

Thesis Title	Preparation and Structural Characterization of Lead Magnesium Niobate-Lead Titanate Ceramics	
Author	Miss Aurawan Udomporn	
Degree	Doctor of Philosophy (Materials Science)	
Thesis Advisory Committee	Asst. Prof. Dr. Supon Ananta	Chairperson
	Prof. Dr. Tawee Tunkasiri	Member
	Assoc.Prof.Dr. Jintana Siripitayananon	Member

ABSTRACT

In this study, three major aspects have been carried out in order to determine the relationship between preparation condition and structural characteristic of the lead magnesium niobate, $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ -lead titanate, PbTiO_3 or PMN-PT system.

First, perovskite powders of PMN and PT have been prepared by a solid-state reaction via a rapid vibro-milling technique. Phase formation of the calcined powders has been investigated as a function of calcination conditions by TG-DTA and XRD techniques. Moreover, morphology and particle size evolution have been determined via SEM technique, respectively. It has been found that monophasic PMN and PT powders were successfully obtained for calcination conditions of 800 °C for 1 h with heating/cooling rates of 20 °C/min and 600 °C for 1 h with heating/cooling rates of

20 °C/min, respectively. Higher temperature clearly favoured particle growth and the formation of large and hard agglomerates.

Second, PMN and PT ceramics have been fabricated by sintering PMN and PT powders via a normal sintering method. Attention has been focused on relationships between sintering conditions, phase formation, densification and microstructural development. It has been observed that PMN and PT ceramics of high density (~ 96-97%) and optimised perovskite phase may be produced by use of a straightforward sintering conditions, i.e. 1240 °C for 2 h with heating/cooling rate of 5 °C/min for PMN and 1225 °C for 2 h with heating/cooling rate of 1 °C/min, for PT ceramics.

Finally, a continuous series of perovskite solid solution in the (1-x)PMN-xPT system was formed. The lattice parameter of the (pseudo) cubic perovskite PMN was 0.404 nm, while those of the tetragonal perovskite PT were $a = 0.390$ and $c = 0.413$ nm. With increasing PT concentration in the range of $x = 0.3-1.0$, the tetragonality factors increased ($\sim 1.000 \rightarrow 1.060$). SEM method showed typical microstructure of the PMN-PT ceramics where inclusions of MgO and some PbO-rich compositions were found to coexist with the PMN-PT grains. It is clear that PbO deficiency of these Pb-based perovskite compounds can result in an excessive amount of pyrochlore phase which causes poor densification for the final products. Selected composition in the (1-x)PMN-xPT system, i.e. 0.9PMN-0.1PT was further examined in order to establish the detailed relationship between phase formation, densification behaviour and microstructure. It has been found that 0.9PMN-0.1PT powders were successfully obtained for calcination conditions of 900 °C for 2 h with heating/cooling rates of 20 °C/min. For the fabrication of 0.9PMN-0.1PT ceramic, it is seen that by employing the sintering conditions of 1240 °C for 2 h with heating/cooling rates of 15 °C/min, the density of 7.98 g/cm³ was obtained.

ประมาณ 96-97% และมีเฟสเพอโรฟสไกต์ได้ด้วยการเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1240 องศาเซลเซียส นาน 2 ชั่วโมง ด้วยอัตราขึ้น/ลงอุณหภูมิ 5 องศาเซลเซียสต่อนาที และการเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1225 องศาเซลเซียส นาน 2 ชั่วโมง ด้วยอัตราขึ้น/ลงของอุณหภูมิ 1 องศาเซลเซียสต่อนาที ตามลำดับ

สุดท้ายได้ทำการทดลองเตรียมสารละลายของแข็งที่เป็นเฟสเพอโรฟสไกต์ในระบบ (1-x)PMN-xPT โดยพบว่าค่าแลตทิซพารามิเตอร์ของ PMN ซึ่งอยู่ในระบบลูกบาศก์ (เทียม) จะมีค่าเท่ากับ 0.404 นาโนเมตร และแลตทิซพารามิเตอร์ของ PT ซึ่งอยู่ในระบบเตตระโกนอลมีค่า a เท่ากับ 0.390 นาโนเมตรและ c เท่ากับ 0.431 นาโนเมตร ตามลำดับ เมื่อสัดส่วนของ PT ในระบบเพิ่มสูงขึ้นในช่วงระหว่าง x เท่ากับ 0.3 ถึง 1.0 พบว่าค่าเตตระโกนอลลิคหรือ c/a ของวัสดุจะมีค่าเพิ่มขึ้นจาก 1.000 ถึง 1.060 ซึ่งจากโครงสร้างจุลภาคของเซรามิกในระบบ PMN-PT ที่เตรียมได้ พบว่ามีเฟสของสารประกอบที่มีปริมาณ MgO และ PbO สูงๆแทรกปะปนอยู่ร่วมกับเฟสหลักของสาร PMN-PT และเป็นที่ยืนยันว่าการสูญเสีย PbO ออกไปในบางส่วนระหว่างกระบวนการเตรียมเซรามิก จะทำให้มีเฟสไพโรคลอเกิดขึ้นมาปะปนกับเฟสหลักและส่งผลทำให้เซรามิกที่เตรียมได้มีความหนาแน่นลดน้อยลงไปด้วย นอกจากนี้ยังได้ทำการเลือกองค์ประกอบในระบบ (1-x)PMN-xPT คือสารสูตร 0.9PMN-0.1PT มาทำการศึกษาเพิ่มเติมถึงความสัมพันธ์ระหว่างการก่อเกิดเฟสพฤติกรรมการแน่นตัวและโครงสร้างจุลภาคแบบเจาะลึกลงไปในรายละเอียดอีกด้วย โดยพบว่าสามารถเตรียมผง 0.9PMN-0.1PT ได้โดยการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 900 องศาเซลเซียส นาน 2 ชั่วโมง ด้วยอัตราขึ้น/ลงของอุณหภูมิ 20 องศาเซลเซียสต่อนาทีและสามารถเตรียมเซรามิก 0.9PMN-0.1PT ที่มีความหนาแน่น 7.98 กรัม/ลูกบาศก์เซนติเมตร ได้ที่อุณหภูมิของการซินเตอร์ที่ 1240 องศาเซลเซียส นาน 2 ชั่วโมง ด้วยอัตราขึ้น/ลงของอุณหภูมิ 15 องศาเซลเซียสต่อนาที