



การศึกษาโครงสร้างอะตอมเชิงลึกและการเปลี่ยนโครงสร้างเฟสที่มีต่อสมบัติไพเอโซอิเล็กทริกของเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ด้วยใช้แสงซินโครตรอนและเทคนิครามาน สเปกโตรสโคปี

The Study of Local Atomic Structure and Phase Transition with Effecting on Piezoelectric Property of (1-x)BNT-xBCST Ceramics by Using Synchrotron and Raman Spectroscopy Technique

จิตรกร กรพรม^{1*}, ณัฐฐนันท์ เรียบเรียง¹, พัสสนันท์ แสงโสดา²,ธีระชัย บงการณ³ และ ปินิจ กิจขุนทด⁴

Chittakorn Kronphom^{1*}, Nathanan Reabreang¹, Passanan Sangsoda²,

Theerachai Bongkarn³ and Pinit Kidkhunthod⁴

¹ภาควิชาฟิสิกส์และวิทยาศาสตร์ทั่วไป คณะวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยี มหาวิทยาลัยราชภัฏเชียงใหม่

²ภาควิชาวิทยาศาสตร์สิ่งแวดล้อม คณะวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยี มหาวิทยาลัยราชภัฏเชียงใหม่

³ภาควิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยนเรศวร

⁴สถาบันวิจัยแสงซินโครตรอน (องค์การมหาชน)

¹Department of General Sciences and Physics, Faculty of Science and Technology, Chiang Mai Rajabhat University

²Department of Environment Science, Faculty of Science and Technology, Chiang Mai Rajabhat University

³Department of Physics, Faculty of Science, Naresuan University

⁴Synchrotron Light Research Institute (Public Organization)

Received : 12 January 2021

Revised : 23 June 2021

Accepted : 2 July 2021

บทคัดย่อ

งานวิจัยนี้เป็นการศึกษาโครงสร้างเฟส โครงสร้างอะตอมเชิงลึกและการเปลี่ยนเฟสที่มีต่อสมบัติไพเอโซอิเล็กทริกของเซรามิก (1-x)(Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO₃-x(Ba_{0.945}Ca_{0.055})(Ti_{0.9946}Sn_{0.0054})O₃ [(1-x)BNT-xBCST] ที่ปริมาณ x ต่างๆ เตรียมด้วยเทคนิคการเผาไหม้ของแข็ง โดยใช้โกลด์ซีนเป็นเชื้อเพลิง ผลการศึกษาพบว่าเซรามิก (1-x)BNT-xBCST แสดงโครงสร้างผลึกแบบผสมระหว่างรอมโบอีไดรัลและเททระโกนัลในทุกตัวอย่าง และจากผล XANES พบว่าการเจือสาร BCST ที่มาก x เพิ่มขึ้นส่งผลต่อการเปลี่ยนแปลงของตำแหน่งอะตอม Ti ทำให้เกิดการเปลี่ยนโครงสร้างผลึก จากผลการศึกษาลักษณะโครงสร้างด้วยเทคนิครามานสเปกโตรสโคปี พบว่ารามานสเปกตรัมสามารถยืนยันได้ว่าเซรามิกแสดงโครงสร้างเฟสแบบผสมระหว่างรอมโบอีไดรัลและเททระโกนัลที่ปริมาณ x = 0.04 และเมื่อปริมาณ x มากขึ้นกว่า 0.04 เซรามิกแสดงโครงสร้างผลึกที่เป็นเททระโกนอลที่มากขึ้น และค่าสัมประสิทธิ์ไพเอโซอิเล็กทริก (d₃₃) มีการเพิ่มขึ้นเมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้นถึง 0.07 และหลังจากนั้นมีค่าลดลงที่ ซึ่งที่ปริมาณ x เท่ากับ 0.07 ตัวอย่างเซรามิกมีความหนาแน่นสูงสุด (5.93 g/cm³) และค่า d₃₃ สูงสุด (202 pC/N)

คำสำคัญ : (1-x)BNT-xBCST ; วิธีการเผาไหม้ของแข็ง ; โครงสร้างเฟส ; โครงสร้างเชิงลึก ; สมบัติไพเอโซอิเล็กทริก



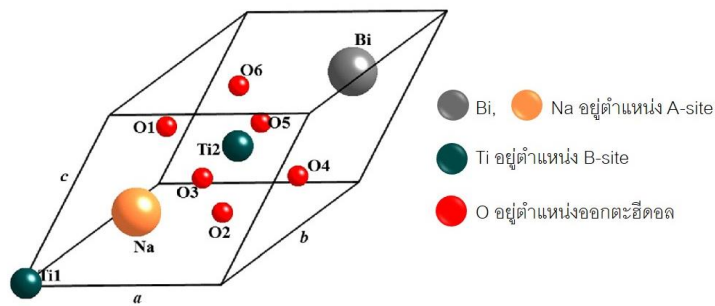
Abstract

In this research, the study of the phase formation, the local atomic structure and phase transition on piezoelectric property of (1-x)BNT-xBCST solid solutions at various of x content prepared via the solid state combustion technique, using glycine as fuel, were studied. The study results, it was found that (1-x) BNT-xBCST ceramics exhibited a single perovskite structure with the co-existence of the rhombohedral and tetragonal phases. Then, it was observed that the concentration of BCST compound with increasing of x affected the Ti atom position which led to change phase formation. From the Raman spectroscopy result, it can be see that the Raman spectrum can confirmed the co-existence of the rhombohedral and tetragonal phases at $x = 0.04$. When x content over 0.04, the ceramics showed higher tetragonal phase. The piezoelectric coefficient (d_{33}) increases when x content increases up to 0.07 and then decreased. At x content of 0.07, the sample has the highest density (5.93 g / cm^3) and the highest d_{33} (202 pC/N).

Keywords : (1-x)BNT-xBCST ; solid state combustion technique ; phase formation ; local structure ; piezoelectric property

บทนำ

เซรามิกบิสมาทโซเดียมไททานेट ($\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$) หรือ BNT เป็นเซรามิกไพโซอิเล็กทริกปราศจากตะกั่วชนิดหนึ่งที่ได้รับ ความสนใจเป็นอย่างมากในปัจจุบัน เนื่องจากเซรามิก BNT แสดงโครงสร้างผลึกเพอโรฟสไกต์ (Perovskite; ABO_3) แบบบรอมโบอีตรอล (Rhombohedral) ที่อุณหภูมิห้อง โดยลักษณะโครงสร้างเพอโรฟสไกต์แบบบรอมโบอีตรอลของเซรามิก BNT แสดงในภาพที่ 1 (Niranjan, 2013) สำหรับสมบัติทางไฟฟ้าของเซรามิก BNT แสดงค่าสภาพขั้วคงค้างสูง ($P_r \sim 38 \mu\text{C}/\text{cm}^2$) อย่างไรก็ตามเซรามิกดังกล่าว มีค่าสนามไฟฟ้าลบล้างที่สูง ($E_c = 73 \text{ kV}/\text{mm}$) ประกอบกับมีค่าการนำไฟฟ้าค่อนข้างสูง ส่งผลให้ การทำขั้ว (poling) ของเซรามิก BNT ทำได้ค่อนข้างยาก จึงเป็นข้อจำกัดที่สำคัญต่อการประยุกต์ใช้งานทางด้านอิเล็กทรอนิกส์ (Li, 2005) นอกจากนี้มีปัจจัยที่สำคัญอีกประการก็คือ องค์ประกอบของ Bi และ Na ซึ่งอยู่ที่ตำแหน่ง A-site ในโครงสร้าง เพอโรฟสไกต์ของเซรามิก BNT มีจุดหลอมเหลวต่ำ ทำให้มักจะเกิดการระเหยระหว่างกระบวนการเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิสูง ด้วยเหตุนี้จึงส่งผลให้เกิดความบกพร่องขององค์ประกอบทางเคมีและโครงสร้างผลึกในเซรามิก BNT ทำให้สมบัติต่างๆ ของ เซรามิกเปลี่ยนแปลงไปโดยเฉพาะสมบัติทางไฟฟ้าของเซรามิกดังกล่าวจะแย่ง (Pan, 2011)



