



รายงานวิจัยฉบับสมบูรณ์

โครงการ สมบัติของสารเซรามิกเพอร์โรอิเล็กทริกที่เตรียมด้วย
วิธีการเผาผนึกแบบไมโครเวฟ

โดย เรือโทหญิง ดร.นิภาภัทร เจริญไทย

มิถุนายน 2551

สัญญาเลขที่ MRG4980186

รายงานวิจัยฉบับสมบูรณ์

โครงการสมบัติของสารเซรามิกเฟอร์โรอิเล็กตริกที่เตรียมด้วย
วิธีการเผาผนึกแบบไมโครเวฟ

เรือโทหญิง ดร.นิภาภัทร เจริญไทย

ภาควิชาเคมี คณะวิทยาศาสตร์
มหาวิทยาลัยนเรศวร จังหวัดพิษณุโลก

สนับสนุนโดยสำนักงานกองทุนสนับสนุนการวิจัย

(ความเห็นในรายงานนี้เป็นของผู้วิจัย สกว.ไม่จำเป็นต้องเห็นด้วยเสมอไป)

กิตติกรรมประกาศ

ขอขอบพระคุณ รองศาสตราจารย์ ดร.กอบวุฒิ รุจิณากุล อาจารย์ภาควิชาวัสดุศาสตร์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยเชียงใหม่ ที่ช่วยเหลือ ให้คำแนะนำ ปรีक्षा และข้อเสนอแนะต่างๆ และกรุณาเป็นนักวิจัยพี่เลี้ยงในโครงการวิจัยครั้งนี้ ขอขอบพระคุณ ศาสตราจารย์ ดร.ทวี ตันขศิริ อาจารย์ภาควิชาวัสดุศาสตร์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยเชียงใหม่ที่ได้ให้คำปรึกษา แนะนำ และเอื้ออำนวยความสะดวกในการใช้เครื่องมือ และอุปกรณ์ต่างๆพร้อมให้การสนับสนุนในทุกๆ ด้านตลอดโครงการวิจัยนี้

ขอขอบคุณ ดร.รักษาดิ ไตรผล และ ดร.นิมิตร ศรีปรารักษ์ ที่ได้ให้คำแนะนำ ปรีक्षा แก้ไขข้อบกพร่องต่างๆและวิจารณ์ผลการทดลองในโครงการวิจัยครั้งนี้เป็นอย่างดี ขอขอบคุณ นางสาวยุภา ปรอยโคกสูง และนางสาววิณา สายพรหม นิสิตภาควิชาเคมี คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยนเรศวร ที่ร่วมทำการทดลองตลอดโครงการวิจัยนี้

ขอขอบคุณเจ้าหน้าที่ทุกฝ่าย รวมทั้งบุคคลที่มีส่วนเกี่ยวข้องกับโครงการวิจัยครั้งนี้ของ ภาควิชาเคมี คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยนเรศวร ภาควิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยเชียงใหม่ทุกท่านที่เอื้ออำนวยความสะดวกในการใช้เครื่องมือ และอุปกรณ์ต่างๆ พร้อมให้การสนับสนุนในทุกๆ ด้านจนกระทั่งโครงการวิจัยนี้จนสำเร็จลุล่วงไปได้ด้วยดี

สุดท้ายนี้ขอขอบคุณ สำนักงานกองทุนสนับสนุนการวิจัย (สกว.) ที่ได้สนับสนุนเงินทุนโครงการวิจัยในครั้งนี้

นิภาภัทร เจริญไทย

มิถุนายน 2551

บทคัดย่อ

รหัสโครงการ : MRG4980186

ชื่อโครงการ : สมบัติของสารเซรามิกเพอร์โรอิเล็กทริกที่เตรียมด้วยวิธีการเผาผนึกแบบไมโครเวฟ

ชื่อนักวิจัย : เรือโทหญิงนิภาภัทร เจริญไทย

ภาควิชาเคมี คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยนเรศวร จังหวัดพิษณุโลก

E-mail Address : nipaphatc@nu.ac.th

ระยะเวลาโครงการ : 1 มิถุนายน 2549 – 30 มิถุนายน 2551

สารเซรามิกเพอร์โรอิเล็กทริก $\text{BaFe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_3$ (BFN) เป็นสารประกอบที่มีโครงสร้างแบบเพอร์รอฟสไกต์ที่มีค่าคงที่ไดอิเล็กทริกที่สูงในช่วงการเปลี่ยนแปลงอุณหภูมิที่กว้าง จากคุณสมบัติการมีค่าคงที่ไดอิเล็กทริกที่สูงทำให้นิยมนำสารประกอบชนิดนี้มาประยุกต์ใช้ในงานของตัวเก็บประจุ อย่างไรก็ตามการเตรียมสารประกอบ BFN นี้ด้วยวิธีมิกซ์ออกไซด์ (solid state) จะต้องใช้อุณหภูมิในการเตรียมสารประกอบค่อนข้างสูง ในงานวิจัยนี้จึงได้ทำการค้นคว้าหาแนวทางใหม่ในการเตรียมสารประกอบ BFN ให้ง่ายขึ้นและเพิ่มคุณสมบัติทางไฟฟ้าของสารประกอบ BFN ถูกเตรียมโดยการดัดแปลงจากวิธีทางเคมีเล็กน้อย โดยวิธีการหนึ่งในการเตรียมสารประกอบ BFN คือการใช้คลิ่นไมโครเวฟช่วยเร่งปฏิกิริยาของสารตั้งต้น (precursors) ภายในภาชนะปิด ขณะที่อีกวิธีหนึ่งจะทำการเตรียมสารตั้งต้นที่บรรยากาศของอุณหภูมิห้อง จากนั้นทำการตรวจสอบโครงสร้างและเฟสของสารประกอบ BFN ที่ได้จากการเผาแคลไซน์ด้วย X-ray diffraction and Fourier transformed infrared spectrometry ซึ่งพบว่าจากการเตรียมสารประกอบ BFN ทั้ง 2 วิธีจะได้สารประกอบ BFN ที่บริสุทธิ์เมื่อเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ $850\text{ }^{\circ}\text{C}$ เป็นเวลา 14 ชั่วโมง จากนั้นนำมาอัดเป็นเม็ดแล้วทำการเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ $1250\text{ }^{\circ}\text{C}$ เป็นเวลา 4 ชั่วโมง จากการทดลองพบว่าเวลาของการเกิดปฏิกิริยาภายในภาชนะปิด และอุณหภูมิที่ใช้ในการเผาแคลไซน์จะมีผลต่อสมบัติทางกายภาพและค่าคงที่ไดอิเล็กทริกของสารประกอบ BFN โดยพบว่าการเตรียมสารประกอบ BFN โดยการใช้คลิ่นไมโครเวฟจะมีขนาดของอนุภาคที่เล็กกว่า และค่าคงที่ไดอิเล็กทริกของสารประกอบ BFN ที่เตรียมจากการใช้คลิ่นไมโครเวฟมีค่าประมาณ 20000 และค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริกประมาณ 0.2 ขณะที่การเตรียมด้วยวิธีทางเคมีที่อุณหภูมิห้องได้ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกประมาณ 9000 และ ค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริกประมาณ 1.1 เมื่อทำการวัดค่าเหล่านี้เทียบกับการเปลี่ยนแปลงสนามไฟฟ้าที่อุณหภูมิห้อง

คำหลัก : Barium iron niobate, High dielectric constant, Ferroelectric

Abstract

Project Code : MRG4980186

Project Title : Properties of Ferroelectric Ceramics Prepared by Microwave Sintering Method

Investigator : Lt.Jg.Nipaphat Charoenthai

Department of Chemistry, Faculty of Science, Naresuan University,
Phitsanulok

E-mail Address : nipaphatc@nu.ac.th

Project Period : 1 June 2006 – 30 June 2008

The ferroelectric $\text{BaFe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_3$ (BFN) ceramic is a perovskite-type compound that exhibits very high value of dielectric constant over wide range of temperature. The high dielectric property of this material makes it a promising candidate for capacitor application. However, solid-state synthetic method normally requires high-temperature conditions. This research seeks for alternative synthetic methods, which are more versatile and improve the electrical properties. The BFN ceramic is prepared by modified chemical process with slightly different conditions. One synthetic route uses microwave irradiation to assist the reaction of precursors in closed vessel while another method takes place in atmosphere at room temperature. The phase identification of calcined powders is performed by utilizing X-ray diffraction and Fourier transformed infrared spectrometry. The high purity BFNs prepared via both methods are obtained when calcined at 850°C for 14 h. The powders are then pressed into disc shape and sintered at 1250°C for 4 h. We have found that reaction time in microwave vessel and calcined temperatures affect physical properties and dielectric constant of the BFN. The microwave assisted route tends to provide the BFN with smaller grain size. The field dependences of the dielectric response and dielectric loss are measured in a frequency range from 20 Hz to 2 MHz at room temperature. The BFN prepared via microwave assisted route yields a dielectric constant, ϵ'_{max} , of ~ 20000 and dielectric loss of ~ 0.2 while another route provides a dielectric constant, ϵ'_{max} , of ~ 9000 and dielectric loss of ~ 1.1 .

Keywords : Barium iron niobate, High dielectric constant, Ferroelectric

Executive Summary

สารประกอบแบเรียมไนโอเบต ($\text{BaFe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_3$) หรือ BFN เป็นสารที่มีโครงสร้างแบบ perovskite ที่มีค่าคงที่ไดอิเล็กตริก (dielectric constant) สูงมากในช่วงอุณหภูมิที่กว้าง จึงนิยมนำมาประยุกต์ใช้ในการทำเป็นตัวเก็บประจุ ในงานวิจัยครั้งนี้ได้ทำการคิดค้นวิธีใหม่ในการสังเคราะห์สารประกอบ BFN โดยใช้วิธีทางเคมีในการเตรียมสารละลายตั้งต้นในการเกิดปฏิกิริยาและใช้คลื่นรังสีไมโครเวฟ (microwave) เพื่อช่วยให้เกิดปฏิกิริยาได้อย่างสมบูรณ์ โดยสารละลายที่ได้ออกมาในขั้นต้นนั้นจะนำไปให้ความร้อนได้โดยใช้ไมโครเวฟ (microwave) โดยการศึกษาถึงปัจจัยต่างๆ ที่มีผลต่อการสังเคราะห์ เวลาที่ใช้ในการเกิดปฏิกิริยาหลังจากให้คลื่นรังสีไมโครเวฟ อุณหภูมิที่ใช้ในการเผาแคลไซน์ และระยะเวลาที่ใช้ในการเผาแคลไซน์ ซึ่งได้ติดตามการเกิดปฏิกิริยาเป็นสารประกอบ BFN โดยใช้เทคนิค X-ray diffraction และ Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FT-IR) จากการศึกษาพบว่าโครงสร้างของสารประกอบ BFN จะเริ่มเกิดขึ้นเมื่อทำการเผาแคลไซน์ ที่อุณหภูมิ 750 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 5 ชั่วโมง และเมื่อทำการเพิ่มอุณหภูมิที่ใช้ในการเผาแคลไซน์ เป็นที่อุณหภูมิ 850 และ 950 องศาเซลเซียส พบว่าเกิดโครงสร้างของสารประกอบ BFN ได้ดีขึ้น โดยโครงสร้างของสารประกอบ BFN เกิดขึ้นได้อย่างสมบูรณ์ เมื่อทำการเผาแคลไซน์ ที่อุณหภูมิ 850 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 18 ชั่วโมง นอกจากนี้ยังพบว่าเวลาที่ใช้ในการเกิดปฏิกิริยาหลังจากให้คลื่นรังสีไมโครเวฟ ก็เป็นปัจจัยที่สำคัญในการสังเคราะห์สารประกอบ BFN ที่มีความบริสุทธิ์สูงด้วยเช่นกัน จากนั้นนำผงสารประกอบ BFN ที่บริสุทธิ์ไปอัดเม็ด แล้วทำการเผาซินเตอร์ ที่อุณหภูมิ 1250 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 4 ชั่วโมง แล้วนำไปศึกษาโครงสร้างทางจุลภาค เช่น ขนาดอนุภาค และรูปร่างของผลึก โดยใช้กล้องจุลทรรศน์แบบส่องกราด (scanning electron microscopy (SEM)) พบว่าเมื่อทำการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิสูงขึ้นสารประกอบ BFN ที่ได้จะมีลักษณะความเป็นผลึกมากขึ้น แต่เมื่อใช้เวลาในการเผาแคลไซน์เพิ่มขึ้นขนาดของอนุภาคจะลดลง และเมื่อนำไปทำการศึกษาสมบัติทางไฟฟ้าในช่วงความถี่ตั้งแต่ 0 ถึง 20000 เฮิรตซ์ที่อุณหภูมิห้อง พบว่าเมื่อความถี่เพิ่มขึ้นสารประกอบ BFN จะมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกลดลง ซึ่งเป็นสมบัติที่สำคัญของสารประเภท relaxor ferroelectric และสารประกอบ BFN ที่เตรียมจากการผ่านรังสีไมโครเวฟจะมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริก ~ 18200 สูงกว่าสารประกอบ BFN ที่เตรียมโดยการไม่ใช้รังสีไมโครเวฟซึ่ง มีค่าคงที่ไดอิเล็กตริก ~ 8730 นอกจากนี้อุณหภูมิที่ใช้ในการเผาแคลไซน์เพื่อเตรียมสารประกอบ BFN ก็มีผลต่อค่าคงที่ไดอิเล็กตริกเช่นเดียวกันโดยสารประกอบ BFN ที่ผ่านการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 14 ชั่วโมงจะมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริก ~ 18200 ซึ่งน้อยกว่าค่าคงที่ไดอิเล็กตริกของสารประกอบ BFN ที่ผ่านการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 10 ชั่วโมงจะมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกสูงถึง ~ 37200 ซึ่งคาดว่าเกิดจากขนาดอนุภาคและความหนาแน่นของสารที่เตรียมได้

