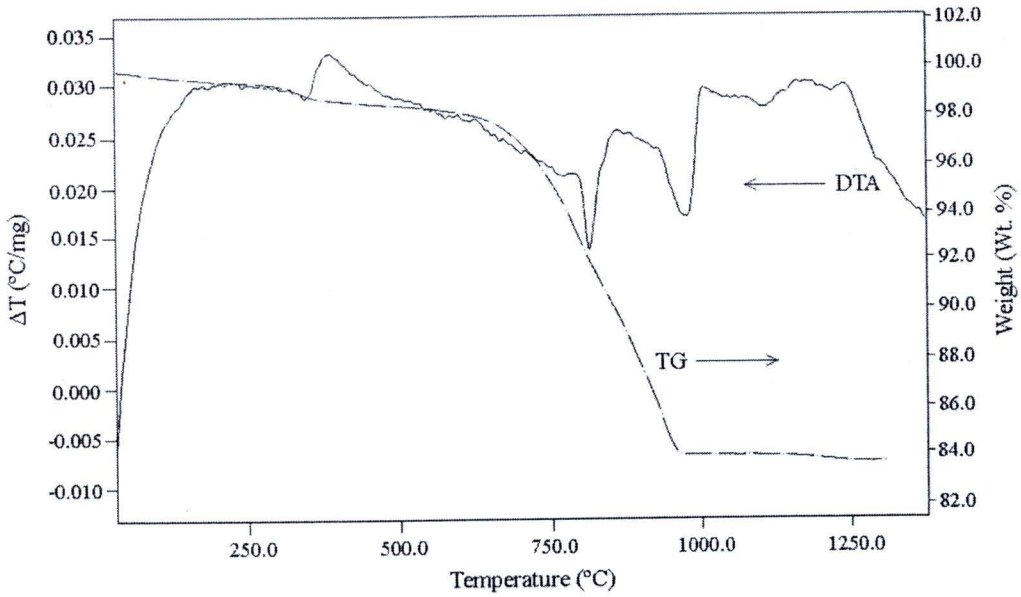
รูป 4.5 กราฟค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ε_r) และค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริก (tan δ) กับอุณหภูมิที่ความถี่ต่างๆ ของเซรามิก BT ที่เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1350 °ซ

4.2 สารแบเรียมแมกนีเซียมไนโอเบต ($(Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$: BMN)

4.2.1 ผลการตรวจสอบผง BMN

การวิเคราะห์น้ำหนักเชิงความร้อน และการวิเคราะห์ความร้อนเชิงอนุพันธ์ (TG-DTA) ของผงผสม BMN ที่อุณหภูมิ 50 °ซ ถึง 1300 °ซ แสดงในรูป 4.6 จากอุณหภูมิห้องถึงอุณหภูมิประมาณ 200 °ซ จากกราฟ DTA เกิดพีคการดูดและการคายพลังงานขึ้นเล็กน้อย แสดงถึงการสลายตัวของพอลิเมอร์ที่มีอยู่ในสารตัวอย่าง ซึ่งเกิดขึ้นในระหว่างกระบวนการบดย่อย [35-36] สอดคล้องกับกราฟ TG ที่มีการสูญเสียน้ำหนักไปประมาณ 0.43% เมื่อเพิ่มอุณหภูมิจนถึง 600 °ซ เกิดพีคการดูดและการคายพลังงานขึ้นอีกครั้งหนึ่ง จุดสูงสุดของพีคมีค่าประมาณ 400 °ซ ซึ่งสอดคล้องกับการเกิดปฏิกิริยาการสลายตัวของ $BaCO_3$ เป็น BaO และ CO_2 [32] และสอดคล้องกับกราฟ TG ที่น้ำหนักเกิดการสูญเสียไปประมาณ 1.00% หลังจากนั้นเมื่อเพิ่มอุณหภูมิถึงประมาณ 1250 °ซ เกิดพีคการดูดและการคายพลังงานเกิดขึ้นเป็นสองช่วง รวมทั้งเกิดการสูญเสียน้ำหนักไปประมาณ 14.24% ซึ่งพีคการคายพลังงานจากกราฟ DTA ที่เป็นช่วงกว้างนี้แสดงถึงการเกิดปฏิกิริยาของแข็ง

ระหว่างสารตั้งต้นขึ้น และจากกราฟ TG หลังจากอุณหภูมิ 1000 °ซ ไม่พบการสูญเสียน้ำหนักเกิดขึ้น แสดงว่าที่อุณหภูมินี้เป็นอุณหภูมิของการเกิดสารประกอบระหว่าง $BaCO_3$ MgO และ Nb_2O_5 จากกราฟการวิเคราะห์เชิงความร้อน (TG-DTA) นี้เอง ทำให้สามารถเลือกอุณหภูมิในการเผาแคลไซน์อยู่ในช่วง 800 °ซ ถึง 1400 °ซ เป็นเวลา 4 ชั่วโมง อัตราการขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 °ซ ต่อนาที [6, 26]

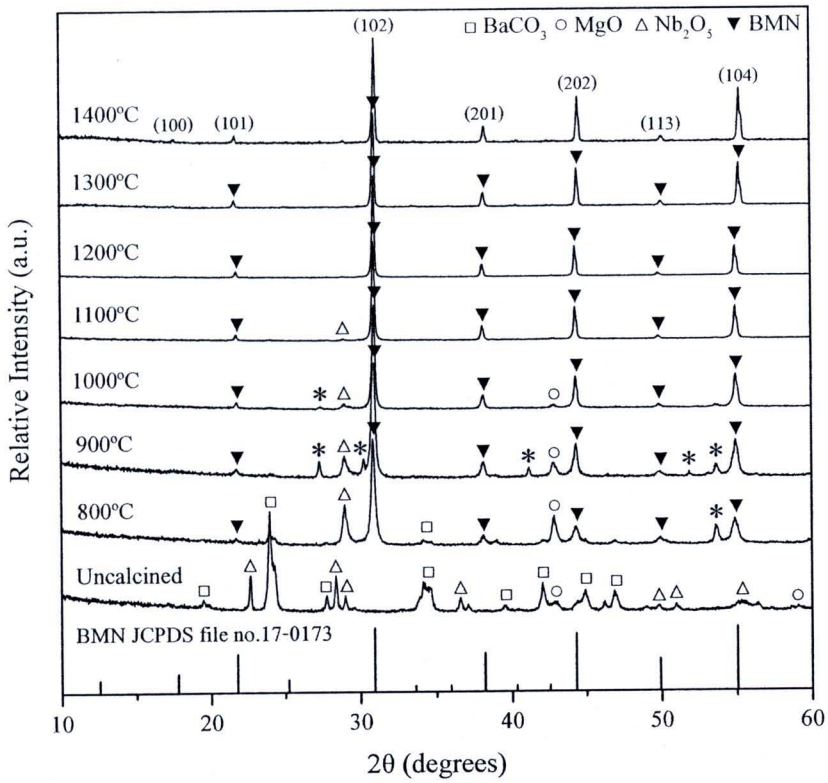


รูป 4.6 กราฟการวิเคราะห์เชิงความร้อน (TG-DTA) ของผงผสม BMN

หลังจากนั้นนำผง BMN ที่ผ่านการแคลไซน์ที่อุณหภูมิต่างๆ มาวิเคราะห์การเกิดเฟสด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ จากผลการวิเคราะห์แสดงในรูป 4.7 สามารถตรวจพบเฟสของ $BaCO_3$ (□) MgO (○)และ Nb_2O_5 (△)ในผงผสม BMN ที่ยังไม่ผ่านการเผาแคลไซน์ ซึ่งสารเหล่านี้สอดคล้องกับแฟ้มมาตรฐานหมายเลข 05-0378 [37] 71-1176 [38] และ 80-2493 [39] ตามลำดับ แสดงให้เห็นว่าไม่เกิดปฏิกิริยาขึ้นในระหว่างกระบวนการบดย่อยสาร หลังจากนั้นเมื่อนำสารไปเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 800 °ซ ถึง 900 °ซ พบเฟส BMN (▼) เกิดขึ้นร่วมกับเฟสของ $BaCO_3$ MgO และ Nb_2O_5 รวมทั้งพบเฟสแปลกปลอมเกิดขึ้นที่ 2θ เท่ากับ 30.23 41.17 51.87 และ 53.67 ซึ่งสอดคล้องกับผลการวิเคราะห์จากกราฟ TG-DTA (รูป 4.6) เมื่ออุณหภูมิแคลไซน์เท่ากับ 1000 °ซ ถึง 1100 °ซ เฟสแปลกปลอมที่เกิดขึ้นเริ่มหายไป เฟสของ BMN เริ่มมีความเด่นชัดมากขึ้น แต่ยังคงพบเฟสของ Nb_2O_5 อยู่เนื่องจากความเฉื่อยต่อการเกิดปฏิกิริยาของ Nb_2O_5 [40] และเมื่อเพิ่มอุณหภูมิแคลไซน์สูงถึง 1200 °ซ จึงไม่พบเฟสแปลกปลอมเกิดขึ้น พบแต่เพียงเฟสของ BMN ซึ่งเฟสที่

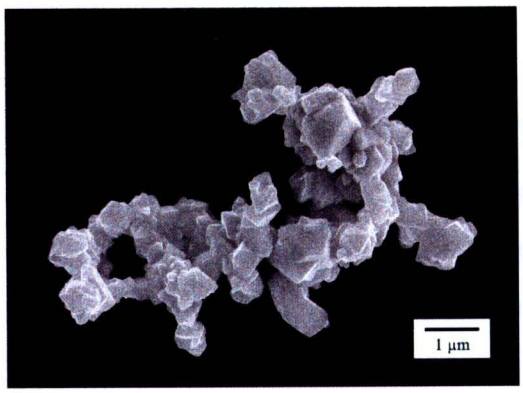
สำนักงานคณะกรรมการวิจัยแห่งชาติ ห้องสมุดงานวิจัย

เกิดขึ้นนี้มีโครงสร้างเป็นแบบเพอรอพสไกต์ ระบบผลึกเฮกซะโกนอล มีค่า a = 5.7704 Å c = 7.0750 Å space group $\bar{P}3m1$ (164) สอดคล้องกับแฟ้มมาตรฐานหมายเลข 17-0173 [41] ซึ่งสอดคล้องกับงานวิจัยของ R. L. Moreira และ A. Veres [42-43] และเมื่อเพิ่มอุณหภูมิในการเผาแคลไซน์จนถึง 1300 °ซ และ 1400 °ซ พบพีคของ (100) เกิดขึ้น ซึ่งเป็นพีคที่แสดงถึงการเริ่มเกิดการเรียงลำดับของ Nb และ Mg ที่ตำแหน่ง B ในหน่วยเซลล์เป็น 1:2 [6, 43] จากกราฟ XRD จึงเลือกอุณหภูมิเผาแคลไซน์ที่ 1200 °ซ ใช้ระยะเวลาในการเผา 4 ชั่วโมง โดยมีอัตราการขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 °ซ ต่อนาที

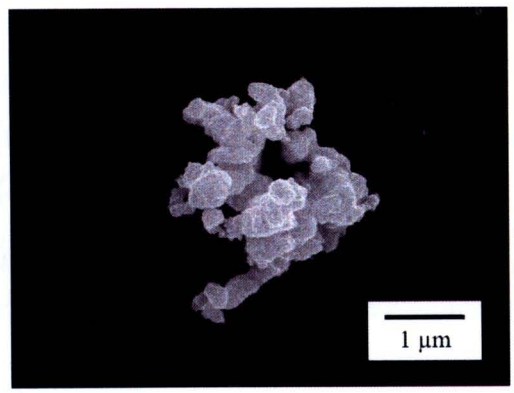


รูป 4.7 กราฟ XRD ของผง BMN ที่เผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิต่างๆ เป็นเวลา 2 ชั่วโมง อัตราการขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 °ซ ต่อนาที (* เฟสแปลกปลอม)

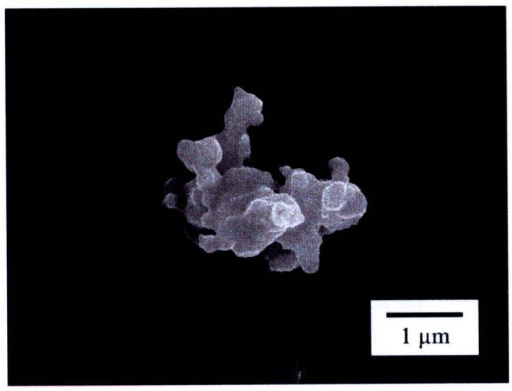
เมื่อนำผง BMN ที่ผ่านการแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 1200 °ซ ถึง 1400 °ซ มาวิเคราะห์ด้วย SEM (รูป 4.8) พบว่าอนุภาคมีรูปร่างไม่แน่นอน และเกาะตัวกันเป็นกลุ่มก้อน จากขนาดอนุภาคเฉลี่ยและช่วงขนาดอนุภาค (ตาราง 4.2) พบว่าเมื่ออุณหภูมิแคลไซน์สูงขึ้นทำให้อนุภาคมีขนาดใหญ่ขึ้น ซึ่งสอดคล้องกับงานวิจัยของ T. Z.-qing [6]



(ก)



(ข)



(ค)

รูป 4.8 ภาพ SEM ของผง BMN ที่เผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ (ก) 1200 °ซ (ข) 1300 °ซ (ค) 1400 °ซ เป็นเวลา 2 ชั่วโมง โดยมีอัตราการขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 °ซ ต่อนาที

ตาราง 4.2 ขนาดอนุภาคเฉลี่ย และช่วงขนาดอนุภาคของผง BMN ที่เผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิต่างๆ

อุณหภูมิแคลไซน์ (°ซ)	ขนาดอนุภาคเฉลี่ย (ไมโครเมตร)	ช่วงขนาดอนุภาค (ไมโครเมตร)
1200	0.71	0.18-1.59
1300	0.72	0.21-4.17
1400	1.51	0.33-3.86

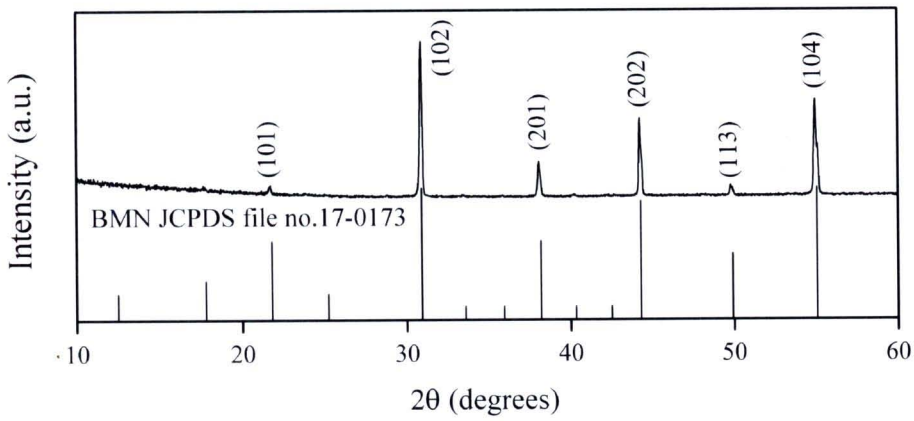
4.2.1 ผลการตรวจสอบเซรามิก BMN

หลังจากนั้นนำผง BMN ที่ได้ไปอัดขึ้นรูปและเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1250 °ซ ถึง 1550 °ซ เป็นเวลา 2 ชั่วโมง อัตราการขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 °ซ ต่อนาที และนำเซรามิกที่ได้มาหาความหนาแน่น เปอร์เซ็นต์การหดตัว และน้ำหนักที่สูญเสียไปได้ค่าตามตาราง 4.3 จากผลการทดลองเปอร์เซ็นต์ความหนาแน่นมีค่าเพิ่มขึ้นเมื่อใช้อุณหภูมิซินเตอร์จาก 1250 °ซ ถึง 1500 °ซ ซึ่งมีค่าสูงสุดเท่ากับ 95% เมื่อเปรียบเทียบกับความหนาแน่นทางทฤษฎี [44] และมีค่าลดลงเมื่ออุณหภูมิซินเตอร์เท่ากับ 1550 °ซ คาดว่าเนื่องจาก Nb_2O_5 ที่อยู่ในโครงสร้างเกิดการหลอมเหลวขึ้น ซึ่งจะสอดคล้องกับเปอร์เซ็นต์การหดตัวที่มีค่าสูงขึ้นจนถึงอุณหภูมิ 1500 °ซ และลดลงเมื่ออุณหภูมิซินเตอร์เท่ากับ 1550 °ซ ซึ่งตรงกับงานวิจัยก่อนหน้านี้ [6] แต่เปอร์เซ็นต์ของน้ำหนักที่สูญเสียไปจะมีค่าเพิ่มขึ้นเรื่อยๆ จนถึงอุณหภูมิ 1450 °ซ และลดลงเมื่ออุณหภูมิซินเตอร์สูงขึ้น

ตาราง 4.3 เปอร์เซ็นต์ความหนาแน่น เปอร์เซ็นต์การหดตัวและเปอร์เซ็นต์ของน้ำหนักที่สูญเสียไปของเซรามิก BMN ที่เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิต่างๆ

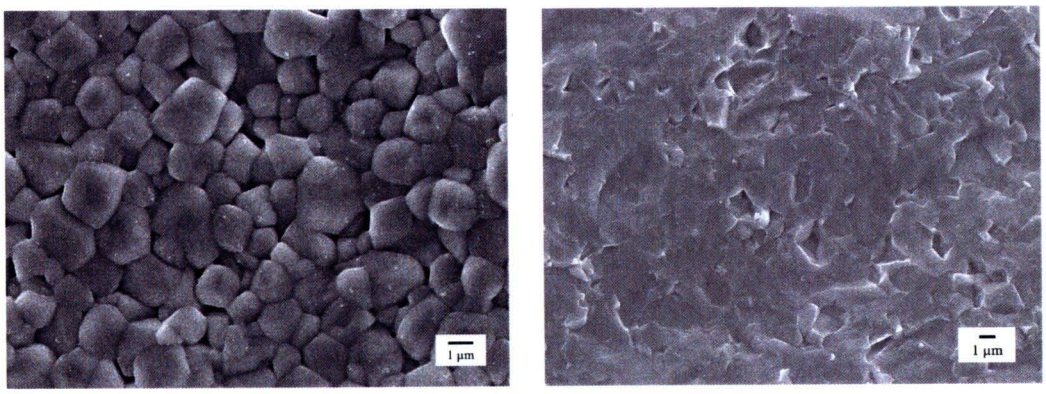
อุณหภูมิเผาซินเตอร์ (°ซ)	ความหนาแน่น (%)	การหดตัว (%)	น้ำหนักที่สูญเสีย (%)
1250	53.75	0.63	0.67
1300	61.48	5.03	0.90
1350	87.46	16.87	35.12
1400	91.42	17.83	35.82
1450	95.06	18.86	49.78
1500	95.53	18.93	34.56
1550	90.88	16.39	48.48

หลังจากนั้นนำเซรามิก BMN ที่มีความหนาแน่นสูงที่สุดคือเซรามิกที่เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1500 °ซ เวลา 2 ชั่วโมง โดยมีอัตราการขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 °ซ ต่อนาที มาตรวจสอบเฟสที่เกิดขึ้นด้วยเทคนิค XRD และตรวจสอบโครงสร้างทางจุลภาคด้วย SEM (รูป 4.9) พบว่าเฟสที่เกิดขึ้นสอดคล้องกับผลของผง BMN ไม่พบเฟสแปลกปลอมเกิดขึ้น ซึ่งตรงตามแฟ้มมาตรฐานหมายเลข 17-0173 [41] ที่มีโครงสร้างผลึกเป็นแบบเฮกซะโกนอล



รูป 4.9 XRD ของเซรามิก BMN ที่เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1500 °ซ เป็นเวลา 2 ชั่วโมง โดยมีอัตราการขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 °ซ ต่อนาที

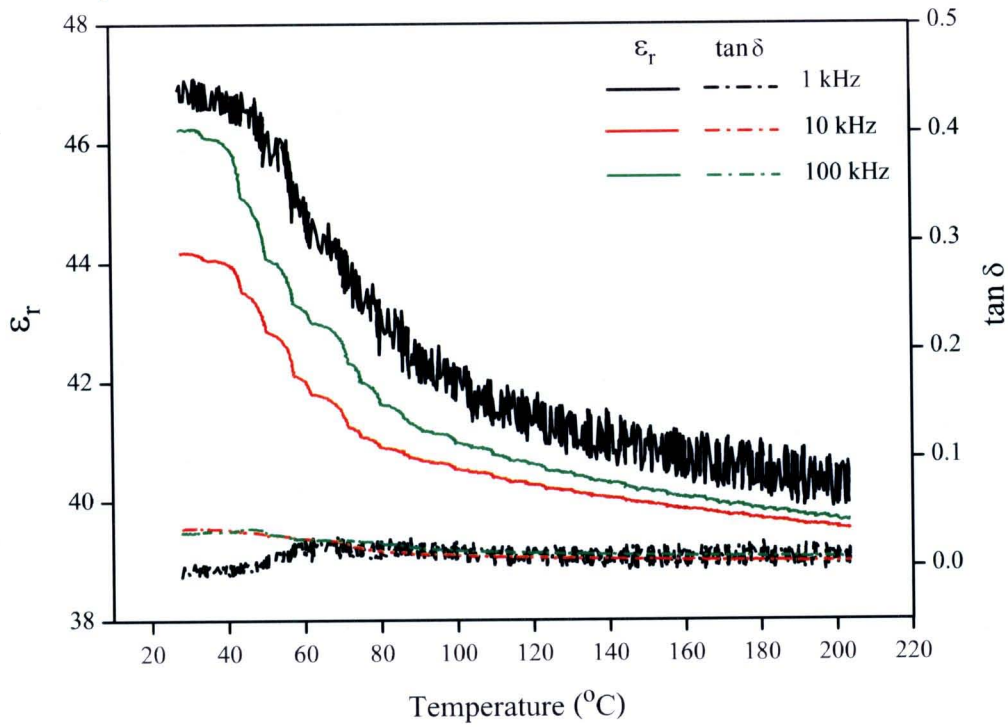
ภาพ SEM ผิวหน้าและรอยแตกของเซรามิก BMN ที่เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1500 °ซ แสดงในรูป 4.10 (ก) และ (ข) ตามลำดับ จากภาพผิวหน้าของเซรามิกพบว่าเกรนมีรูปร่างที่ไม่แน่นอน ขนาดเกรนค่อนข้างสม่ำเสมอ มีขนาดเกรนเฉลี่ยประมาณ 1.6 ไมโครเมตร และมีช่วงขนาดเกรนประมาณ 0.6 ถึง 3.5 ไมโครเมตร พบรูพรุนกระจายตัวอยู่บริเวณรอยต่อระหว่างเกรน และเมื่อพิจารณารอยแตกพบว่าเป็นการแตกแบบผ่าเกรน ซึ่งแสดงว่ามีการยึดเกาะกันอย่างแน่นหนาระหว่างเกรน