ภาพที่ 1 โครงสร้างผลึกเพอโรฟสไกต์แบบบรอมโบอีตรอลของเซรามิก BNT
ที่มา Niranjan, 2013

ด้วยเหตุนี้นักวิจัยจำนวนมากพยายามที่จะพัฒนาและปรับปรุงสมบัติทางไฟฟ้าของเซรามิก BNT เช่น สมบัติ ไพโซอิเล็กทริก เฟอร์โรอิเล็กทริก และสมบัติไดอิเล็กทริก โดยการเจือสารประกอบในกลุ่มเฟอร์โรอิเล็กทริกที่มีโครงสร้างผลึก แบบเพอโรฟสไกต์ลงในเซรามิก BNT เพื่อก่อตัวเป็นสารละลายของแข็งของเซรามิกแบบระบบทวิภาค โดยอัตราส่วนของ สารเจือจะอยู่บริเวณรอยต่อเฟส (Morphologic phase boundary; MPB) ตัวอย่างสารเจือที่นิยม ได้แก่ $\text{Bi}_{0.5}\text{K}_{0.5}\text{TiO}_3$ (BKT) (Li, 2005), BaTiO_3 (BT) (Gou, 2012), $\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3$ (KNN) (Li, 2015) และ $(\text{Ba}_{0.98}\text{Ca}_{0.02})(\text{Sn}_{0.06}\text{Ti}_{0.94})\text{O}_3$ (BCST) (Wu, 2012) เป็นต้น ซึ่งปัจจุบันเทคนิคนี้ได้รับความนิยมค่อนข้างมากในการปรับปรุงสมบัติทางไฟฟ้าของเซรามิกไพโซอิเล็กทริก นอกจากนี้ยังมีอีกเทคนิคหนึ่ง คือ การแทนที่ของอะตอมในโครงสร้างเพอโรฟสไกต์ โดยการนำอะตอมที่มีประจุหรือรัศมี อะตอมใกล้เคียงกันในตำแหน่ง A-site และ B-site ของเซรามิก BNT เช่น การแทนที่ Na^+ ด้วย Li^+ และ K^+ ที่ตำแหน่ง A-site และการแทนที่ของ Zr^{4+} หรือ Sn^{4+} ในตำแหน่ง B-site ของเซรามิก BNT เป็นต้น (Pan, 2011 & Gou, 2012) ซึ่งวิธีดังกล่าว สามารถปรับปรุงสมบัติไพโซอิเล็กทริกให้ดีขึ้น เช่นกัน

Bo Wu และคณะ (Wu, 2012) ได้ทำการปรับปรุงค่าสัมประสิทธิ์โพซิโวลีติก (d_{33}) ของเซรามิก BNT โดยการเจือสาร $(\text{Ba}_{0.98}\text{Ca}_{0.02})(\text{Sn}_{0.06}\text{Ti}_{0.94})\text{O}_3$ ซึ่งมีค่าสัมประสิทธิ์โพซิโวลีติกสูง (~ 500 pC/N) ในระบบทวิภาค $(1-x)\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3-x(\text{Ba}_{0.98}\text{Ca}_{0.02})(\text{Sn}_{0.06}\text{Ti}_{0.94})\text{O}_3$ โดยอัตราส่วนการเจืออยู่ระหว่าง $0 \leq x \leq 0.01$ และสังเคราะห์ด้วยวิธีปฏิกิริยาสถานะของแข็ง โดยใช้อุณหภูมิแคลไซน์ที่ 850°C เป็นเวลา 6 ชั่วโมง และใช้อุณหภูมิซินเตอร์ที่ 1160°C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง พบว่าที่ปริมาณการเจือ x เท่ากับ 0.06 เซรามิกแสดงโครงสร้างเฟสร่วมระหว่างรอมโบฮีดรอลกับเทระโกนอล (Tetragonal) และแสดงสมบัติทางไฟฟ้าที่ดี โดยมีค่าคงที่โพซิโวลีติกสูง ($d_{33} \sim 170$ pC/N) สัมประสิทธิ์คูควบไฟฟ้าเชิงระนาบที่ดี ($k_p \sim 32.8\%$) ค่าสภาพขั้วคงค้างที่ดี ($P_r \sim 38.5$ $\mu\text{C}/\text{cm}^2$) ซึ่งค่า d_{33} ที่ได้สูงกว่าเซรามิก BNT ค่อนข้างมาก

จากงานวิจัยของผู้วิจัยที่ผ่านมา C. Kornphom และคณะ (Kornphom, 2018) ได้ศึกษาการเตรียมเซรามิก $0.94(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{TiO}_3-0.06(\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055})(\text{Ti}_{0.9946}\text{Sn}_{0.0054})\text{O}_3$ [0.94BNT-0.06BCST] ด้วยเทคนิคการเผาไหม้ของแข็ง โดยใช้อุณหภูมิแคลไซน์ที่ 650°C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง และใช้อุณหภูมิซินเตอร์ที่ 1100°C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ซึ่งใช้อุณหภูมิและระยะเวลาการเตรียมน้อยกว่าเตรียมด้วยวิธีปฏิกิริยาสถานะของแข็ง และพบว่าเซรามิกที่เตรียมได้แสดงโครงสร้างเฟสร่วมระหว่างรอมโบฮีดรอลกับเทระโกนอล และแสดงสมบัติทางไฟฟ้าที่ดี โดยมีค่าสัมประสิทธิ์โพซิโวลีติกสูง ($d_{33} \sim 189$ pC/N) และค่าสภาพขั้วคงค้างที่ดี ($P_r \sim 43.4$ $\mu\text{C}/\text{cm}^2$) ซึ่งค่า d_{33} ที่ได้สูงกว่าเซรามิกที่เตรียมด้วยวิธีปฏิกิริยาสถานะของแข็งแต่อย่างไรก็ตามงานวิจัยที่กล่าวมาข้างต้นไม่ได้พิสูจน์ลักษณะโครงสร้าง การเปลี่ยนแปลงโครงสร้างในเซรามิกดังกล่าว อีกทั้งไม่สามารถยืนยันได้ว่าที่ปริมาณ x เท่ากับ 0.06 เป็นรอยต่อเฟส MPB หรือไม่ ด้วยเหตุนี้การศึกษาลักษณะโครงสร้างเฟสเชิงลึกจึงมีความจำเป็นอย่างมากในการอธิบายความสัมพันธ์ระหว่างโครงสร้างกับสมบัติทางไฟฟ้าของเซรามิกโพซิโวลีติกซึ่งมีความสำคัญอย่างมากต่อการปรับปรุงและพัฒนาเซรามิกโพซิโวลีติก

ปัจจุบันแสงซินโครตรอนได้ถูกนำมาใช้ในงานวิจัยขั้นพื้นฐานในการหาคุณสมบัติของอะตอม โมเลกุล และความยาวพันธะระหว่างอะตอมภายในโมเลกุลของสสาร การศึกษาการเปลี่ยนแปลงของวัสดุเมื่ออยู่ในสภาวะความดันและอุณหภูมิสูง การศึกษาคุณสมบัติบางประการของแม่เหล็กและไฟฟ้า และการศึกษาการจัดเรียงตัวของอะตอมบริเวณพื้นผิว เทคนิคการดูดกลืนรังสีเอกซ์ (X-ray Absorption Spectroscopy หรือ XAS) เป็นเทคนิคหนึ่งที่น่าแสงซินโครตรอนมาใช้ในการศึกษาโครงสร้างสสารในระดับอะตอม สามารถวิเคราะห์สถานะทางเคมี และโครงสร้างโดยรอบของอะตอมที่สนใจได้ ไม่ว่าจะมีความยาวพันธะ ลักษณะการจัดเรียงตัว หรือชนิดของอะตอมรอบข้าง เทคนิคนี้ไม่ทำลายสารตัวอย่างและสามารถนำมาประยุกต์ใช้ในงานวิจัยได้หลายสาขา เช่น วัสดุศาสตร์ ชีววิทยา สิ่งแวดล้อม และโบราณคดี ซึ่งเทคนิคดังกล่าวสามารถวิเคราะห์สารตัวอย่างได้ทั้งในสภาวะของแข็งและของเหลว เมื่อไม่นานมานี้ P. Bhupaijit และคณะ (Bhupaijit, 2019) ได้ศึกษาโครงสร้างผลึกและโครงสร้างเชิงลึกของเซรามิก $(1-x)\text{BNKLT}-x\text{BZT}$ ที่ปริมาณ $0.025 \leq x \leq 0.125$ ด้วยเทคนิคการดูดกลืนรังสีเอกซ์ (X-ray absorption, XAS) จากแสงซินโครตรอนและเทคนิครามานสเปกโทรสโกปี เพื่ออธิบายความสัมพันธ์ระหว่างโครงสร้างผลึก โครงสร้างเชิงลึก กับสมบัติทางไฟฟ้า พบว่าเซรามิกดังกล่าวแสดงโครงสร้างเฟสแบบผสมระหว่างรอมโบฮีดรอลและเทระโกนอล และสามารถอธิบายอัตราส่วนระหว่างสองเฟส โดยที่ปริมาณ x เพิ่มขึ้นเซรามิกดังกล่าวมีปริมาณเฟสเทระโกนอลเพิ่มขึ้น ในขณะที่รอมโบฮีดรอลลดลง ซึ่งไม่สามารถอธิบายด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ทั่วไป โดยการเปลี่ยนแปลงลักษณะโครงสร้างส่งผลต่อสมบัติทางไฟฟ้าที่เปลี่ยนไป

ดั่งนั้งานวิจัยนี้จึงมุ่งเน้นศึกษาความสัมพันธ์ระหว่างโครงสร้างผลึก โครงสร้างอะตอมเชิงลึก และสมบัติไพโซโซลิตริกของเซรามิก $(1-x)(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{TiO}_3-x(\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055})(\text{Ti}_{0.9946}\text{Sn}_{0.0054})\text{O}_3$ [(1-x)BNT-xBCST] ที่ปริมาณ $0.03 \leq x \leq 0.09$ ที่สังเคราะห์ด้วยวิธีการเผาไหม้ของแข็ง โดยใช้เทคนิค XAS จากระบบลำแสงซินโครตรอน Light Beam line 5.2 (BL5.2) จากแสงซินโครตรอน และเทคนิครามานสเปกโตรสโคปีในการวิเคราะห์โครงสร้างผลึกและโครงสร้างอะตอมเชิงลึก เพื่อพัฒนาสมบัติไพโซโซลิตริก ของเซรามิกดังกล่าว เพื่อมาประยุกต์ใช้ทดแทนเซรามิกที่มีตะกั่วเป็นส่วนประกอบ

วิธีดำเนินการวิจัย

การเตรียมเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ $0.03 \leq x \leq 0.09$ สังเคราะห์ด้วยวิธีการเผาไหม้ของแข็ง โดยใช้ไกลซีนเป็นเชื้อเพลิง มีอุปกรณ์และกระบวนการในการทดลองตามขั้นตอนต่อไปนี้ สารเคมีที่ใช้ในการทดลองประกอบด้วย บิสมีทไนเตรต ($\text{Bi}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$, Qréc, NZ) ความบริสุทธิ์ 98.8% โซเดียมไนเตรต (NaNO_3 , Ajax, NZ) ความบริสุทธิ์ 99.8% ไททานเนียมออกไซด์ (TiO_2 , Ajax, NZ) ความบริสุทธิ์ 98% แบเรียมไนเตรต ($\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$, Aldrich, CN) ความบริสุทธิ์ 99% แคลเซียมคาร์บอเนต (CaCO_3) ความบริสุทธิ์ 99% ทินออกไซด์ (SnO_2 , Cerao, US) ความบริสุทธิ์ 99% ไกลซีน ($\text{C}_2\text{H}_5\text{NO}_2$, Ajax, NZ) ความบริสุทธิ์ 95% และสารละลายเอทานอล (Ethanol absolution) ความบริสุทธิ์ 99.7% กระบวนการเตรียมทำการสังเคราะห์ตั้งต้นทั้งหมดตามอัตราส่วนโดยมวลที่ได้จากการคำนวณปริมาณสารสัมพันธ์โดยมีสมการเคมีของผลิตภัณฑ์ คือ $(1-x)(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{TiO}_3-x(\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055})(\text{Ti}_{0.9946}\text{Sn}_{0.0054})\text{O}_3$ ที่อัตราส่วน $0.03 \leq x \leq 0.09$ นำสารที่ผ่านการชั่งแต่ละอัตราส่วนผสมสารละลายเอทานอลและนำไปบดย่อยด้วยลูกบอล เป็นเวลา 24 ชั่วโมง จากนั้นนำสารที่บดย่อยแต่ละชุดทำการแยกเอทานอลออกโดยใช้ Hot plat จากนั้นนำสารที่แยกมาทำการบดอย่างหยาบโดยใช้ครกหยก (Agate) เพื่อคัดขนาดเพื่อให้ได้ผงผลึกที่มีขนาดที่สม่ำเสมอ ต่อจากนั้นนำผงผลึกที่ผ่านการบดคัดขนาดในแต่ละอัตราส่วนมาบดผสมไกลซีน โดยใช้อัตราส่วน 1:0.39 นำไปเผาแคลไซน์โดยใช้อุณหภูมิ 650 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง อัตราการขึ้นลงของอุณหภูมิการเผา 5 องศาเซลเซียสต่ออนาที นำผงผลึกที่ได้จากการแคลไซน์ศึกษาความบริสุทธิ์และลักษณะโครงสร้างด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ (X-ray diffraction หรือ XRD) ด้วยเครื่อง X-ray Philip PW 3040/60 X'pert pro จากนั้นนำผงผลึกที่บริสุทธิ์มาบดย่อยผสม PVA โดยอัตราส่วนร้อยละ 5 โดยน้ำหนัก จากนั้นทำการบดย่อยด้วยลูกบอลเป็นเวลา 12 ชั่วโมง แล้วทำการแยกเอทานอลออกโดยใช้ Hot plate และนำไปอบที่อุณหภูมิ 120 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 6 ชั่วโมง นำสารที่อบเสร็จในแต่ละชนิดมาบดย่อยอย่างหยาบโดยใช้ครกหยก (Agate) เพื่อคัดขนาดเพื่อให้ได้ผงผลึกที่มีขนาดที่สม่ำเสมอ จากนั้นนำผงมาทำการอัดขึ้นรูปให้เป็นรูปเหรียญทรงกระบอกโดยใช้แม่พิมพ์โลหะที่มีขนาดเส้นผ่านศูนย์กลางประมาณ 1.5 เซนติเมตร โดยใช้ผงผลึกในปริมาณ 1.3 กรัม โดยใช้ค่าความดันในการอัดขึ้นรูป 80 เมกะปาสคาล (MPa) ทำการซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1100°C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง โดยอัตราการขึ้นลงของอุณหภูมิการเผาเป็น 5 องศาเซลเซียสต่ออนาที จากนั้นนำเซรามิกที่ผ่านการเผาซินเตอร์ไปทำการศึกษาโครงสร้างผลึกด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ และเทคนิครามานสเปกโตรสโคปี (Raman spectroscopy) ด้วยเครื่อง Renishaw Invia Reflex โดยใช้ความยาวคลื่นของเลเซอร์ในการตรวจวัดเท่ากับ 532 นาโนเมตร และวิเคราะห์ศึกษาโครงสร้างอะตอมเชิงลึกด้วยเทคนิคการดูดกลืนรังสีเอกซ์ (X-ray absorption; XAS) จากแสงซินโครตรอน (Synchrotron Light Beam line 5.2 (BL5.2)) โดยเทคนิคการวิเคราะห์บริเวณใกล้ขอบการดูดกลืนรังสีของ

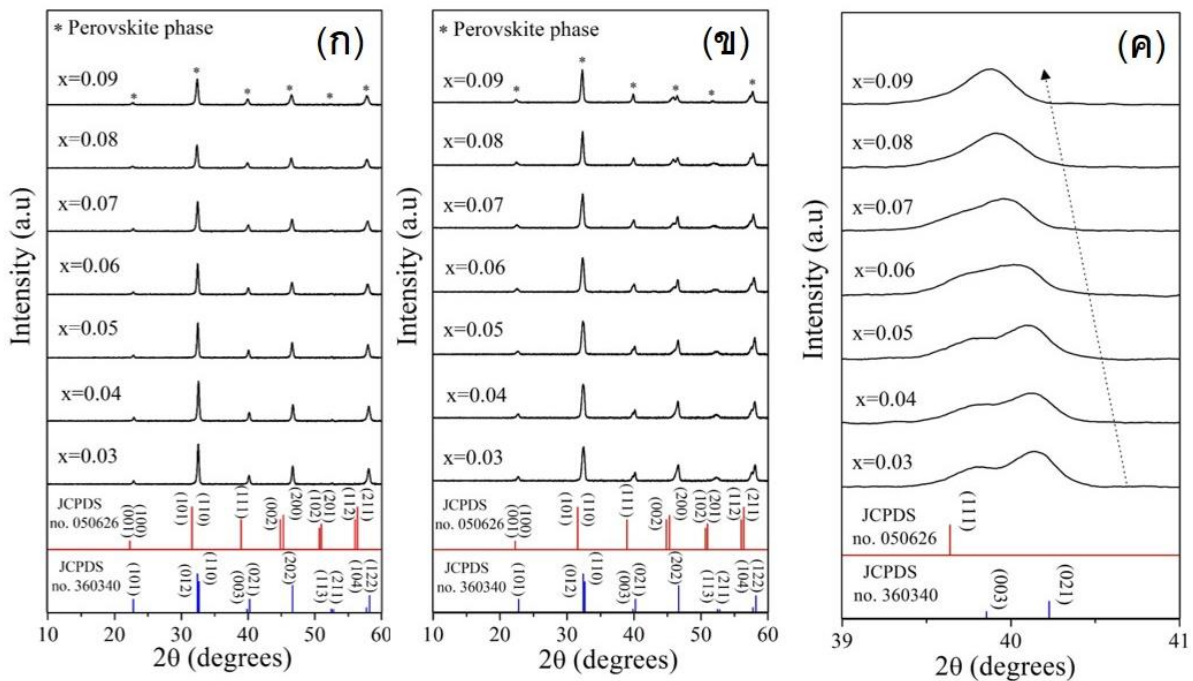


อะตอม (X-ray absorption near edge structure หรือ XANES) ศึกษาค่าความหนาแน่นด้วยวิธีอคีติส (Archimedes method) และตรวจวัดสมบัติทางไพโซโซลิเลกทริกด้วยเครื่อง Berlincourt d_{33} meter (Sinocera, YE2730A)

ผลการวิจัย

การศึกษาโครงสร้างผลึกและความบริสุทธิ์ด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์ของผงผลึก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ $x=0.03-0.09$ ที่เตรียมด้วยวิธีการเผาไหม้โดยใช้ไกลซีนเป็นเชื้อเพลิง ในอัตราส่วนระหว่างสารตั้งต้นต่อเชื้อเพลิงเป็น 1:0.39 โดยน้ำหนัก และใช้อุณหภูมิแคลไซน์ 650 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง แสดงในภาพที่ 2 (ก) จากรูปจะเห็นว่าผงผลึก (1-x)BNT-xBCST ที่เตรียมได้แสดงโครงสร้างเฟสแบบเพอโรฟสไกต์ที่บริสุทธิ์ในทุกตัวอย่าง โดยสอดคล้องกับฐานข้อมูล JCPDS 036-0340 ซึ่งระบุลักษณะโครงสร้างแบบรอมโบฮีดรัล และ 05-0626 ซึ่งระบุลักษณะโครงสร้างแบบเทตระโกนัล ตามลำดับ

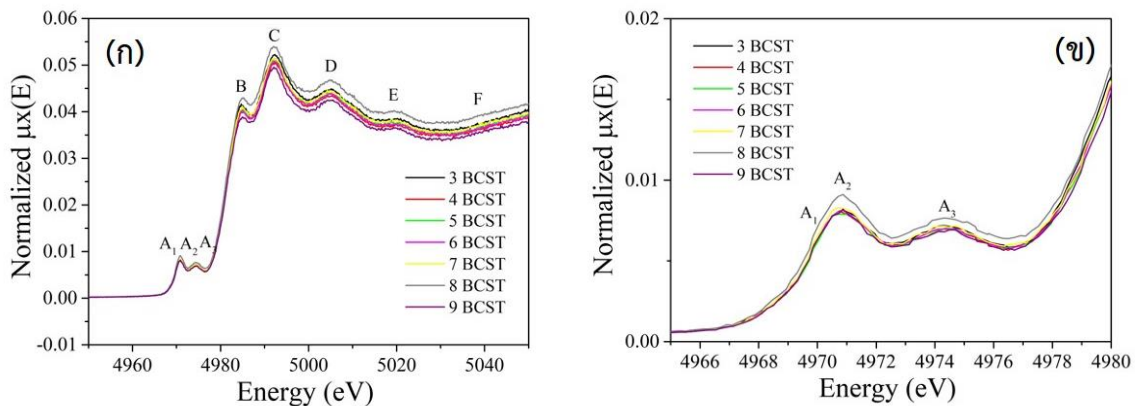
จากนั้นนำผงผลึกที่บริสุทธิ์ของ (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ $x=0.03-0.09$ ขึ้นรูปและซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1100 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง นำเซรามิกที่ผ่านการซินเตอร์มาตรวจสอบโครงสร้างผลึกด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์ พบว่าเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ $x=0.03-0.09$ แสดงโครงสร้างเฟสแบบเพอโรฟสไกต์ที่บริสุทธิ์ในทุกตัวอย่าง ซึ่งสอดคล้องกับฐานข้อมูลมาตรฐาน JCPDS 036-0340 และ 05-0626 เช่นเดียวกับผงผลึก ดังแสดงในภาพที่ 2 (ข) ซึ่งโดยทั่วไปลักษณะเฉพาะของโครงสร้างรอมโบฮีดรัลจะแสดงพีคคู่ของระนาบ (003)/(021)_{Rhobohedral} ที่มุม $\sim 40^\circ$ (Bhupaijit, 2019) ในขณะที่ลักษณะเฉพาะของโครงสร้างเทตระโกนัลแสดงพีคเดี่ยวของระนาบ (111)_{Tetragonal} ที่มุม $\sim 40^\circ$ (Bhupaijit, 2019) เมื่อทำการการขยายรูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ที่มุม $39-41^\circ$ ของเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ $x=0.03-0.09$ ดังแสดงในภาพที่ 2 (ค) เมื่อพิจารณาลักษณะโครงสร้างเฟสของเซรามิกพบว่าที่ปริมาณ $x = 0.03$ พีคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ที่มุม $\sim 40^\circ$ มีลักษณะพีคคู่ของระนาบ (003)/(021)_{Rhobohedral} ที่กว้างและแยกจากกันค่อนข้างชัดเจน แต่มีลักษณะที่ไม่สมมาตร ซึ่งสันนิษฐานว่าตัวอย่างแสดงโครงสร้างเฟสแบบรอมโบฮีดรัลที่ไม่สมบูรณ์ (ดังแสดงในภาพที่ 2 (ค)) สำหรับตัวอย่างเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ $x=0.04-0.09$ พบว่าพีคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ที่มุม $\sim 40^\circ$ มีค้อยๆ รวมกันเป็นพีคเดี่ยวของระนาบ (111)_{Tetragonal} และเลื่อนไปที่มุมต่ำมากขึ้น (ดังแสดงตามลูกศร) เมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้นจนถึง 0.09 ซึ่งแสดงถึงการเปลี่ยนแปลงโครงสร้างผลึกจากรอมโบฮีดรัลเป็นเทตระโกนัล และปริมาตรของเซลล์หน่วย (Unit cell) มีการขยายตัวมากขึ้น เมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้น



ภาพที่ 2 รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ (ก) ผงผลึก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ $x=0.03-0.09$ แคลไซต์ที่อุณหภูมิ 650 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ที่มุม $2\theta = 10-60^\circ$ (ข) เซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ $x=0.03-0.09$ ซินเตอร์ที่ 1100 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ที่มุม $2\theta = 10-60^\circ$ และ (ค) เซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ $x=0.03-0.09$ ซินเตอร์ที่ 1100 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ที่มุม $2\theta = 39-41^\circ$

การศึกษาลักษณะโครงสร้างอะตอมเชิงลึกด้วยเทคนิคการดูดกลืนของรังสีเอกซ์ (X-ray absorption spectroscopy; XAS) ของเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ $x=0.03-0.09$ โดยใช้เทคนิค XANES เป็นการวิเคราะห์ออกซิเดชันของอะตอมในโครงสร้างผลึกของเซรามิก การวิเคราะห์ด้วย XANES ทำให้ทราบถึงการเปลี่ยนแปลงตำแหน่งของอะตอมและโครงสร้างเมื่อสารมีการเปลี่ยนองค์ประกอบ ในงานวิจัยนี้วิเคราะห์สเปกตรัมการดูดกลืนรังสีเอกซ์ในชั้น K (K-edge absorption) ของอะตอมไททาเนียม (Ti) แสดงดังภาพที่ 3 (ก) พบว่าการดูดกลืนรังสีเอกซ์ในชั้น K ของอะตอมไททาเนียมจะอยู่ที่พลังงาน 4970 eV บริเวณตำแหน่ง A1 A2 และ A3 ซึ่งอยู่ในช่วง pre-edge ของสเปกตรัม ซึ่งแสดงการเลื่อนชั้นของอิเล็กตรอนของอะตอมไททาเนียม (Levin, 2011 & Bootchanont, 2014) แสดงดังภาพที่ 3 (ก) โดย A1 เป็นส่วนที่เกิดจาก quadrupole (3d) (Levin, 2011 & Bootchanont, 2014) ส่วน A2 แสดงถึง centrosymmetric ของอะตอมไททาเนียมที่เกิดจากการเปลี่ยนแปลง quadrupole (3d) และ dipole (2p) ของอะตอมไททาเนียมจาก 1s ไป 3d นอกจากนี้ส่วน A2 แสดงถึงการผสมของ 3d และ 4p ของไททาเนียม ซึ่งเกี่ยวข้องโดยตรงกับการกระจัดเฉลี่ยของอะตอมไททาเนียม (Levin, 2011 & Bootchanont, 2014) สำหรับ A3 เป็นส่วนที่เกิดจากแบนด์เอฟเฟค (Band effect) ซึ่งสัมพันธ์กับ 4d-อะตอม ในโคออร์ดิเนชันสเฟียร์ลำดับสาม (the third coordination sphere) รอบๆ การดูดซับของ 3d-อะตอม ใน B-site ของโครงสร้างผลึกแบบเพอโรฟสไกต์ (Levin, 2011 & Bootchanont, 2014) จากผลการวิเคราะห์พบว่าความสูงของสเปกตรัมที่ตำแหน่ง A1 A2 และ A3 มีการเปลี่ยนแปลง

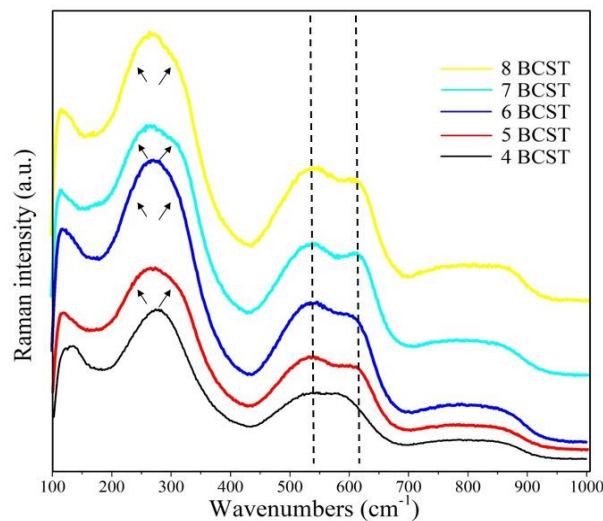
เล็กน้อยดังแสดงในภาพที่ 3 (ข) ซึ่งแสดงถึงการเคลื่อนที่ของอะตอมไททานเนียมจากจุดศูนย์กลางสมมาตรของโครงสร้างผลึกแบบเพอรอฟสไกต์ และเมื่อเทียบกับผล XRD ที่แสดงการเปลี่ยนแปลงลักษณะโครงสร้างผลึกเปลี่ยนจากรวมโบฮีตรอลไปเป็นเทอร์โกนัลมากขึ้น เมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้น อาจเป็นสาเหตุหนึ่งที่ทำให้ Ti อะตอม เคลื่อนที่ออกจากจุดศูนย์กลางสมมาตรของผลึกที่เกิดจากการแทนที่ของการเจือสาร BCST ใน BNT ที่ปริมาณ x ต่างๆ ทั้งในตำแหน่ง A-site และ B-site ในโครงสร้างเพอรอฟสไกต์ของ BNT ที่มีลักษณะโครงสร้างเป็นแบบรวมโบฮีตรอล ส่งผลให้เกิดการเปลี่ยนแปลงตำแหน่งของอะตอมไททานเนียมในโครงสร้าง สำหรับการเปลี่ยนแปลงที่ตำแหน่ง B และ C แสดงดังรูป 3 (ก) ซึ่งอยู่ในช่วง edge ของโครงสร้างผลึกแบบเพอรอฟสไกต์ แสดงถึงการเปลี่ยนสถานะของอิเล็กตรอนในชั้นพลังงานระดับลึก 1s ไปยังชั้นพลังงานวาเลนซ์ 4p ในโครงสร้าง (Levin, 2011 & Bootchanont, 2014) โดยตำแหน่ง B และ C ในสเปกตรัมจะแสดงถึงการเกิดพันธะโคเวเลนต์ระหว่างอะตอมออกซิเจนกับอะตอมไททานเนียมในรูปของสารประกอบ $(1-x)\text{BNT}-x\text{BCST}$ จะเห็นว่าความสูงของสเปกตรัมที่ตำแหน่ง B และ C ค่อย ๆ ลดลง เมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้นจาก 0.03 ถึง 0.06 และเมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้นจาก 0.07 ถึง 0.08 ความสูงของสเปกตรัมที่ตำแหน่ง B และ C มีแนวโน้มเพิ่มขึ้น และเมื่อปริมาณ x เท่ากับ 0.09 ความสูงของสเปกตรัมที่ตำแหน่ง B และ C มีค่าลดลงอย่างเห็นได้ชัด นอกจากนั้นการเปลี่ยนแปลงที่ตำแหน่ง D E และ F ที่อยู่ในช่วง post-edge ของโครงสร้าง พบว่าความสูงของสเปกตรัมมีลักษณะเหมือนกับตำแหน่ง B และ C ดังแสดงในภาพที่ 3 (ก) ซึ่งสันนิษฐานว่าเป็นผลมาจากการมีวัฏภาค polytitanate เพิ่มขึ้น ในโครงสร้างผลึก (Bhupajit, 2019)



ภาพที่ 3 (ก) และ (ข) สเปกตรัมการดูดกลืนรังสีเอ็กซ์แบบ XANES ของ Ti K-edge ของเซรามิก $(1-x)\text{BNT}-x\text{BCST}$ ที่ปริมาณ $x=0.03-0.09$

การศึกษาลักษณะการเปลี่ยนแปลงโครงสร้างผลึกด้วยเทคนิครามานสเปกโตรสโคปีของเซรามิก $(1-x)\text{BNT}-x\text{BCST}$ โดยเลือกอัตราส่วนการวิเคราะห์ที่ปริมาณ $x=0.04-0.08$ เนื่องจากช่วงอัตราส่วนดังกล่าวแสดงการเปลี่ยนแปลงลักษณะโครงสร้างผลึกที่ชัดเจนซึ่งเห็นได้จากผล XRD จากผลการศึกษาพบว่ารามานสเปกตรัมบริเวณช่วงเลขคลื่น (wave numbers) ระหว่าง 100 ถึง 1000 cm^{-1} ซึ่งแสดงการเปลี่ยนโครงสร้างของเซรามิก $(1-x)\text{BNT}-x\text{BCST}$ ที่ปริมาณ $x=0.04-0.08$ แสดงในภาพที่ 4 จากภาพรามานสเปกตรัมแบ่งการวิเคราะห์เป็นสามช่วง คือ ช่วงที่หนึ่งที่มีบริเวณช่วงเลขคลื่นต่ำ $230-350\text{ cm}^{-1}$ แสดงโหมด

การสั่นของอะตอมที่บริเวณตำแหน่ง B-site และตำแหน่งออกซิเจน (O) (Bhupaijit, 2019) ช่วงที่สองบริเวณช่วงเลขคลื่น 470-650 cm^{-1} แสดงโหมดการสั่นของ อะตอมออกซิเจน (O) – อะตอมไททาเนียม (Ti) – อะตอมออกซิเจน (O) (Bhupaijit, 2019) และช่วงที่สามพิจารณาบริเวณเลขคลื่น 720–870 cm^{-1} แสดงถึงโหมดการสั่นของ TiO_6 (Bhupaijit, 2019) โดยปกติการวิเคราะห์การเปลี่ยนโครงสร้างเฟสแบบเพอโรฟสไกต์จะพิจารณาโหมดการสั่นที่เกิดขึ้นจากรามานสเปกตรัมบริเวณ B-sites (ช่วงเลขคลื่น 230-350 cm^{-1}) และ O (ช่วงเลขคลื่น 470-650 cm^{-1}) เนื่องจากจะแสดงลักษณะการสั่นของบริเวณดังกล่าวที่แตกต่างกัน เมื่อองค์ประกอบของสารเปลี่ยนแปลงไป สำหรับรามานสเปกตรัมช่วงเลขคลื่น 230-350 cm^{-1} และ 470-650 cm^{-1} แสดงลักษณะของเส้นกราฟเป็นพีกคู่ทั้งสองช่วงเลขคลื่น ซึ่งเป็นลักษณะเฉพาะของโครงสร้างเฟสแบบเพอโรฟสไกต์แบบเทอร์โกนอล (Bhupaijit, 2019) สำหรับเส้นกราฟทั้งสองช่วงเลขคลื่นที่กล่าวมาแสดงพีกเดียวจะแสดงลักษณะเฉพาะของโครงสร้างแบบเพอโรฟสไกต์แบบรอมโบอีดรอล (Bhupaijit, 2019) ในงานวิจัยนี้พบว่ารามานสเปกตรัมที่บริเวณเลขคลื่น 230-350 cm^{-1} ของเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ x=0.04 แสดงเส้นกราฟเป็นพีกเดียว ในขณะที่รามานสเปกตรัมที่บริเวณเลขคลื่น 470-650 cm^{-1} แสดงเส้นกราฟเป็นพีกคู่ ซึ่งสันนิษฐานว่าเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ x=0.04 แสดงโครงสร้างเฟสแบบผสมระหว่างรอมโบอีดรอลกับเทอร์โกนอล เมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้นจาก 0.04 เป็น 0.08 พบว่าเส้นกราฟรามานสเปกตรัมที่บริเวณเลขคลื่น 230-50 cm^{-1} และ 470-650 cm^{-1} ของเซรามิก (1-x)BNT-xBCST แสดงพีกคู่ที่แยกกันมากขึ้น ซึ่งแสดงให้เห็นว่าเมื่อปริมาณ x สูงขึ้น เซรามิก (1-x)BNT-xBCST แสดงโครงสร้างเฟสเทอร์โกนอลมากขึ้น



ภาพที่ 4 รามานสเปกตรัมของเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ x=0.04-0.08

การศึกษาค่าความหนาแน่นของเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ x=0.03-0.09 พบว่าค่าความหนาแน่นของเซรามิก (1-x)BNT-xBCST มีค่าเพิ่มขึ้นจาก 5.57 ถึง 5.93 g/cm^3 เมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้นจาก 0.03 ถึง 0.07 หลังจากนั้นค่าความหนาแน่นมีแนวโน้มลดลงเมื่อปริมาณ x มากกว่า 0.07 โดยที่ปริมาณ x = 0.07 เซรามิก (1-x)BNT-xBCST แสดงความหนาแน่นสูงสุดเท่ากับ 5.93 g/cm^3 ดังแสดงในตารางที่ 1 สำหรับการวิเคราะห์ค่าคงที่โพซิซิโวลิตริก (d_{33}) ของเซรามิก



(1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ x ต่างๆ แสดงดังตารางที่ 1 พบว่าค่า d_{33} มีค่าเพิ่มขึ้นจาก 105 เป็น 202 pC/N เมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้นจาก 0.03 ถึง 0.07 ในขณะที่ปริมาณ x มากกว่า 0.07 ค่า d_{33} ลดลงอย่างเห็นได้ชัด

ตารางที่ 1 ค่าความหนาแน่นและ d_{33} ของเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ x ต่างๆ

ปริมาณ x	ความหนาแน่น(g/cm ³)	d_{33} (pC/N)
0.03	5.75	105
0.04	5.79	122
0.05	5.82	154
0.06	5.91	189
0.07	5.93	202
0.08	5.83	145
0.09	5.74	113

วิจารณ์ผลการวิจัย

การตรวจสอบลักษณะโครงสร้างผลึกและความบริสุทธิ์ของผงผลึก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ x=0.03-0.09 ด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ พบว่าผงผลึกแคลไซต์ที่อุณหภูมิ 650 เซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง แสดงโครงสร้างเพอโรฟสไกต์ที่บริสุทธิ์ในทุกอัตราส่วน โดยสอดคล้องฐานข้อมูลมาตรฐาน JCPDS 036-0340 ซึ่งระบุลักษณะโครงสร้างแบบรวมโบฮีตริล และ JCPDS 05-0626 ซึ่งระบุลักษณะโครงสร้างแบบเทเพระโกนัล ตามลำดับ สำหรับการตรวจสอบลักษณะโครงสร้างผลึกเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ x=0.03 ด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ เซรามิกแสดงโครงสร้างเฟสแบบรวมโบฮีตริลที่ไม่สมมาตร และเมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้นเซรามิกแสดงโครงสร้างผลึกเทเพระโกนัลมากขึ้น นอกจากนี้ผลการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ที่มุม ~40° เลื่อนไปที่มุมต่ำลง เมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้นจาก 0.03 ถึง 0.09 ซึ่งสันนิษฐานว่าเซรามิกแสดงปริมาตรของหน่วยเซลล์ขยายตัวมากขึ้น สำหรับผลการวิเคราะห์โครงสร้างอะตอมเชิงลึกด้วยเทคนิคการดูดกลืนรังสีเอกซ์ (X-ray absorption spectroscopy; XAS) ของเซรามิก (1-x)BNT-xBCST ที่ปริมาณ x=0.03-0.09 โดยใช้เทคนิค XANES จากผลการทดลองพบว่าสเปกตรัมการดูดกลืนรังสีเอกซ์ในชั้น K เกิดการเปลี่ยนแปลง เนื่องจากเป็นผลจากองค์ประกอบทางเคมีที่เปลี่ยนไปเมื่อมีการเจือสาร BCST ที่ปริมาณ x ต่างๆ และสันนิษฐานว่าอะตอมมีการแทรกตัวในตำแหน่งๆ ต่างของโครงสร้างผลึกแบบสุ่ม ก่อให้เกิดการเปลี่ยนแปลงในโครงสร้างผลึก เมื่อปริมาณ x เปลี่ยนแปลงไป การเติมสารเจือ BCST ที่ปริมาณ x ต่างๆ ส่งผลต่อสเปกตรัมที่ตำแหน่ง B และ C ให้เกิดการเปลี่ยนแปลงโดยมีค่าที่แตกต่างกันอย่างชัดเจน ซึ่งสันนิษฐานว่าพันธะโคเวเลนต์ระหว่างออกซิเจนกับไททาเนียมเปลี่ยนแปลงไป เมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้น เพราะโครงสร้างของสาร BNT และ BCST มีโครงสร้างผลึกแตกต่างกัน ดังนั้นการเติมสารเจือ BCST ที่ปริมาณ x ต่างๆ จึงทำให้โครงสร้างผลึกเกิดการเปลี่ยนแปลง สำหรับการเปลี่ยนแปลงที่ตำแหน่งในช่วง post-edge ของโครงสร้างผลึกเป็นผลมาจาก



การมีวัฏภาค polytitanate เพิ่มขึ้น เมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้น การวิเคราะห์การเปลี่ยนโครงสร้างเพอรอฟสไกต์ของเซรามิก $(1-x)\text{BNT}-x\text{BCST}$ โดยเลือกการวิเคราะห์ที่ปริมาณ $x=0.04-0.08$ ด้วยเทคนิครามานสเปกโตรสโคปี ผลการทดลองพบว่าที่ปริมาณ $x=0.04$ แสดงเส้นกราฟรามานสเปกตรัมที่บริเวณเลขคลื่น $230-350\text{ cm}^{-1}$ เป็นพีคเดียว ในขณะที่รามานสเปกตรัมที่บริเวณเลขคลื่น $470-650\text{ cm}^{-1}$ แสดงเส้นกราฟเป็นพีคคู่ ซึ่งสันนิษฐานว่าเซรามิกดังกล่าวแสดงโครงสร้างเฟสแบบผสมระหว่างรอมโบอีตรอลกับเททระโกนอล เมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้นจาก 0.04 เป็น 0.08 พบว่าเส้นกราฟรามานสเปกตรัมที่บริเวณเลขคลื่น $230-50\text{ cm}^{-1}$ และ $470-650\text{ cm}^{-1}$ ของเซรามิก $(1-x)\text{BNT}-x\text{BCST}$ แสดงพีคคู่ที่แยกกันมากขึ้น ซึ่งแสดงให้เห็นว่าเมื่อปริมาณ x สูงขึ้น เซรามิกแสดงโครงสร้างเฟสเททระโกนอลมากขึ้น โดยผลการวิเคราะห์โครงสร้างด้วย XRD, XANES และรามานสเปกโตรสโคปีสอดคล้องซึ่งกันและกัน การศึกษาค่าความหนาแน่นและสมบัติโพธิโซอิเล็กทริกของเซรามิก $(1-x)\text{BNT}-x\text{BCST}$ ที่ปริมาณ $x=0.03-0.09$ สำหรับตัวอย่างที่ปริมาณ x เท่า 0.07 เซรามิกแสดงค่าความหนาแน่นและค่า d_{33} สูงสุด เท่ากับ 5.93 g/cm^3 และ 202 pC/N ตามลำดับ จากสมบัติโพธิโซอิเล็กทริกของเซรามิก $(1-x)\text{BNT}-x\text{BCST}$ ที่ดีที่สุดพบจากตัวอย่างที่ปริมาณการเจือสาร BCST ที่ปริมาณ x เท่ากับ 0.07 อาจสันนิษฐานว่าอัตราส่วนดังกล่าวแสดงโครงสร้างแบบผสมระหว่างรอมโบอีตรอลและเททระโกนอลในปริมาณที่เหมาะสม ซึ่งส่งผลให้มีค่า d_{33} สูงสุด แต่ในงานวิจัยนี้ไม่สามารถยืนยันได้ว่าที่ปริมาณ x เท่ากับ 0.07 เป็นบริเวณรอยต่อเฟสร่วม (Morphotopic phase boundary หรือ MPB) ของโครงสร้างผลึกแบบผสมระหว่างรอมโบอีตรอลและเททระโกนอล ซึ่งโดยทั่วไปถ้าอัตราส่วนของสารอยู่บริเวณ MPB จะมีค่า d_{33} ที่สูงสุด ดังนั้นต้องทำการศึกษสมบัติต่างๆ เพิ่มเติมต่อไป

สรุปผลการวิจัย

ผงผลึก $(1-x)\text{BNT}-x\text{BCST}$ ที่ปริมาณ x เท่ากับ 0.03 ถึง 0.09 เตรียมด้วยวิธีการเผาไหม้ โดยใช้ไกลซีนเป็นเชื้อเพลิง โดยอัตราส่วนระหว่างสารตั้งต้นและไกลซีนเป็น 1:0.39 แคลไซน์ที่อุณหภูมิ 650 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง แสดงโครงสร้างผลึกที่บริสุทธิ์ทุกอัตราส่วน จากการศึกษาลักษณะโครงสร้างผลึกด้วยเทคนิค XRD XAS และรามานสเปกโตรสโคปีของเซรามิก $(1-x)\text{BNT}-x\text{BCST}$ ที่ปริมาณ x ต่างๆ ซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1100 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 2 ชั่วโมง สามารถสรุปได้ว่าเซรามิกดังกล่าวแสดงโครงสร้างผลึกเพอรอฟสไกต์ที่บริสุทธิ์ทุกตัวอย่าง โดยมีลักษณะโครงสร้างเฟสแบบผสมระหว่างรอมโบอีตรอลและเททระโกนอล และเมื่อปริมาณ x เพิ่มขึ้น เซรามิกมีโครงสร้างเฟสที่เป็นเททระโกนอลมากขึ้น ซึ่งผลการวิเคราะห์ของ XRD XAS และรามานสเปกโตรสโคปีสอดคล้องซึ่งกันและกัน ค่าความหนาแน่นและค่า d_{33} สูงที่สุดโดยมีค่าเท่ากับ 5.93 g/cm^3 และ 202 pC/N ตามลำดับ ได้รับจากเซรามิกที่ปริมาณการเจือสาร BCST ที่ปริมาณ x เท่ากับ 0.07 จากผลการทดลองแสดงให้เห็นว่าการเจือสาร BCST ในเซรามิก BNT ที่ปริมาณ x เท่ากับ 0.03 ถึง 0.09 ส่งผลให้โครงสร้างผลึกมีการเปลี่ยนแปลง และผลของการเปลี่ยนโครงสร้างผลึกมีผลต่อค่าสัมประสิทธิ์โพธิโซอิเล็กทริก นอกจากนี้การเจือสาร BCST ในปริมาณ x ที่เหมาะสมสามารถพัฒนาค่าสัมประสิทธิ์โพธิโซอิเล็กทริกของเซรามิก BNT ได้ ทำให้เพิ่มประสิทธิภาพของเซรามิกที่ปราศจากตะกั่วในการนำไปประยุกต์ใช้งานในอุปกรณ์อิเล็กทรอนิกส์ต่อไป



กิตติกรรมประกาศ

งานวิจัยนี้สำเร็จได้ขอขอบคุณสถาบันวิจัยแสงซินโครตรอน (องค์การมหาชน) ที่อนุเคราะห์ให้ใช้งานระบบลำแสงซินโครตรอน Light Beam line 5.2 (BL5.2) งานวิจัยนี้ได้ทุนสนับสนุนประจำปี 2563 จากกองทุนวิจัย มหาวิทยาลัยราชภัฏ เชียงใหม่ และสำนักงานปลัดกระทรวงการอุดมศึกษา วิทยาศาสตร์ วิจัยและนวัตกรรม เลขที่สัญญา RNGS 63-200

เอกสารอ้างอิง

- Bhupaijit, P., Kornphom C., Kidkhunthod, P., Nuntawong, N., & Bongkam, T. (2019) Structural study of BNKLT-BZT ceramics using XRD, Raman spectroscopy and XAS. *Integrated Ferroelectrics*, 195, 144 – 153
- Bootchanonta, A., timoosika, J., Chandarak, S., Unruan, M., Kidkhunthod, P., Klysubun, W., Rujirawat, S., Yimnirun, R., Guo, R. & Bhalla, A. (2014) Synchrotron X-ray absorption spectroscopy study of local structure transformation behavior in perovskite Ba(Ti,Zr)O₃ system, *Journal of Alloys and Compound*, 616, 430.
- Gou, Q., Wu, J.G., Li, A.G., Wu, B., Xiao, D.G. & Hu J.G. (2012) Enhanced d₃₃ value of Bi_{0.5}Na_{0.5}TiO₃-(Ba_{0.85}Ca_{0.15})(Ti_{0.90}Zr_{0.10})O₃ lead-free ceramics. *Journal of Alloys and Compounds*, 521, 4-7.
- Kornphom, C., Rittisak, J., Laowanidwatana, A. & Bongkam, T. (2018) Enhanced dielectric and ferroelectric behavior in 0.94BNT-0.06BCTS lead free piezoelectric ceramics synthesized by the solid state combustion technique, *Integrated Ferroelectrics*, 187, 20-32.
- Levin, I., Cockayne, E., Krayzman, V., Woicik, C.J., Lee, S. & Randall, A.C.(2011) Local structure of Ba(Ti,Zr)O₃ perovskite-like solid solutions and its relation to the band-gap behavior. *Physica Review B*, 83, 094122.
- Li, Y.M., Chen, W., Zhou, J., Xu, Q., Sun, H.J. & Liao, M.S. (2005) Dielectric and ferroelectric properties of lead-free Na_{0.5}Bi_{0.5}TiO₃-K_{0.5}Bi_{0.5}TiO₃ ferroelectric ceramics, *Ceramics International*, 31(1), 139-142.
- Li, S., Chen, L., Ning, X., Guo, M., & Zhang, M. (2015) (1-x)(Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO₃-x(K_{0.5}Na_{0.5})TiO₃ ceramics with low coercive field preparation from hydrothermally synthesized precursor powders. *Ceramics International*, 41, 195-204.



Niranjan, M. K., Karthik, T., Asthana, S., Pan, J. & Waghmare, U. V. (2013) Theoretical and experimental investigation of Raman modes, ferroelectric and dielectric properties of relaxor $\text{Na}_{0.5}\text{Bi}_{0.5}\text{TiO}_3$. *Journal of Applied Physics*, 113, 194106.

Pan, H., Hou, Y.T., Chao, X.L., Wei, L.L. & Yang Z P. (2011) Microstructure and electrical properties of La_2O_3 -doped $\text{Bi}_{0.5}(\text{Na}_{0.68}\text{K}_{0.22}\text{Li}_{0.1})_{0.5}\text{TiO}_3$ lead-free piezoelectric ceramics. *Current Applied Physics*, 11, 888-892.

Wu, B., Xiao, Q.D., Wu, J.W., Zhu, G., Chen, Q.J. & Wu, G. J. (2012) Microstructure and electrical properties of $(\text{Ba}_{0.98}\text{Ca}_{0.02})(\text{Ti}_{0.94}\text{Sn}_{0.06})\text{O}_3$ -modified $\text{Bi}_{0.51}\text{Na}_{0.50}\text{TiO}_3$ lead-free ceramics. *Ceramics Internation*, 38, 5677.