

<b>Thesis Title</b>	Preparation and Structural Characterization of Lead Magnesium Niobate-Lead Titanate Ceramics	
<b>Author</b>	Miss Aurawan Udomporn	
<b>Degree</b>	Doctor of Philosophy (Materials Science)	
<b>Thesis Advisory Committee</b>	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,  $\text{PbTiO}_3$  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  $x = 0.3\text{-}1.0$ , 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/cm<sup>3</sup> was obtained.

## ชื่อเรื่องวิทยานิพนธ์

การเตรียมและการหาลักษณะเฉพาะทาง โครงสร้างของ  
เซรามิกเดคแมกนีเซียมในโอเบต-เดค ไททาเนต

ผู้เขียน

นางสาวอรุณรัตน อุดมพร

ปริญญา

วิทยาศาสตรคุณวิบัติ(วัสดุศาสตร์)

## คณะกรรมการที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์

ผศ. ดร. สุพล อนันดา

ประธานกรรมการ

ศ. ดร. ทวี ตันขศรี

กรรมการ

รศ. ดร. จินตนา ศิริพิทยานานพ กรรมการ

## บทคัดย่อ

ในงานวิจัยนี้ได้มุ่งความสนใจในการศึกษาไปที่ 3 ประเด็นหลักเพื่อเป็นการสร้างความเข้าใจถึงความสัมพันธ์ระหว่างเงื่อนไขของการเตรียม และลักษณะเฉพาะทาง โครงสร้างของสารในระบบเดคแมกนีเซียม ในโอเบต ( $Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ )-เดค ไททาเนต ( $PbTiO_3$ ) หรือ PMN-PT โดยเริ่มจากการเตรียมผงเพอร์อฟส์ไกด์ PMN และ PT ด้วยการใช้เทคนิคการบดย่อยแบบสันกระแทก พร้อมกับทำการศึกษาถึงพฤติกรรมการก่อเกิดเฟสภายใน ไบของสารเพาแคลไซน์ต่างๆ โดยใช้เทคนิค TG-DTA ร่วมทั้งเทคนิค XRD และพบว่าเงื่อนไขที่เหมาะสมสำหรับการเตรียมเฟสบริสุทธิ์ ของสาร PMN คือการเผาที่อุณหภูมิ 800 องศาเซลเซียส นาน 1 ชั่วโมง ด้วยอัตราเข็น/ลงอุณหภูมิ 20 องศาเซลเซียสต่อนาที และสำหรับ PT คือการเผาที่อุณหภูมิ 600 องศาเซลเซียส นาน 1 ชั่วโมง ด้วยอัตราเข็น/ลงอุณหภูมิ 20 องศาเซลเซียสต่อนาที จากนั้นจึงได้ทำการตรวจสอบสัณฐานของอนุภาคผงและขนาดของอนุภาคโดยใช้เทคนิค SEM โดยพบว่าอนุภาคผงที่เตรียมได้จะมีขนาดใหญ่เมื่อใช้อุณหภูมิแคลไซน์เพิ่มขึ้น โดยมีการเกาะกันเป็นกลุ่มน้ำดิ่งมาก

ต่อมาได้ทำการเตรียมสารเซรามิก PMN และ PT ด้วยการเผาเซนเตอร์แบบปกติและศึกษาถึงความสัมพันธ์ระหว่างเงื่อนไขในการซินเคอร์ การก่อเกิดเฟส การแน่นตัวและพัฒนาการของโครงสร้างจุลภาค โดยพบว่าสามารถทำการเตรียมเซรามิก PMN และ PT ที่มีความหนาแน่นสูง

ประมาณ 96-97% และมีเฟสเพอรอฟสไกค์ได้ด้วยการเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1240 องศาเซลเซียส นาน 2 ชั่วโมง ด้วยอัตราเข็น/ลงอุณหภูมิ 5 องศาเซลเซียสต่อนาที และการเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1225 องศาเซลเซียสนาน 2 ชั่วโมง ด้วยอัตราเข็น/ลงของอุณหภูมิ 1 องศาเซลเซียสต่อนาที ตามลำดับ

สุดท้ายได้ทำการทดลองเตรียมสารละลายนองแข็งที่เป็นเฟสเพอรอฟสไกค์ในระบบ  $(1-x)$ PMN- $x$ PT โดยพบว่าค่าแลดติซพารามิเตอร์ของ PMN ซึ่งอยู่ในระบบลูกบาศก์ (เที่ยม) จะมีค่าเท่ากับ 0.404 นาโนเมตร และแลดติซพารามิเตอร์ของ PT ซึ่งอยู่ในระบบเตตระโภนอลมีค่า  $a$  เท่ากับ 0.390 นาโนเมตรและ  $c$  เท่ากับ 0.431 นาโนเมตร ตามลำดับ เมื่อสัดส่วนของ PT ในระบบเพิ่มสูงขึ้นในช่วงระหว่าง  $x$  เท่ากับ 0.3 ถึง 1.0 พบร่วมค่าเตตระโภนอลลิติกหรือ  $c/a$  ของวัสดุจะมีค่าเพิ่มขึ้นจาก 1.000 ถึง 1.060 ซึ่งจากโครงสร้างจุลภาคของเซรามิกในระบบ PMN-PT ที่เตรียมได้พบว่ามีเฟสของสารประกอบที่มีปริมาณ MgO และ PbO สูงๆแทรกปะปนอยู่รวมกับเฟสหลักของสาร PMN-PT และเป็นที่ชัดเจนว่าการสูญเสีย PbO ออกไปในบางส่วนระหว่างกระบวนการเตรียมเซรามิก จะทำให้มีเฟสไฟโรคลอเกิดขึ้นมาปะปนกับเฟสหลักและส่งผลทำให้เซรามิกที่เตรียมได้มีความหนาแน่นลดน้อยลงไปด้วย นอกจากนี้ยังได้ทำการเดือกองค์ประกอบในระบบ  $(1-x)$ PMN- $x$ PT คือสารสูตร 0.9PMN-0.1PT มาทำการศึกษาเพิ่มเติมถึงความสัมพันธ์ระหว่างการก่อเกิดเฟสพุติกรรมการແเน้นตัวและโครงสร้างจุลภาคแบบเจาะลึกลงไปในรายละเอียดอีกด้วย โดยพบว่าสามารถเตรียมผง 0.9PMN-0.1PT ได้โดยการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 900 องศาเซลเซียส นาน 2 ชั่วโมง ด้วยอัตราเข็น/ลงของอุณหภูมิ 20 องศาเซลเซียสต่อนาทีและสามารถเตรียมเซรามิก 0.9PMN-0.1PT ที่มีความหนาแน่น 7.98 กรัม/ลูกบาศก์เซนติเมตร ได้ที่อุณหภูมิของการซินเตอร์ที่ 1240 องศาเซลเซียส นาน 2 ชั่วโมง ด้วยอัตราเข็น/ลงของอุณหภูมิ 15 องศาเซลเซียสต่อนาที