เนื้อหาบทวิจัย

บทนำ

สารเพอร์โรอิเล็คทริกเป็นสารประกอบที่มีโครงสร้างแบบ perovskite เช่น $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3)$, $\text{CaCu}_3\text{TiO}_4\text{O}_{12}$ ซึ่งสารประกอบเหล่านี้นิยมนำมาใช้ในอุตสาหกรรมทางอิเล็กทรอนิกส์เนื่องจากการมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกที่สูง (high dielectric constant) ในช่วงอุณหภูมิที่กว้าง [1-3] แต่อย่างไรก็ตามพบว่าสารประกอบที่มีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกที่สูงส่วนใหญ่จะมีตะกั่ว (Pb) เป็นส่วนประกอบอยู่ซึ่งจะทำให้เกิดมลพิษกับสิ่งแวดล้อมเนื่องจาก การเกิดตะกั่วออกไซด์ (PbO) ระหว่างการเตรียมสาร ดังนั้นจึงได้มีการค้นคว้าวิจัยเพื่อหาสารประกอบที่ไม่มีตะกั่วเป็นส่วนประกอบและมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกที่สูงมาทดแทน ซึ่งพบว่าสารประกอบ $\text{Ba}(\text{Fe}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3$ (BFN) ได้ถูกพบว่าเป็นสารประกอบที่มีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกที่สูงในช่วงอุณหภูมิและความถี่ที่กว้าง [3-7] โดยค่าคงที่ไดอิเล็กตริกสูงที่สุดมีค่า 30,000 ที่อุณหภูมิประมาณ 170°C [3,4]

จากการศึกษาที่ผ่านมาพบว่า สมบัติต่างๆของสารประกอบเพอร์โรอิเล็คทริกทั้งสมบัติทางกายภาพ เช่น ขนาดของอนุภาค ขนาดของเกรน และสมบัติทางไฟฟ้า เช่นค่าคงที่ไดอิเล็กตริกจะเปลี่ยนแปลงไป เมื่อกรรมวิธีในการเตรียมสารประกอบเหล่านี้เปลี่ยนแปลงไป สารประกอบ BFN ถูกเตรียมขึ้นครั้งแรกด้วยวิธีการมิกซ์ออกไซด์แบบดั้งเดิม (solid state reaction) ด้วยการเผาที่อุณหภูมิสูงกว่า $1,000^\circ\text{C}$ [4,5,7-9] ซึ่งเป็นวิธีการเตรียมสารประกอบ BFN ที่สะดวกที่สุดแต่ก็มีข้อเสียคือวิธีการนี้จะควบคุมปริมาณและสัดส่วนของสารที่เข้าทำปฏิกิริยากันและการรวมเป็นเนื้อเดียวกันของสารประกอบ BFN ได้ค่อนข้างยุ่งยากและลำบาก นอกจากนั้นการเตรียมสารประกอบ BFN ด้วยวิธีนี้ยังต้องทำการเผาที่อุณหภูมิสูงเพื่อให้ได้โครงสร้างที่บริสุทธิ์ของสารประกอบ BFN ดังนั้นจึงได้มีผู้พยายามทำการวิจัยเพื่อที่จะทำการพัฒนาวิธีการเตรียมสารประกอบ BFN ด้วยวิธีการใหม่และทำการเปรียบเทียบสมบัติทางไฟฟ้าของสารประกอบ BFN ที่เตรียมได้ [9-12] ซึ่งเมื่อเร็ว ๆ นี้ได้มีการศึกษาการเตรียมสารประกอบ BFN โดยการเติม LiF ลงไปในระบบของสารประกอบ BFN ที่เตรียมด้วยวิธีมิกซ์ออกไซด์แบบดั้งเดิม และพบว่าช่วยลดอุณหภูมิในการเผาสารประกอบ BFN ลงประมาณ $150\text{-}200^\circ\text{C}$ [10] แต่ค่าคงที่ไดอิเล็กตริกของสารประกอบ BFN ที่เตรียมได้นี้จะมีค่าลดลงเมื่อปริมาณของสาร LiF เพิ่มขึ้น แต่ในขณะเดียวกันจากการศึกษาในระบบที่มีการเติมสารเจืออื่น ๆ ลงไปในการเตรียมสารประกอบ BFN เช่น Bi หรือ La จะส่งผลให้ค่าคงที่ไดอิเล็กตริกเพิ่มขึ้นได้เช่นกัน [11,12]

การเตรียมสารประกอบ BFN สามารถเตรียมได้โดยการลดเงื่อนไขในการเผาที่อุณหภูมิสูงได้โดยการใช้วิธีทางเคมีแทนการมิกซ์ออกไซด์ ซึ่งวิธีนี้สามารถทำการขึ้นรูปสารประกอบเซรามิก BFN ที่เตรียมได้อยู่ในรูปของแผ่นฟิล์มได้สะดวกและสามารถควบคุมส่วนประกอบต่างๆของสารประกอบ BFN ที่เตรียมได้ การเตรียมสารประกอบ BFN โดยวิธีทางเคมีนี้ถูกศึกษาโดย Chang และคณะ ซึ่งทำการเตรียมสารประกอบ BFN ด้วยวิธี sol gel [13] และพบว่าค่าอุณหภูมิการเผาแคลไซน์เพื่อให้ได้สารประกอบ BFN ที่บริสุทธิ์มีค่าต่ำกว่าการเตรียมสารประกอบ BFN

ด้วยวิธีการมิกซ์ออกไซด์แบบดั้งเดิมมาก ซึ่งพบว่าโครงสร้างผลึกของสารประกอบ BFN เริ่มเกิดขึ้นเมื่อทำการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 500 °C และโครงสร้างผลึกของสารประกอบ BFN จะเกิดอย่างสมบูรณ์เมื่อทำการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850 °C

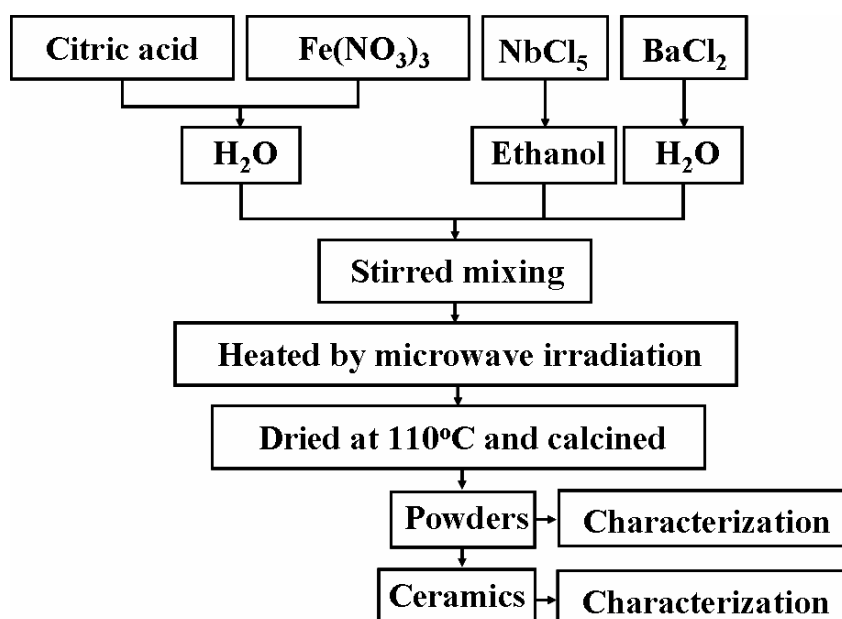
วัตถุประสงค์

ในการศึกษาครั้งนี้ได้ทำการศึกษาวิธีทางใหม่ในการเตรียมสารประกอบ BFN โดยอาศัยวิธีทางเคมีซึ่งจะทำการเตรียมสารละลายตั้งต้น (precursor) เพื่อใช้ในการทำปฏิกิริยาที่อุณหภูมิห้อง แล้วอาศัยคลื่นรังสีไมโครเวฟช่วยเร่งปฏิกิริยาในการเกิดสารประกอบ BFN โดยทำการเปลี่ยนแปลงปัจจัยต่างๆในกระบวนการเตรียมสารประกอบ BFN เช่น เวลาที่ใช้ในการเกิดปฏิกิริยาภายในภาชนะปิด อุณหภูมิและเวลาที่ใช้ในการเผาแคลไซน์ จากนั้นจะทำการตรวจวิเคราะห์โครงสร้างและคุณสมบัติทางไฟฟ้าของสารประกอบ BFN ที่เตรียมได้ แล้วทำการเปรียบเทียบกับวิธีการเตรียมด้วยวิธีต่างๆ

