Thesis Title Fabrication of Lead Zirconate Titanate and Niobium-Doped Lead Zirconate Titanate Ceramics Synthesized by a Triol Sol-Gel Process

Author Miss Chontira Sangsubun

Degree Doctor of Philosophy (Materials Science)

Thesis Advisory Committee

Asst. Prof. Dr. Sukanda Jiansirisomboon Chairperson

Asst. Prof. Dr. Anucha Watcharapasorn Member

Dr. Manoch Naksata Member

ABSTRACT

This research studies a fabrication of lead zirconate titanate (PZT) and niobium-doped lead zirconate titanate (PZTN) ceramics by a triol sol-gel process. PZT and PZTN ceramics were prepared from a hybrid method between a mixture of a conventional mixed-oxide PZT powder with the particles as large as 1 μm, and a PZT and PZTN sol synthesized by a triol sol-gel method. The latter provided small particles of ~20-100 nm and 10-50 nm, respectively, after being calcined at 600 °C. These mixtures thus *so called* 'sol-bonded PZT powder' and 'sol-bonded PZTN-PZT powder', respectively.

Thermal behavior of the powders, structural phase formation and microstructures were investigated. It was found that the pure perovskite phases were

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright © by Chiang Mai University
All rights reserved

obtained in PZT and PZTN nano powders at the calcination temperature of 600 °C. These powders were well sintered at 1100 °C for 6 h, where homogeneous microstructures with small grain size ~1.8 and 1.7 μm for PZT and PZTN ceramics were obtained. It was shown that preparation by triol sol-gel process could reduce both calcination and sintering temperatures to much lower than the one used in the mixed-oxide process. Moreover, it was found that preparation of PZT ceramic from sol-bonded PZT powders could improve the value of dielectric constant. While, an addition of Nb into PZT helped to improve dielectric properties and decrease grain size when compared with undoped PZT ceramics.

For the sol-bonded PZTN-PZT ceramics prepared by triol sol-gel and mixed-oxide powders showed that the value of dielectric constant was higher than that of PZTN ceramics. Comparison of PZT, PZTN, sol-bonded PZT and sol-bonded PZTN-PZT ceramics fabricated at the optimized sintering temperature of 1100 °C showed that relatively high density of 97% with homogeneous microstructure could be achieved for sol-bonded PZT sample and its dielectric constant showed a maximum value of 1471 at room temperature. However, an addition of Nb resulted in a maximum value of the remanent polarization, P_r of 20 μCcm^{-2} with a minimum value of coercive field, E_c of 7.6 kVcm^{-1} in comparison with the other three types of ceramic obtained in this research.

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved

ชื่อเรื่องวิทยานิพนธ์ การเตรียมเซรามิกเลดเซอร์โคเนตไทเทเนตและเลดเซอร์โคเนตไทเทเนตถูกเจือด้วยไนโอเบียมที่สังเคราะห์โดยกระบวนการไตรออลซอล-เจล

ผู้เขียน นางสาวชลธิรา แสงสุบัน

ปริญญา วิทยาศาสตรดุษฎีบัณฑิต (วัสดุศาสตร์)

คณะกรรมการที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์

ผศ. ดร. สุกานดา เจียรศิริสมบูรณ์	ประธานกรรมการ
ผศ. ดร. อนุชา วัชระภาสร	กรรมการ
ดร. มาโนช นาคสาทา	กรรมการ

บทคัดย่อ

งานวิจัยนี้ได้ทำการศึกษาการเตรียมเซรามิกเลดเซอร์โคเนตไทเทเนต (PZT) และเลดเซอร์โคเนตไทเทเนตถูกเจือด้วยไนโอเบียม (PZTN) ที่สังเคราะห์โดยกระบวนการไตรออลซอล-เจล เซรามิก PZT และ PZTN ที่เตรียมจากการผสมกันของผง PZT โดยกระบวนการผสมออกไซด์ ซึ่งผง PZT ที่เตรียมได้มีขนาดอนุภาคอยู่ในช่วงประมาณ 1 ไมโครเมตร ผสมกับสารละลาย PZT และสารละลาย PZTN ด้วยการสังเคราะห์จากกระบวนการไตรออลซอล-เจล ซึ่งมีขนาดอนุภาคผงอยู่ในช่วงประมาณ 20-100 นาโนเมตร และ 10-50 นาโนเมตร ตามลำดับ หลังจากทำการเผาแคลไซน์ที่ 600 องศาเซลเซียส ซึ่งวิธีการผสมแบบนี้เรียกว่า ‘ซอลเชื่อมผง PZT’ (sol-bonded PZT powder) และ ‘ซอลเชื่อมผง PZTN-PZT’ (sol-bonded PZTN-PZT) จากการวิเคราะห์พฤติกรรมทางความร้อนของผง การเกิดเฟสและโครงสร้างทางจุลภาค พบว่าผงนาโน PZT และ PZTN ซึ่งผ่านการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 600 องศาเซลเซียส ปรากฏเฟสที่บริสุทธิ์ของโครงสร้างแบบเพอรอฟสไกด์เฟสบริสุทธิ์ด้วย และผงที่เตรียมได้เหล่านี้ผ่านกระบวนการเผาซินเตอร์ได้ดีที่อุณหภูมิ 1100 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 6 ชั่วโมง พบว่าเซรามิก PZT และ PZTN จะมีโครงสร้างจุลภาคที่มีความเป็นเนื้อเดียวกัน ขนาดของเกรนมีขนาดเล็กซึ่งอยู่ในช่วงประมาณ 1.8 ไมโครเมตร และ 1.7 ไมโครเมตร จากผลการทดลองนี้แสดงให้เห็นว่า กระบวนการเตรียมแบบไตรออลซอล-เจล สามารถช่วยลดอุณหภูมิในการเผาแคลไซน์และอุณหภูมิในการเผาซินเตอร์ให้มีค่าลดลง เมื่อ

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved

เปรียบเทียบกับกระบวนการเตรียมแบบผสมออกไซด์ นอกจากนี้ยังพบอีกว่าการเตรียมเซรามิก PZT จากซอล เชื่อมผง PZT สามารถช่วยปรับปรุงค่าคงที่ไดอิเล็กทริกได้ ในขณะที่การเติม Nb ใน PZT จะช่วยปรับปรุงคุณสมบัติไดอิเล็กทริกและช่วยลดขนาดของเกรนให้เล็กลง เมื่อเปรียบเทียบกับเซรามิก PZT ที่ไม่ได้เติมสารเจือ สำหรับการเตรียมเซรามิกจากซอลเชื่อมผง PZTN-PZT ที่เตรียมผงโดยวิธีไตรออลซอล-เจลและวิธีแบบผสมออกไซด์ แสดงให้เห็นว่าค่าคงที่ไดอิเล็กทริกมีค่าเพิ่มสูงขึ้น เมื่อเทียบกับเซรามิก PZTN ต่อมาเมื่อเปรียบเทียบเซรามิก PZT, PZTN, ซอลเชื่อมผง PZT และ ซอลเชื่อมผง PZTN-PZT ด้วยการเผาซินเตอร์ ที่อุณหภูมิ 1100 องศาเซลเซียส พบว่าเซรามิกที่ให้ค่าความหนาแน่นสูงมีค่าเท่ากับ 97% ด้วยโครงสร้างทางจุลภาค ที่มีความเป็นเนื้อเดียวกันสามารถเตรียมได้จากสารตัวอย่างซอลเชื่อมผง PZT ซึ่งจากผลการทดลองนี้ ส่งผลให้สารตัวอย่างมีค่าคงที่ไดอิเล็กทริกสูงสุดด้วยโดยมีค่าเท่ากับ 1471 แต่อย่างไรก็ตามการเติม Nb ส่งผลให้ค่าสภาพคงเหลือของโพลาไรเซชัน (P_r) มีค่าสูงสุดโดยมีค่าเท่ากับ 20 ไมโครคูลอมบ์ต่อตารางเซนติเมตร และค่าสนามลบล้างแม่เหล็ก (E_c) ต่ำสุดมีค่าเท่ากับ 7.6 กิโลโวลต์ต่อเซนติเมตร เมื่อเปรียบเทียบกับเซรามิกทั้งสามชนิดในการทดลองนี้

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved