Thesis Title Effects of Barium Titanate and Lead Titanate Addition on Relaxor Behavior of Lead Indium Niobate-based Ceramics

Author Miss Supattra Wongsaenmai

Degree Doctor of Philosophy (Materials Science)

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

ABSTRACT

In this study, the effects of barium titanate ($BaTiO_3$ or BT) and lead titanate ($PbTiO_3$ or PT) addition on relaxor behavior of lead indium niobate ($Pb(In_{0.5}Nb_{0.5})O_3$ or PIN)-based ceramics were investigated. The two main parts of this study are to obtain the pure perovskite phase of PIN-based ceramics and to study the relaxor behavior of the PIN-based ceramics.

Firstly, the preparation of the pure perovskite phase PIN-based ceramics was performed. Based on the wolframite precursor method, the solid solution of $Pb(In_{0.5}Nb_{0.5})_{(1-x)}Ti_{(x)}O_3$ and $Pb(In_{0.5}Nb_{0.5})_{(1-x)}Ti_{(x)}O_3$ with 20 mol.% of BT (where x =

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved

0.0, 0.1, 0.2 and 0.3 abbreviated as PINT and PBINT, respectively) ceramics were obtained by a conventional mixed-oxide method via a vibro-milling technique. The thermal behavior of mixed powders, structural phase formation, microstructure, dielectric and ferroelectric properties were investigated. It has been found that the pure perovskite phase was obtained in all compositions except the PIN ceramic, indicating that the addition of PT and BT helped to stabilize perovskite structure of PIN ceramics. In addition, the microstructure, dielectric and ferroelectric properties were found to depend strongly on the ceramic compositions.

Secondly, the analysis of the relaxor behavior was investigated. Dielectric properties were used for analysis of the relaxor behavior of these systems and thermal expansion was also considered for the relaxor behavior analysis. The dielectric properties of both PINT and PBINT ceramics showed deviation from the Curie-Weiss law; however, the results showed that the behavior obeyed the modified Curie-Weiss law. The dielectric properties were also fitted with the Vogel-Fulcher relation which suggested that the relaxor behavior of PINT and PBINT systems followed the glass-like behavior of the relaxor ferroelectric model. The occurrence of the freezing temperatures (T_f), which defined as the macroscopic polarization emerge, was also observed in this study. Finally, the existence of the local polarization (P_d) was also observed in the thermal expansion measurement of all compositions in these systems. The observed relaxor behavior was correlated to the relaxor ferroelectric model as dipolar glass phase defined by T_f obtained from the Vogel-Fulcher relation and P_d obtained from glassy polarization phase of Burns and Dacol's hypothesis. From the experimental results, it can be concluded that the addition of PT into PIN leads the behavior towards a normal ferroelectric while the addition of BT into PIN leads to an enhancement in relaxor behavior.

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved

ชื่อเรื่องวิทยานิพนธ์ ผลของการเติมแบเรียมไทเทเนตและเลดไทเทเนตต่อพฤติกรรมรีแลกเซอร์ของเซรามิกที่มีเลดอินเดียมไนโอเบตเป็นหลัก

ผู้เขียน นางสาว สุพัตรา วงศ์แสนใหม่

ปริญญา วิทยาศาสตรดุษฎีบัณฑิต (วัสดุศาสตร์)

คณะกรรมการที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์

ผศ. ดร. รัตติกร ยิ้มนิรัญ	ประธานกรรมการ
รศ. ดร. สุพล อนันตา	กรรมการ
ผศ. ดร. ยงยุทธ เหล่าศิริถาวร	กรรมการ

บทคัดย่อ

ในงานวิจัยนี้ได้ทำการศึกษาผลของการเติมแบเรียมไทเทเนต ($BaTiO_3$ หรือ BT) และเลดไทเทเนต ($PbTiO_3$ หรือ PT) ต่อพฤติกรรมรีแลกเซอร์ของเซรามิกที่มีเลดอินเดียมไนโอเบต ($Pb(In_{0.5}Nb_{0.5})O_3$ หรือ PIN) เป็นหลัก โดยการศึกษานี้ได้แบ่งเป็นสองประเด็นหลักด้วยกัน