วิธีการทดลอง

ในการทดลองครั้งนี้ได้ทำการเตรียมสารประกอบ $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})\text{O}_3$ ด้วยวิธีทางเคมี โดยทำการเตรียม precursor ตามขั้นตอนต่างๆ ดังแสดงไว้ในรูปที่ 1 ดังนี้ เริ่มจากการผสม Citric acid anhydrous ($\text{C}_6\text{H}_8\text{O}_7$) กับ Iron (III) nitrate ($\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$) โดยใช้ น้ำปราศจากไอออน (deionization) เป็นตัวทำละลาย จากนั้นเติม Niobium (V) chloride (NbCl_5) ที่ใช้เอทานอล (ethanol) เป็นตัวทำละลายลงไป ซึ่งระหว่างนั้นใช้ magnetic bar ทำการผสมสารให้เข้ากันทิ้งไว้ประมาณ 5 นาที แล้วเติม barium chloride dehydrate (BaCl_2) ที่ใช้น้ำเป็นตัวทำละลาย คนทิ้งไว้ประมาณ 10 นาที แล้วจึงเข้าสู่ขั้นตอนต่อไป หรือนำมาทำให้เกิดปฏิกิริยาด้วยวิธีการให้ความร้อนโดยไม่โครเวฟเป็นเวลา 1 นาที แล้วทิ้งไว้ให้เกิดปฏิกิริยาต่อไปภายในภาชนะที่บรรจุสารเป็นเวลา 10, 6 หรือ 3 ชั่วโมง จากนั้นนำไปอบแห้งที่อุณหภูมิ 110 องศาเซลเซียส เป็นเวลาทั้งสิ้น 18 ชั่วโมงแล้วนำมา บดจนเป็นผงละเอียด เมื่อได้สารตัวอย่างที่ต้องการ จึงนำสารตัวอย่างที่ได้เข้าสู่กระบวนการเผาแคลไซน์ (calcine) เพื่อให้เกิดโครงสร้างผลึกของสารประกอบ BFN ที่อุณหภูมิ 650, 750, 850 และ 950 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 5, 7, 9, 14, 18 และ 20 ชั่วโมง ทั้งนี้เพื่อเป็นการศึกษาผลของอุณหภูมิและเวลาในการเผาแคลไซน์ ต่อการเกิดผลึกของสารประกอบ BFN สารตัวอย่างที่เตรียมได้จะนำไปทำการวิเคราะห์ด้วยเทคนิค X-ray diffraction (XRD) และ Fourier Transform Infrared Spectroscopy (FT-IR) จากนั้นนำผงสารตัวอย่างที่ได้ไปอัดให้เป็นเม็ดขนาดเส้นผ่าศูนย์กลาง 1.5 เซนติเมตร ด้วยความดัน 2000 psi แล้วนำไปเผาซินเตอร์ (sinter) ที่อุณหภูมิ 1250 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 4 ชั่วโมง โดยใช้อัตราการขึ้นลงของอุณหภูมิ 5 องศาเซลเซียส ต่อ 1 นาที แล้วนำสารตัวอย่างที่ได้ไปทำการวิเคราะห์ด้วยกล้องจุลทรรศน์แบบส่องกราด (Scanning Electron Microscope: SEM) เพื่อศึกษาลักษณะผลึกและขนาดอนุภาคของสารประกอบ BFN ที่เตรียมได้ และศึกษาสมบัติทางไดอิเล็กตริกของสาร โดย

การวัดค่าความจุไฟฟ้าด้วยเครื่อง LCZ meter (HP 4276A) ตามการเปลี่ยนแปลงความถี่ตั้งแต่ 0 ถึง 20000 เฮิรท์ซ์ โดยทำการขจัดพื้นผิวของเซรามิกที่เราเตรียมไว้ เคลือบด้วยกาวเงินบนผิวของเซรามิกที่เตรียมได้ เพื่อใช้สำหรับการนำไฟฟ้านำไปอบให้แห้ง แล้วนำออกมาวัดเพื่อหาสมบัติทางไฟฟ้าโดยใช้ impedance spectroscopy system ต่อเข้ากับเครื่อง LCZ meter เพื่ออ่านค่าออกมา โดยเครื่อง LCZ meter จะอ่านค่าวัดจากอุปกรณ์ภายนอก เช่น อุนทมิ ความถี่ กระแสไฟฟ้า



รูปที่ 1 แสดงแผนภาพการเตรียมสารประกอบ BaFe_{0.5}Nb_{0.5}O₃ (BFN) ด้วยวิธีการทางเคมี (wet chemical process) โดยการให้ความร้อนด้วยพลังงานคลื่นไมโครเวฟ

ผลการทดลองและวิจารณ์ผลการทดลอง

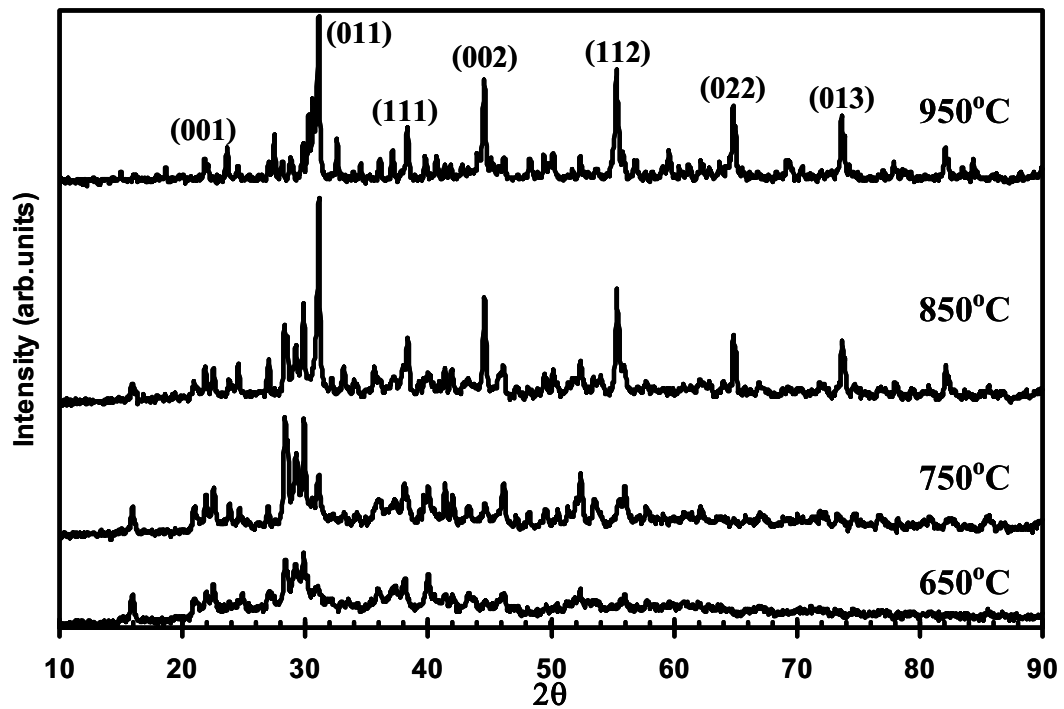
งานวิจัยครั้งนี้เป็นการสังเคราะห์เซรามิกแบบเรียมไนโอเบียมไททาเนต Ba(Fe_{0.5}Nb_{0.5})O₃ หรือ BFN ที่มีโครงสร้างผลึกแบบ perovskite ด้วยวิธีการใหม่ โดยอาศัยการให้ความร้อนด้วยพลังงานรังสีไมโครเวฟ (microwave) กับสารตั้งต้น (precursors) เพื่อทำให้เกิดปฏิกิริยาภายในไมโครเวฟ microwave digestion container แล้วได้เป็นสารประกอบ BFN ดังนั้นเพื่อให้ได้สารที่บริสุทธิ์ที่สุดจึงต้องทำการหาสภาวะที่เหมาะสมในการสังเคราะห์สารประกอบ BFN ซึ่งขึ้นอยู่กับปัจจัยสำคัญต่างๆ เช่น เวลาที่ใช้ในการเกิดปฏิกิริยาหลังจากให้คลื่นรังสีไมโครเวฟ อุณหภูมิที่ใช้ในการเผาแคลไซน์ และเวลาในการเผาแคลไซน์²⁰ จากนั้นทำการตรวจวิเคราะห์ความบริสุทธิ์ โครงสร้าง และขนาดของเกรน (grain size) โดยทำการตรวจสอบสารประกอบที่เตรียมได้ด้วยเทคนิค X-ray diffraction ซึ่งในงานวิจัยครั้งนี้ได้ทำการวิเคราะห์โดยใช้เริ่มจาก 2θ ตั้งแต่ 10-90 องศา และเปลี่ยน step ละ 0.05 องศาต่อ 5 วินาที เครื่อง Fourier Transform Infrared

Spectroscopy (FT-IR) ที่ทำการวิเคราะห์ที่อุณหภูมิห้อง โดยใช้คลื่นความถี่ช่วงกลางอินฟราเรดซึ่งเป็นช่วงที่อยู่ระหว่างความถี่ $4,000-400 \text{ cm}^{-1}$ ในการวิเคราะห์และเครื่อง Scanning Electron Microscopy (SEM) จากนั้นทำการเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1250 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 4 ชั่วโมง แล้วนำไปวัดสมบัติทางไฟฟ้าของสารประกอบที่ได้ ดังจะแสดงรายละเอียดของผลการศึกษาดังต่อไปนี้

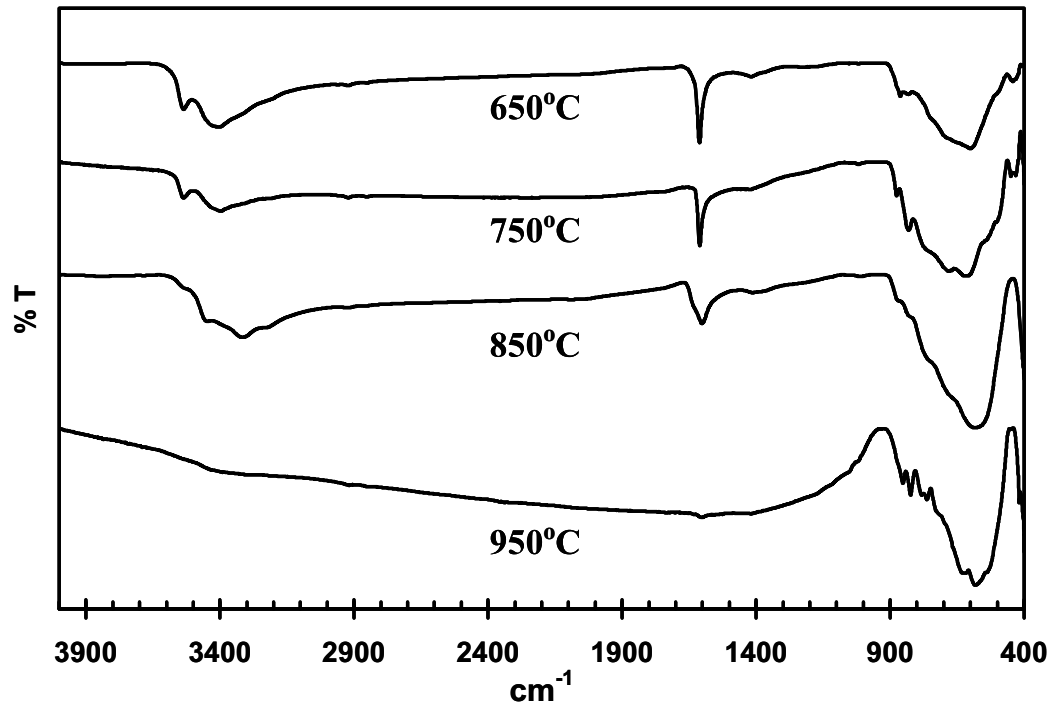
1. การหาอุณหภูมิการเผาแคลไซน์

เมื่อทำการเตรียมสารด้วยวิธีการดังกล่าวข้างต้นแล้วทำการให้ความร้อนด้วยพลังงานไมโครเวฟด้วยกำลังไฟประมาณ 240 วัตต์เป็นเวลา 60 วินาทีจากนั้นทิ้งสารไว้ภายใน microwave digestion container เพื่อให้ปฏิกิริยาเกิดขึ้นอย่างสมบูรณ์เป็นเวลา 10 ชั่วโมง เมื่อนำสารที่ได้ไปเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิต่างๆ กัน คือที่ 650 , 750 , 850 และ 950 °C เป็นเวลา 5 ชั่วโมง จากนั้นนำไปวิเคราะห์ด้วยเทคนิค X-ray diffraction โดยทำการเทียบกับ JCSd หมายเลข 43622 และ Fourier transforms infrared spectrometry ซึ่งสเปกตรัมของสารที่ได้จากการ X-ray แสดงดังรูปที่ 2 จากรูปที่แสดงจะพบว่า ที่อุณหภูมิแคลไซน์ที่ 650 °C สารประกอบที่ได้ยังไม่เริ่มเกิดโครงสร้าง perovskite ของ BFN แต่เมื่ออุณหภูมิที่ใช้ในการเผาแคลไซน์เพิ่มขึ้นเป็น 750 °C สารประกอบที่เตรียมได้จะมีพีกที่แสดงถึงการเกิดโครงสร้างของสารประกอบ BFN มีความสูงของพีกเพิ่มขึ้นที่ 2θ ประมาณ 31.19 องศา ขณะที่พีกที่ 2θ ประมาณ $28-30$ องศา ที่เป็นพีกของสารตั้งต้นที่ยังเกิดปฏิกิริยาไม่สมบูรณ์มีค่าความสูงของพีกที่ลดลง และเมื่อเพิ่มอุณหภูมิของการเผาแคลไซน์ให้สูงขึ้นเป็น 850 °C และ 950 °C นั้นมีผลทำให้ปฏิกิริยาการเกิดเป็นสารประกอบ BFN เกิดได้ดียิ่งขึ้น

จากรูปที่ 3 แสดง IR สเปกตรัมของสาร BFN precursors ที่ใช้เวลา 10 ชั่วโมงและนำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิต่างๆ เป็นเวลา 5 ชั่วโมง ซึ่งจากสเปกตรัมจะพบแบนด์ที่มีลักษณะกว้างมากที่สุดตำแหน่งประมาณ 3400 cm^{-1} ซึ่งเป็นแบนด์ที่เกิดจากการสั่นของหมู่ O-H stretching vibration ที่มาจากน้ำหรือหมู่ไฮดรอกซี (hydroxyl) ที่เหลือจากการทำปฏิกิริยา แบนด์ที่แคบและแหลมที่ตำแหน่งประมาณ 1600 cm^{-1} เป็นแบนด์ที่เกิดจากการสั่นแบบ asymmetric (ν_{as}) stretching vibration ของหมู่ COO^- ซึ่งแบนด์ที่เกิดขึ้นที่ทั้ง 2 ตำแหน่งนี้เป็นตำแหน่งแบนด์ที่เกิดขึ้นจากสารอินทรีย์ตั้งต้นที่ใช้ในการทำปฏิกิริยาที่เหลืออยู่ ซึ่งเมื่อทำการเผาแคลไซน์สารที่อุณหภูมิสูงขึ้นจาก 650 °C เป็น 750 , 850 และ 950 °C นั้นจะพบว่าแบนด์ที่เกิดจากการสั่นของหมู่สารอินทรีย์ที่พบทั้งสองแบนด์นั้นจะมีลักษณะกว้างและเล็กลงจนหายไปไม่ปรากฏในสเปกตรัมส่วนแบนด์ที่เกิดขึ้นที่ตำแหน่งประมาณ 600 cm^{-1} ยังคงปรากฏอยู่โดยมีขนาดและรูปร่างค่อนข้างเหมือนเดิมไม่เปลี่ยนแปลง ซึ่งคาดว่าน่าจะเป็นแบนด์ที่เกิดขึ้นจากการสั่นสะเทือนของโมเลกุลของสารประกอบ BFN ที่เกิดขึ้น ซึ่งผลจาก IR สเปกตรัมมีผลที่สอดคล้องกับผลจากเอกซเรย์สเปกตรัม นั่นคือเมื่อเพิ่มอุณหภูมิของการเผาแคลไซน์ให้สูงขึ้นจะมีผลทำให้ปฏิกิริยาการเกิดเป็นสารประกอบ BFN เกิดได้ดียิ่งขึ้น



รูปที่ 2 แสดงเอกซเรย์สเปกตรัมของสาร BFN precursors ที่มี reaction time 10 ชั่วโมง และนำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิต่างๆ เป็นเวลา 5 ชั่วโมง

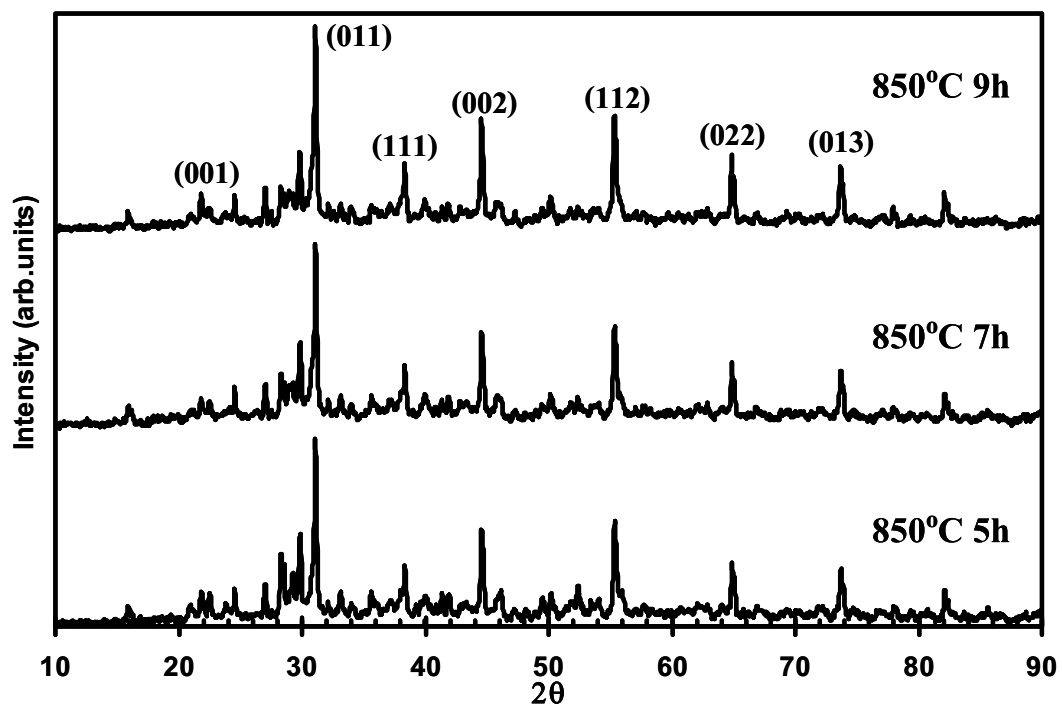


รูปที่ 3 แสดง IR สเปกตรัมของสาร BFN precursors ที่มี reaction time 10 ชั่วโมง และนำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิต่างๆ เป็นเวลา 5 ชั่วโมง

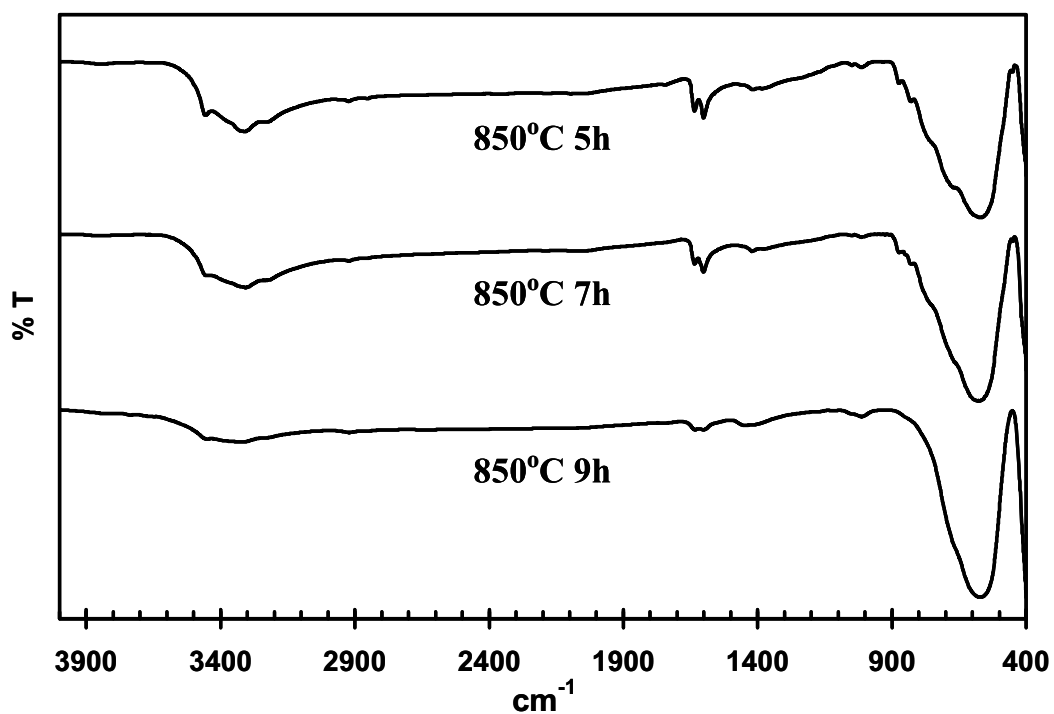
2. ผลของเวลาที่ใช้ในการเผาแคลไซน์ (calcine)

เมื่อพิจารณาเอกซ์เรย์สเปกตรัมและ IR สเปกตรัมของสารที่ได้จากการทดลองข้างต้นแล้ว พบว่าการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850 °C นั้นปฏิกิริยาการเกิดเป็นสารประกอบ BFN นั้นเกิดขึ้นได้อย่างค่อนข้างสมบูรณ์แล้ว จึงคาดว่าถ้าทำการเผาแคลไซน์ต่อที่อุณหภูมินี้โดยใช้เวลาในการเผาแคลไซน์ที่เพิ่มขึ้นนั้นจะทำให้เกิดโครงสร้างของสารประกอบ BFN ที่สมบูรณ์และบริสุทธิ์ได้ จึงได้เลือกการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850 °C มาทำการทดลองต่อไป ซึ่งได้เอกซ์เรย์สเปกตรัม ดังรูปที่ 4 ซึ่งพบว่าเมื่อเพิ่มระยะเวลาของการเผาแคลไซน์เพิ่มขึ้นเป็น 7 และ 9 ชั่วโมงนั้นตำแหน่งพีกที่สอดคล้องกับตำแหน่งพีกของการเกิดโครงสร้างของสารประกอบ BFN ที่ตำแหน่ง 2θ ประมาณ 31.2, 38.5, 44.8, 55.6 และ 65.2 องศา มีความสูงของพีกเพิ่มขึ้น แต่ก็ยังพบพีกของสารตั้งต้นที่ทำปฏิกิริยาไม่หมดหลงเหลืออยู่ ซึ่งสอดคล้องกับผลจาก IR สเปกตรัม ดังแสดงในรูปที่ 5 ซึ่งจะเห็นว่าแบนด์ที่เกิดขึ้นที่ตำแหน่งประมาณ 600 cm^{-1} ยังคงปรากฏอยู่โดยรูปร่างค่อนข้างเหมือนเดิมไม่เปลี่ยนแปลงแต่ความสูงของแบนด์มากขึ้น ซึ่งคาดว่าน่าจะเป็นแบนด์ที่เกิดขึ้นจากการสั่นสะเทือนของโมเลกุลของสารประกอบ BFN ที่เกิดขึ้น แต่ก็ยังพบแบนด์ของสารอินทรีย์ที่ใช้เป็นสารตั้งต้นที่ตำแหน่งประมาณ 1600 cm^{-1} และแบนด์ของน้ำที่ตำแหน่งประมาณ 3400 cm^{-1} หลงเหลืออยู่ในโครงสร้างของสารประกอบ BFN นั่นคือเมื่อระยะเวลาในการเผาแคลไซน์เพิ่มขึ้นเป็น 7 และ 9 ชั่วโมง จะเกิดสารประกอบ BFN เพิ่มขึ้นแต่ก็ยังไม่เพียงพอสำหรับการเกิดเป็นสารประกอบ BFN สมบูรณ์ต้องทำการเผาแคลไซน์ในระยะเวลาที่นานเพิ่มขึ้นอีก

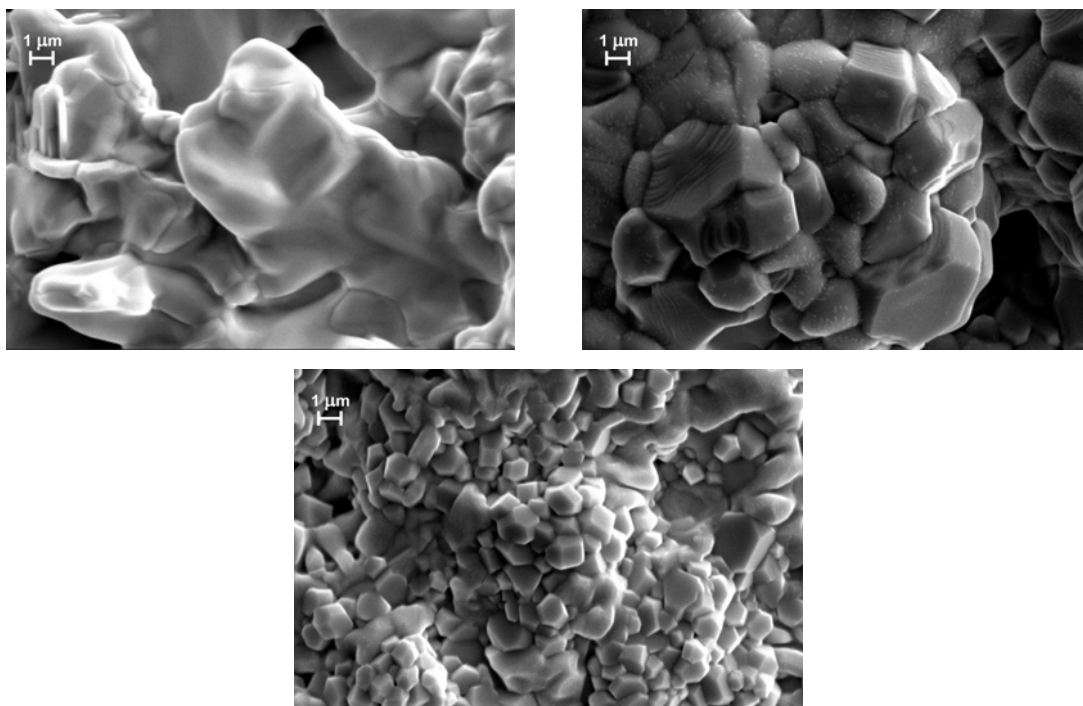
จากนั้นนำผงของสารประกอบที่ได้มาอัดเป็นเม็ดขนาดเส้นผ่านศูนย์กลาง 1.5 เซนติเมตร ด้วยความดัน 2000 psi แล้วนำไปเผาซินเตอร์ (sinter) ที่อุณหภูมิ 1250 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 4 ชั่วโมง โดยใช้อัตราการขึ้นลงของอุณหภูมิ 5 องศาเซลเซียส ต่อ 1 นาที จากนั้นนำสารตัวอย่างที่ได้ไปทำการวิเคราะห์โดยใช้กล้องจุลทรรศน์แบบส่องกราด (Scanning Electron Microscope: SEM) เพื่อศึกษาลักษณะและขนาดของอนุภาคผลึกของ BFN ที่ได้จากการเผาแคลไซน์ที่เวลาต่างๆ กันพบว่า เมื่อเวลาที่เผาแคลไซน์นานขึ้นจะเกิดลักษณะโครงสร้างความเป็นผลึกของสารประกอบ BFN มากขึ้น ซึ่งสอดคล้องกับการวิเคราะห์การเกิดโครงสร้างของสารประกอบ BFN ที่เกิดขึ้นด้วยเทคนิคของ X-ray diffraction และ Fourier transforms infrared spectrometry นอกจากนี้ยังพบเพิ่มเติมอีกว่า ขนาดของอนุภาคผลึกของสารประกอบ BFN จะมีขนาดเล็กลงเมื่อระยะเวลาของการเผาแคลไซน์เพิ่มขึ้น ดังแสดงในรูปที่ 6



รูปที่ 4 แสดงเอกซเรย์สเปกตรัมของสาร BFN precursors ที่มี reaction time 10 ชั่วโมง และนำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850°C ในเวลาต่างๆ



รูปที่ 5 แสดง IR สเปกตรัมของสาร BFN precursors ที่มี reaction time 10 ชั่วโมง และนำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850°C ในเวลาต่างๆ



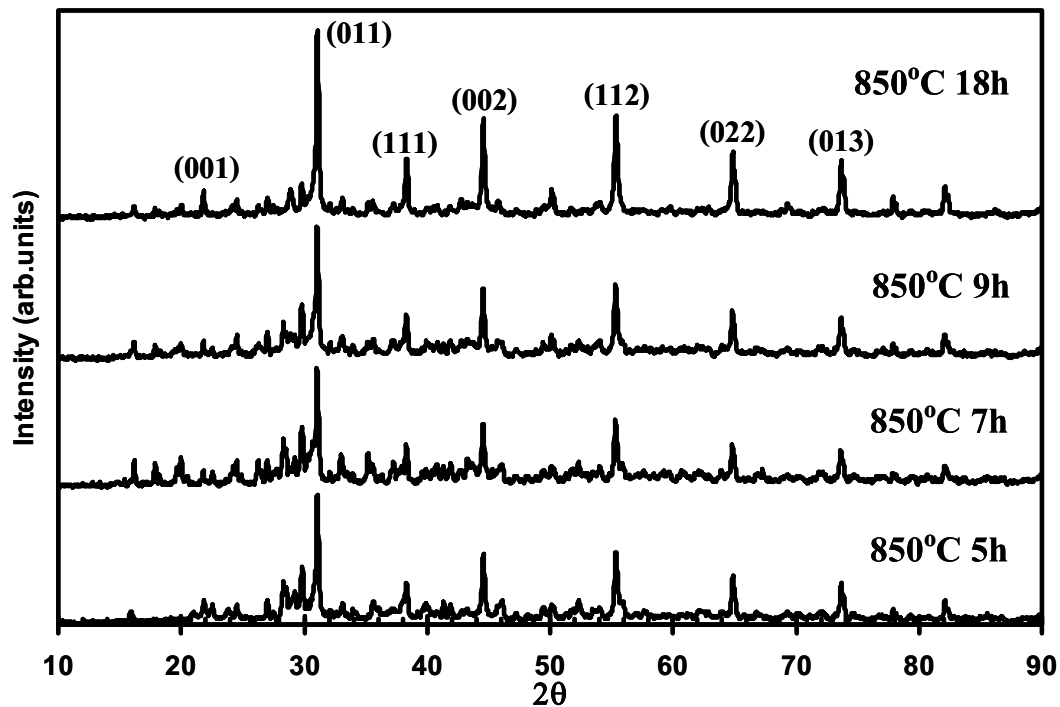
รูปที่ 6 แสดงภาพถ่าย SEM ที่บริเวณผิวหน้าของสารประกอบ BFN ที่ได้จากการเตรียม precursors ที่มี reaction time 10 ชั่วโมง นำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850 °C ในเวลาต่างๆ และเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1250 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 4 ชั่วโมง

3. ผลของเวลาของปฏิกิริยา และเวลาที่ใช้ในการเผาแคลไซน์

เพื่อเป็นการประหยัดเวลาในการเตรียมสารตั้งต้นก่อนการนำมาเผาแคลไซน์ให้สั้นลงจึงได้ทำการเปลี่ยนแปลงเวลาของปฏิกิริยา ขณะที่สาร precursors อยู่ใน microwave vessel ให้สั้นลง โดยใช้ reaction time ลดลงเป็น 6 ชั่วโมงและ 3 ชั่วโมงตามลำดับ และนำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850 °C โดยใช้เวลาในการเผาแคลไซน์ต่างๆ กัน ซึ่งผลจากการวิเคราะห์ด้วยเทคนิค X-ray diffraction and Fourier transforms infrared spectrometry พบว่าการลด reaction time ลงเหลือ 6 ชั่วโมงจะได้ผลการทดลองเช่นเดียวกับการใช้ reaction time เป็นเวลา 10 ชั่วโมง นั่นคือยังคงพบตำแหน่งพีคของสารอื่นเหลืออยู่ในโครงสร้างของสารประกอบ BFN ที่เตรียมได้ ซึ่งแสดงว่าสารที่เตรียมได้ยังคงมีโครงสร้างของสารประกอบ BFN ที่ยังไม่สมบูรณ์ ดังรูปที่ 7-8 แต่จะพบว่าความสูงของพีคของสารอื่นที่ไม่ใช่โครงสร้างของสารประกอบ BFN นั้นมีค่าลดลง

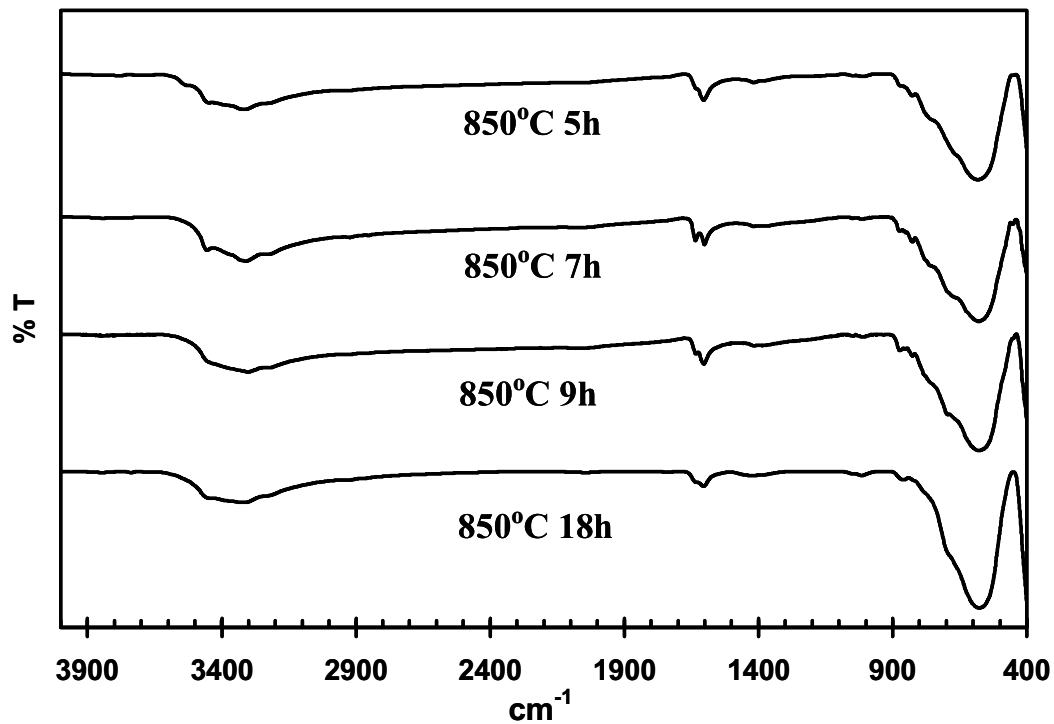
และเพื่อศึกษาว่าลักษณะและขนาดอนุภาคของผลึก BFN ที่ได้มีการเปลี่ยนแปลงไปจากเดิมหรือไม่เมื่อทำการลดเวลาใน reaction time ลงเป็น 6 ชั่วโมง จึงนำผงสารประกอบ BFN ที่เตรียมได้มาทำการอัดเม็ดและเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1250 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 4 ชั่วโมงเช่นเดียวกัน และเมื่อนำมาวิเคราะห์ด้วยเทคนิค SEM ก็พบว่าได้ผลการทดลองเช่นเดียวกับการใช้เวลา reaction time 10 ชั่วโมง นั่นคือ เมื่อเวลาที่ใช้ในการเผาแคลไซน์สั้นที่ 5 และ 7 ชั่วโมง

นั้นจะยังไม่เกิดโครงสร้างผลึกของสารประกอบ BFN ขึ้นมากนัก แต่เมื่อเวลาที่ใช้เผาแคลไซน์นานขึ้นเช่น ที่เวลา 18 ชั่วโมงก็จะเกิดลักษณะโครงสร้างความเป็นผลึกของสารประกอบ BFN มากขึ้น ดังแสดงในรูปที่ 9

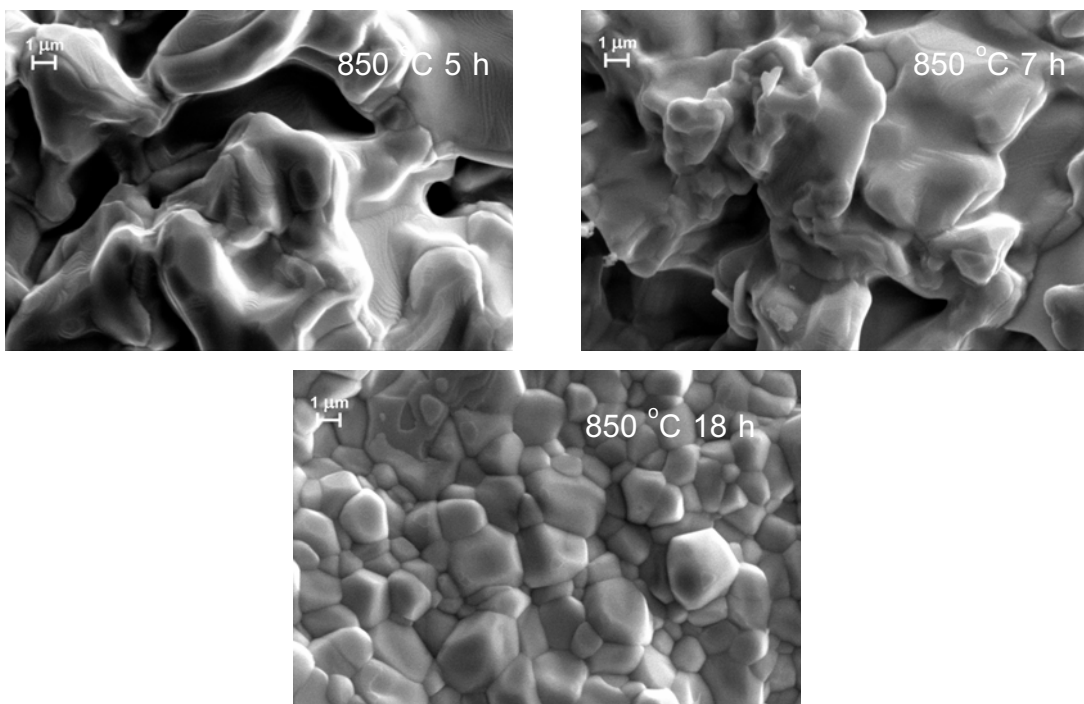


รูปที่ 7 แสดงเอกซ์เรย์สเปกตรัมของสาร BFN precursors ที่มี reaction time 6 ชั่วโมง และนำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850°C ในเวลาต่างๆ

และเพื่อศึกษาว่าลักษณะและขนาดอนุภาคของผลึก BFN ที่ได้มีการเปลี่ยนแปลงไปจากเดิมหรือไม่เมื่อทำการลดเวลาใน reaction time ลงเป็น 6 ชั่วโมง จึงนำผงสารประกอบ BFN ที่เตรียมได้มาทำการอัดเม็ดและเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1250 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 4 ชั่วโมงเช่นเดียวกัน และเมื่อนำมาวิเคราะห์ด้วยเทคนิค SEM ก็พบว่าได้ผลการทดลองเช่นเดียวกับการใช้เวลา reaction time 10 ชั่วโมง นั่นคือ เมื่อเวลาที่ใช้ในการเผาแคลไซน์สั้นที่ 5 และ 7 ชั่วโมงนั้นจะยังไม่เกิดโครงสร้างผลึกของสารประกอบ BFN ขึ้นมากนัก แต่เมื่อเวลาที่ใช้เผาแคลไซน์นานขึ้นเช่น ที่เวลา 18 ชั่วโมงก็จะเกิดลักษณะโครงสร้างความเป็นผลึกของสารประกอบ BFN มากขึ้น ดังแสดงในรูปที่ 9

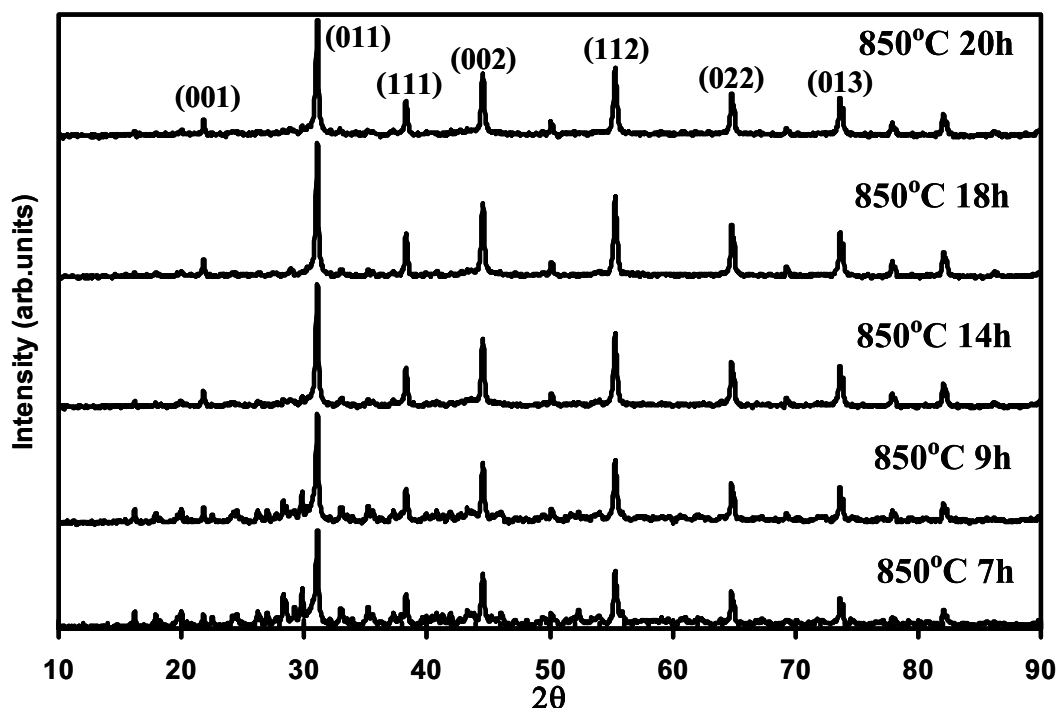


รูปที่ 8 แสดง IR สเปกตรัมของสาร BFN precursors ที่มี reaction time 6 ชั่วโมง และนำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850°C ในเวลาต่างๆ

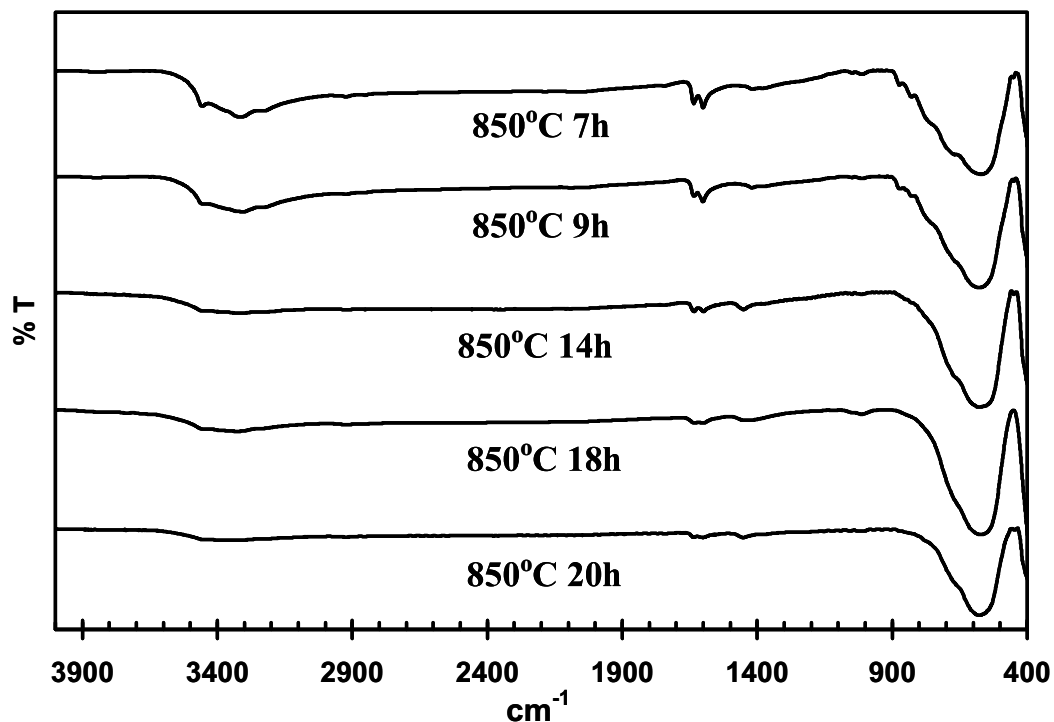


รูปที่ 9 แสดงภาพถ่าย SEM ที่บริเวณผิวหน้าของสารประกอบ BFN ที่ได้จากการเตรียม precursors ที่มี reaction time 6 ชั่วโมง นำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850°C ในเวลาต่างๆ และเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1250 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 4 ชั่วโมง

และเมื่อพบว่าเมื่อลดเวลาของการทำ reaction time เป็น 6 ชั่วโมงแล้วพบว่าไม่ค่อยมีผลต่อการเกิดโครงสร้างของสารประกอบ BFN จึงได้ทำการลดเวลาของการทำ reaction time ใน microwave vessel หลังจากที่ได้ให้ความร้อนด้วยคลื่นไมโครเวฟลงอีกเหลือ 3 ชั่วโมงแล้วทำการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850 °C ในเวลาต่างๆ เช่นเดิม พบว่าเมื่อเวลาที่ใช้ในการแคลไซน์สั้นจะทำให้การเกิดโครงสร้างของสารประกอบ BFN นั้นเกิดไม่สมบูรณ์ และเมื่อใช้เวลาในการเผาแคลไซน์เพิ่มเป็น 14 ชั่วโมงขึ้นไป ที่ อุณหภูมิ 850 °C นั้นเราจะได้สารประกอบ BFN ที่บริสุทธิ์โดยไม่มีสารอื่นเจือปน ดังรูปเอกซเรย์สเปคตรัมรูปที่ 10 ซึ่งจะเห็นว่าพบตำแหน่งพีกที่สอดคล้องกับตำแหน่งพีกของการเกิดโครงสร้างของสารประกอบ BFN ที่ตำแหน่ง 2θ ประมาณ 31.2, 38.5, 44.8, 55.6 และ 65.2 องศา เกิดขึ้นเท่านั้น ซึ่งผลการวิเคราะห์จาก FT-IR ก็สอดคล้องกับผลการวิเคราะห์จาก X-ray diffraction นั่นคือจะพบว่าเมื่อเวลาที่ใช้ในการเผาแคลไซน์สั้นแบนด์ของสารอินทรีย์ที่ใช้เป็นสารตั้งต้นที่ตำแหน่งประมาณ 1600 cm^{-1} และแบนด์ของน้ำที่ตำแหน่งประมาณ 3400 cm^{-1} ยังคงหลงเหลืออยู่ในโครงสร้างของสารประกอบ BFN แต่แบนด์ของสารอินทรีย์ที่ใช้เป็นสารตั้งต้นที่ตำแหน่งประมาณ 1600 cm^{-1} จะหายไปเมื่อเวลาที่ใช้ในการเผาแคลไซน์เพิ่มเป็น 14 ชั่วโมงขึ้นไปดังแสดงในรูปที่ 11

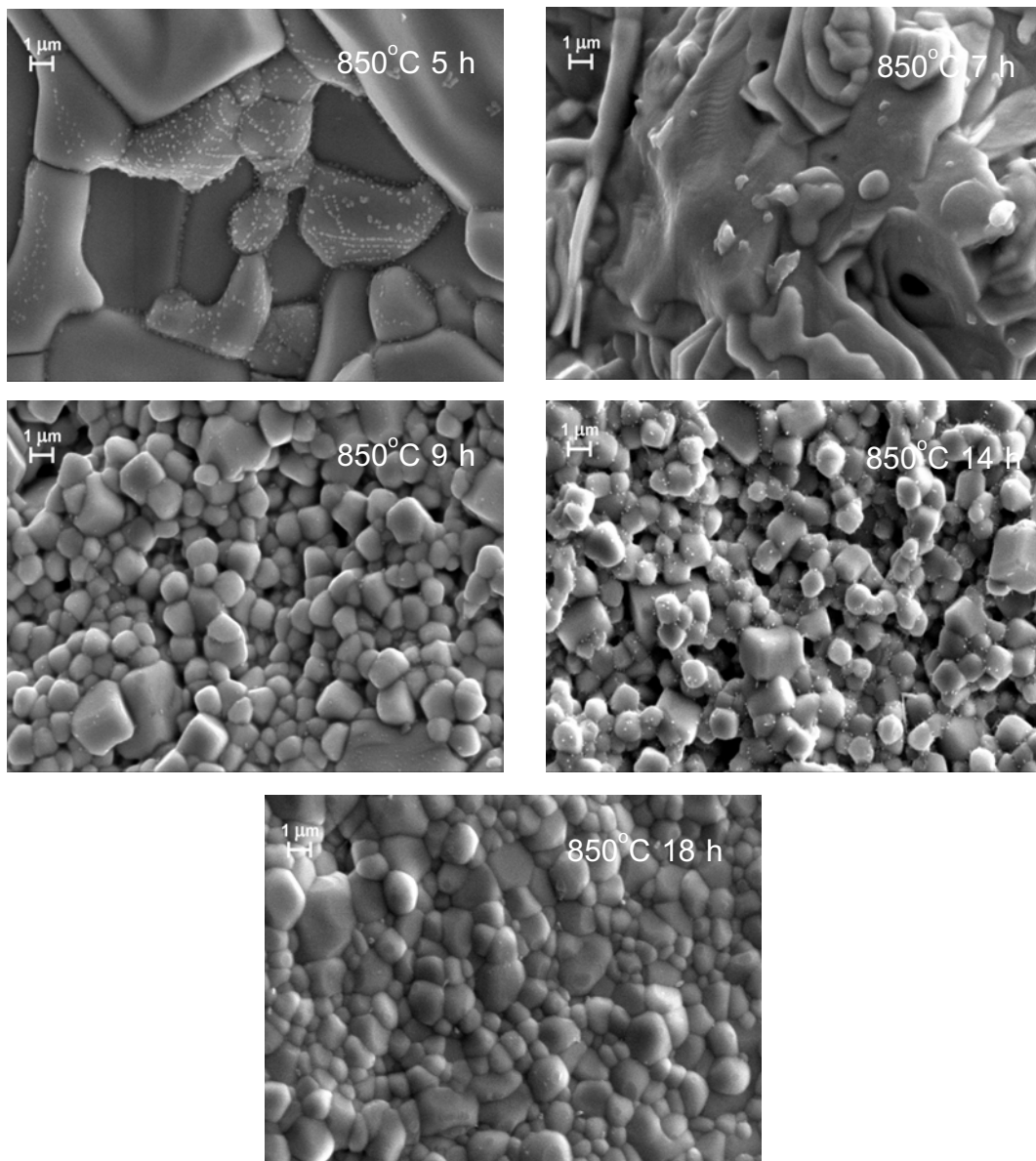


รูปที่ 10 แสดงเอกซเรย์สเปคตรัมของสาร BFN precursors ที่มี reaction time 3 ชั่วโมง และนำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850°C ในเวลาต่างๆ



รูปที่ 11 แสดง IR สเปกตรัมของสาร BFN precursors ที่ใช้เวลา 3 ชั่วโมง และนำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850°C ในเวลาต่างๆ

จากนั้นจึงนำผงของสารประกอบ BFN ที่เตรียมได้มาทำการอัดเม็ด และเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1250 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 4 ชั่วโมง เมื่อนำมาวิเคราะห์ด้วยเทคนิค SEM ก็พบว่า ได้ผลการทดลองสอดคล้องกับการใช้เวลาของ reaction time ที่ 10 และ 6 ชั่วโมง นั่นคือเมื่อเวลาที่ใช้ในการแคลไซน์นั้นจะยังคงไม่เกิดผลึกของโครงสร้างของสารประกอบ BFN ขึ้นมากนัก แต่เมื่อเวลาที่ใช้เผาแคลไซน์นานขึ้นจะเกิดลักษณะโครงสร้างความเป็นผลึกของสารประกอบ BFN มากขึ้น นอกจากนี้ยังพบเพิ่มเติมอีกว่า ขนาดของอนุภาคผลึกของสารประกอบ BFN จะมีขนาดเล็กลงเมื่อระยะเวลาของการเผาแคลไซน์เพิ่มขึ้น ดังแสดงในรูปที่ 12 แต่เมื่อเผาแคลไซน์เป็นเวลานานขึ้นเป็น 18 ชั่วโมงจะเห็นว่าอนุภาคของสารประกอบ BFN ที่ได้จะมีการจัดเรียงตัวกันอย่างแน่นมีความพรุนน้อยลง



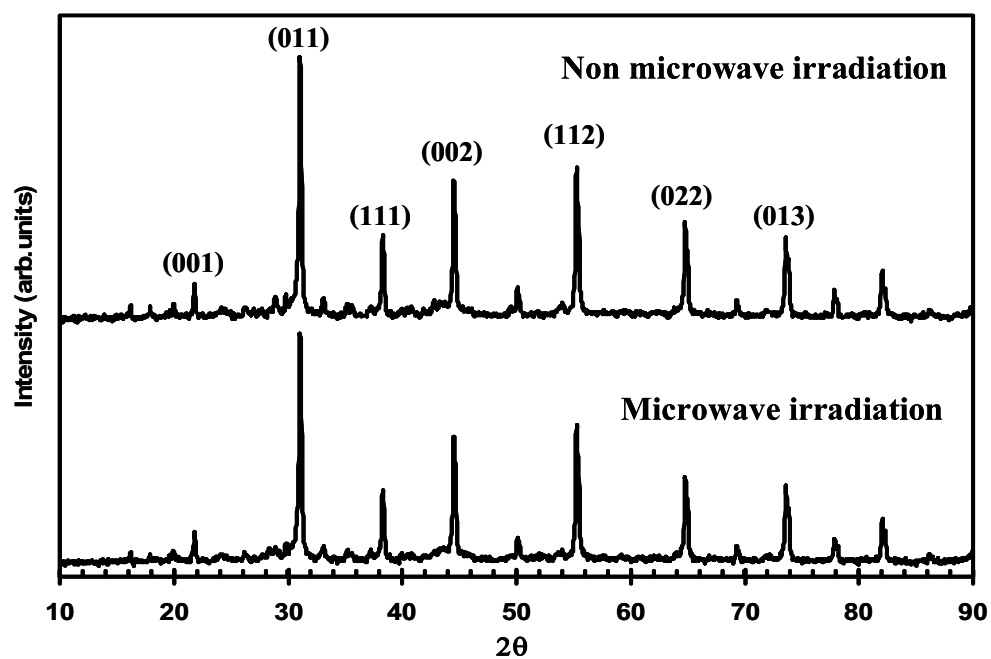
รูปที่ 12 แสดง ภาพถ่าย SEM ที่บริเวณผิวหน้าของสารประกอบ BFN ที่ได้จากการเตรียม precursors ที่มี reaction time 3 ชั่วโมง นำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850°C ในเวลาต่างๆ และเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1250 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 4 ชั่วโมง

4. ผลการสังเคราะห์สารประกอบ BFN โดยการใช้และไม่ใช้คลื่นไมโครเวฟในการเตรียม precursors

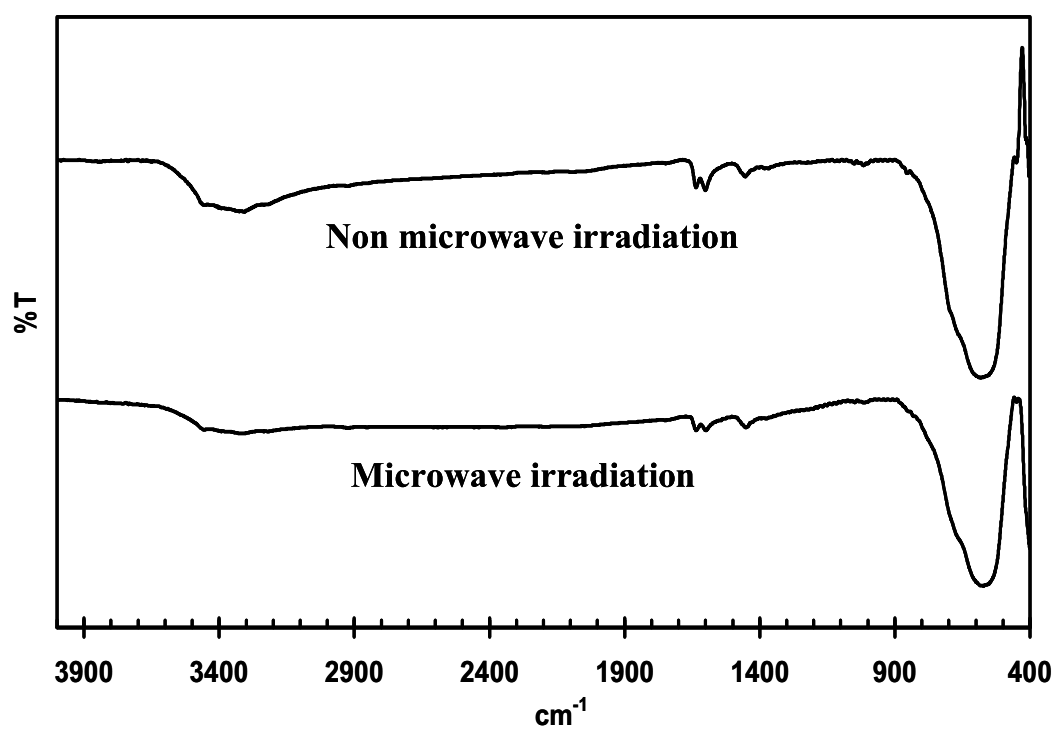
จากผลการทดลองที่กล่าวมาข้างต้นแสดงว่าเวลาที่ใช้ในการเกิด reaction time ภายใน microwave vessel, อุณหภูมิในการเผาแคลไซน์ และเวลาที่ใช้ในการเผาแคลไซน์ ต่างก็มีผลต่อการเกิดปฏิกิริยาของสารตั้งต้น precursors เพื่อเกิดเป็นสารประกอบ BFN ทั้งสิ้น โดยผลการทดลองพบว่า reaction time ที่เหมาะสมภายใน microwave vessel คือ 3 ชั่วโมง อุณหภูมิในการเผาแคลไซน์ คือ 850°C และต้องเผาเป็นเวลานาน 14 ชั่วโมงขึ้นไป จะทำให้เราได้สารประกอบ BFN ที่บริสุทธิ์ นั่นคือจะพบตำแหน่งพีกที่สอดคล้องกับตำแหน่งพีกของการเกิดโครงสร้างของสารประกอบ BFN ที่ตำแหน่ง 2 θ ประมาณ 31.2, 38.5, 44.8, 55.6 และ 65.2 องศา เกิดขึ้นเท่านั้น ซึ่งเป็นตำแหน่งพีกของโครงสร้าง perovskite ของสารประกอบ BFN เกิดขึ้นอย่างชัดเจน จากผลการทดลองพบว่าการลดเวลา reaction time ของการเกิดปฏิกิริยาของสารตั้งต้น precursors ภายใน microwave vessel ให้สั้นลงนั้นไม่ค่อยมีผลต่อการเกิดโครงสร้างของสารประกอบ BFN มากนัก

