Thesis Title Fabrication and Characterization of Ceramic Nanocomposites in the PMN-PT System

Author Miss Rewadee Wongmaneerung

Degree Doctor of Philosophy (Materials Science)

Thesis Advisory Committee
Assoc. Prof. Dr. Supon Ananta Chairperson
Asst. Prof. Dr. Rattikorn Yimnirun Member
Asst. Prof. Dr. Yongyut Laosiritaworn Member

ABSTRACT

In this research, the relationships between processing conditions, phase formations, microstructures, electrical properties and thermal expansion of PMN-PT ceramic-nanocomposites have been established and compared with those obtained from the typical solid-solution approach. The effect of processing parameters on the arrangement of phases, microstructural evolution and properties of the ceramics was investigated. A comprehensive understanding on lead-based perovskite ceramic nanocomposites was developed as described in the following 3 aspects.

First, single-phase perovskite PMN powders and ceramics can be successfully formed by employing either columbite or corundum *B*-site precursor method via a rapid vibro-milling. Amongst the two *B*-site precursor methods, lower optimized

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved

calcination temperature for the production of pure PMN powders can be obtained by using the columbite-route, whereas the smallest obtainable particle size was found in the corundum-route PMN powders. The presence of MgO in the microstructures of PMN ceramics may lead to the pyrochlore elimination and results in enhancement of the dielectric properties.

Second, PT nanopowders (smallest size ~ 17 nm) with 100% perovskite phase were successfully achieved by employing a rapid virbro-milling technique for 25 h. It was also possible to obtain rather dense PT ceramics with homogeneous microstructure and better dielectric properties by using the two-stage sintering technique (900 ^{o}C/1200 ^{o}C for 2 h).

Finally, ceramic-nanocomposites in the (1-*x*)PMN-*x*PT system were fabricated by using the bimodal particle size packing concept (micronsized PMN + nanosized PT powders). They exhibit the “inter-intragranular type” ceramic-nanocomposites. It was found that their electrical properties and thermal expansion are strongly influenced by the presence of secondary phases and densification mechanism which in turn depend on the processing parameters.

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved

ชื่อเรื่องวิทยานิพนธ์	การประดิษฐ์และการหาลักษณะเฉพาะของเซรามิกนาโนคอมโพสิตในระบบพีเอ็มเอ็น-พีที
ผู้เขียน	นางสาวเรวดี วงศ์มณีรุ่ง
ปริญญา	วิทยาศาสตรดุษฎีบัณฑิต(วัสดุศาสตร์)
คณะกรรมการที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์	รศ. ดร. สุพล อนันตา ประธานกรรมการ
	ผศ. ดร. รัตติกร ยิ้มนิรัญ กรรมการ
	ผศ. ดร. ยงยุทธ เหล่าศิริถาวร กรรมการ

บทคัดย่อ

ในงานวิจัยนี้ ได้ทำการศึกษาถึงความสัมพันธ์ระหว่างเงื่อนไขในกระบวนการเตรียม การเกิดเฟส โครงสร้างจุลภาค สมบัติทางไฟฟ้า และสมบัติทางความร้อนของเซรามิกนาโนคอมโพสิตในระบบ PMN-PT แล้วเปรียบเทียบกับกรณีที่นิยมเตรียมกันในรูปของสารละลายของแข็ง โดยได้ทำการตรวจสอบอิทธิพลของปัจจัยในกระบวนการผลิตที่มีต่อการจัดเรียงเฟส พัฒนาการของโครงสร้างจุลภาค และสมบัติของเซรามิกที่ได้ และได้ค้นพบประมวลองค์ความรู้เกี่ยวกับสารเพอรอฟสไกท์เซรามิกนาโนคอมโพสิตที่มีตะกั่วเป็นองค์ประกอบหลัก 3 ประการ ดังนี้

ประการแรกพบว่า สามารถทำการเตรียมผงและเซรามิก PMN ที่มีเฟสเพอรอฟสไกท์บริสุทธิ์ได้สำเร็จด้วยการใช้เทคนิคการบดย่อยแบบสั่นกระแทก โดยจะใช้สารโคลัมไบท์หรือคอรันดัมเป็นสารตั้งต้นก็ได้ ซึ่งถ้าเลือกใช้เทคนิคโคลัมไบท์พบว่าสามารถเตรียมผง PMN ได้ด้วยการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิต่ำกว่า ในขณะที่ถ้าเลือกใช้เทคนิคคอรันดัมพบว่าสามารถเตรียมผง PMN ที่

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved

มีขนาดอนุภาคเล็กกว่าได้ นอกจากนี้ ยังพบอีกว่าเฟส MgO ที่ปะปนอยู่ในเซรามิก PMN สามารถช่วยยับยั้งการเกิดเฟสไพโรคลอร์และช่วยให้เซรามิกมีสมบัติไดอิเล็กทริกดีขึ้น

ประการที่สองพบว่า สามารถเตรียมผงนาโนของสาร PT (มีขนาดอนุภาคเล็กที่สุด ~ 17 นาโนเมตร) ที่มีความบริสุทธิ์ 100% จากเทคนิคการบดย่อยแบบสั่นกระแทก นาน 25 ชั่วโมงได้สำเร็จ และสามารถนำมาทำการประดิษฐ์เป็นเซรามิก PT ที่มีความหนาแน่นสูง โครงสร้างจุลภาคมีความเป็นเนื้อเดียวกันดี และแสดงสมบัติทางไดอิเล็กทริกที่ดีได้ด้วยการใช้เทคนิคการเผาซินเตอร์แบบสองขั้นตอน (เผาที่ 900 °ซ/1200 °ซ นาน 2 ชั่วโมง)

ประการสุดท้ายพบว่า สามารถทำการประดิษฐ์เซรามิกนาโนคอมโพสิตในระบบ PMN-PT จากการใช้แนวคิดเรื่องการแพคกันของอนุภาคแบบ bimodal (ระหว่างผง PMN ขนาดไมโครเมตรกับผง PT ขนาดนาโนเมตร) ได้สำเร็จ โดยผลิตภัณฑ์ที่ได้มีลักษณะของโครงสร้างจุลภาคคล้ายคลึงกับแบบจำลองของเซรามิกนาโนคอมโพสิตแบบ inter-intragranular นอกจากนี้ ยังพบอีกว่าเฟสปนเปื้อนและกลไกการแน่นตัวซึ่งต่างก็ขึ้นอยู่กับปัจจัยในกระบวนการผลิตนั้น มีอิทธิพลต่อสมบัติทางไฟฟ้าและการขยายตัวทางความร้อนของเซรามิกนาโนคอมโพสิตที่ได้อย่างมาก

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved