Thesis Title	Effects of Nano-Alumina Powder on Microstructures and Physical Properties of Lead Zirconate and Lead Zirconate Titanate Ceramics
Author	Mrs. Chompoonuch Puchmark
Degree	Doctor of Philosophy (Materials Science)
Thesis Advisory Committee	Assoc. Prof. Dr. Gobwute Rujijanagul Chairperson Prof. Emeritus Dr. Tawee Tunkasiri Member Asst. Prof. Dr. Sukanda Jiansirisomboon Member

ABSTRACT

This research project, $PbZrO_3$-Al_2O_3 and $Pb(Zr_{0.48}Ti_{0.52})O_3$-$Al_2O_3$ nanocomposite ceramics were prepared by a solid-state method. The properties of the nanocomposites were studied as a function of Al_2O_3 nanoparticles additive.

In case of $PbZrO_3$, the Al_2O_3 nanoparticles inhibited densification relative to unmodified $PbZrO_3$, necessitating an increase in sintering temperature of the nanocomposite to achieve equivalent high-density to the monolithic ceramics $PbZrO_3$. Microstructures, Vickers hardness and dielectric properties of $PbZrO_3$ ceramics with co-additions of 0.5-5 vol% (~0.25-2.5 wt%) Al_2O_3 nanoparticles were investigated. The addition of Al_2O_3 nanoparticles also inhibited grain growth, with average grain size decreasing from ~ 13 μm for $PbZrO_3$, to ~ 1 μm for the nanocomposites after being

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved

sintered at 1300 °C. Mode of fracture also changed from predominantly inter-granular in $PbZrO_3$, to a mixed-mode intra- and inter-granular fractures in the nanocomposites. Vickers hardness values increased from 2.9 GPa for $PbZrO_3$, to 4.1 GPa for the sample with only 1 vol% Al_2O_3, but there was a more gradual increase for higher Al_2O_3 contents. Plots of relative permittivity versus temperature indicated subtle differences which were attributed to a chemical reaction between the additive and matrix phases. X-ray powder diffraction on a 10 vol % (~ 5wt %) sample indicated that lead aluminium oxides were the principal reaction product.

In case of $Pb(Zr_{0.48}Ti_{0.52})O_3$;(PZT), the XRD patterns showed strong peak splitting which was an indication of tetragonal PZT phase, however the splitting was slightly less well defined in the alumina-containing samples. Density and linear shrinkage increased with increasing amount of Al_2O_3 up to 1 vol% and then decreased for 2 vol% addition. The decrease in density at higher Al_2O_3 additions indicated that the sintering mechanism of the sample was not complete. Average grain sizes of the samples were also found to decrease with the addition of Al_2O_3 nano-particles, indicating that the Al_2O_3 particles inhibited grain growth. Increasing the Al_2O_3 content from 0.5 to 2 vol% produced no further change in grain size. Intergranular fracture with partial intragranular fracture was found for the monolithic PZT ceramics. The fracture mode changed to mainly intragranular for the sample with only 1 vol% Al_2O_3 addition, indicating the reinforcement of the second phase nanoparticles at the PZT grain boundaries. Hardness of the nanocomposites tended to improve with the addition of the nanoparticles. The maximum hardness was obtained at PZT-1 vol% Al_2O_3. The lower hardness at a higher Al_2O_3 content, 2 vol%, was likely to be due to the lower sinterability and lower density of the samples.

From the study, mechanical properties of $PbZrO_3$ and $Pb(Zr_{0.48}Ti_{0.52})O_3$ ceramics have been improved by a concept of "nanocomposites". However, chemical reactions between the Al_2O_3 nanoparticles and the matrixes have been occurred in the nanocomposites.

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved

ชื่อเรื่องวิทยานิพนธ์	ผลของผงอะลูมินาระดับนาโนต่อโครงสร้างจุลภาค และสมบัติทางกายภาพของเซรามิกเลดเซอร์โคเนตและเซรามิกเลดเซอร์โคเนตไทเทเนต
ผู้เขียน	นางชมพูนุช พืชมาก
ปริญญา	วิทยาศาสตรดุษฎีบัณฑิต (วัสดุศาสตร์)
คณะกรรมการที่ปรึกษาวิทยานิพนธ์	รศ. ดร. กอบวุฒิ รุจิจนากุล ประธานกรรมการ ศ. เกียรติคุณ ดร. ทวี ตันฑศิริ กรรมการ ผศ. ดร. สุกานดา เจียรศิริสมบูรณ์ กรรมการ

บทคัดย่อ

งานวิจัยนี้ได้เตรียมวัสดุผสมระดับนาโนของเซรามิกเลดเซอร์โคเนต-อะลูมินา ($PbZrO_3$-Al_2O_3) และเลดเซอร์โคเนตไททาเนต-อะลูมินา ($Pb(Zr_{0.48}Ti_{0.52})O_3$-$Al_2O_3$) โดยวิธีปฏิกิริยาของแข็ง แล้วศึกษาผลของการเติมอนุภาคอะลูมินาขนาดนาโนที่มีผลต่อสมบัติของวัสดุผสมระดับนาโน

ในกรณีของเลดเซอร์โคเนตนั้น การเติมผงอะลูมินาในระดับนาโนทำให้ความหนาแน่นลดลงเมื่อเปรียบเทียบกับเซรามิกเลดเซอร์โคเนตที่ไม่ได้มีการดัดแปรง จึงจำเป็นต้องเพิ่มอุณหภูมิในการซินเตอร์เพื่อให้สารตัวอย่างวัสดุผสมระดับนาโนให้มีความหนาแน่นสูงขึ้นเทียบเท่ากับเซรามิกเลดเซอร์โคเนตบริสุทธิ์ เมื่อเติมผงอะลูมินาในระดับนาโนในปริมาณร้อยละ 0.5-5 โดยปริมาตร (ร้อยละ 0.25-2.5 โดยน้ำหนัก) แล้ว ศึกษาโครงสร้างจุลภาค ค่าความแข็งแบบวิกเกอร์ และสมบัติไดอิเล็กตริก พบว่าการเติมอนุภาคอะลูมินาขนาดนาโนไปจะยับยั้งการเติบโตของเกรน โดยขนาดของเกรนเฉลี่ยของสารตัวอย่าง $PbZrO_3$ ที่ซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1300 °C เมื่อยังไม่ได้เติมผงอะลูมินาเทียบกับเมื่อเติมผงอะลูมินาแล้ว ลดลงจากประมาณ 13 μm เป็น 1 μm และลักษณะของรอยหักมีการเปลี่ยนจากการหักแบบผ่าน

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved

ตามเกรนเป็นหลักในสารตัวอย่างที่ยังไม่เติมอะลูมินา เป็นแบบผสมระหว่างหักแบบผ่านตามเกรนและหักผ่านเกรน ในวัสดุผสมระดับนาโนค่าความแข็งแบบวิกเกอร์เพิ่มขึ้นจาก 2.9 GPa เป็น 4.1 GPa ในสารตัวอย่างที่เติมอะลูมินาเพียงร้อยละ 1 โดยปริมาตร แต่ค่าความแข็งนี้จะไม่สูงขึ้นเมื่อปริมาณอะลูมินามากไปกว่านี้ จากกราฟของค่าคงที่ไดอิเล็กตริกเทียบกับอุณหภูมิชี้ให้เห็นว่าเกิดปฏิกิริยาเคมีระหว่างเฟสสารที่เติมกับเฟสเมตริกซ์ โดยการใช้เทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์วิเคราะห์ผงของสารตัวอย่างที่เติมผงอะลูมินาร้อยละ 10 โดยปริมาตร ชี้ให้เห็นว่าเกิดปฏิกิริยาได้เลดอะลูมิเนียมออกไซด์เป็นหลัก

ในส่วนของเลดเซอร์โคเนตไททาเนต รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์แสดงให้เห็นการแยกของเฟสเตตระโกนอลอย่างชัดเจนในสารเลดเซอร์โคเนตไททาเนต และเมื่อเติมผงอะลูมินาแล้วการแยกของเฟสเตตระโกนอลนั้นจะน้อยลง ความหนาแน่นและการหดตัวเชิงเส้นเพิ่มขึ้นเมื่อเพิ่มปริมาณของอะลูมินาจนถึงร้อยละ 1 โดยปริมาตร แต่เมื่อเติมอะลูมินาถึงร้อยละ 2 โดยปริมาตร ค่าทั้งสองนี้ก็ลดลง การที่ความหนาแน่นลดลงเมื่อเติมอะลูมินามากขึ้นแสดงให้เห็นว่ากลไกการเผาซินเตอร์ของสารตัวอย่างนั้นไม่สมบูรณ์ ขนาดเกรนเฉลี่ยของสารตัวอย่างลดลงเมื่อมีการเติมอะลูมินา แสดงให้เห็นว่าอนุภาคอะลูมินาเป็นตัวยับยั้งการเติบโตของเกรน รอยหักจะมีทั้งแบบการหักผ่านตามเกรน และหักแบบผ่านเกรนบ้างเป็นบางส่วน แต่รอยหักจะเปลี่ยนไปเป็นหักแบบผ่านเกรนเป็นหลัก เมื่อเติมด้วยอะลูมินาจนถึงร้อยละ 1 โดยปริมาตร ซึ่งจะแสดงให้เห็นว่าอนุภาคขนาดนาโนของอะลูมินาเป็นตัวช่วยเสริมแรงบริเวณขอบเกรน อย่างไรก็ตามเมื่อปริมาณของอะลูมินาเพิ่มขึ้นจากร้อยละ 0.5 เป็นร้อยละ 2 โดยปริมาตร รอยหักจะกลับเป็นทั้งแบบหักผ่านตามเกรนและหักผ่านเกรน ซึ่งน่าจะเป็นผลจากการลดลงของความหนาแน่นเมื่อปริมาณของสารเจืออะลูมินาเพิ่มขึ้นจากร้อยละ 1 เป็นร้อยละ 2โดยปริมาตร

จากผลการทดลอง สามารถปรับปรุงสมบัติเชิงกลของเซรามิก $PbZrO_3$ และ $Pb(Zr_{0.48}Ti_{0.52})O_3$ ด้วยหลักกการ “วัสดุผสมนาโน” อย่างไรก็ตามก็ยังคงเกิดปฏิกิริยาทางเคมีระหว่างอนุภาคระดับนาโนของอะลูมินากับเฟสเมตริกซ์ของเซรามิก

ลิขสิทธิ์มหาวิทยาลัยเชียงใหม่
Copyright© by Chiang Mai University
All rights reserved