ประเด็นแรกการเตรียมสารเซรามิกที่มีโครงสร้างแบบเพอรอพสไกด์เฟสบริสุทธิ์ โดยเริ่มจากการเตรียมสารละลายของแข็งในระบบ $Pb(In_{0.5}Nb_{0.5})_{(1-x)}Ti_{(x)}O_3$ and $Pb(In_{0.5}Nb_{0.5})_{(1-x)}Ti_{(x)}O_3$ เติมด้วย 20 % โดยโมล ของสารแบเรียมไทเทเนต เมื่อ x = 0.0, 0.1, 0.2, 0.3 (โดยใช้อักษรย่อเป็น PINT และ PBINT ตามลำดับ) ด้วยวิธีการผสมแบบดั้งเดิม โดยใช้วิธีการสารตั้งต้นวูลฟราไมท์ ร่วมกับ

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved

เทคนิคการบดย่อยแบบสั่นกระแทก พร้อมกับทำการศึกษาพฤติกรรมทางความร้อนของผงผสม การเกิดเฟส โครงสร้างทางจุลภาค สมบัติไดอิเล็กทริก และสมบัติเฟร์โรอิเล็กทริกของสารเซรามิกที่เตรียมได้ จากผลการทดลองพบว่าสามารถเตรียมสารเซรามิกในระบบ PINT และ PBINT ที่มีโครงสร้างแบบเพอรอพสไกด์เฟสบริสุทธิ์ได้สำเร็จ แต่อย่างไรก็ตามไม่สามารถเตรียมสารเซรามิก PIN ที่มีโครงสร้างแบบเพอรอพสไกด์เฟสบริสุทธิ์ได้ ซึ่งแสดงให้เห็นว่าการเติมสาร BT และ PT ช่วยทำให้โครงสร้างแบบเพอรอพสไกด์เกิดความเสถียรในสารเซรามิกที่มี PIN เป็นองค์ประกอบหลัก

สำหรับประเด็นที่สอง ได้ทำการศึกษาพฤติกรรมรีแลกเซอร์ของสารเซรามิกที่เตรียมได้ โดยสมบัติไดอิเล็กทริกถูกนำมาใช้ในการวิเคราะห์พฤติกรรมรีแลกเซอร์ และผลจากการวัดการขยายตัวเชิงความร้อนถูกนำมาใช้ร่วมในการวิเคราะห์พฤติกรรมรีแลกเซอร์ด้วย ผลการทดลองพบว่าสมบัติไดอิเล็กทริกแสดงการเบี่ยงเบนจากกฎคูรีไวสส์ แต่อย่างไรก็ตามสมบัติไดอิเล็กทริกกลับแสดงพฤติกรรมตามกฎคูรีไวสส์ที่ถูกดัดแปลง สมบัติไดอิเล็กทริกถูกนำมาใช้ในการวิเคราะห์พฤติกรรมรีแลกเซอร์กับความสัมพันธ์โวเจล-ฟิลเชอร์ ซึ่งพบว่าสารเซรามิกทั้ง PINT และ PBINT แสดงพฤติกรรมรีแลกเซอร์คล้อยตามพฤติกรรมคล้ายแก้วของรูปแบบการเป็นรีแลกเซอร์เฟร์โรอิเล็กทริก นอกจากนี้ยังพบการเกิดขึ้นของตัวแปรอุณหภูมิการแข็งตัว T_f ซึ่งสามารถแสดงถึงการเกิดขึ้นของโพลาไรเซชั่นในระดับมหภาค สุดท้ายตัวแปรโพลาไรเซชั่นเฉพาะที่ P_d ได้จากจากการทำการวัดการขยายตัวเชิงความร้อนในทั้งสองระบบสารเซรามิก PINT และ PBINT ซึ่งสิ่งเหล่านี้แสดงให้เห็นถึงความสัมพันธ์ของพฤติกรรมรีแลกเซอร์ที่เป็นไปตามรูปแบบการเป็นรีแลกเซอร์เฟร์โรอิเล็กทริก ซึ่งแสดงได้จาก T_f จากความสัมพันธ์โวเจล-ฟิลเชอร์ และ P_d จากการเกิดเฟสโพลาไรเซชั่นแบบแก้ว ตามข้อสันนิษฐานของ Burns และ Dacol's จากผลการทดลองสามารถกล่าวได้ว่าการเติม PT เข้าไปใน PIN จะนำไปสู่พฤติกรรมการเป็นเฟร์โรอิเล็กทริกแบบปกติ ในขณะที่ การเติม BT เข้าไปใน PIN จะนำไปสู่พฤติกรรมการเป็นเฟร์โรอิเล็กทริกรีแลกเซอร์

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved