ชื่อเรื่อง การปรับปรุงสมบัติไพอิโซอิเล็กทริกของเซรามิก BNT โดยการเจือสาร BCTS ที่สังเคราะห์ด้วยวิธีการเผาไหม้

ผู้วิจัย ดร.จิตรกร กรพรม

หน่วยงาน ภาควิชาฟิสิกส์และวิทยาศาสตร์ทั่วไป คณะวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยี

ปีที่จัดพิมพ์ 2561

บทคัดย่อ

งานวิจัยนี้ศึกษาผลของอุณหภูมิที่มีต่อโครงสร้างผลึก โครงสร้างจุลภาคและสมบัติทางไฟฟ้าของผงผลึกและเซรามิก $(Ba_{0.945}Ca_{0.055})(Ti_{0.910}Sn_{0.09})O_3$ (BCTS) และ $(Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO_3)$-$0.06(Ba_{0.945}Ca_{0.055})(Sn_{0.09}Ti_{0.91})O_3$:(0.94BNT-0.06BCST) ที่เตรียมด้วยวิธีการเผาไหม้และใช้ไกลซีนเป็นเชื้อเพลิง ศึกษาศึกษาโครงสร้างผลึก โครงสร้างจุลภาค สมบัติทางกายภาพและสมบัติทางไฟฟ้าของผงผลึกและเซรามิก นอกจากนั้นงานวิจัยนี้ศึกษาผลของการเจือสาร BCTS ในเซรามิก BNT ที่มีต่อโครงสร้างผลึกและสมบัติไพอิโซอิเล็กทริก

การศึกษาของผลของอุณหภูมิการเผา (แคลไซน์ที่อุณหภูมิ 1050 และ 1250 องศาเซลเซียส และซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1325 และ 1450 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง) ที่มีต่อการก่อเกิดเฟส โครงสร้างจุลภาค สมบัติไดอิเล็กทริก และพฤติกรรมความเครียดของเซรามิกไพอิโซอิเล็กทริกไร้สารตะกั่ว $(Ba_{0.945}Ca_{0.055})(Ti_{0.910}Sn_{0.09})O_3$ (BCTS) ที่เตรียมด้วยวิธีการเผาไหม้แบบสถานะของแข็ง โดยใช้ไกลซีนเป็นเชื้อเพลิง พบว่าผงผลึก BCTS ที่มีโครงสร้างเพอรอฟสไกต์บริสุทธิ์สามารถเตรียมได้โดยใช้เงื่อนไขการแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 1150 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง โครงสร้างจุลภาคของอนุภาคมีรูปร่างค่อนข้างกลมและเกาะกลุ่มกันขนาดใหญ่ในทุกตัวอย่าง ขนาดอนุภาคเฉลี่ยเพิ่มขึ้นจาก 158 เป็น 233 นาโนเมตร เมื่ออุณหภูมิแคลไซน์เพิ่มขึ้น จากผล XRD พบว่าเซรามิกแสดงโครงสร้างเฟสเดี่ยวแบบเพอรอฟสไกต์ในทุกตัวอย่าง และจากการวิเคราะห์ด้วยวิธี Rietveld refinement พบว่าที่อุณหภูมิซินเตอร์ 1450 องศาเซลเซียส เซรามิกแสดงโครงสร้างเฟสผสมของออร์โธรอมบิก (O) เททระโกนัล (T) และ รอมโบฮีดรัล (R) ในขณะที่อุณหภูมิการซินเตอร์อื่นๆ แสดงโครงสร้างเฟสร่วมระหว่าง O+T ขนาดเกรนเฉลี่ย ค่าความหนาแน่น ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกที่อุณหภูมิ คูรี ร้อยละเปอร์เซ็นต์ความเครียดและ d_{33}* เพิ่มขึ้น เมื่ออุณหภูมิซินเตอร์เพิ่มขึ้นจนถึง 1400 องศาเซลเซียส แล้วลดลง ที่อุณหภูมิซินเตอร์ 1400 องศาเซลเซียส เซรามิกแสดงโครงสร้างเฟสผสมของ O+T+R โครงสร้างจุลภาคที่ดี ค่าความหนาแน่นสูงสุด (98%) ค่าคงที่ไดอิเล็กทริก ($\varepsilon_c \cong 16252$) และ ค่า d_{33}* (866 pm/V) ที่ดีเยี่ยม

การศึกษาผลของอุณหภูมิแคลไซน์ (600 ถึง 900 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง) และอุณหภูมิซินเตอร์ (1100 ถึง 1200 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง) ที่มีต่อการก่อเกิดเฟส โครงสร้างจุลภาคและสมบัติทางไฟฟ้าของผงผลึกและเซรามิก $0.94(Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO_3)0.06(Ba_{0.945}Ca_{0.055})(Sn_{0.09}Ti_{0.91})O_3$:(0.94BNT-0.06BCST) ปราศจากตะกั่ว ที่เตรียมด้วยวิธีการเผาไหม้ โดยใช้ไกลซีนเป็นเชื้อเพลิง พบว่าผงผลึกแสดงโครงสร้างเฟสเดี่ยวเพอรอฟสไกต์บริสุทธิ์ที่อุณหภูมิแคลไซน์ 650 องศาเซลเซียส ขนาดอนุภาคเฉลี่ยเพิ่มขึ้นจาก 210 เป็น 300 nm เมื่ออุณหภมิแคลไซน์เพิ่มขึ้นจาก 600

เป็น 900 องศาเซลเซียส เซรามิกแสดงโครงสร้างเฟสผสมระหว่างรอมโบฮีดรัลและเททระโกนัลในทุกตัวอย่าง ขนาดเกรนเฉลี่ยเพิ่มขึ้นเมื่ออุณหภูมิซินเตอร์เพิ่มขึ้น ความหนาแน่น ค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ε_r และ ε_m) สมบัติเฟร์โรอิเล็กทริกและค่าสัมประสิทธิ์ไพอิโซอิเล็กทริกมีค่าเพิ่มขึ้นเมื่ออุณหภูมิเพิ่มขึ้นไปจนถึง 1150 องศาเซลเซียส จากนั้นมีค่าลดลง ที่อุณหภูมิซินเตอร์ 1150 องศาเซลเซียส เซรามิก 0.94BNT-0.06BCTS แสดงค่าความหนาแน่นสูง (5.95 g/cm^3) ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกสูงสุด ε_m = 6210 สมบัติเฟร์โรอิเล็กทริกที่ดี (P_r =42.88 μc/cm^2, E_c = 37.34 kV/cm) และค่าสัมประสิทธิ์ไพอิโซอิเล็กทริกสูงสุด (d_{33} = 189 pC/N)

จุดประสงค์ของงานวิจัยนี้มุ่งเน้นปรับปรุงสมบัติไพอิโวอิเล็กทริกของเซรามิก BNT โดยการเจือสาร BCTS ตามสมการเคมี (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ x เท่ากับ 0.03-0.09 เตรียมด้วยวิธีการเผาไหม้ ศึกษาผลของปริมาณ x ที่มีต่อโครงสร้างผลึก โครงสร้างจุลภาค และสมบัติไพอิโซอิเล็กทริกของเซรามิก (1-x)BNT-xBCST พบว่าเซรามิกที่ปริมาณ x = 0.03 ตัวอย่างแสดงโครงสร้างเฟสแบบเททระโกนอลที่ไม่สมบูรณ์ และเมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้นจาก 0.04 ถึง 0.07 เซรามิกแสดงโครงสร้างเฟสแบบผสมระหว่างรอมโบฮีดรัลและเททระโกนัล ในขณะที่ตัวอย่างที่ปริมาณ x เพิ่มขึ้นระหว่าง 0.08-0.09 เซรามิกมีโครงสร้างเฟสที่เป็นเททระโกนอลมากขึ้น เมื่อปริมาณ x มากขึ้น โครงสร้างจุลภาคของเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ x เท่ากับ 0.03 ถึง 0.09 เกรนเซรามิกมีลักษณะเป็นทรงหลายเหลี่ยมและมีการผลึกนึกตัวของเกรนดีในทุกอัตราส่วน โดยขนาดเกรนเฉลี่ยและค่าความหนาแน่นมีค่าเพิ่มขึ้นเมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้นจนถึง 0.07 หลังจากนั้นมีค่าลดลง สำหรับสมบัติเฟร์โรอิเล็กทริกและค่าสัมประสิทธิ์ไพอิโซอิเล็กทริกของเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ x เท่ากับ 0.03 ถึง 0.09 พบว่าที่ปริมาณการเจือสาร BCTS ที่ปริมาณ x เท่ากับ 0.07 แสดงสมบัติเฟร์โรอิเล็กทริกและค่าสัมประสิทธิ์ไพอิโซอิเล็กทริกที่ดีที่สุดโดยมีค่า P_r =32 μc/cm^2, E_c = 18 kV/cm และ $d_{33} \cong$ 202 pC/N จากผลการทดลองแสดงให้เห็นว่าการเจือสาร BCTS ในปริมาณที่เหมาะสมสามารถพัฒนาค่าสัมประสิทธิ์ไพอิโซอิเล็กทริกของเซรามิก BNT ได้ ทำให้เพิ่มประสิทธิ์ที่ภาพของเซรามิกที่ปราศจากตะกั่วในการนำไปประยุกต์ใช้งานในอุปกรณ์อิเล็กทรอนิกส์ต่อไป

คำสำคัญ: BNT-BCTS เซรามิกพิโซอิเล็กทริก วิธีการเผาไหม้ โครงสร้างผลึก

Title Improvement of piezoelectric properties of BNT ceramics with BCTS doping synthesized via combustion technique