(ก) (ข)

รูป 4.10 ภาพ SEM ของ (ก) ผิวหน้า (ข) รอยแตกของเซรามิก BMN ที่เผาที่อุณหภูมิ 1500 °ซ เวลา 2 ชั่วโมง โดยมีอัตราการขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 °ซ นาที

หลังจากนั้นนำเซรามิกที่ได้มาตรวจสอบสมบัติทางไฟฟ้า ดังรูป 4.11 แสดงค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ε_r) และค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริก (tan δ) เมื่อเทียบกับอุณหภูมิที่ความถี่ต่างๆ ของเซรามิก BMN พบว่าที่ความถี่ 1 kHz มีค่าคงที่ทางไฟฟ้าสูงที่อุณหภูมิห้องและมีค่าลดลงเมื่ออุณหภูมิสูงขึ้น ซึ่งมีค่าคงที่ไดอิเล็กทริกเท่ากับ 47 และค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริกเท่ากับ 0.002 ที่อุณหภูมิห้อง (30 °ซ) ส่วนที่ความถี่ 10 และ 100 kHz กราฟมีแนวโน้มคล้ายกับที่ความถี่ 1 kHz แต่มีค่าคงที่ไดอิเล็กทริกที่ต่ำกว่าคือ 44 และ 46 ตามลำดับ



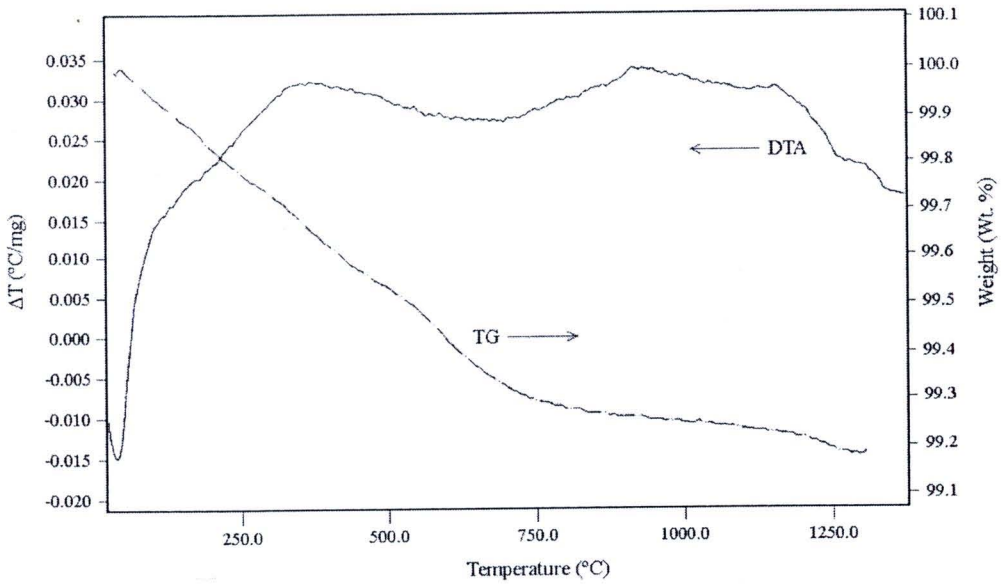
รูป 4.11 กราฟค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ε_r) และค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริก (tan δ) กับอุณหภูมิที่ความถี่ต่างๆ ของเซรามิก BT ที่เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1350 °ซ

4.3 แบเรียมไทเทเนต-แบเรียมแมกนีเซียมไนโอเบต ($BaTiO_3$-$Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$: BT-BMN)

4.3.1 ผลการวิเคราะห์เชิงความร้อนของผงในระบบ BT-BMN

เมื่อนำผงผสมที่มีอัตราส่วน 0.96BT-0.04BMN ไปวิเคราะห์เชิงความร้อน (TG-DTA) ที่อุณหภูมิ 50 °ซ ถึง 1300 °ซ ได้ผลดังรูป 4.12 ที่อุณหภูมิห้องถึงอุณหภูมิประมาณ 120 °ซ จากกราฟ DTA เกิดพีคการดูดและการคายพลังงานขึ้น ซึ่งสอดคล้องกับพีค TG ที่เกิดการสูญเสียน้ำหนักไปประมาณ 0.24% แสดงถึงการสลายตัวของพอลิเมอร์ที่เกิดขึ้นระหว่างกระบวนการบดย่อย [35-36] เมื่อเพิ่มอุณหภูมิขึ้นถึงประมาณ 900 °ซ แสดงถึงการเกิดปฏิกิริยาของแข็งระหว่าง BT และ BMN

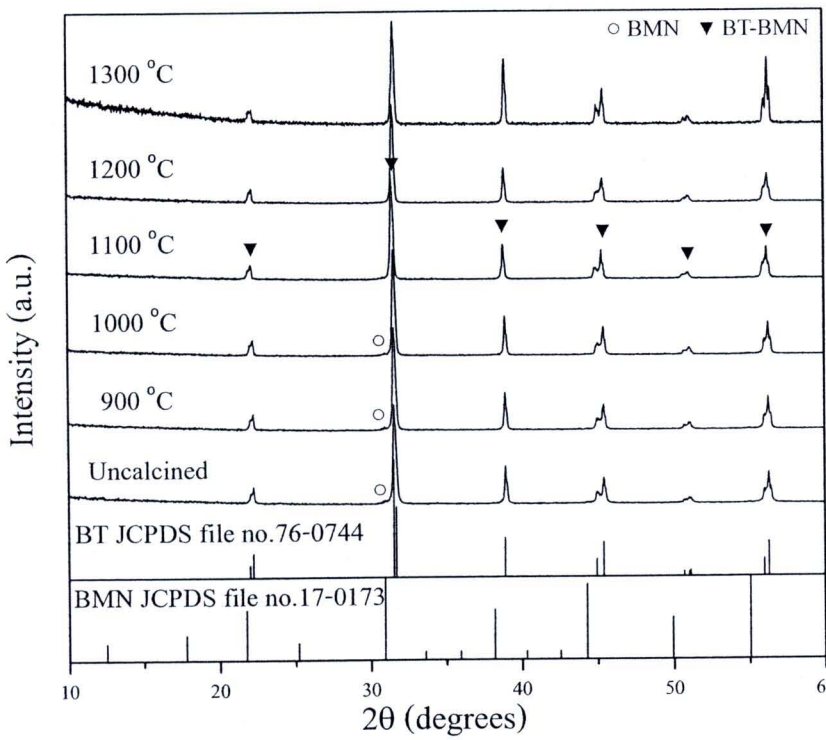
ขึ้น สังเกตได้จากพีคการคายพลังงานของกราฟ DTA ที่เป็นช่วงกว้างและพีค TG ที่เกิดการสูญเสียน้ำหนักไปประมาณ 0.58% และหลังจากอุณหภูมินี้กราฟ TG ไม่เกิดการสูญเสียน้ำหนักขึ้นแสดงว่าเป็นอุณหภูมิที่น้อยที่สุดในการเกิดสารประกอบระหว่าง BT และ BMN ซึ่งสอดคล้องกับผลการทดลองที่ได้จาก XRD (รูป 4.13) จากผลการวิเคราะห์เชิงความร้อนจึงนำไปกำหนดอุณหภูมิการเผาแคลไซน์ของผงผสมในระบบ (1-x)BT-xBMN ให้อยู่ในช่วง 900 °ซ ถึง 1300 °ซ โดยใช้เวลาในการเผา 4 ชั่วโมง และมีอัตราการขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 °ซ ต่อนาที



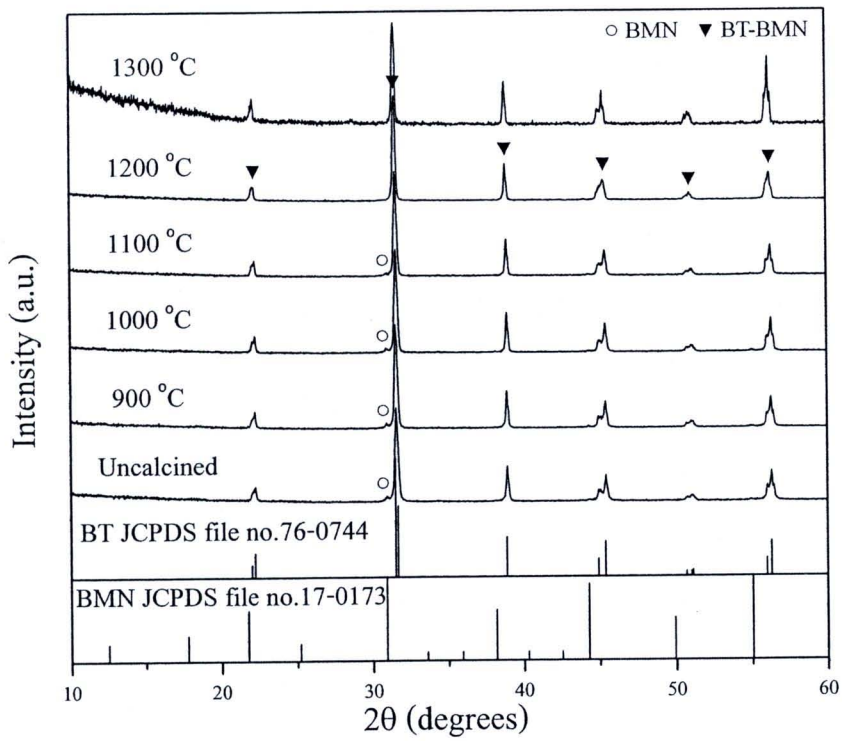
รูป 4.12 กราฟการวิเคราะห์เชิงความร้อน (TG-DTA) ของผงผสมสูตร 0.96BT-0.04BMN

4.3.2 ผลการตรวจสอบเฟสของผงในระบบ BT-BMN

เมื่อนำผงผสมในระบบ (1-x)BT-xBMN ไปเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิต่างๆ และนำมาวิเคราะห์เฟสที่เกิดขึ้นด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ (XRD) ดังแสดงในรูป 4.13 พบว่าผงสูตร 0.99BT-0.01BMN (รูป 4.13 (ก)) พบเฟสของ BT เกิดร่วมกับเฟสของ BMN (○)ในขณะที่ยังไม่ทำการเผาแคลไซน์ แสดงว่าไม่มีการเกิดปฏิกิริยาขึ้นในระหว่างกระบวนการบดย่อย เมื่อเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 900 °ซ ยังคงพบเฟสของ BMN เกิดร่วมกับเฟสของ BT อยู่ และหลังจากที่เพิ่มอุณหภูมิแคลไซน์ไปจนถึง 1100 °ซ จึงไม่พบเฟสของ BMN พบแต่เพียงเฟสของ BT ที่ไม่มีเฟสแปลกปลอมเกิดขึ้นเท่านั้น แสดงถึงการละลายของ BMN ใน BT เมื่อใช้อุณหภูมิการเผาแคลไซน์ที่สูงขึ้น ซึ่งกราฟ XRD ของผงในอัตราส่วนอื่นๆ ก็มีลักษณะที่คล้ายคลึงกัน

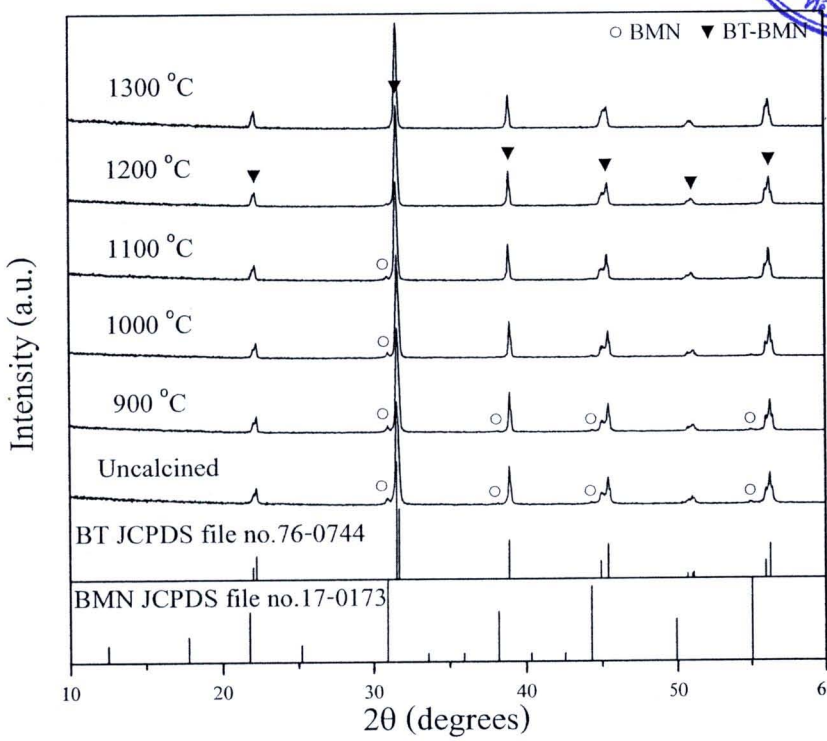

○ BMN ▼ BT-BMN
1300 °C
1200 °C
1100 °C
1000 °C
900 °C
Uncalcined
BT JCPDS file no.76-0744
BMN JCPDS file no.17-0173
Intensity (a.u.)
10
20
30
40
50
60
2θ (degrees)

(ก) $x = 0.01$

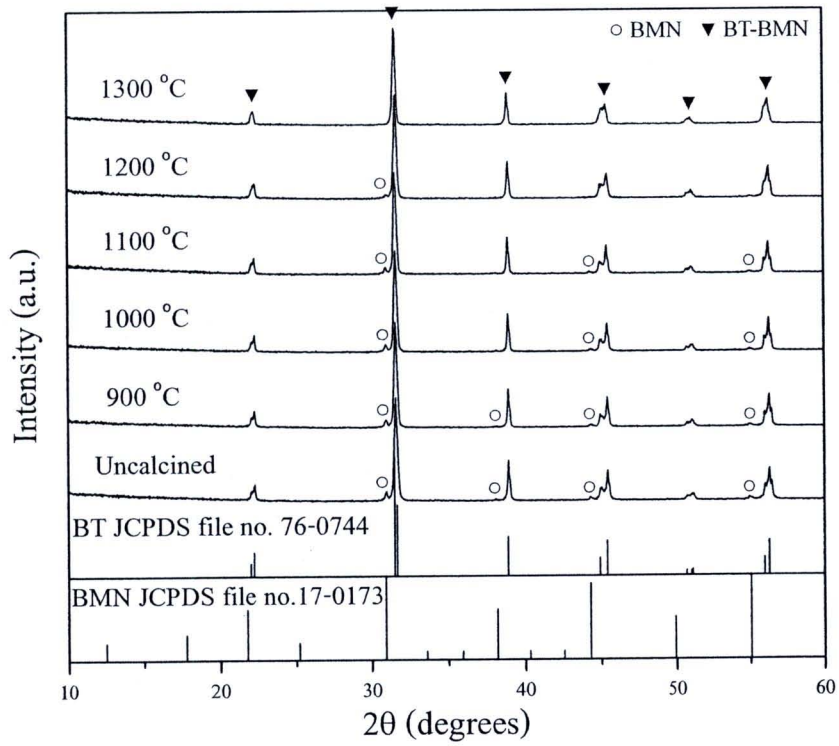

○ BMN ▼ BT-BMN
1300 °C
1200 °C
1100 °C
1000 °C
900 °C
Uncalcined
BT JCPDS file no.76-0744
BMN JCPDS file no.17-0173
Intensity (a.u.)
10
20
30
40
50
60
2θ (degrees)

(ข) $x = 0.02$

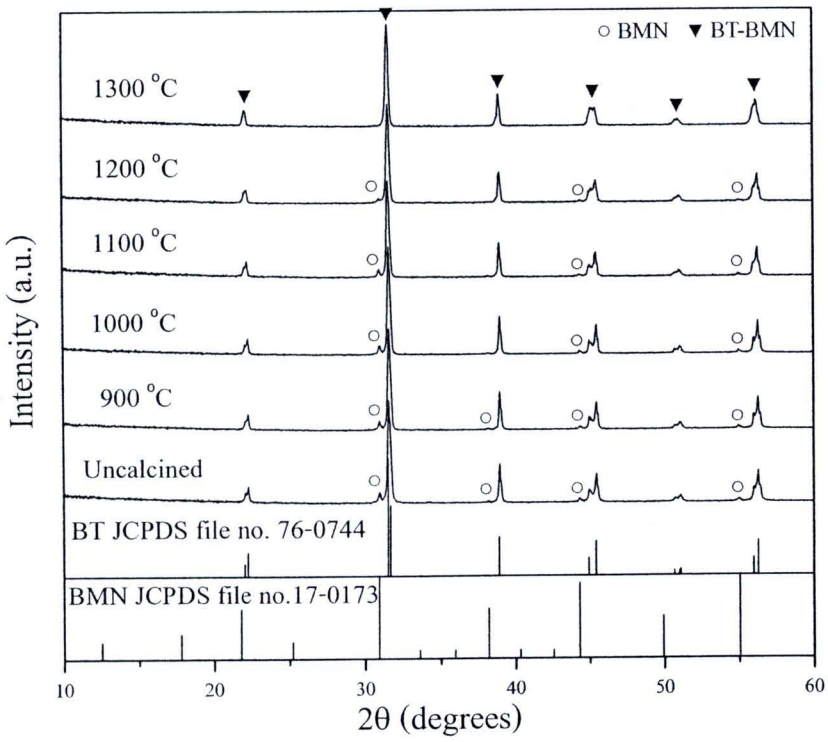
สำนักงานคณะกรรมการวิจัยแห่งชาติ ห้องสมุดงานวิจัย



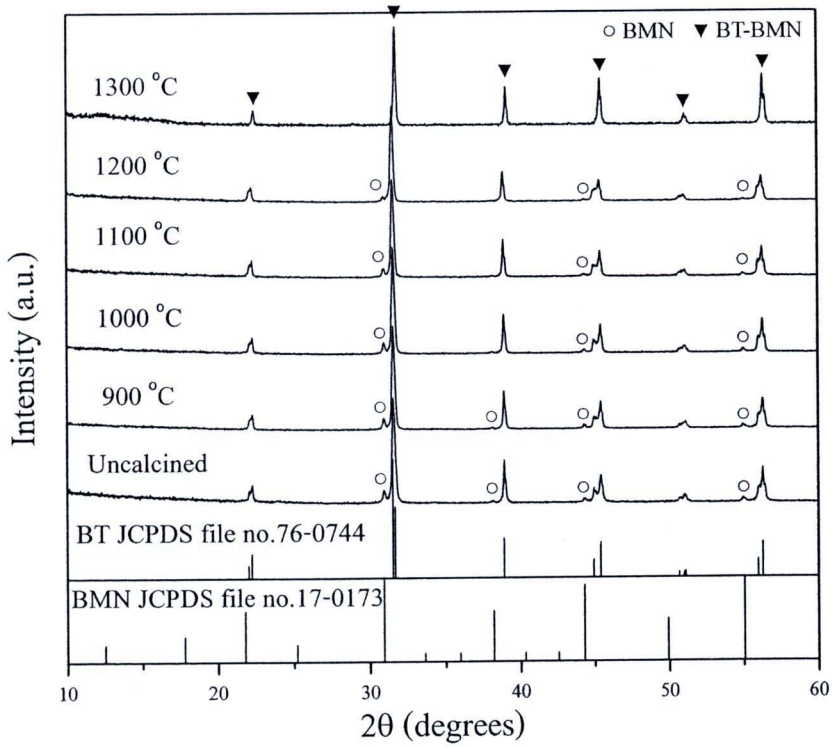
(ค) $x = 0.03$



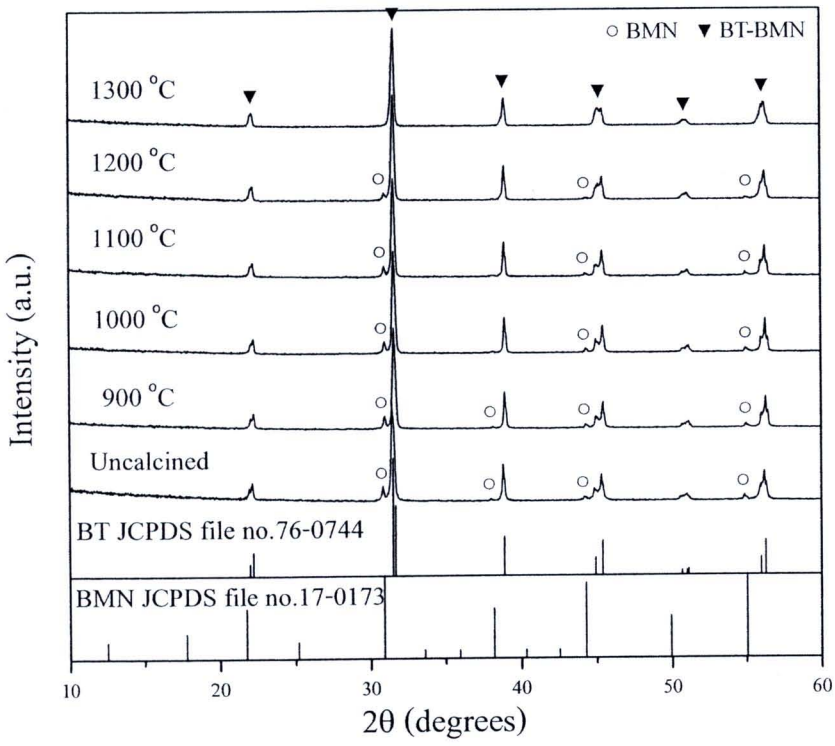
(ง) $x = 0.04$


○ BMN ▼ BT-BMN
1300 °C
1200 °C
1100 °C
1000 °C
900 °C
Uncalcined
BT JCPDS file no. 76-0744
BMN JCPDS file no.17-0173
Intensity (a.u.)
10
20
30
40
50
60
2θ (degrees)

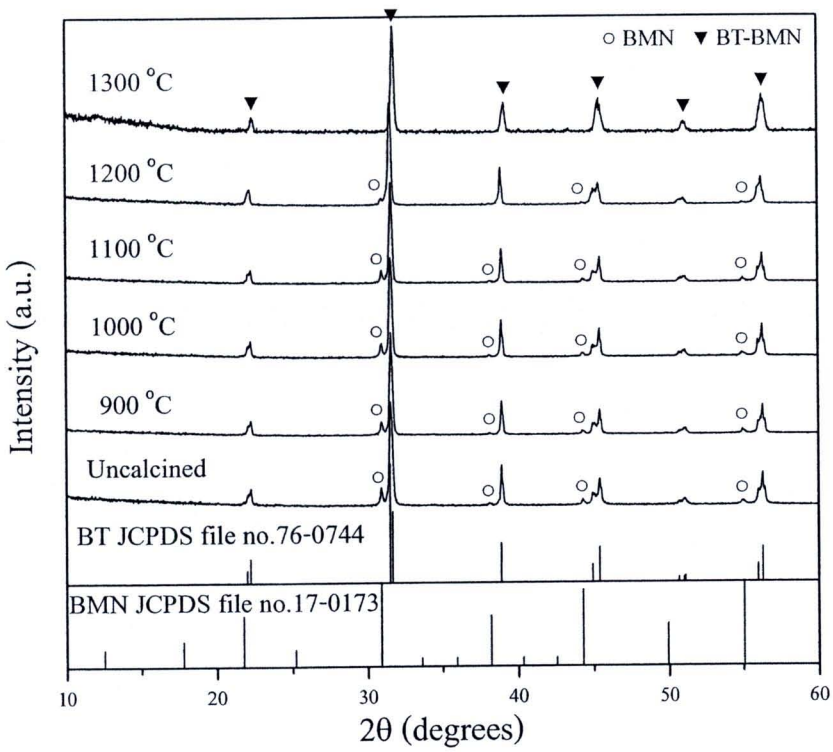
(จ) $x = 0.05$


○ BMN ▼ BT-BMN
1300 °C
1200 °C
1100 °C
1000 °C
900 °C
Uncalcined
BT JCPDS file no.76-0744
BMN JCPDS file no.17-0173
Intensity (a.u.)
10
20
30
40
50
60
2θ (degrees)

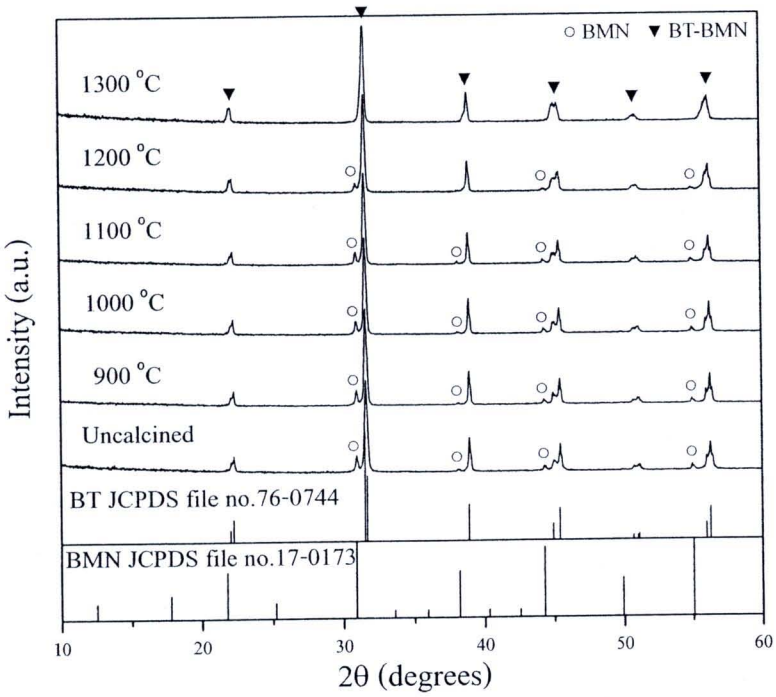
(ฉ) $x = 0.06$


○ BMN ▼ BT-BMN
1300 °C
1200 °C
1100 °C
1000 °C
900 °C
Uncalcined
BT JCPDS file no.76-0744
BMN JCPDS file no.17-0173
Intensity (a.u.)
10
20
30
40
50
60
2θ (degrees)

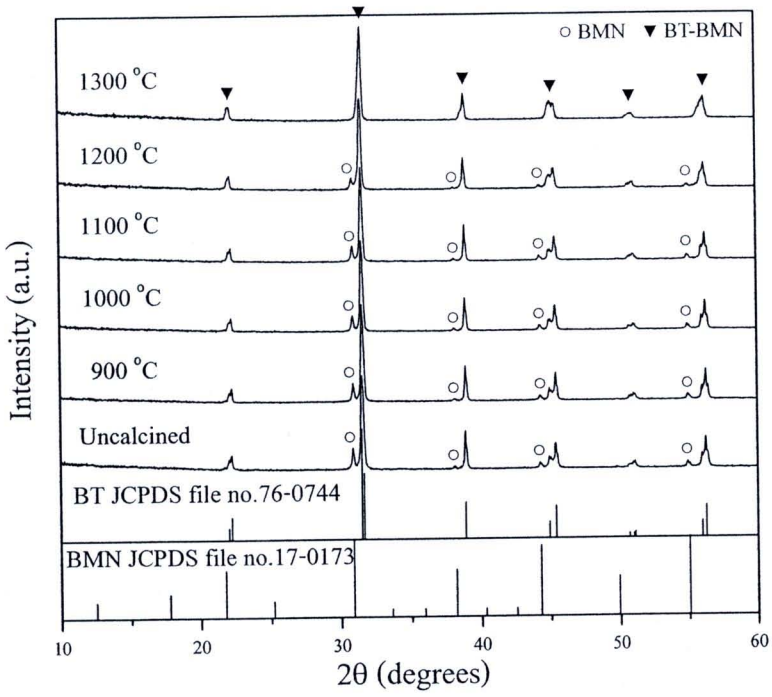
(ข) $x = 0.07$


○ BMN ▼ BT-BMN
1300 °C
1200 °C
1100 °C
1000 °C
900 °C
Uncalcined
BT JCPDS file no.76-0744
BMN JCPDS file no.17-0173
Intensity (a.u.)
10
20
30
40
50
60
2θ (degrees)

(ค) $x = 0.08$



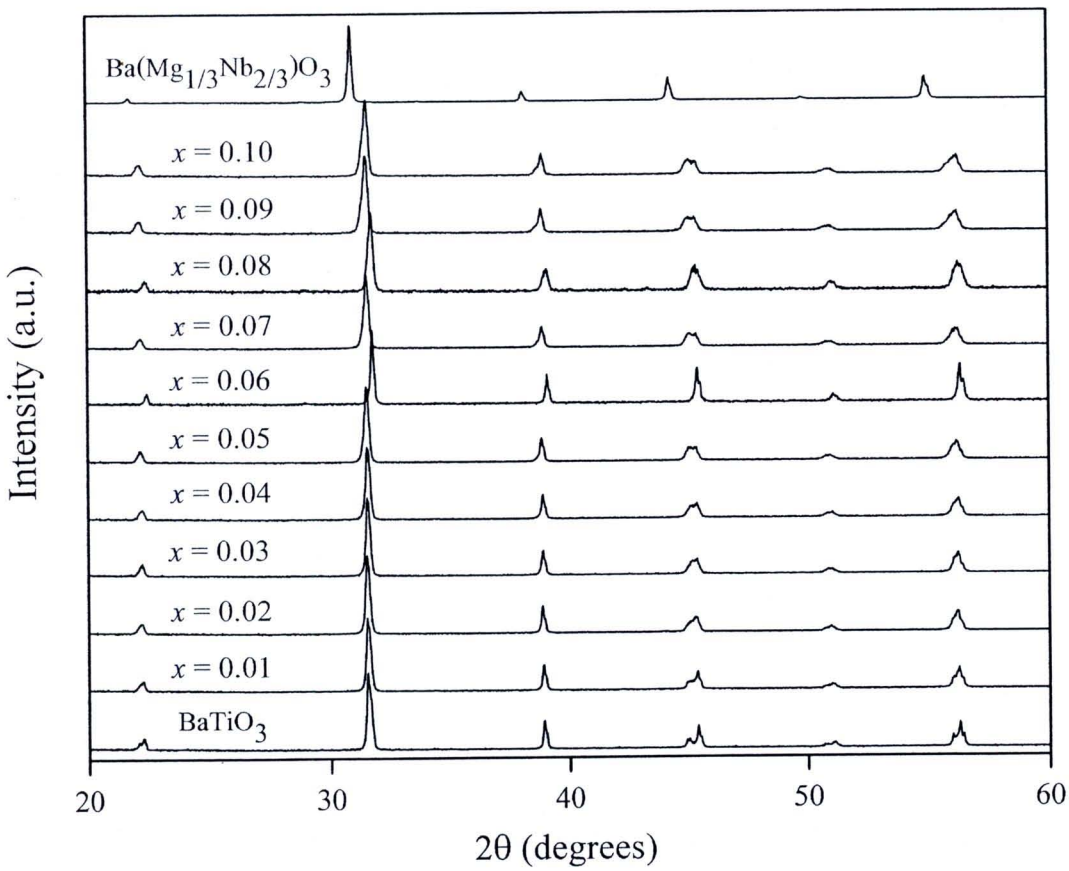
(ฌ) $x = 0.09$



(ญ) $x = 0.10$

รูป 4.13 รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ของผงในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่อัตราส่วนและอุณหภูมิต่างๆ

จากการทดลองพบว่าเงื่อนไขในการเผาแคลไซน์ที่เหมาะสมสำหรับการเตรียมผงในระบบ (1-x)BT-xBMN เมื่อ x = 0.01 คือที่อุณหภูมิ 1100 °ซ x = 0.02-0.03 คือที่อุณหภูมิ 1200 °ซ และเมื่อ x = 0.04-0.10 คือที่อุณหภูมิ 1300 °ซ โดยใช้เวลาในการเผา 4 ชั่วโมง และมีอัตราการขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 °ซ ต่อนาที เมื่อนำผล XRD ของแต่ละองค์ประกอบดังกล่าวมาเปรียบเทียบกันจะสามารถแสดงเป็นกราฟได้ดังรูป 4.14



รูป 4.14 รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ของผงในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่มีสัดส่วนองค์ประกอบต่างๆ

เมื่อพิจารณาผล XRD ของผงในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่มีสัดส่วนองค์ประกอบต่างๆ พบว่าผงที่เป็น BT เพียงอย่างเดียวนั้นจะมีรูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์สอดคล้องกับข้อมูลของสาร BT สูตร $BaTiO_3$ ในแฟ้มข้อมูลมาตรฐานหมายเลข 76-0744 [31] ซึ่งมีโครงสร้างเป็นแบบเตตระโกนอล ส่วนผงที่เป็น BMN เพียงอย่างเดียวนั้นจะมีรูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์สอดคล้องกับข้อมูลของสาร BMN สูตร $Ba(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ ในแฟ้มข้อมูลมาตรฐานหมายเลข 17-

0173 [41] ซึ่งมีโครงสร้างเป็นแบบเฮกซะโกนอล สำหรับผงในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่มีสัดส่วนองค์ประกอบต่างๆ นั้นเมื่อพิจารณาแล้วไม่พบเฟสแปลกปลอมเกิดขึ้น และมีโครงสร้างเป็นแบบเตตระโกนอล เมื่อคำนวนค่า Cell parameter และค่าเตตระโกนอลลิตี้ของผงในระบบ (1-x)BT-xBMN จากกราฟ XRD แล้วได้ค่าดังตาราง 4.4 จากตารางพบว่าค่าเตตระโกนอลลิตี้ของสารในระบบ (1-x)BT-xBMN มีค่าลดลงเมื่อเปรียบเทียบกับ BT เป็นไปตามทฤษฎีของ Vegard's law ซึ่งเป็นการยืนยันถึงการเกิดเฟสที่เป็นสารละลายของแข็ง (solid solution) อย่างสมบูรณ์ของสารในระบบ BT-BMN ที่มีโครงสร้างเป็นแบบเพอรอพสไกต์ สอดคล้องกับผลการวิจัยในระบบอื่นๆ ที่มีรายงานอยู่เช่นกัน [19-20]

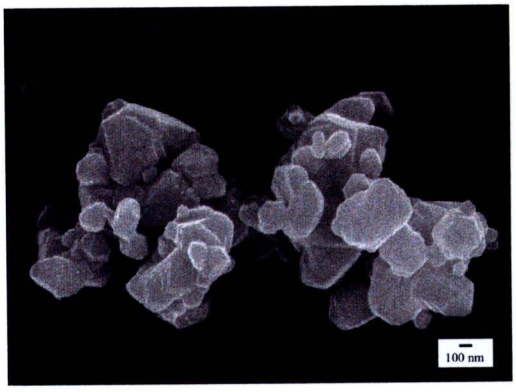
ตาราง 4.4 Cell parameter และค่าเตตระโกนอลลิตี้ของผงในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่อัตราส่วนต่างๆ

ปริมาณ BMN	อุณหภูมิแคลไซน์	Cell parameter		Tetragonality
(x)	(°ซ)	a	c	(c/a)
0.00	1300	3.993	4.030	1.009
0.01	1100	3.993	4.018	1.006
0.02	1200	4.000	4.020	1.005
0.03	1200	3.993	4.010	1.004
0.04	1300	3.993	4.015	1.006
0.05	1300	3.993	4.020	1.007
0.06	1300	3.978	3.988	1.003
0.07	1300	3.991	4.018	1.007
0.08	1300	3.985	3.993	1.002
0.09	1300	3.996	4.018	1.006
0.10	1300	3.993	4.016	1.006

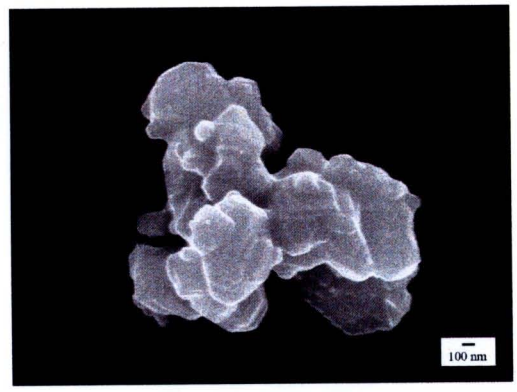
สำนักงานคณะกรรมการวิจัยแห่งชาติ ห้องสมุดงานวิจัย

4.3.3 ผลการตรวจสอบโครงสร้างทางจุลภาคของผงในระบบ BT-BMN

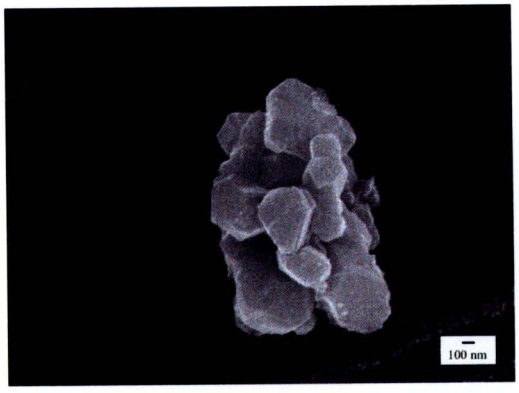
เมื่อนำผงในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่ผ่านการแคลไซน์ที่อุณหภูมิที่ดีที่สุดมาตรวจสอบลักษณะสัณฐานดังแสดงในรูป 4.15 พบว่าผงที่ได้มีลักษณะรูปร่างที่ไม่แน่นอน มีการเกาะตัวกันเป็นกลุ่มก้อน เมื่อนำมาหาค่าขนาดอนุภาคเฉลี่ยและช่วงขนาดอนุภาคแล้วได้ผลตามตาราง 4.4 จากตารางพบว่าเมื่อ x ของผงในระบบ (1-x)BT-xBMN มีค่ามากขึ้นขนาดอนุภาคเฉลี่ยยังคงมีค่าที่ใกล้เคียงกัน



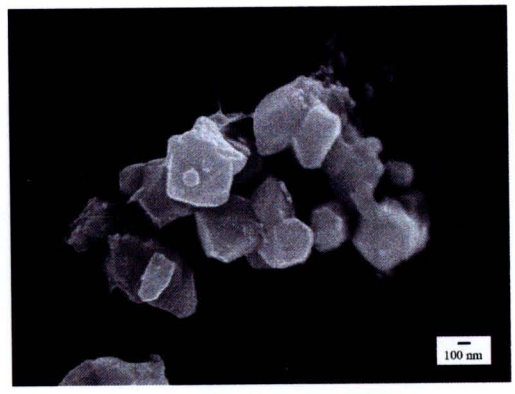
(ก) x = 0.01



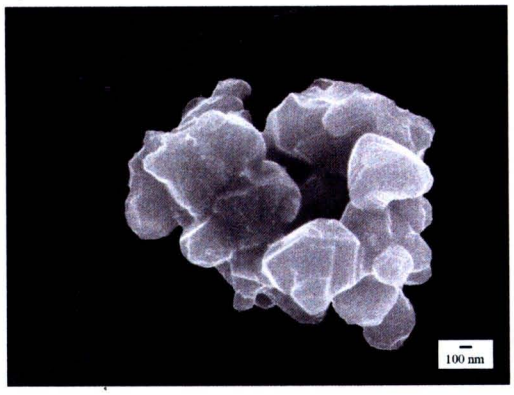
(ข) x = 0.02



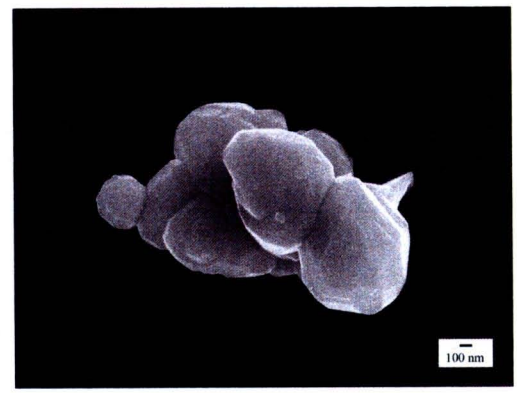
(ค) x = 0.03



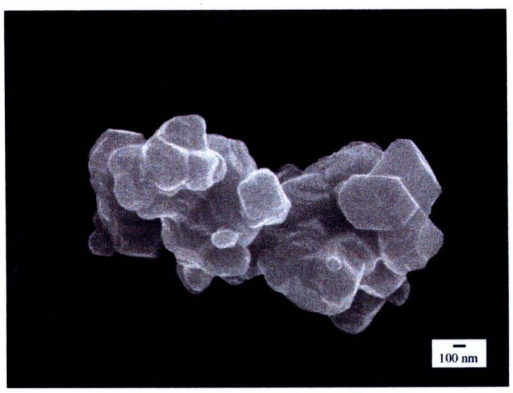
(ง) x = 0.04



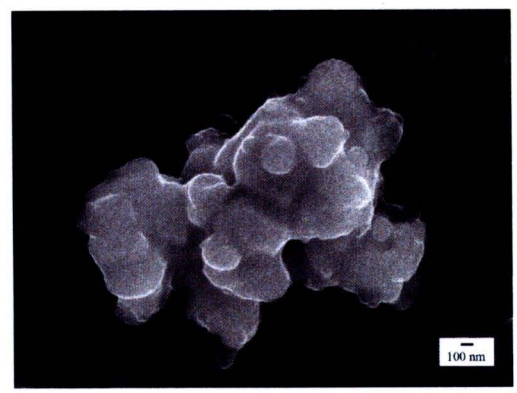
(จ) $x = 0.05$



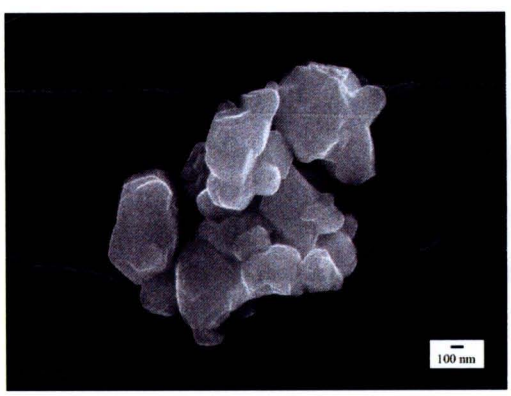
(ฉ) $x = 0.06$



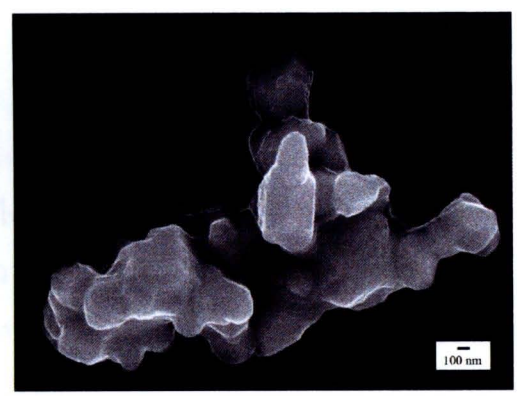
(ช) $x = 0.07$



(ซ) $x = 0.80$



(ฌ) $x = 0.09$



(ญ) $x = 0.10$

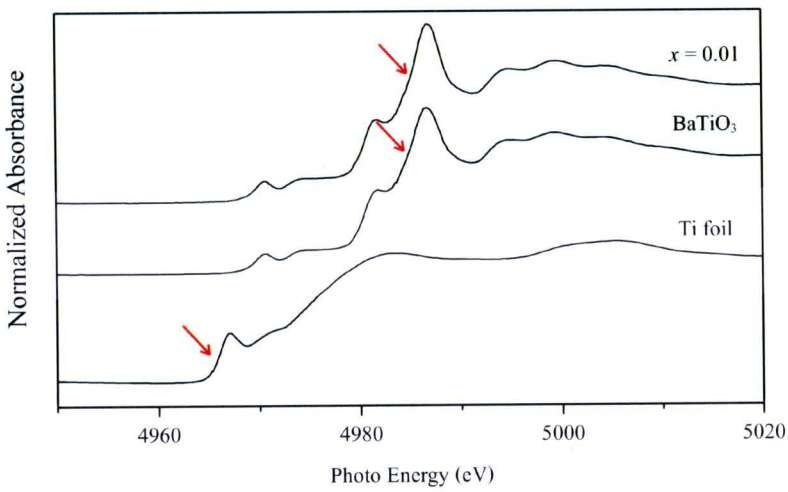
รูป 4.15 ภาพ SEM ของผงในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่อัตราส่วนต่างๆ

ตาราง 4.5 ขนาดอนุภาคเฉลี่ยและช่วงขนาดอนุภาคของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่อุณหภูมิแคลไซน์ที่ดีที่สุด

ปริมาณ BMN (x)	อุณหภูมิแคลไซน์ (°ซ)	ขนาดอนุภาคเฉลี่ย (ไมโครเมตร)	ช่วงขนาดอนุภาค (ไมโครเมตร)
0.00	1300	0.48	0.14-1.51
0.01	1200	0.31	0.09-0.77
0.02	1200	0.52	0.17-1.10
0.03	1300	0.50	0.16-1.28
0.04	1300	0.44	0.13-1.02
0.05	1300	0.47	0.19-0.91
0.06	1300	1.06	0.24-4.76
0.07	1300	0.46	0.11-0.94
0.08	1300	0.94	0.20-5.86
0.09	1300	0.53	0.18-1.07
0.10	1300	0.55	0.35-0.83

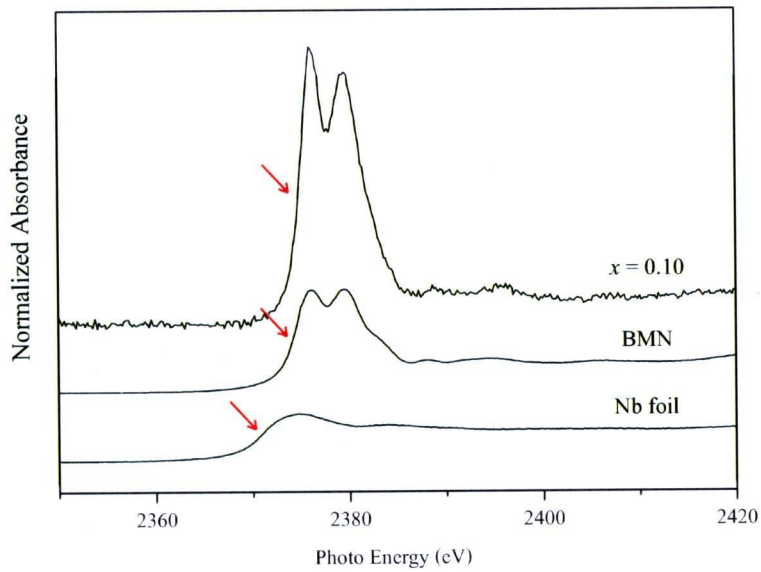
4.3.4 ผลการตรวจสอบโครงสร้างของผงในระบบ BT-BMN ด้วยเทคนิค XAS

เมื่อนำผงในระบบ (1-x)BT-xBMN มาวิเคราะห์ด้วยเทคนิคการดูดกลืนของรังสีเอ็กซ์ จากกราฟ XANES ของ Ti K-edge ของสาร Ti foil BT และ 0.99BT-0.01BMN ดังแสดงในรูป 4.16 เป็นกราฟระหว่างค่าพลังงานแสงกับความเข้ม เนื่องจากตำแหน่งของพีคในโครงสร้าง XANES สามารถบอกถึงเลขออกซิเดชั่นของสารตัวอย่างได้ จากกราฟของ Ti foil พบว่ามีเลขออกซิเดชั่นเท่ากับศูนย์ เนื่องจากในตำแหน่งที่จุดกึ่งกลางความสูงของพีค pre-edge มีค่าพลังงานการดูดกลืนประมาณ 4966 อิเล็กตรอนโวลต์ ซึ่งเป็นค่าพลังงานที่เท่ากับพลังงานยึดเหนี่ยวของอิเล็กตรอนในอะตอม แต่เมื่ออะตอมของธาตุชนิดเดียวกันอยู่ในสภาพแวดล้อมที่ต่างกัน หรืออยู่ในสถานะออกซิเดชั่นที่ต่างกันค่าพลังงานยึดเหนี่ยวก็จะมีค่าแตกต่างกัน [30, 47] ดังเช่นในกราฟของ BT และ 0.99BT-0.01BMN พบว่ามีค่าพลังงานการดูดกลืนที่สูงขึ้นบ่งบอกถึงการมีเลขออกซิเดชั่นที่เป็นค่าบวกและมีค่ามากขึ้นของ Ti ซึ่งในสารสูตร 0.99BT-0.01BMN นั้นพบว่ามีค่าพลังงานเท่ากับใน BT จึงสามารถบอกได้ว่าเมื่อเจือ BMN ลงไปแล้วเลขออกซิเดชั่นของ Ti ยังคงมีค่าเท่าเดิมคือ +4



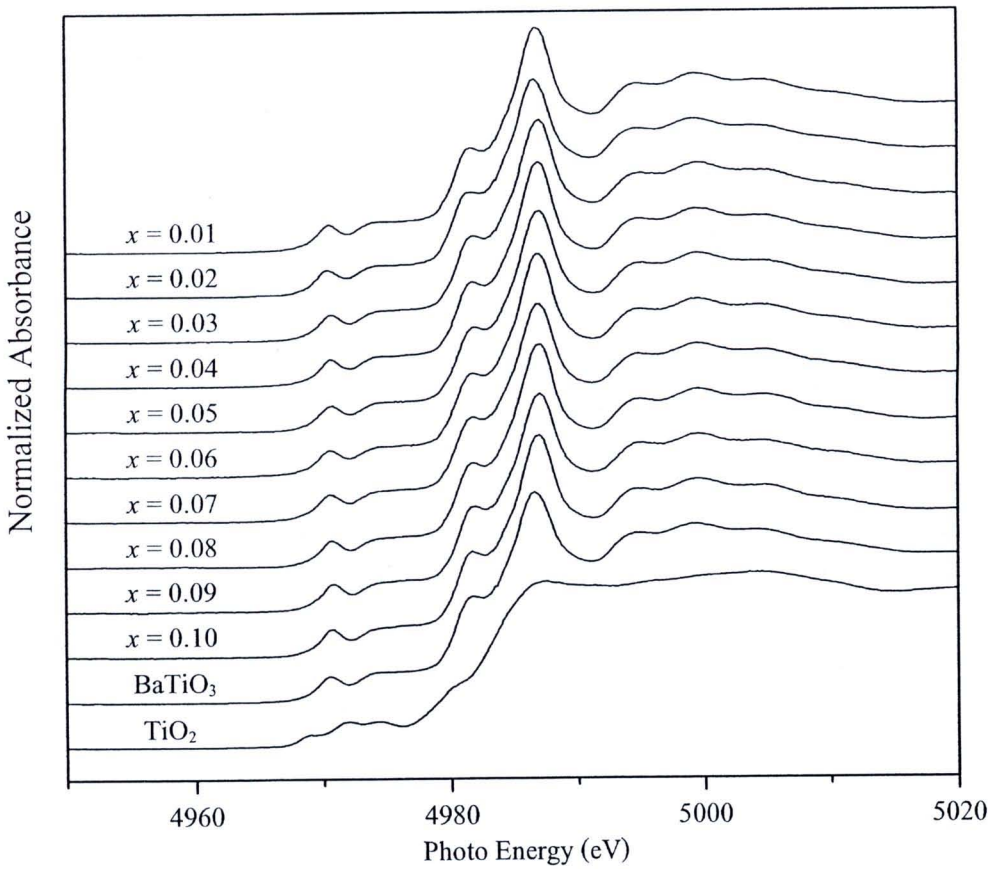
รูป 4.16 กราฟ XANES ของ Ti K-edge ของสาร Ti foil BT และ 0.99BT-0.01BMN

ส่วนในกราฟ XANES ของ Nb L3-edge ของสาร Nb foil BMN และ 0.99BT-0.01BMN แสดงในรูป 4.17 จากกราฟของ Nb foil แสดงถึงสารที่มีเลขออกซิเดชั่นเท่ากับศูนย์เนื่องจากมีค่าพลังงานการดูดกลืนประมาณ 2371อิเล็กตรอนโวลต์ ซึ่งเท่ากับพลังงานยึดเหนี่ยวของอิเล็กตรอนในอะตอม ส่วนสาร BMN และ 0.99BT-0.01BMN มีเลขออกซิเดชั่นเท่ากับ +5 เนื่องจากที่จุดกึ่งกลางของพีคที่สูงที่สุดมีตำแหน่งที่ไม่แตกต่างกัน จึงสามารถบอกได้ว่าเมื่อเจือ BMN เข้าไปในโครงสร้างของ BT แล้วเลขออกซิเดชั่นของ Nb ยังคงมีค่าเท่าเดิม

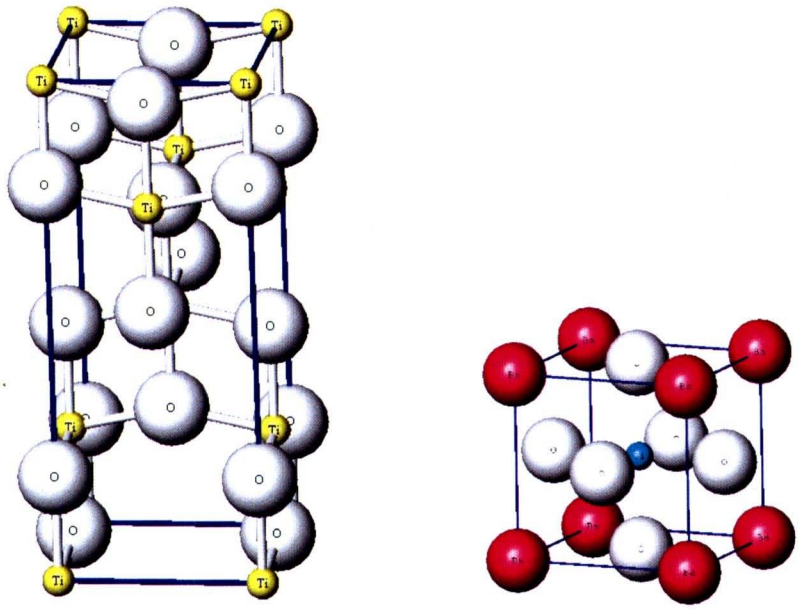


รูป 4.17 กราฟ XANES ของ Nb L3-edge ของสาร Nb foil BMN และ 0.99BT-0.01BMN

รูป 4.18 แสดงกราฟ XANES ของ Ti K-edge ของสาร TiO_2 BT และสารในระบบ (1-x)BT-xBMN เมื่อ x = 0.01-0.10 เนื่องจากกราฟ XANES บอกถึงโครงสร้างโดยรอบของอะตอมที่เกิดการดูดกลืนพลังงาน จากกราฟพบว่า TiO_2 เกิดการเปลี่ยนแปลงโครงสร้างโดยรอบเมื่อ Ti เข้าไปอยู่ในโครงสร้างของ BT แต่เมื่อเจือ BMN เข้าไปในโครงสร้างของ BT แล้วกราฟที่ได้มีลักษณะเหมือนกัน แสดงว่า BT ไม่เกิดการเปลี่ยนแปลงโครงสร้างเมื่อเจือ BMN เข้าไป ซึ่งการเปลี่ยนแปลงโครงสร้างของ TiO_2 (anatase) มาเป็น BT นี้จะเป็นการเปลี่ยนแปลงโครงสร้างจากเตตระโกนอลที่มีการจัดเรียงตัวของแลตทิซเป็นแบบ body-centered มาเป็นโครงสร้างเตตระโกนอล ที่มีแลตทิซแบบ primitive [48] ดังรูป 4.19

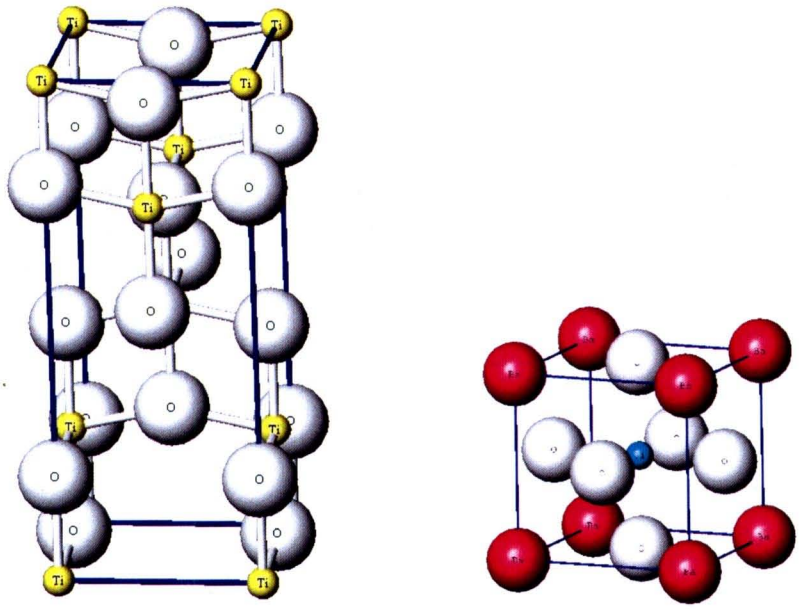


รูป 4.18 กราฟ XANES ของ Ti K-edge ของสาร TiO_2 BT และสารในระบบ (1-x)BT-xBMN



รูป 4.19 โครงสร้างของ TiO_2 (anatase) และ $BaTiO_3$

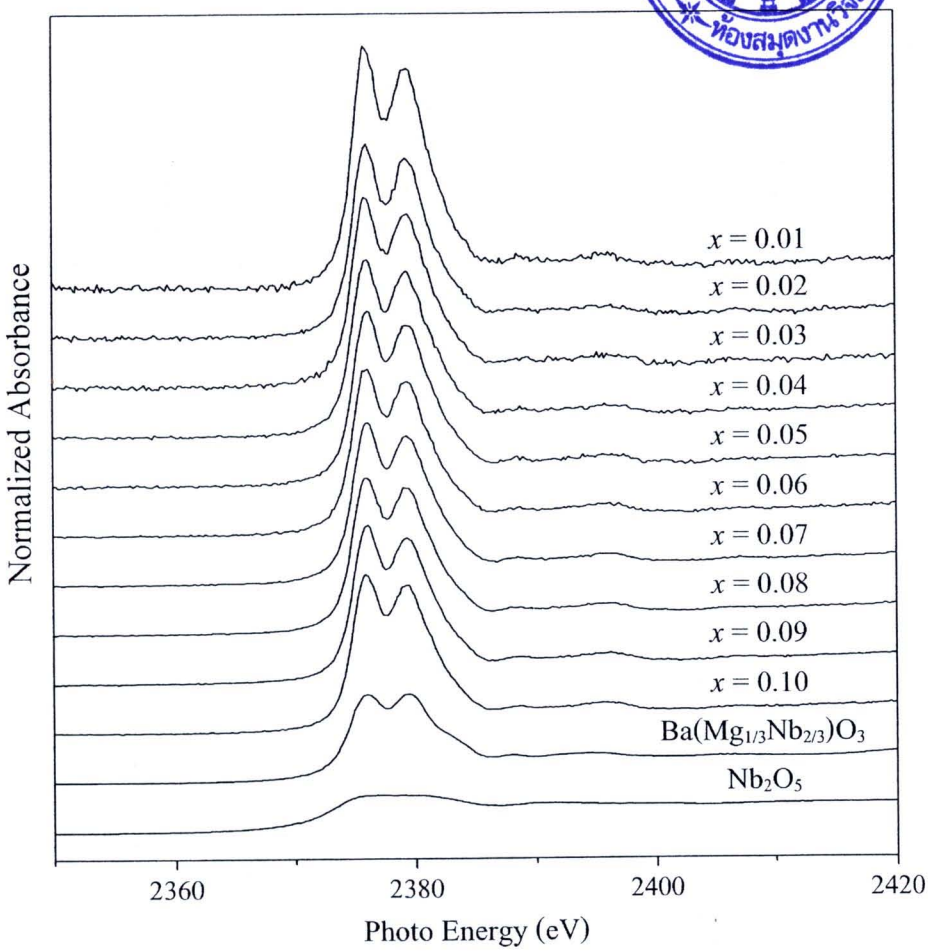
ส่วนในกราฟ XANES ของ Nb L3-edge ของสาร Nb_2O_5 BMN และสารในระบบ (1-x)BT-xBMN เมื่อ x = 0.01-0.10 แสดงในรูป 4.20 จากกราฟพบว่า Nb_2O_5 เกิดการเปลี่ยนแปลงโครงสร้างจากระบบ monoclinic ไปเป็น hexagonal เมื่อ Nb เข้าไปอยู่ในโครงสร้างของ BMN และเมื่อเจือ BMN เข้าไปในโครงสร้างของ BT จากกราฟพบว่าพีคยังคงเกิดที่ตำแหน่งเดียวกัน แสดงถึงสิ่งแวดล้อมรอบอะตอมของ Nb ยังคงเดิม ส่วนความสูงของพีคที่ไม่เท่ากันในรูป 4.20 นั้นแสดงถึงอิทธิพลของเปอร์เซ็นต์การเจือที่แตกต่างกันของสารในระบบ (1-x)BT-xBMN ซึ่งในการวิเคราะห์นี้เป็นการวิเคราะห์แบบเรืองแสง ซึ่งเหมาะสมกับสารตัวอย่างตัวอย่างที่มีความเข้มข้นของสารที่ต้องการจะวิเคราะห์อยู่ในปริมาณที่น้อย ดังนั้นหลังจากที่ทำการ normalized ข้อมูลแล้ว ในสารที่มี Nb อยู่ในปริมาณน้อยมาก x = 0.01 จึงสามารถมองเห็นพีคได้อย่างชัดเจน ซึ่งแตกต่างกับสารที่มีความเข้มข้นของ Nb ในปริมาณมาก เช่น BMN จะเห็นการแยกตัวของพีคไม่ชัดเจนเท่าที่ควร แสดงถึง BMN ควรจะวิเคราะห์ในแบบส่องผ่านจึงจะมีความเหมาะสมมากกว่า ซึ่งจะทำให้เกิดพีคที่มีความชัดเจนมากขึ้น



รูป 4.19 โครงสร้างของ TiO_2 (anatase) และ $BaTiO_3$

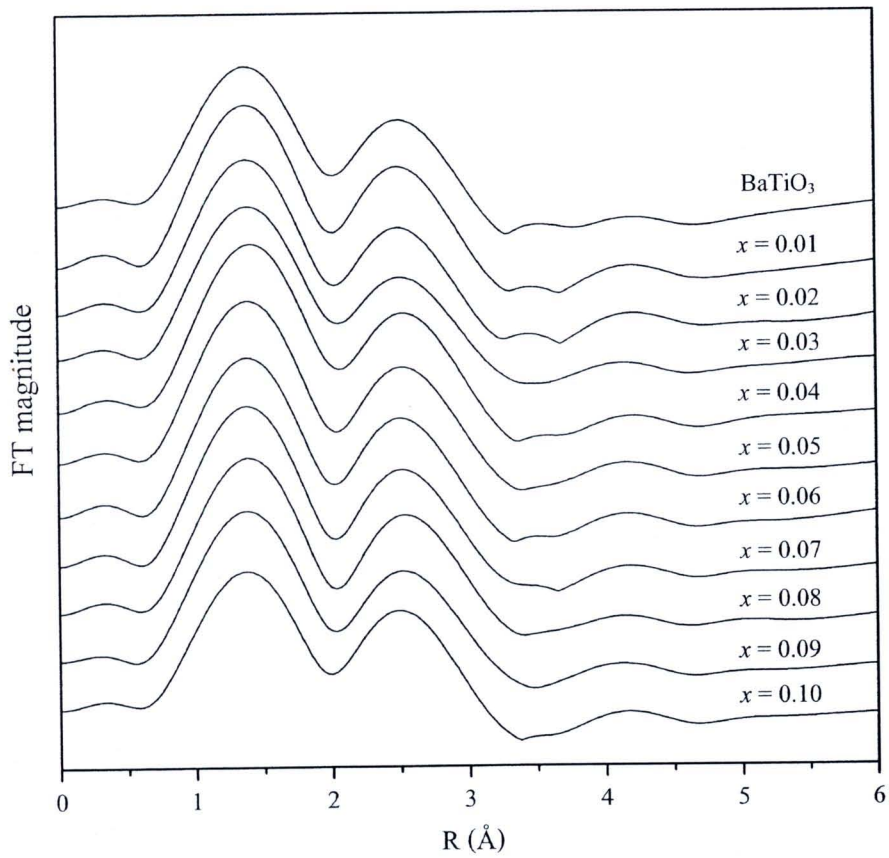
ส่วนในกราฟ XANES ของ Nb L3-edge ของสาร Nb_2O_5 BMN และสารในระบบ (1-x)BT-xBMN เมื่อ x = 0.01-0.10 แสดงในรูป 4.20 จากกราฟพบว่า Nb_2O_5 เกิดการเปลี่ยนแปลงโครงสร้างจากระบบ monoclinic ไปเป็น hexagonal เมื่อ Nb เข้าไปอยู่ในโครงสร้างของ BMN และเมื่อเจือ BMN เข้าไปในโครงสร้างของ BT จากกราฟพบว่าพีคยังคงเกิดที่ตำแหน่งเดียวกัน แสดงถึงสิ่งแวดล้อมรอบอะตอมของ Nb ยังคงเดิม ส่วนความสูงของพีคที่ไม่เท่ากันในรูป 4.20 นั้นแสดงถึงอิทธิพลของเปอร์เซ็นต์การเจือที่แตกต่างกันของสารในระบบ (1-x)BT-xBMN ซึ่งในการวิเคราะห์นี้เป็นการวิเคราะห์แบบเรืองแสง ซึ่งเหมาะสมกับสารตัวอย่างตัวอย่างที่มีความเข้มข้นของสารที่ต้องการจะวิเคราะห์อยู่ในปริมาณที่น้อย ดังนั้นหลังจากที่ทำการ normalized ข้อมูลแล้ว ในสารที่มี Nb อยู่ในปริมาณน้อยมาก x = 0.01 จึงสามารถมองเห็นพีคได้อย่างชัดเจน ซึ่งแตกต่างกับสารที่มีความเข้มข้นของ Nb ในปริมาณมาก เช่น BMN จะเห็นการแยกตัวของพีคไม่ชัดเจนเท่าที่ควร แสดงถึง BMN ควรจะวิเคราะห์ในแบบส่องผ่านจึงจะมีความเหมาะสมมากกว่า ซึ่งจะทำให้เกิดพีคที่มีความชัดเจนมากขึ้น

สำนักงานคณะกรรมการวิจัยแห่งชาติ ห้องสมุดงานวิจัย



รูป 4.20 กราฟ XANES ของ Nb L3-edge ของสาร Nb_2O_5 BMN และสารในระบบ (1-x)BT-xBMN

หลังจากนั้นทำการวิเคราะห์สาร BT และสารในระบบ (1-x)BT-xBMN เมื่อ x = 0.01-0.10 ด้วยโครงสร้าง EXAFS ของ Ti K-edge โดยการแปลงแบบฟูเรียร์ (fourier transform) ดังแสดงในรูป 4.21 เป็นกราฟระหว่างค่า R กับความเข้มของพีค ซึ่งค่า R แสดงถึงระยะระหว่างไอออนที่สนใจกับไอออนข้างเคียง ในกรณีนี้คือระยะของ Ti กับ O จากกราฟเมื่อเจือ BMN ลงไป 0.01-0.10 พบว่าระยะระหว่าง Ti-O ยังคงมีค่าเท่าเดิม แสดงว่า Mg กับ Nb นั้นไม่ได้เข้าไปเปลี่ยนแปลงระยะระหว่าง Ti-O และเมื่อเปรียบเทียบกราฟของสารในระบบ (1-x)BT-xBMN พบว่าความสูงของพีคมีค่าลดลงเมื่อ x มีค่าเพิ่มขึ้น เนื่องจากความสูงของพีคแสดงถึงความไม่แน่นอนของตำแหน่งอะตอมในโครงสร้าง [30] ดังนั้นในกรณีที่มีการเจือ BMN ในปริมาณสูงขึ้นเกิดความไม่แน่นอนของตำแหน่งอะตอมมากขึ้นตามไปด้วย

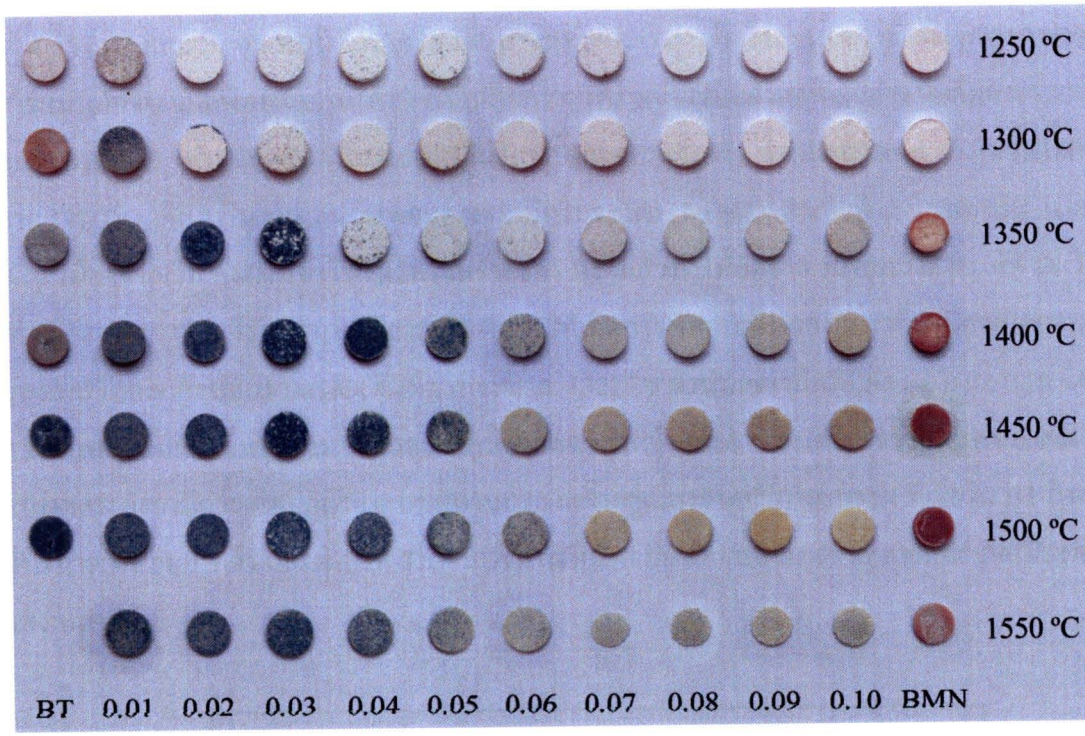


รูป 4.21 กราฟ EXAFS ของ Ti K-edge ของสาร BT และสารในระบบ (1-x)BT-xBMN

4.3.5 ผลการตรวจสอบลักษณะทางกายภาพของเซรามิกในระบบ BT-BMN

หลังจากได้ผงในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่มีเฟสบริสุทธิ์ตามที่ต้องการแล้ว จึงนำผงที่ได้มาอัดขึ้นรูปและนำไปเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิต่างๆ ตามตารางที่ 3.2 จากนั้นมาถ่ายรูปเพื่อเปรียบเทียบลักษณะทางกายกายภาพของเซรามิกดังแสดงในรูป 4.22 จากภาพพบว่าเซรามิกที่ได้มีรูปร่างสมส่วนไม่มีการบิดเบี้ยวเกิดขึ้น แสดงว่าชิ้นงานเกิดการแน่นตัวกลายเป็นเซรามิกที่สมบูรณ์ สำหรับชิ้นงาน BT จะมีสีขาวนวลที่อุณหภูมิซินเตอร์ 1250 °ซ และมีสีเทาฟ้าเมื่ออุณหภูมิซินเตอร์สูงขึ้นเมื่ออุณหภูมิซินเตอร์เท่ากับ 1400 ถึง 1500 °ซ เซรามิกเริ่มเกิดรอยแตกร้าวขึ้นภายในชิ้นงาน และเซรามิกเกิดการหลอมขึ้นเมื่ออุณหภูมิซินเตอร์สูงถึง 1550 °ซ เนื่องจากเป็นอุณหภูมิที่ใกล้เคียงกับอุณหภูมิการเกิดเฟสของเหลวในเฟสไดอะแกรมของ $BaTiO_3$ เซรามิก BMN มีสีขาวนวลเมื่ออุณหภูมิซินเตอร์เท่ากับ 1250 °ซ และมีสีเลือดหมูอ่อนเมื่ออุณหภูมิสูงขึ้น ชิ้นงานมีขนาดเล็กกว่า BT เนื่องจากเกิดการหดตัวมากกว่าในระหว่างกระบวนการเผาซินเตอร์ ส่วนในเซรามิก BT-BMN

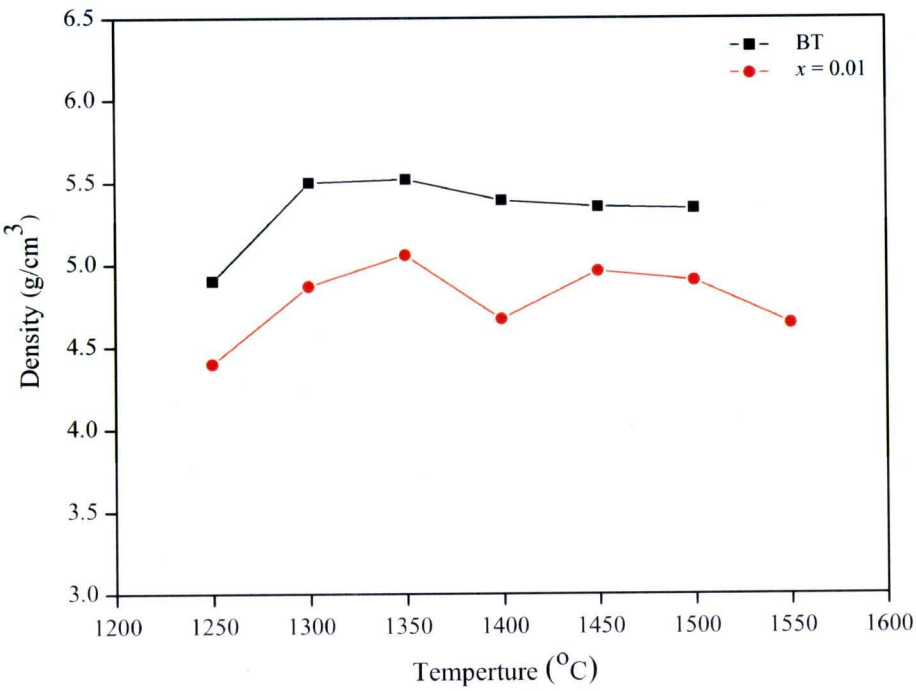
ที่มีสัดส่วนองค์ประกอบต่างๆ ที่อุณหภูมิซินเตอร์ 1250 ถึง 1300 °ซ โดยส่วนใหญ่จะยังคงมีสีขาวนวลและมีขนาดใหญ่อยู่เนื่องจากอุณหภูมิในการเผาซินเตอร์ยังไม่สูงเพียงพอที่จะทำให้เกิดการแน่นตัวเป็นเซรามิก เมื่ออุณหภูมิซินเตอร์สูงขึ้นเซรามิกจะมีสีเทาฟ้าและเริ่มเปลี่ยนเป็นสีเหลืองนวลเมื่อเปอร์เซ็นต์การเจือสูงขึ้น รวมทั้งมีขนาดเล็กลงเนื่องจากมีการหดตัวที่สูงขึ้นด้วย

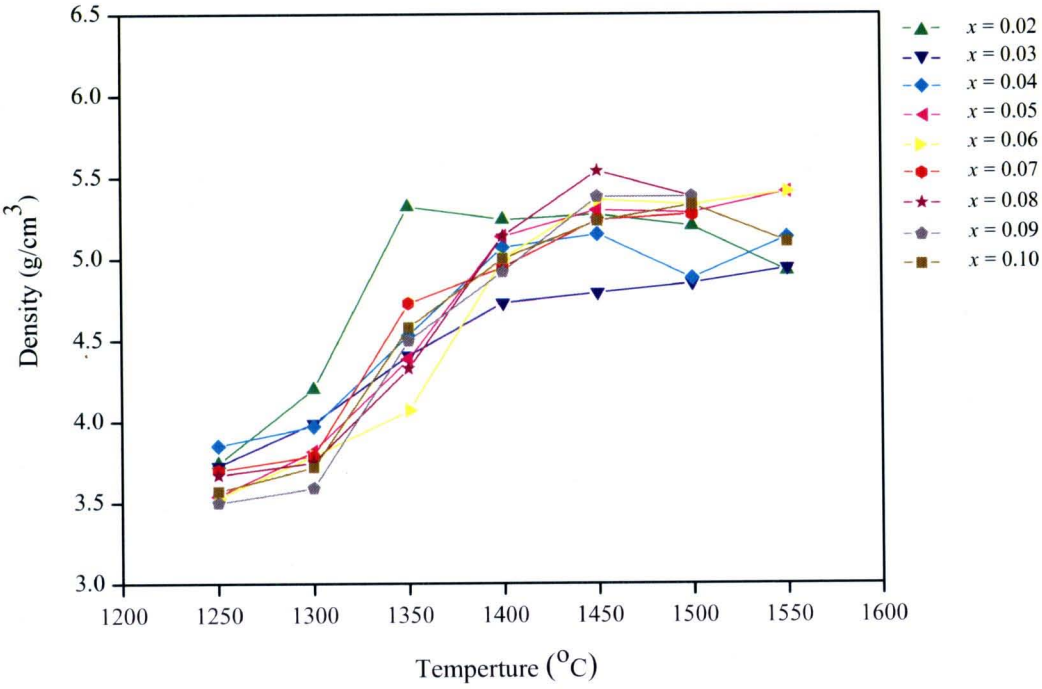


รูป 4.22 สีและลักษณะทั่วไปของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่มีสัดส่วนองค์ประกอบต่างๆ

จากนั้นนำเซรามิกที่ได้มาหาค่าความหนาแน่น เปอร์เซ็นต์การหดตัวและเปอร์เซ็นต์ของน้ำหนักที่สูญเสียไป ซึ่งกราฟแสดงค่าความหนาแน่นของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิต่างๆ แสดงในรูป 4.23 พบว่าลักษณะเส้นกราฟของเซรามิกในระบบนี้สามารถแบ่งออกได้เป็น 2 กลุ่ม โดยกลุ่มแรกคือเซรามิก BT และเซรามิกสูตร 0.09BT-0.01BMN เป็นการเผาซินเตอร์แบบสถานะของแข็ง (solid state sintering) เมื่อพิจารณาจากเส้นกราฟที่มีความชันเพิ่มขึ้นเรื่อยๆ ตามอุณหภูมิที่ค่อยๆ เพิ่มขึ้น ในช่วงแรกเป็นผลมาจากอนุภาคค่อยๆ เคลื่อนที่เข้ามาอยู่ใกล้กันและเกิดการเชื่อมต่อกันขึ้น ส่งผลให้ความหนาแน่นมีค่าเพิ่มขึ้นอย่างช้าๆ และเมื่อถึงอุณหภูมิหนึ่งที่ทำให้อนุภาคเคลื่อนที่มาอยู่ใกล้ชิดกันมากที่สุด ความหนาแน่นก็จะมีค่าคงที่ แต่ถ้าเพิ่มอุณหภูมิสูงขึ้นมากเกินไปก็จะทำให้ความหนาแน่นมีค่าลดลงเนื่องจากการระเหยของ Nb_2O_5 ซึ่ง

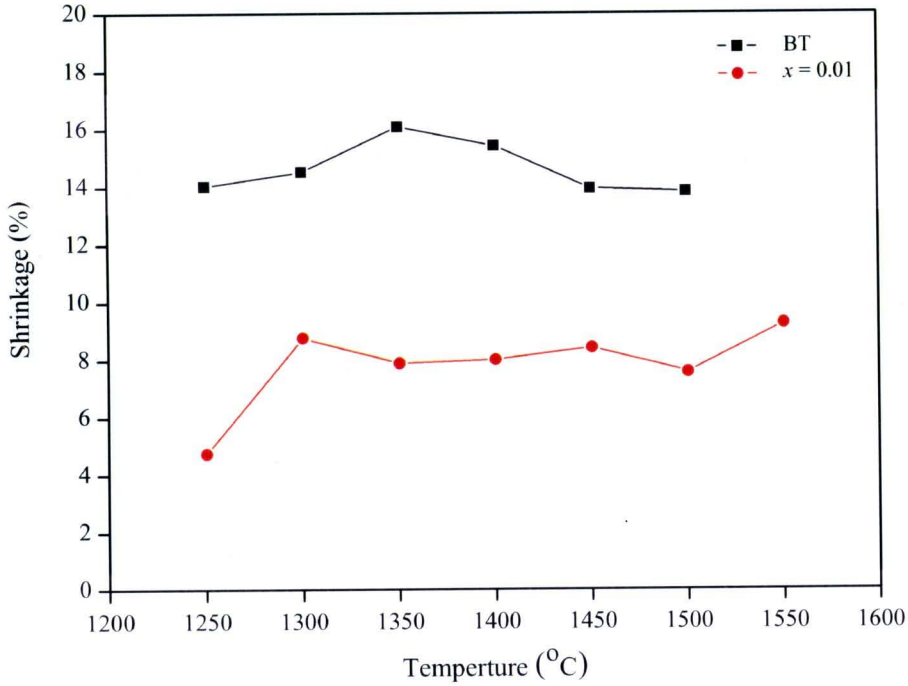
มีจุดหลอมเหลวอยู่ที่ประมาณ 1520 °ซ ส่วนในกลุ่มที่สองคือเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่มีค่า x = 0.02-0.10 เป็นการเผาซินเตอร์แบบสถานะของเหลว (liquid phase sintering) คือการเผาซินเตอร์ที่มีเฟสของเหลวเกิดขึ้น เมื่อพิจารณาจากเส้นกราฟแล้วพบว่าในช่วงแรกกราฟจะมีความชันเพิ่มขึ้นอย่างรวดเร็ว เนื่องจากมีเฟสบางเฟสเกิดการหลอมเหลวขึ้นแล้วไหลเข้าไปแทรกตัวอยู่ภายในรูพรุนและช่องว่างต่างๆ ภายในโครงสร้าง ทำให้ความหนาแน่นของเซรามิกมีค่าเพิ่มขึ้นอย่างรวดเร็ว [17] และเมื่ออุณหภูมิซินเตอร์สูงขึ้นเส้นกราฟจะเริ่มคงที่เนื่องจากเซรามิกถึงจุดสูงสุดของการแน่นตัวขึ้น เมื่อเพิ่มอุณหภูมิให้สูงขึ้นไปอีกความหนาแน่นเริ่มมีค่าลดลงเนื่องจากเกิดการระเหยของของ Nb_2O_5 เช่นเดียวกันกับการเกิดปฏิกิริยาในสถานะของแข็ง ซึ่งเฟสของเหลวที่เกิดขึ้นนี้เกิดจากสาร TiO_2 ที่มีปริมาณมากเกินพอของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่ x มีค่าเท่ากับ 0.02-0.10 เนื่องจากเจือ BMN เข้าไปในโครงสร้างของ BT แล้วทำให้อัตราส่วนระหว่าง Ba ต่อ Ti ไม่เท่ากับ 1 : 1 TiO_2 จึงมีปริมาณที่มากเกินพอทำให้เกิดการหลอมเป็นของเหลวที่เหนือจุด eutectic ของเฟสไดอะแกรมของ $BaTiO_3$ ซึ่งมีค่าประมาณ 1322 °ซ ดังนั้นเซรามิกที่มีค่า x = 0.02-0.10 จึงมีความหนาแน่นเพิ่มขึ้นอย่างรวดเร็วอุณหภูมิซินเตอร์สูงกว่า 1300 °ซ แต่ในเซรามิกสูตร 0.09BT-0.01BMN ยังคงมีการเกิดปฏิกิริยาแบบสถานะของแข็งอยู่เนื่องจากปริมาณ BMN ที่เจือใน BT ยังคงมีปริมาณที่น้อยมากจึงไม่ส่งผลให้ TiO_2 มีปริมาณที่มากเกินพอจนสามารถละลายและเกิดเป็นเฟสของเหลวได้

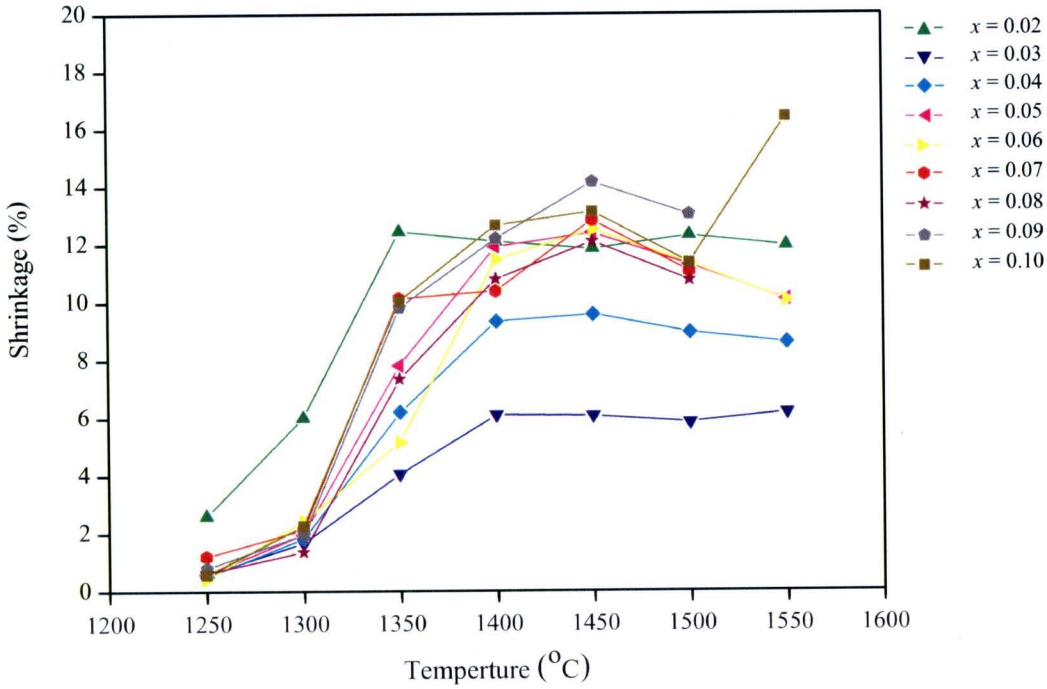




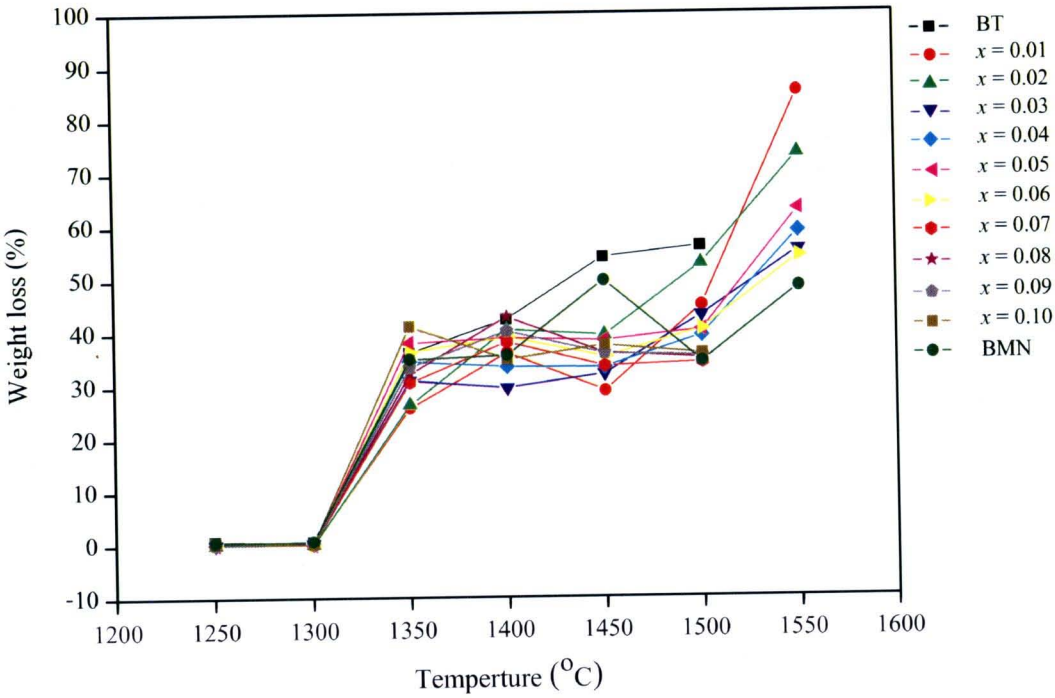
รูป 4.23 กราฟความสัมพันธ์ระหว่างค่าความหนาแน่นกับอุณหภูมิที่ใช้ในการเผาซินเตอร์ของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN

เปอร์เซ็นต์การหดตัวของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิต่างๆ แสดงในรูป 4.24 พบว่าในเซรามิก BT และเซรามิกสูตร 0.09BT-0.01BMN ค่อยๆ เกิดการหดตัวขึ้นเมื่อเพิ่มอุณหภูมิการเผาซินเตอร์ และเมื่อถึงอุณหภูมิ 1350 °ซ เปอร์เซ็นต์การหดตัวเริ่มมีค่าคงที่ ซึ่งสอดคล้องกับความหนาแน่นที่เซรามิกเริ่มมีความหนาแน่นคงที่เมื่ออุณหภูมิ 1350 °ซ ส่วนเซรามิกในอีกกลุ่มหนึ่งคือเซรามิกที่มีค่า x = 0.02-0.10 เกิดการหดตัวขึ้นอย่างรวดเร็วในช่วงแรกและเริ่มคงที่เมื่อเมื่ออุณหภูมิซินเตอร์เท่ากับ 1400 °ซ ซึ่งสอดคล้องกับกราฟความหนาแน่นเช่นเดียวกัน ซึ่งแสดงถึงช่วงที่เซรามิกเกิดการหดตัวมากที่สุด ส่วนกราฟแสดงค่าเปอร์เซ็นต์การสูญเสียน้ำหนักเทียบกับกับอุณหภูมิของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN แสดงในรูป 4.25 พบว่าเซรามิกในทุกระบบมีเปอร์เซ็นต์การสูญเสียน้ำหนักเพิ่มขึ้นเมื่ออุณหภูมิการเผาซินเตอร์เพิ่มขึ้น โดยเฉพาะในช่วงอุณหภูมิ 1300 °ซ และ1500 °ซ ซึ่งเกิดการหลอมเหลวของ TiO_2 และ Nb_2O_5 ตามลำดับ





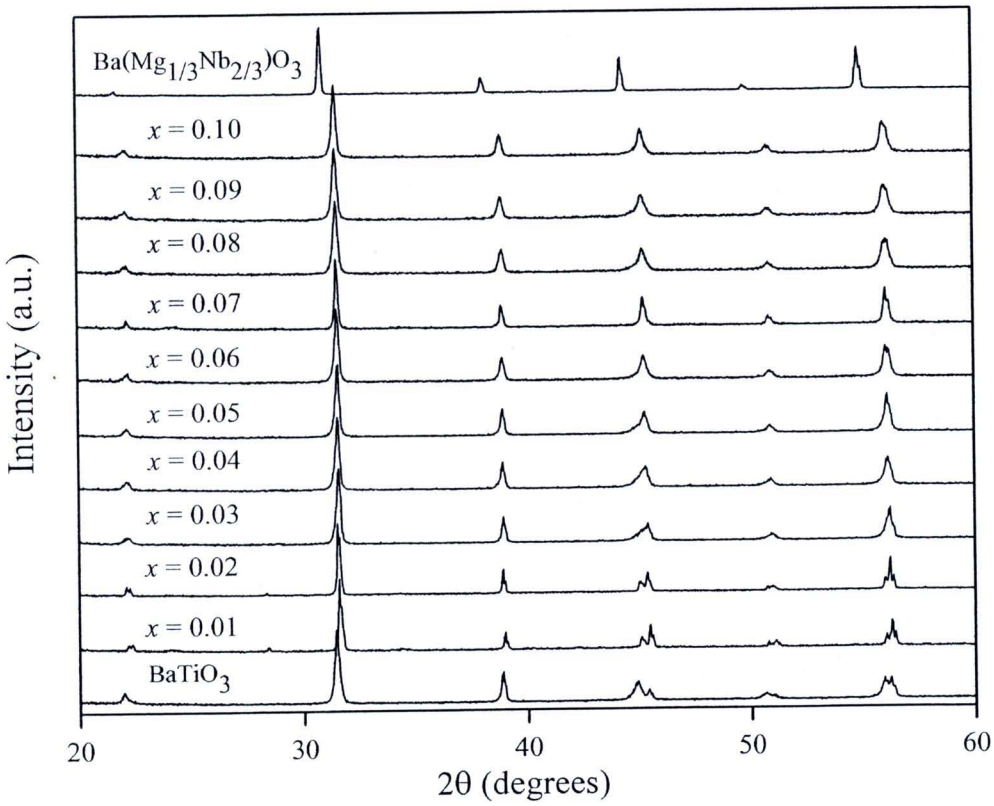
รูป 4.24 กราฟความสัมพันธ์ระหว่างเปอร์เซ็นต์การหดตัวกับอุณหภูมิที่ใช้ในการเผาซินเตอร์ของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN



รูป 4.25 กราฟความสัมพันธ์ระหว่างเปอร์เซ็นต์ของน้ำหนักที่สูญเสียกับอุณหภูมิที่ใช้ในการเผาซินเตอร์ของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN

4.3.6 ผลการตรวจสอบเฟสของเซรามิกในระบบ BT-BMN

เมื่อได้เซรามิกที่มีความหนาแน่นสูงที่สุดในแต่ละสูตรแล้ว จึงนำเซรามิกที่ได้ไปตรวจสอบเฟสที่เกิดขึ้นด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ (XRD) และตรวจสอบโครงสร้างทางจุลภาค ผล XRD ของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่มีความหนาแน่นสูงที่สุดแสดงในรูป 4.26 พบว่าเซรามิก BT มีระบบผลึกเป็นแบบเตตระโกนอล ซึ่งสอดคล้องกับแฟ้มมาตรฐานหมายเลข 76-0744 [31] ส่วนเซรามิก BMN มีระบบผลึกเป็นแบบเฮกซะโกนอล ซึ่งสอดคล้องกับแฟ้มมาตรฐานหมายเลข 17-0173 [41] ส่วนเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่อัตราส่วนต่างๆ พบว่าไม่มีเฟสแปลกปลอมเกิดขึ้น และเมื่อเจือ BMN ลงไปใน BT ในปริมาณเล็กน้อย (x = 0.01-0.02) พบว่าเฟสที่เกิดขึ้นมีลักษณะคล้ายกับเฟสของ BT คือมีโครงสร้างผลึกเป็นแบบเตตระโกนอล และเมื่อเติม BMN ลงไปใน BT ในปริมาณ x = 0.03-0.10 พีคเริ่มเกิดการเปลี่ยนแปลงขึ้น โดยไม่สามารถเห็นการแยกตัวของพีคที่ตำแหน่งประมาณ 2θ เท่ากับ 45° แสดงให้เห็นว่าค่า c และค่า a มีระยะที่ใกล้เคียงกันทำให้มองเห็นการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์เป็นพีคที่ไม่เกิดการแยกตัว ค่า c/a มีค่าใกล้เคียงกับ 1 แสดงถึงเซรามิกมีโครงสร้างแบบคิวบิกเกิดขึ้น [20, 24]



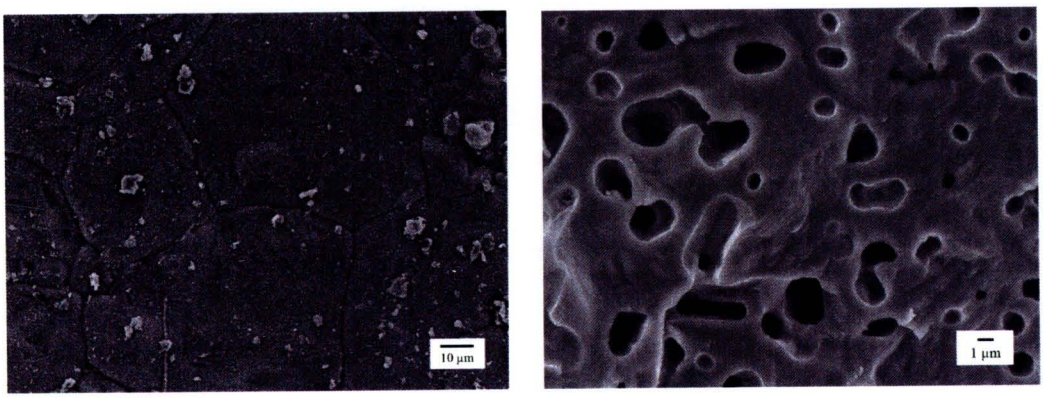
รูป 4.26 รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอ็กซ์ของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่อุณหภูมิการเผาซินเตอร์ที่มีความหนาแน่นสูงที่สุด

4.3.7 ผลการตรวจสอบโครงสร้างทางจุลภาคของเซรามิกในระบบ BT-BMN

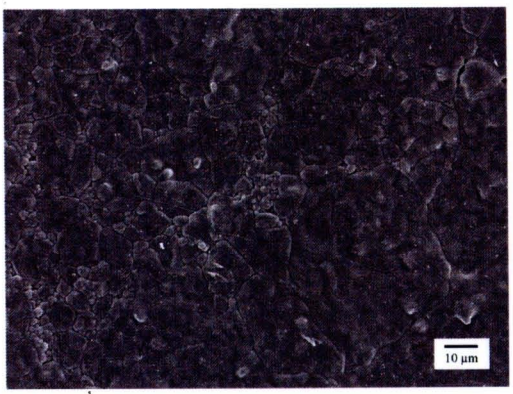
ผลจากการวิเคราะห์ XRD สอดคล้องกับผลจากการวิเคราะห์โครงสร้างทางจุลภาคดังรูป 4.27 (ก) จะเห็นว่าที่ x = 0.01 ภาพผิวหน้ามีลักษณะเกรนคล้ายคลึงกับเกรนของเซรามิก BT มีขนาดเกรนเฉลี่ยที่มีขนาดใหญ่ (23 ไมโครเมตร) ซึ่งคาดว่ามีโครงสร้างเป็นแบบเตตระโกนอล และเมื่อพิจารณารอยแตกของเซรามิกพบว่าเป็นรอยแตกแบบผ่าเกรน รวมทั้งพบรูพรุนเป็นจำนวนมากแทรกตัวอยู่ทั้งภายในเกรนและบริเวณขอบเกรน ส่งผลทำให้เซรามิกมีความหนาแน่นต่ำ แสดงถึงการโตที่ผิดปรกติของเกรนเนื่องจากการโตของเกรนโดยทั่วไปนั้นจะพบรูพรุนอยู่ที่ขอบเกรนมากกว่าภายในเกรน เนื่องจากในขณะที่เกรนเกิดการโตนั้นรูพรุนที่อยู่ภายในเกรนจะค่อยๆ เคลื่อนตัวมาอยู่ที่ขอบเกรน แต่ถ้าเกรนเกิดการโตขึ้นอย่างรวดเร็วรูพรุนไม่สามารถเคลื่อนที่ออกมาอยู่ที่ขอบเกรนได้ เป็นผลทำให้เกิดรูพรุนขึ้นภายในเกรน [49-50] ทั้งนี้เนื่องจากการกระจายตัวของ Mg และ Nb มีความไม่สม่ำเสมอในกรณีที่สารเจือมีปริมาณน้อย เป็นผลให้เกิดการโตอย่างไม่สม่ำเสมอ

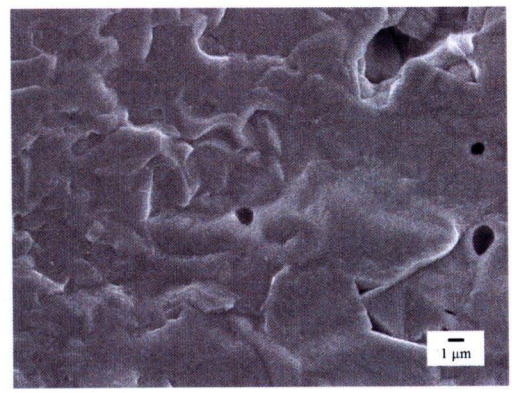
สำนักงานคณะกรรมการวิจัยแห่งชาติ ห้องสมุดงานวิจัย

ของเกรนตามไปด้วย [20, 24] ส่วนภาพผิวหน้าของเซรามิกสูตร 0.98BT-0.02BMN (รูป 4.27 (ข)) นั้นพบเกรนที่มีขนาดแตกต่างกันอย่างเห็นได้ชัดอยู่สองขนาด คือเกรนที่มีขนาดใหญ่และเกรนที่มีขนาดเล็ก โดยจะมีขนาดเกรนเฉลี่ยเท่ากับ 18 และ 2 ไมโครเมตรตามลำดับ ซึ่งเกรนขนาดเล็กจะปะปนอยู่บริเวณขอบเกรน คาดว่าเป็นเฟสของ $Ba_6Ti_{17}O_{40}$ ที่เกิดขึ้นเนื่องจากการแพร่ของ Nb เข้าไปในโครงสร้างมีผลไปยับยั้งการโตของเกรน [51, 52] ทำให้ขนาดเกรนโดยเฉลี่ยมีค่าลดลง แต่ผลจากกราฟ XRD ยังคงมีระบบผลึกเป็นแบบเตตระโกนอลอยู่และไม่พบเฟสแปลกปลอมเกิดขึ้น เนื่องมาจากปริมาณเฟสของของเหลว $Ba_6Ti_{17}O_{40}$ มีปริมาณน้อยมากที่จะสามารถตรวจพบด้วยเทคนิค XRD ส่วนรอยแตกเป็นรอยแตกแบบผ่าเกรน พบรูพรุนอยู่ที่บริเวณขอบเกรนและภายในเกรน ภาพ SEM ผิวหน้าของเซรามิกที่มีค่า x = 0.03-0.10 (รูป 4.27 (ค)-(ฎ)) ยังคงพบเกรนที่มีขาดแตกต่างกันสองขนาด และเมื่อปริมาณการเจือสูงขึ้นพบว่าเกรนขนาดเล็กมีจำนวนมากขึ้น ซึ่งสอดคล้องกับงานวิจัยก่อนหน้านี้ [20, 24] คาดว่าเป็นการเปลี่ยนโครงสร้างจากเตตระโกนอลมาเป็นคิวบิกที่อุณหภูมิห้อง เนื่องจากเกิดการแพร่ของ Nb ทำให้ไปยับยั้งการโตของเกรนเช่นเดียวกัน [51, 52] ส่งผลให้เกรนมีการจัดเรียงตัวกันได้ดีขึ้น ทำให้ความหนาแน่นมีค่าเพิ่มขึ้นตามไปด้วย ถึงแม้ว่าความหนาแน่นยังไม่สูงเท่ากับเซรามิก BT เนื่องจากเฟสของเหลว $Ba_6Ti_{17}O_{40}$ ที่เกิดจากการเผาซินเตอร์แบบสถานะของเหลวมีค่าความหนาแน่นเท่ากับ 4.79 g/cm^3 [4-9] ซึ่งน้อยกว่าความหนาแน่นของ BT ก็ตาม เมื่อพิจารณารอยแตกพบว่าเป็นรอยแตกแบบผ่าเกรน และรูพรุนมีจำนวนลดลง ขนาดเกรนโดยเฉลี่ยและช่วงขนาดเกรนของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN แสดงในตาราง 4.5 และพบว่าเมื่อ x = 0.02 และ 0.08 เซรามิกมีความหนาแน่นสูงซึ่งอาจจะเกิดจากการจัดเรียงตัวที่ดีของเกรนภายในโครงสร้าง

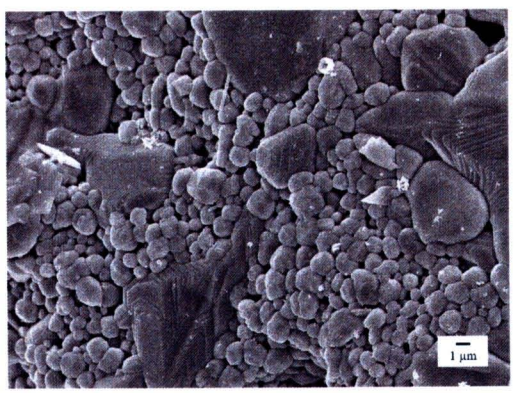


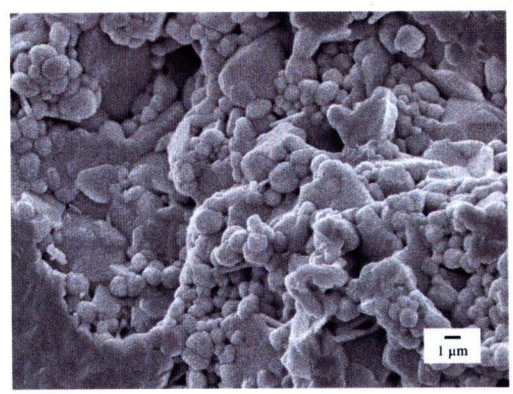
(ก) x =0.01



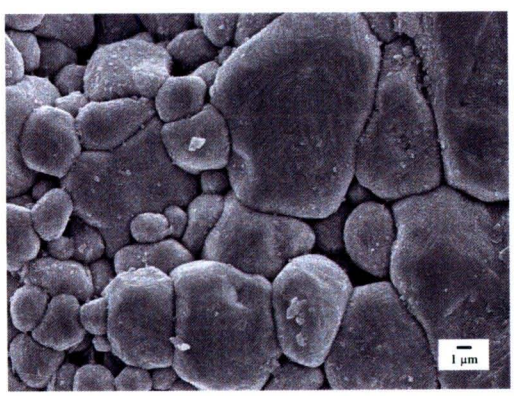


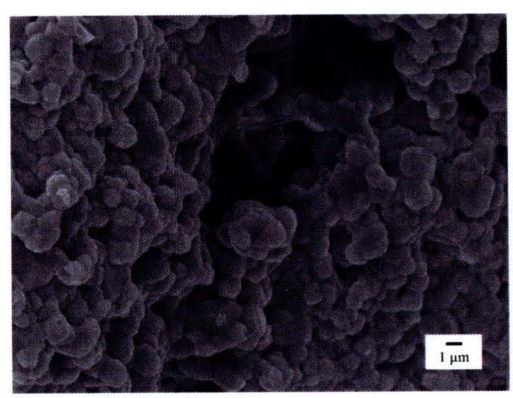
(ข) x =0.02



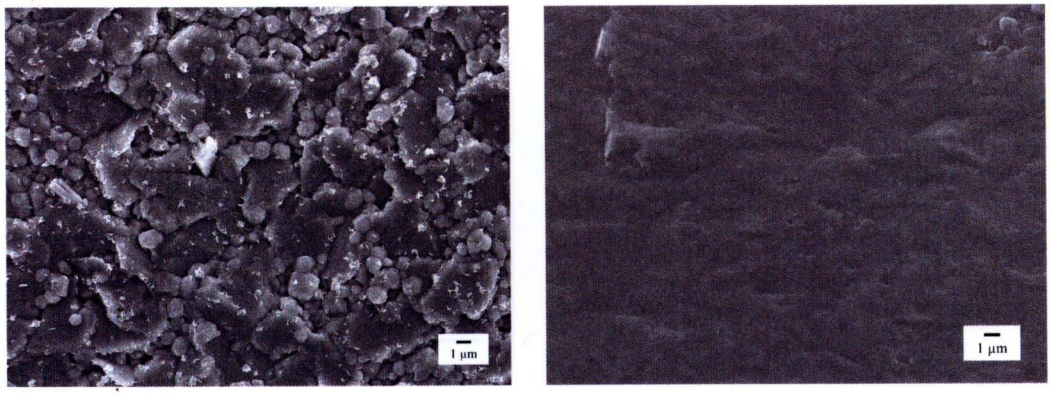


(ค) x =0.03

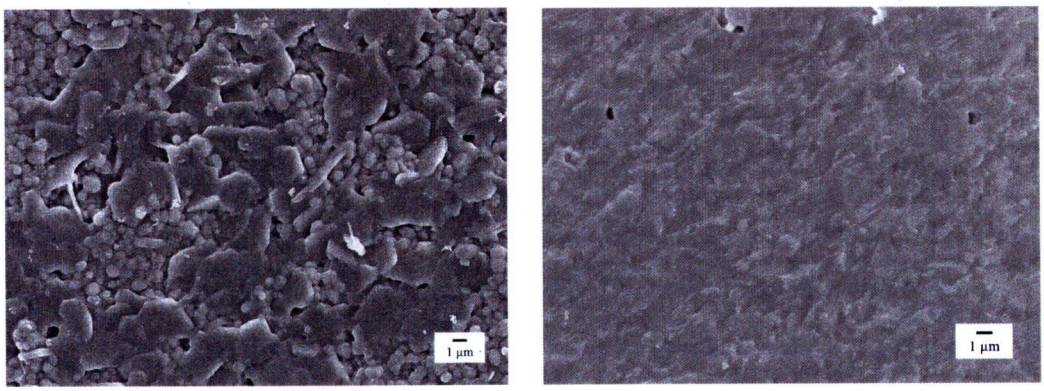




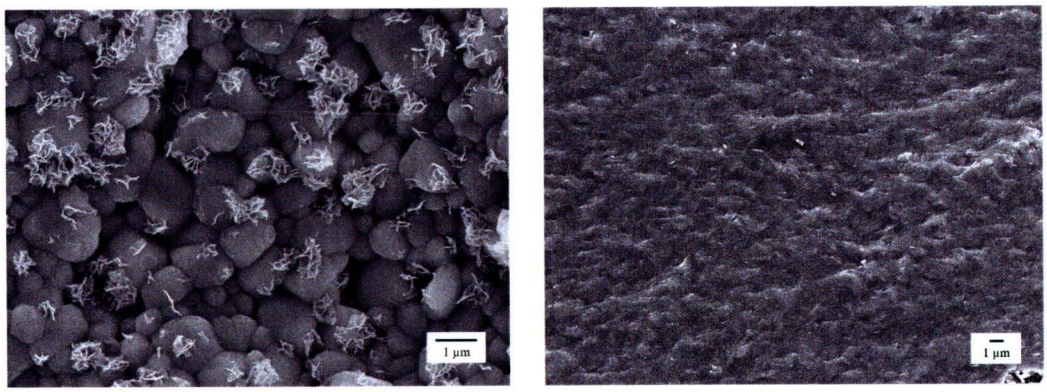
(จ) x =0.04



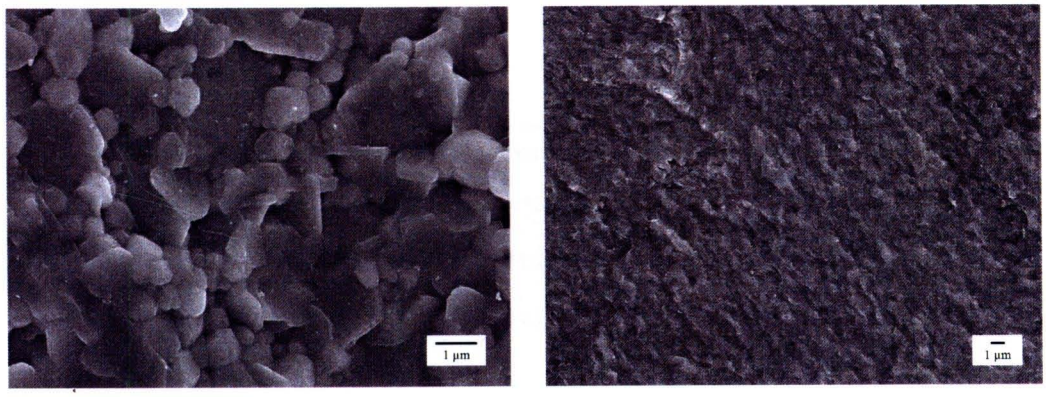
(ก) x =0.05



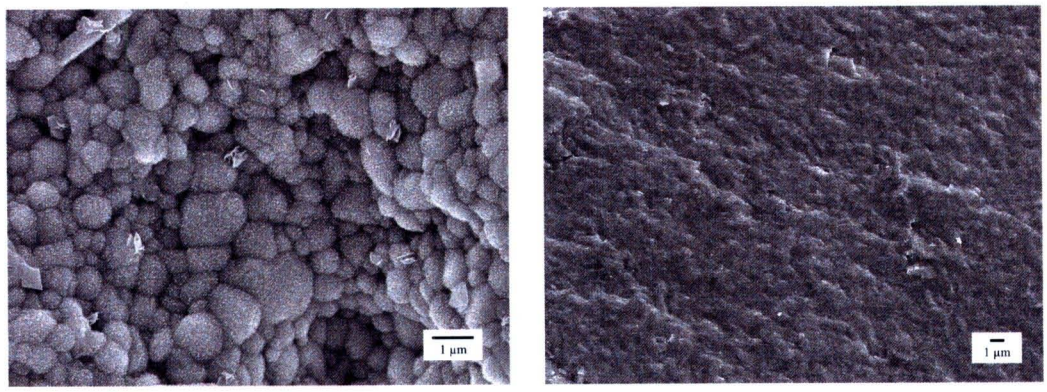
(ข) x =0.06



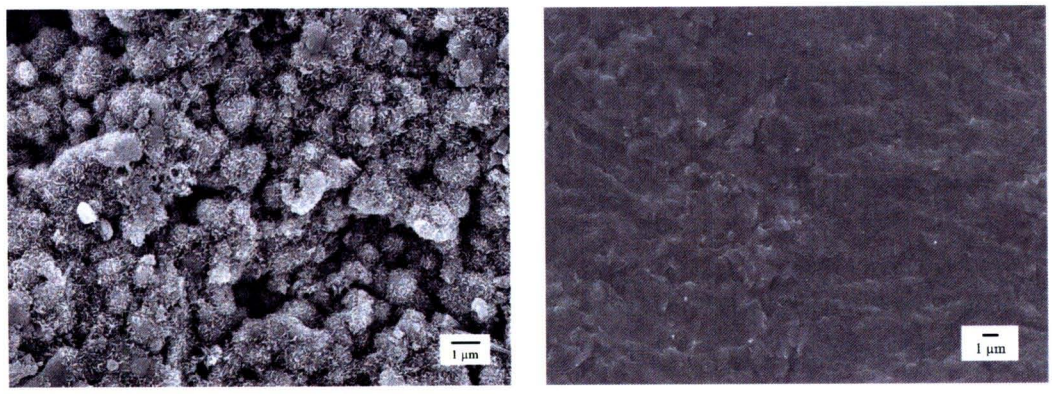
(ค) x =0.07



(ฌ) x =0.08



(ญ) x =0.09



(ฎ) x =0.10

รูป 4.27 ภาพ SEM ผิวหน้า (surface) และรอยแตก (fracture) ของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ของอัตราส่วนต่างๆ ที่มีความหนาแน่นสูงที่สุด

ตาราง 4.6 เปอร์เซ็นต์ความหนาแน่น ขนาดเกรนเฉลี่ย และช่วงขนาดเกรนของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่อุณหภูมิซินเตอร์ที่ดีที่สุด

ปริมาณ BMN (x)	อุณหภูมิซินเตอร์ (°ซ)	ความหนาแน่น (%)	ขนาดเกรนเฉลี่ย (ไมโครเมตร)	ช่วงขนาดเกรน (ไมโครเมตร)
0.00	1350	91.69	23.13	8.48-45.48
0.01	1350	84.03	24.39	5.80-121.95
0.02	1350	88.35	13.49	1.10-130.63
0.03	1450	81.99	4.37	0.48-103.42
0.04	1450	85.44	2.94	0.42-20.20
0.05	1450	87.96	3.67	0.53-52.61
0.06	1450	88.85	1.22	0.43-8.41
0.07	1450	86.80	1.19	0.44-2.34
0.08	1450	91.81	0.86	0.37-2.97
0.09	1450	89.13	0.78	0.30-1.91
0.10	1500	88.20	1.12	0.56-2.00

4.3.8 ผลการทดสอบสมบัติทางไฟฟ้าของเซรามิกในระบบ BT-BMN

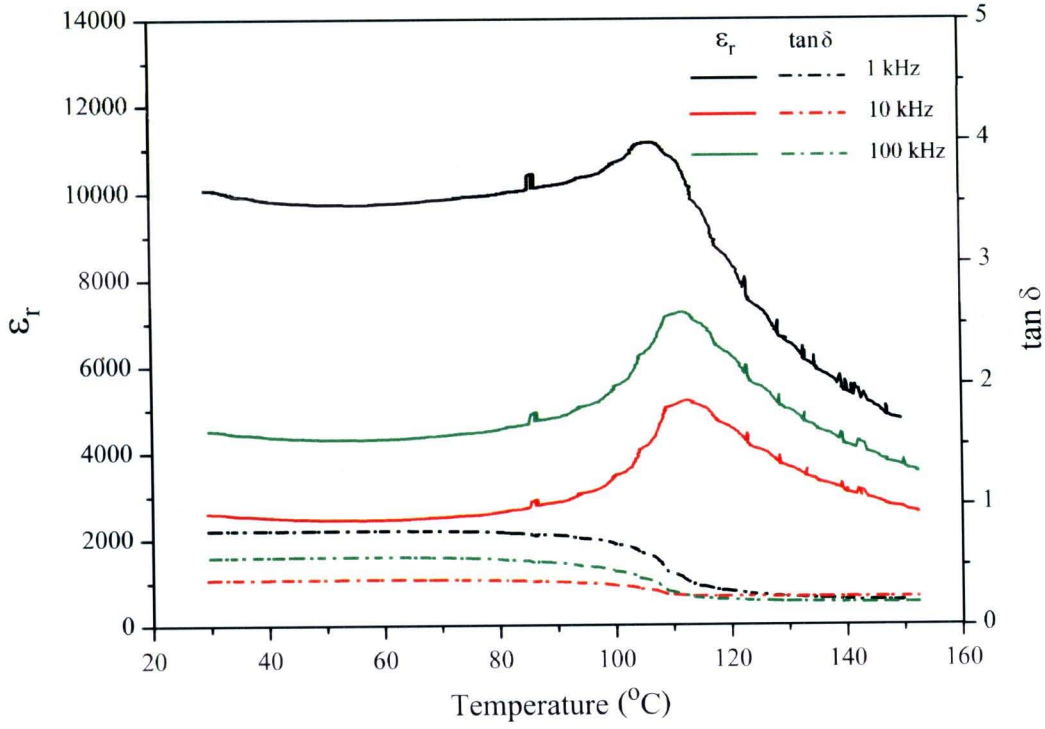
ค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ε_r) และค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริก (tan δ) เมื่อเทียบกับอุณหภูมิที่ความถี่ต่างๆ ของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN แสดงในรูป 2.28 จากรูป 2.28 (ก) พบว่าเซรามิกสูตร 0.99BT-0.01BMN ที่ความถี่ 1 kHz มีค่าคงที่ไดอิเล็กทริกประมาณ 10000 ที่อุณหภูมิห้อง และมีค่าสูงขึ้นจนถึงประมาณ 11000 ที่อุณหภูมิคูรี (~106 °ซ) และจะมีค่าลดลงเมื่ออุณหภูมิสูงขึ้น ซึ่งสอดคล้องกับค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริก (tan δ) ที่มีค่าลดลงเมื่ออุณหภูมิสูงกว่าอุณหภูมิคูรี ส่วนที่ความถี่ 10 และ 100 kHz กราฟค่าคงที่ไดอิเล็กทริกมีแนวโน้มเช่นเดียวกับที่ความถี่ 1 kHz แต่มีค่าน้อยกว่าค่าที่ความถี่ 1 kHz คือมีค่าเท่ากับ 2500 และ 4500 ที่ความถี่ 10 และ 100 kHz ตามลำดับ ส่วนค่าการสูญเสียก็มีแนวโน้มเช่นเดียวกันคือมีค่าลดลงเมื่ออุณหภูมิสูงกว่าอุณหภูมิคูรี

ส่วนกราฟของเซรามิกในสูตร 0.98BT-0.02BMN แสดงในรูป 2.28 (ข) พบว่ากราฟค่าคงที่ไดอิเล็กทริกที่ความถี่ 1 kHz มีลักษณะเปลี่ยนแปลงไปจากกราฟของเซรามิก BT อย่างมาก คือมีความกว้างมากขึ้น ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกที่อุณหภูมิห้อง (30 °ซ) มีค่าประมาณ 400000 และมีค่าสูงขึ้นถึง 430000 จนกระทั่งอุณหภูมิคูรี (76 °ซ) หลังจากนั้นจึงมีค่าลดลง ลักษณะของพีคที่เกิด

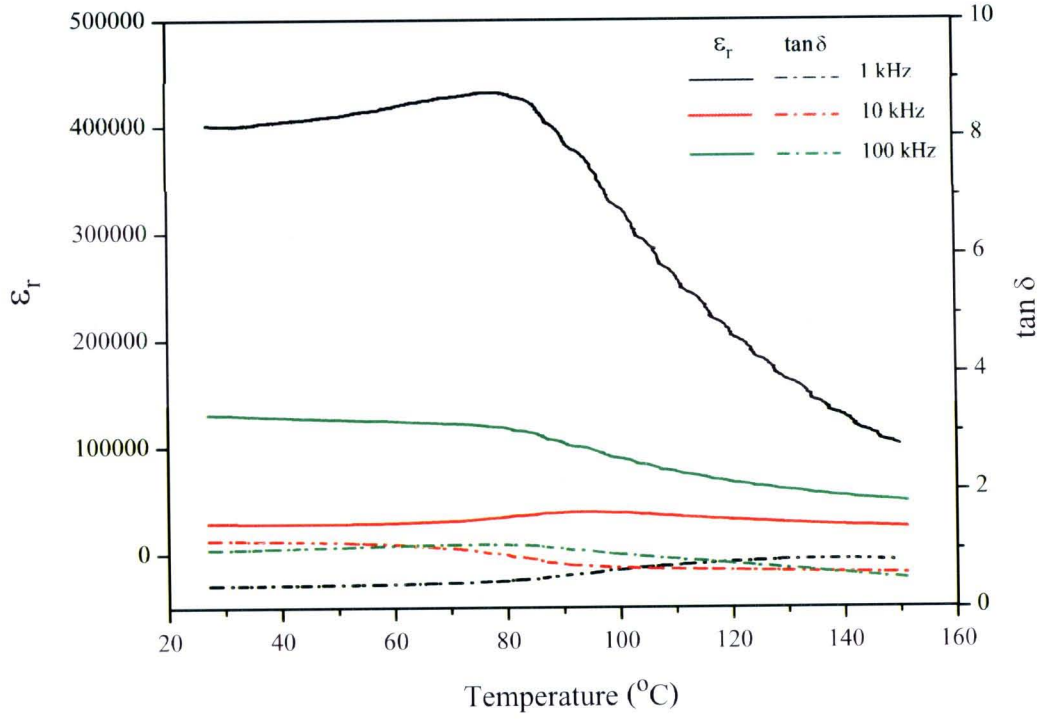
ความกว้างขึ้นนั้นเนื่องมาจากการแพร่ของ Nb กับ Mg เข้าไปในโครงสร้างระดับไมโครเมตรหรือนาโนเมตร ทำให้องค์ประกอบภายในโครงสร้างไม่มีความเป็นเนื้อเดียวกันเป็นผลทำให้กราฟมีความกว้าง และมีค่าคงที่ไดอิเล็กทริกสูงที่อุณหภูมิห้อง ซึ่งสอดคล้องกับผลการทดลองของ A. Munpakdee [24] ที่มีค่าคงที่ไดอิเล็กทริกสูงที่สุดที่อุณหภูมิห้อง (38000) เมื่อเจือ BMN ในปริมาณ 2 โมลเปอร์เซ็นต์ใน BT แต่จะแตกต่างกับ Weill และคณะ [20-21] ที่มีค่าคงที่ ไดอิเล็กทริกสูงที่สุด (220000) เมื่อเจือ BMN ในปริมาณ 4 โมลเปอร์เซ็นต์ แต่ถึงอย่างไรก็ตามค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริกก็มีค่าที่สูงตามไปด้วย ซึ่งค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริกมีค่า 0.39 ที่อุณหภูมิห้องและมีค่า 0.45 ที่อุณหภูมิคูรี และเมื่อเพิ่มความถี่ขึ้นถึง 10 และ 100 kHz ปรากฏว่าค่าคงที่ไดอิเล็กทริกที่มีค่าลดลงถึงประมาณ 30000 และ 130000 ตามลำดับที่อุณหภูมิห้อง

กราฟค่าคงที่ไดอิเล็กทริกของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่ x = 0.03-0.05 มีลักษณะคล้ายคลึงกับกราฟของเซรามิก BMN คือมีค่าคงที่ไดอิเล็กทริกสูงที่อุณหภูมิห้องและมีค่าลงลดเมื่ออุณหภูมิสูงขึ้น ซึ่งค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ε_r) และค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริก (tan δ) ที่อุณหภูมิคูรีและอุณหภูมิห้องของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่ความถี่ 1 kHz แสดงไว้ในตาราง 4.6

ส่วนกราฟค่าคงที่ไดอิเล็กทริกของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่ x = 0.06-0.10 มีลักษณะไม่คล้ายคลึงกับทั้งเซรามิก BT และเซรามิก BMN คือมีค่าคงที่ไดอิเล็กทริกสูงที่อุณหภูมิห้องและค่อยๆ ลดลงจนถึงอุณหภูมิคูรี หลังจากนั้นมีค่าลดลงอย่างรวดเร็วเมื่ออุณหภูมิสูงกว่าอุณหภูมิคูรี

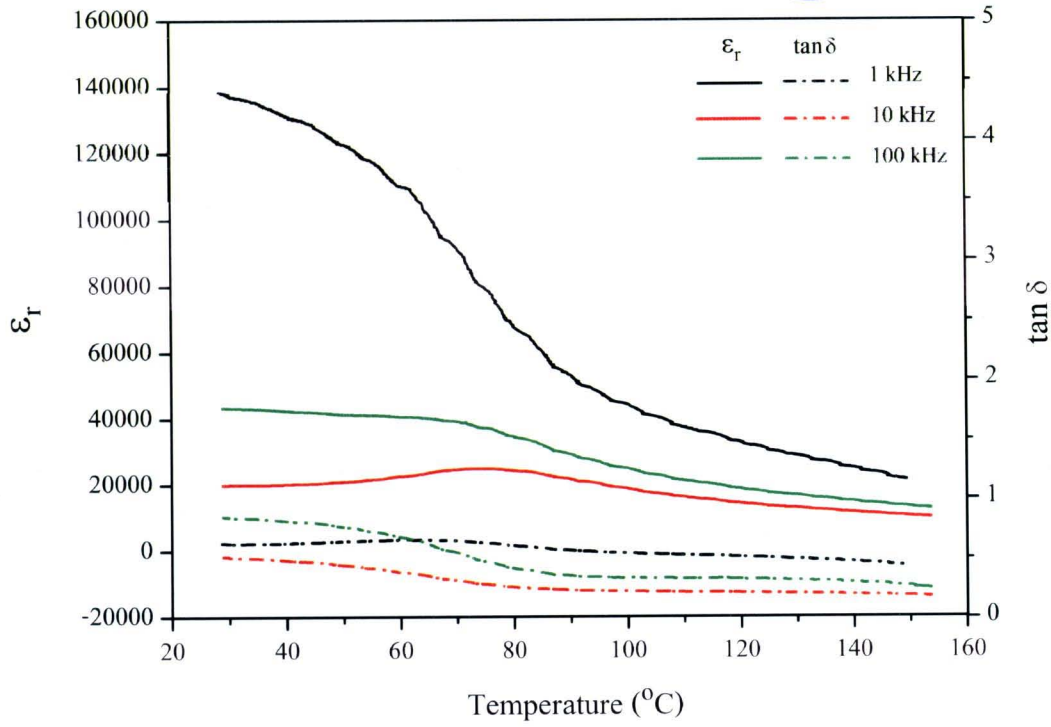

ε_r
tan δ
1 kHz
10 kHz
100 kHz
ε_r
tan δ
Temperature (°C)

(ก) x =0.01

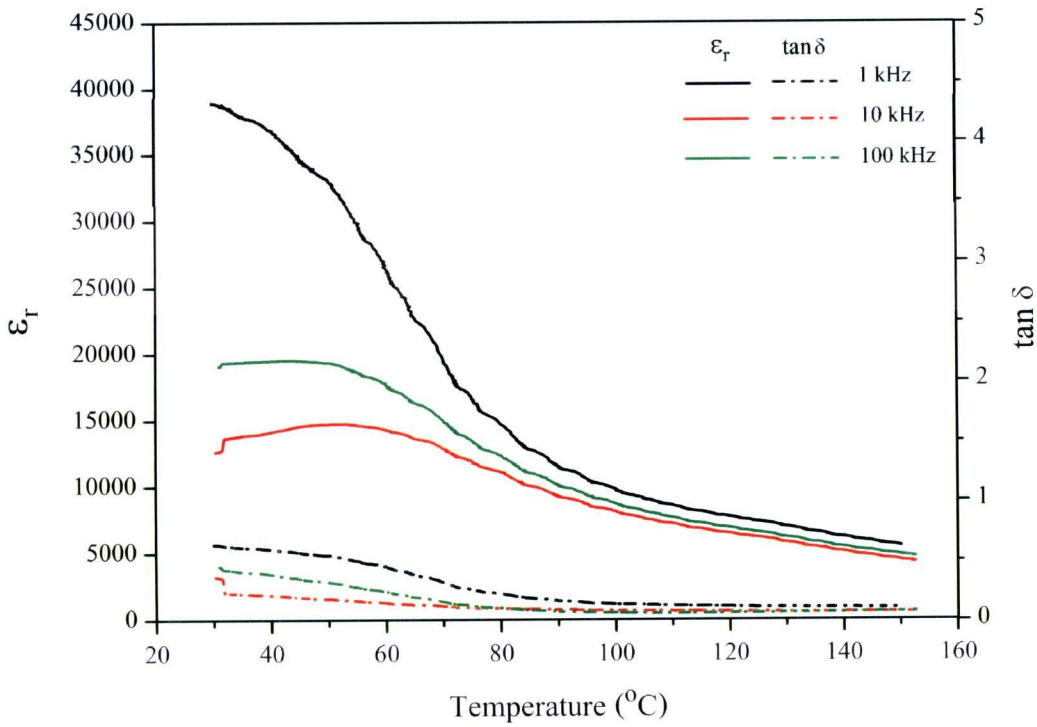

ε_r
tan δ
1 kHz
10 kHz
100 kHz
ε_r
tan δ
Temperature (°C)

(ข) x =0.02

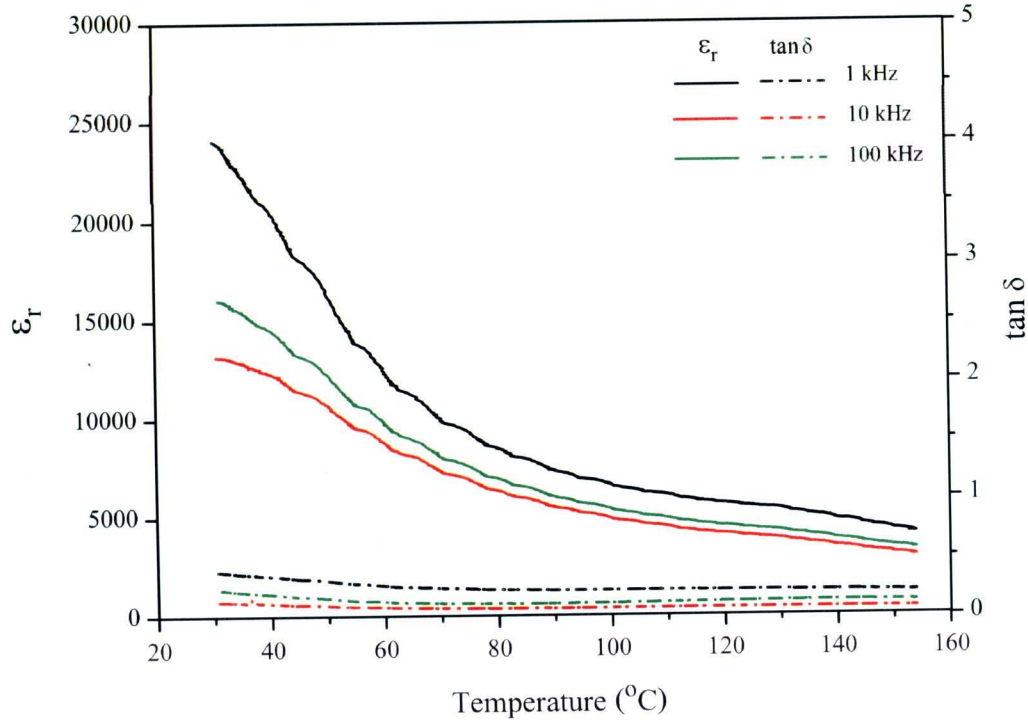
สำนักงานคณะกรรมการวิจัยแห่งชาติ ห้องสมุดงานวิจัย



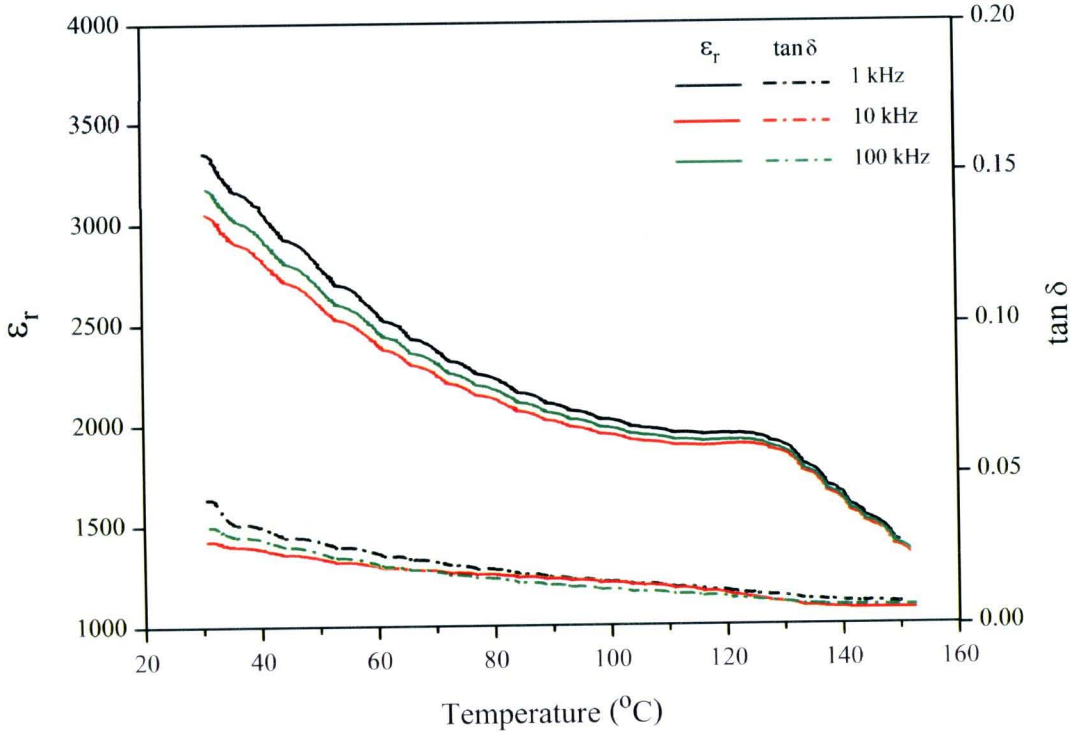
(ค) x =0.03



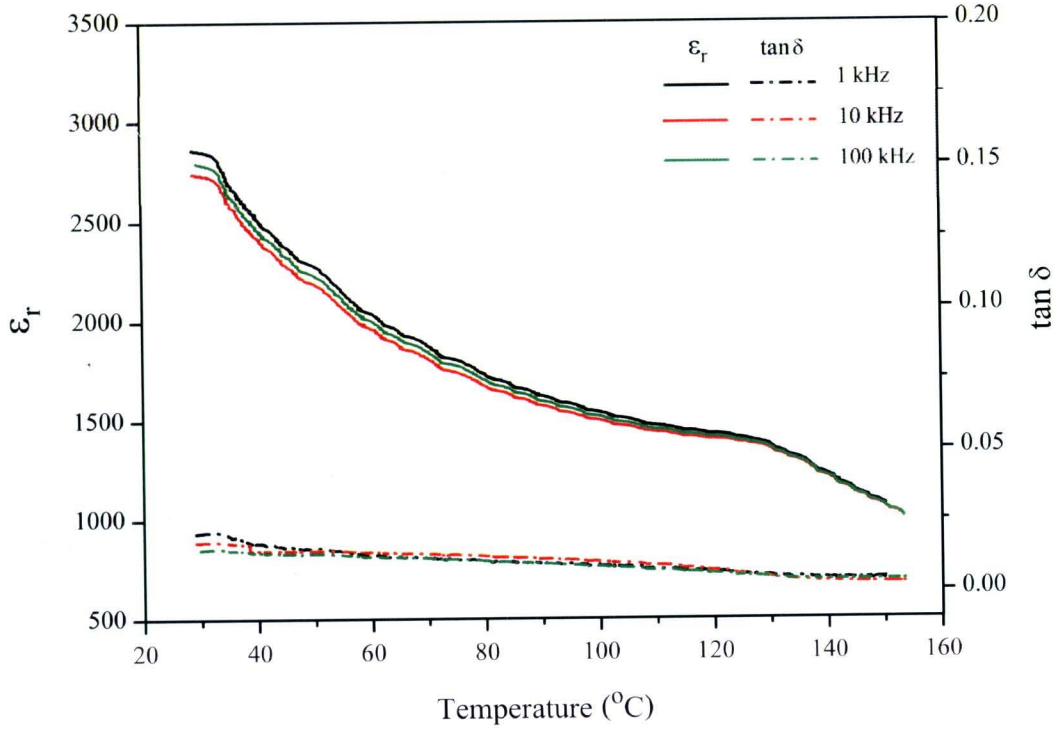
(ง) x =0.04


30000
25000
20000
15000
10000
5000
0
ε_r
5
4
3
2
1
0
tan δ
ε_r tan δ
1 kHz
10 kHz
100 kHz
20
40
60
80
100
120
140
160
Temperature (°C)

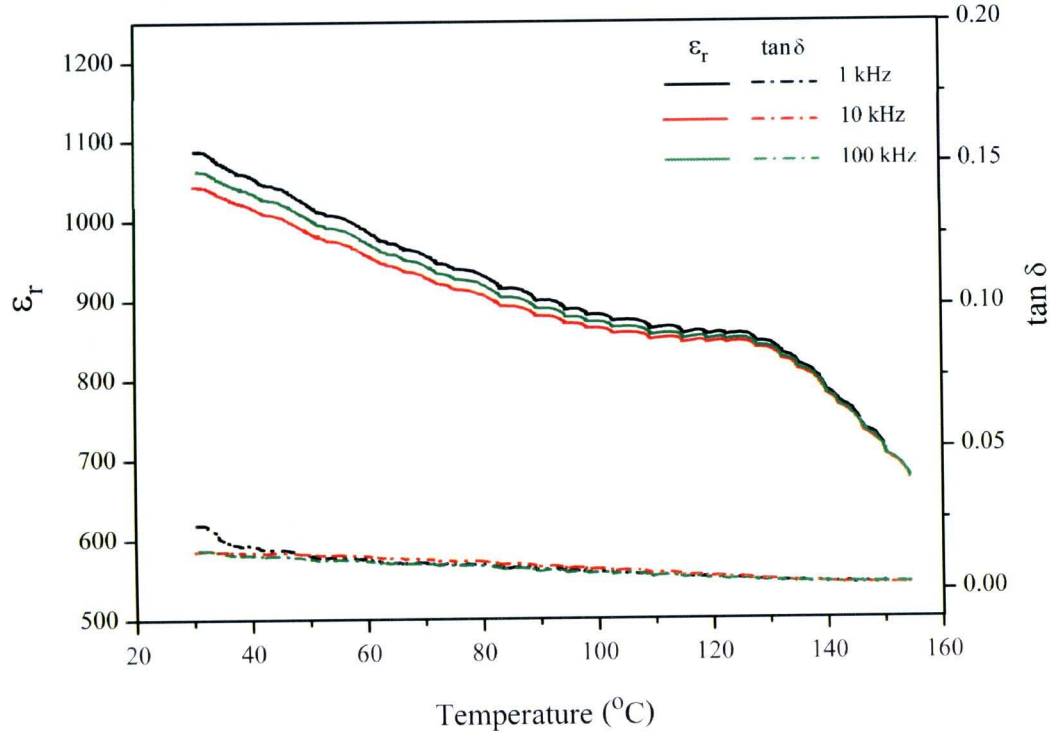
(จ) x =0.05


4000
3500
3000
2500
2000
1500
1000
ε_r
0.20
0.15
0.10
0.05
0.00
tan δ
ε_r tan δ
1 kHz
10 kHz
100 kHz
20
40
60
80
100
120
140
160
Temperature (°C)

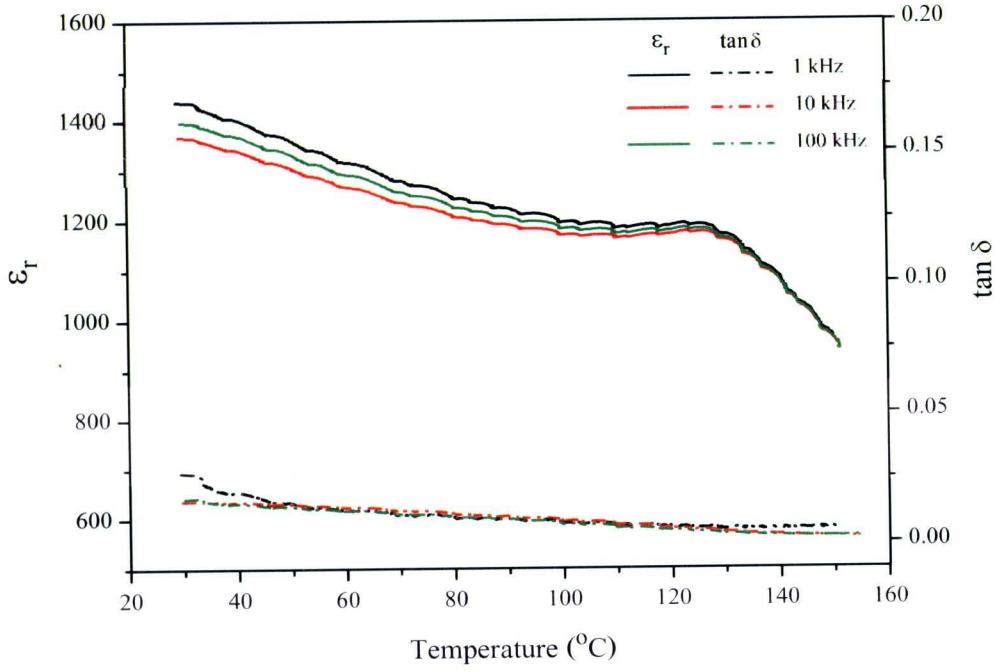
(ฉ) x =0.06


3500
3000
2500
2000
1500
1000
500
ε_r
20
40
60
80
100
120
140
160
Temperature (^{O}C)
0.20
0.15
0.10
0.05
0.00
tan δ
ε_r
tan δ
1 kHz
10 kHz
100 kHz

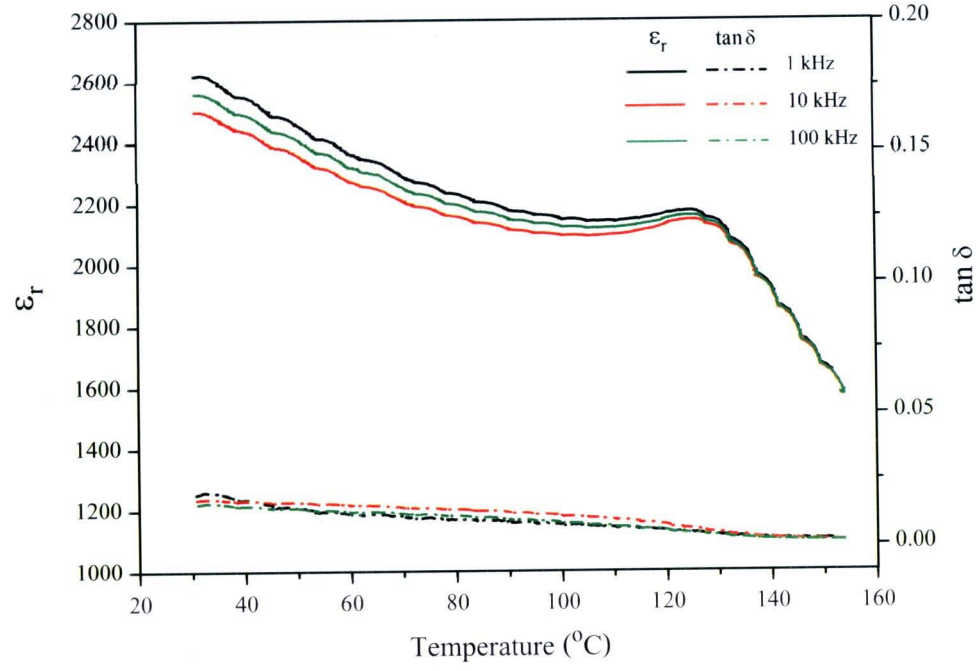
(ඁ) x =0.07


1200
1100
1000
900
800
700
600
500
ε_r
20
40
60
80
100
120
140
160
Temperature (^{O}C)
0.20
0.15
0.10
0.05
0.00
tan δ
ε_r
tan δ
1 kHz
10 kHz
100 kHz

(ඁ) x =0.08

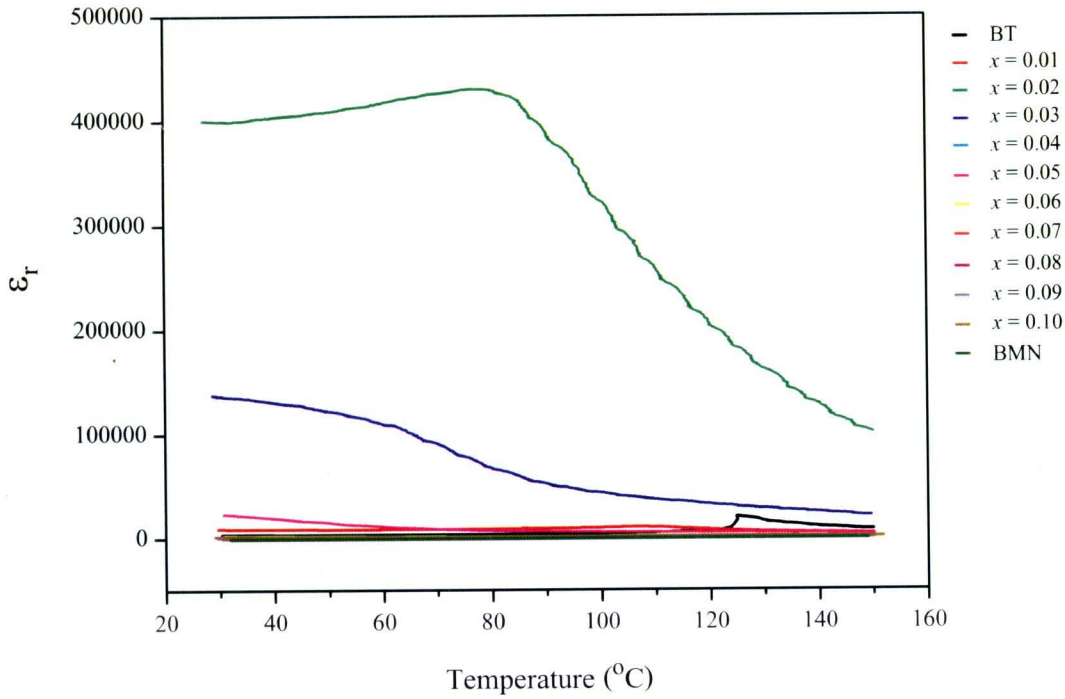


(ฌ) x =0.09



(ญ) x =0.10

รูป 4.28 กราฟค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ε_r) และค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริก (tan δ) กับอุณหภูมิที่ความถี่ต่างๆ ของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN



รูป 4.29 กราฟค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ε_r) กับอุณหภูมิของเซรามิกในระบบ $(1-x)$BT-xBMN ที่ความถี่ 1 kHz

จากตาราง 4.6 แสดงให้เห็นว่าค่าคงที่ไดอิเล็กทริกมีแนวโน้มสูงขึ้นเมื่อ x = 0.01-0.02 และมีค่าลดลงเมื่อเพิ่มปริมาณการเติม BMN คือเมื่อ x มีค่าเท่ากับ 0.03-0.10 เนื่องจากเซรามิกในอัตราส่วนดังกล่าวนี้มีค่าเตตระโกนอลลิตี้ลดลง เนื่องมาจากการเจือ Nb และ Mg ซึ่งสอดคล้องกับงานวิจัยของ Brzozowski และ Nagai [18, 53] ตามลำดับ แสดงถึง BMN เกิดการละลายขึ้นใน BT ซึ่งการลดลงของค่าเตตระโกนอลลิตี้นี้แสดงถึงการเปลี่ยนเฟสจากเตตระโกนอลไปเป็นเฟสแบบคิวบิกทำให้ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกมีค่าลดลงตามไปด้วย นอกจากนี้ยังสังเกตเห็นว่าพีคมีความกว้างมากขึ้นเมื่อเติม BMN ลงไป และเมื่อปริมาณการเจือสูงขึ้นจาก x = 0.03-0.05 พบว่าไม่สามารถสังเกตเห็นอุณหภูมิคูรีซึ่งเป็นอุณหภูมิที่เกิดการเปลี่ยนแปลงเฟส เนื่องจากเกิดการแพร่ของ Mg และ Nb เข้าไปในโครงสร้าง ทำให้องค์ประกอบไม่มีความเป็นเนื้อเดียวกันในระดับไมโครเมตรหรือนาโนเมตร พีคจึงมีความกว้างมากขึ้นที่บริเวณอุณหภูมิคูรี [24]

ตาราง 4.7 ค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ε_r) และค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริก (tan δ) ที่อุณหภูมิคูรีและอุณหภูมิห้องของเซรามิกในระบบ (1-x)BT-xBMN ที่ความถี่ 1 kHz

ปริมาณ BMN (x)	ε_r ที่อุณหภูมิห้อง (30 °ซ)	Tan δ ที่อุณหภูมิห้อง (30 °ซ)	อุณหภูมิคูรี (°ซ)	ε_r ที่อุณหภูมิคูรี	Tan δ ที่อุณหภูมิคูรี
0.00	4100	0.050	125	20174	0.034
0.01	10065	0.792	106	11149	0.571
0.02	400302	0.393	76	430755	0.453
0.03	137691	0.626	-	-	-
0.04	38797	0.633	-	-	-
0.05	24064	0.386	-	-	-
0.06	3351	0.043	125	1939	0.010
0.07	2851	0.021	125	1400	0.006
0.08	1087	0.023	125	857	0.004
0.09	1436	0.027	125	1191	0.006
0.10	2620	0.012	125	1274	0.005