Author Dr.Chittakron Kronphom

Faculty/Department: General Science and Physics Faculty of Science and Technology

Keywords BNT-BCTS, combustion technique, piezoelectric ceramic, Crystal structure

Published Year: 2018

ABSTRACT

In this study, the effects of firing temperature on the phase formation, microstructure and electrical properties of $(Ba_{0.945}Ca_{0.055})(Ti_{0.910}Sn_{0.09})O_3$ (BCTS) and $(Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO_3)$-0.06$(Ba_{0.945}Ca_{0.055})(Sn_{0.09}Ti_{0.91})O_3$:(0.94BNT-0.06BCST) ceramics were investigated. These ceramics were prepared by combustion technique and glycine was used as fuel to reduce the reaction temperature. The crystal structure, microstructure, density and electrical properties of the powders and ceramics were studied.

The study of the influence of the firing temperatures (calcination temperatures between 1050 and 1250 °C, sintering temperatures between 1325 and 1450 °C) on the phase evolution, microstructure, dielectric and strain behavior of $(Ba_{0.945}Ca_{0.055})$-$(Ti_{0.91}Sn_{0.09})O_3$ lead-free piezoelectric ceramics was studied. The solid state combustion technique used to prepare BCTS ceramics used glycine as fuel. Pure BCTS powders with a perovskite structure were obtained by the sample calcined at 1150 °C for 2 h. The particle morphology of the BCTS powders exhibited a rather rounded shape and a large agglomerated form in all samples. The average particle size increased from 153 to 223 nm when the calcination temperature was increased. The XRD result of all sintered samples showed they all had a single perovskite structure. The Rietveld refinement analysis indicated that the BCTS ceramics sintered at 1450 °C had the orthorhombic (O), tetragonal (T) and rhombohedral (R) phases coexisting and the O+T phases coexisted in the other samples. The average grain size, density, dielectric constant (at Tc), %strain and d33* increased when the sintering temperature was increased up to 1400 °C and then, reduced in values. At the optimum sintering temperature (1400 °C), BCTS ceramic showed multi phases (O+T+R), good crystalline morphology, highest density (98%), excellent dielectric constant ($\boldsymbol{\varepsilon_c} \cong 16252$) and d_{33}* value (866 pm/V).

The study of the effects of calcination temperature (600-900°C for 2 h) and sintering temperature (1100-1200°C for 2 h) on phase formation, microstructure,

electrical properties of the $0.94(Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO_3)$-$0.06(Ba_{0.945}Ca_{0.055})(Sn_{0.09}Ti_{0.91})O_3$:(0.94BNT-0.06BCST) lead-free piezoelectric ceramics were investigated. These ceramics were fabricated by the solid state combustion technique using glycine as fuel. It was found that single perovskite phase of 0.94BNT-0.06BCST powders is obtained by the sample calcined at 650°C for 2 h. The microstructure of the 0.94BNT-0.06BCST powders showed an almost-circle shape and the average particle size increased from 210 to 300 nm when calcination temperature increased from 600 to 900°C. The XRD pattern of all ceramics presented a single perovskite structure with the co-existence of the rhombohedral and tetragonal phases. The average grain size increased with increasing sintering temperature. The density, dielectric constant (ε_r and ε_m) and piezoelectric constant (d_{33}) increased when sintering temperature increased up to 1150°C and then reduced in values. By sintering temperature of 1150°C, 0.94BNT-0.06BCTS ceramic exhibited the highest density (5.95 g/cm^3), the highest dielectric constant at Tm (ε_m =6210), the strongest ferroelectric properties (P_r =42.88 μc/cm^2, E_c = 37.34 kV/cm) and the highest d_{33} value (189 pC/N).

The objective of this work is to modify the piezoelectric properties of BNT ceramics by the addition of BCTS compound with the formula of (1-x)BNT–xBCTS lead-free piezoelectric ceramics with an x content from 0.03 to 0.09 were prepared via the combustion technique. The affectation of x content on the structure evolution, morphology and piezoelectric properties of these ceramics were examined. At x content of 0.03, the sample sowed defective tetragonal structure. When the x content increase from 0.04 to 0.07, the ceramics exhibited the coexistence of phase formation between tetragonal and rhombohedral structure. While, the sample with x content of 0.08-0.09 showed the tetragonallity when x content increased. The microstructure exhibited a poly rectangular shape in all samples. The average grain size and the density increased with increasing x content up to 0.07 and then drop to values. For the ferroelectric property and d33 value of (1-x)BNT–xBCTS ceramics, it was found that the best of ferroelectric property and d33 value as P_r =32 μc/cm^2, E_c = 18 kV/cm and d_{33} ≅ 202 pC/N were obtained by x content of 0.07. This result showed that the addition of BCTS compound into BNT ceramic can be improved the piezoelectricity of BNT ceramics which enhanced the performance of lead-free ceramics for applied as electronic devices.

Keywords: BNT-BCTS, combustion technique, piezoelectric ceramic, Crystal structure