ดังนั้นจึงทำการทดลองเพิ่มเติม เพื่อต้องการทราบว่าในการให้ความร้อนด้วยคลื่นไมโครเวฟเข้าไปในสารตั้งต้น precursors นั้นมีผลต่อการปฏิกิริยาในการเกิดสารประกอบ BFN หรือไม่ จึงทำการเตรียมสารตั้งต้น precursors แล้วทำการคณสารทิ้งไว้ที่อุณหภูมิห้องเป็นเวลา 3 ชั่วโมงเช่นเดียวกับสารตั้งต้น precursors ที่ทำการให้ความร้อนด้วยคลื่นไมโครเวฟแล้วทิ้งไว้ให้เกิดปฏิกิริยาภายใน microwave vessel 3 ชั่วโมงเช่นเดียวกัน จากนั้นจึงสารที่เตรียมได้จากทั้ง 2 วิธีมาทำการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850°C เป็นเวลา 14 ชั่วโมง ผลการวิเคราะห์โครงสร้างด้วย x-ray diffraction และ FT-IR ดังแสดงในรูปที่ 13 และ 14 พบว่าได้ผลการทดลองที่สอดคล้องกันกล่าวคือ สารที่เตรียมได้จากทั้ง 2 วิธีนั้นต่างก็เกิดเป็นสารประกอบ BFN ที่บริสุทธิ์ นั่นคือ พบพีกที่ตำแหน่ง 2 θ ประมาณ 31.2, 38.5, 44.8, 55.6 และ 65.2 องศาซึ่งเป็นตำแหน่งพีกของโครงสร้าง perovskite ของสารประกอบ BFN เกิดขึ้นเท่านั้น เช่นเดียวกับ IR สเปกตรัมจะพบแบนด์ที่เกิดขึ้นที่ตำแหน่งประมาณ 600 cm^{-1} ซึ่งคาดว่าจะน่าจะเป็นแบนด์ที่เกิดขึ้นจากการสั่นสะเทือนของโมเลกุลของสารประกอบ BFN ที่เกิดขึ้น โดยไม่พบแบนด์ของสารอินทรีย์ที่เป็นสารตั้งต้นเหลืออยู่

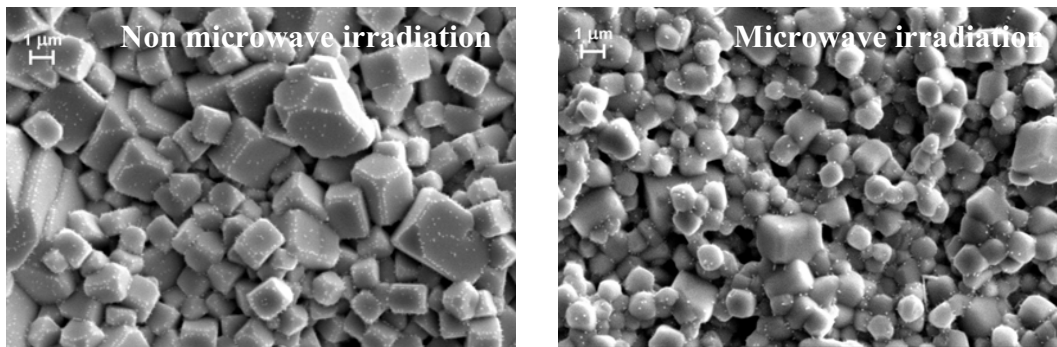
จากนั้นจึงนำสาร BFN precursors ที่เตรียมได้ทั้งสองวิธีที่ผ่านการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850°C เป็นเวลา 14 ชั่วโมง นั้นไปเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1250°C เป็นเวลา 4 ชั่วโมง นำมาทำการวิเคราะห์โครงสร้างทางจุลภาคด้วย SEM ที่บริเวณผิวหน้าของสาร BFN precursors พบว่าเกิดอนุภาคผลึกของโครงสร้างของสารประกอบ BFN นอกจากนี้ยังพบว่าขนาดของอนุภาคผลึกของสารประกอบ BFN ที่ผ่านการฉายรังสีไมโครเวฟจะมีขนาดเล็ก มีความเป็น homogeneous มากกว่า และมีความเป็นรูพรุนน้อยกว่าเมื่อเทียบกับวิธีการเตรียมโดยไม่ฉายรังสีไมโครเวฟ ดังรูปที่ 15



รูปที่ 13 แสดงเอกซ์เรย์สเปกตรัมของสาร BFN precursors ที่เตรียมโดยใช้และไม่ใช้คลื่นไมโครเวฟและนำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850 °C เป็นเวลา 14 ชั่วโมง



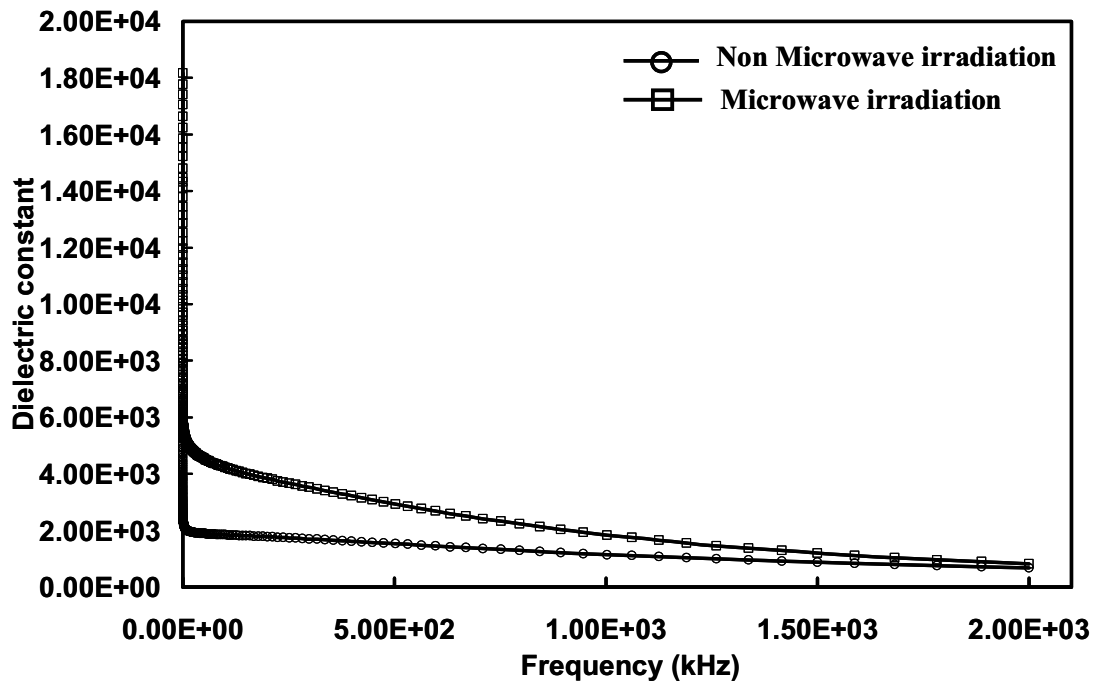
รูปที่ 14 แสดง IR สเปกตรัมของสาร BFN precursors ที่เตรียมโดยใช้และไม่ใช้คลื่นไมโครเวฟและนำมาเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850 °C เป็นเวลา 14 ชั่วโมง



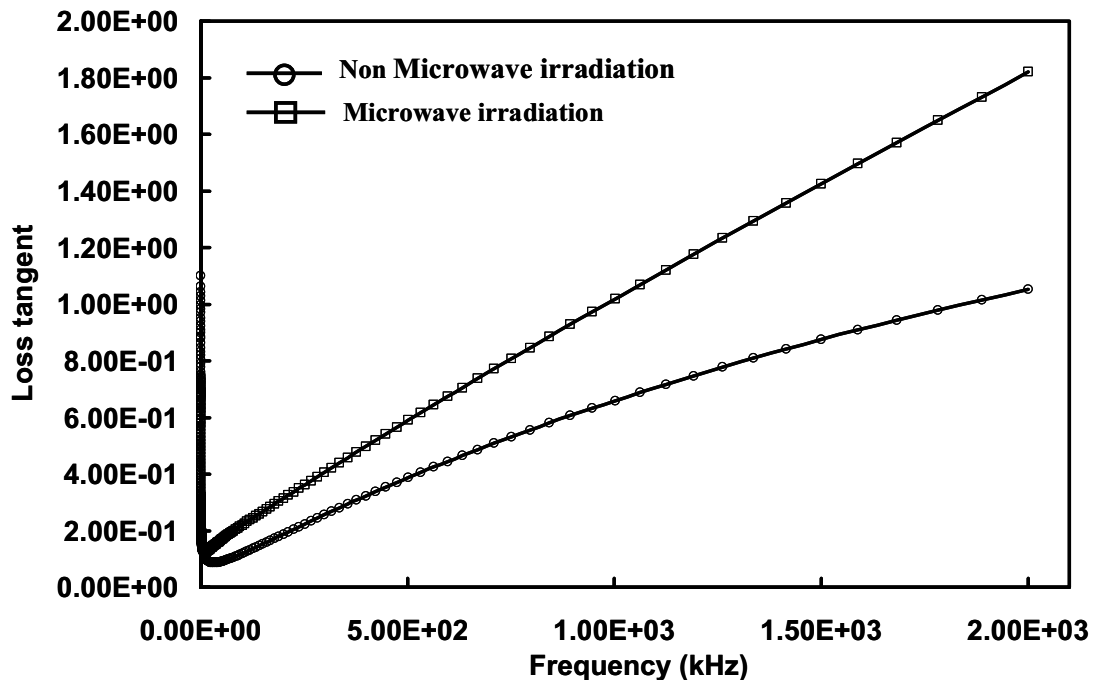
รูปที่ 15 แสดงภาพถ่าย SEM ที่บริเวณผิวหน้าของสารประกอบ BFN ที่ได้จากการเตรียม precursors โดยการใช้และไม่ใช้คลื่นไมโครเวฟและนำมาเผาแคลไซน์ที่ อุณหภูมิ 850 °C เป็นเวลา 14 ชั่วโมง

5. ผลการวัดสมบัติทางไฟฟ้าและค่าคงที่ไดอิเล็กตริก (dielectric constant)

การวัดค่าคงที่ไดอิเล็กตริก คือ การวัดความสามารถในการเก็บไฟฟ้าหรือการวัดค่าความจุไฟฟ้า สามารถทำการวัดด้วยเครื่อง LCZ meter (HP 4276A) ตามการเปลี่ยนแปลงความถี่ ตั้งแต่ 0 ถึง 20000 เฮิรตซ์ โดยทำการขัดพื้นผิวของเซรามิก BFN ที่เตรียมไว้ แล้วทำการเคลือบด้วยกาวเงินบนผิวของเซรามิกที่เตรียมได้ เพื่อใช้สำหรับการนำไฟฟ้า แล้วนำไปอบให้แห้ง จากนั้นนำออกมาวัดเพื่อหาสมบัติทางไฟฟ้าโดยใช้ impedance spectroscopy system ต่อเข้ากับเครื่อง LCZ meter แล้วทำการวัดที่อุณหภูมิห้อง โดยทำการควบคุมการเปลี่ยนแปลงความถี่ แล้วทำการวัดค่าคงที่ไดอิเล็กตริกของสารประกอบ BFN ที่ผ่านการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 14 ชั่วโมง และผ่านการเผาผืนที่อุณหภูมิ 1250 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 4 ชั่วโมง โดยขณะวัดได้ทำการเปลี่ยนแปลงความถี่ในช่วงตั้งแต่ 0 ถึง 20000 เฮิรตซ์ที่อุณหภูมิห้อง พบว่าเมื่อความถี่เพิ่มขึ้นสารประกอบ BFN จะมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกลดลง ซึ่งเป็นสมบัติที่สำคัญของสารประเภท relaxor ferroelectric โดยสารประกอบ BFN ที่เตรียมจากการผ่านรังสีไมโครเวฟจะมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริก 18200 ซึ่งมากกว่าสารประกอบ BFN ที่เตรียมโดยการไม่ใช้รังสีไมโครเวฟ ซึ่งมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกเพียง 8730 ดังแสดงในรูปที่ 16 และมีค่าการสูญเสียไดอิเล็กตริกเท่ากับ 1.82 และ 1.10 ตามลำดับดังรูปที่ 17 ซึ่งคาดว่าจะเกิดจากขนาดอนุภาคของสารประกอบ BFN ที่เตรียมจากการฉายรังสีไมโครเวฟมีขนาดเล็กทำให้มีความหนาแน่นมาก จึงทำให้มีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกสูงกว่าสารประกอบ BFN ที่เตรียมโดยการไม่ใช้รังสีไมโครเวฟ ซึ่งมีขนาดอนุภาคใหญ่ทำให้มีความหนาแน่นน้อย ดังแสดงในรูปที่ 15

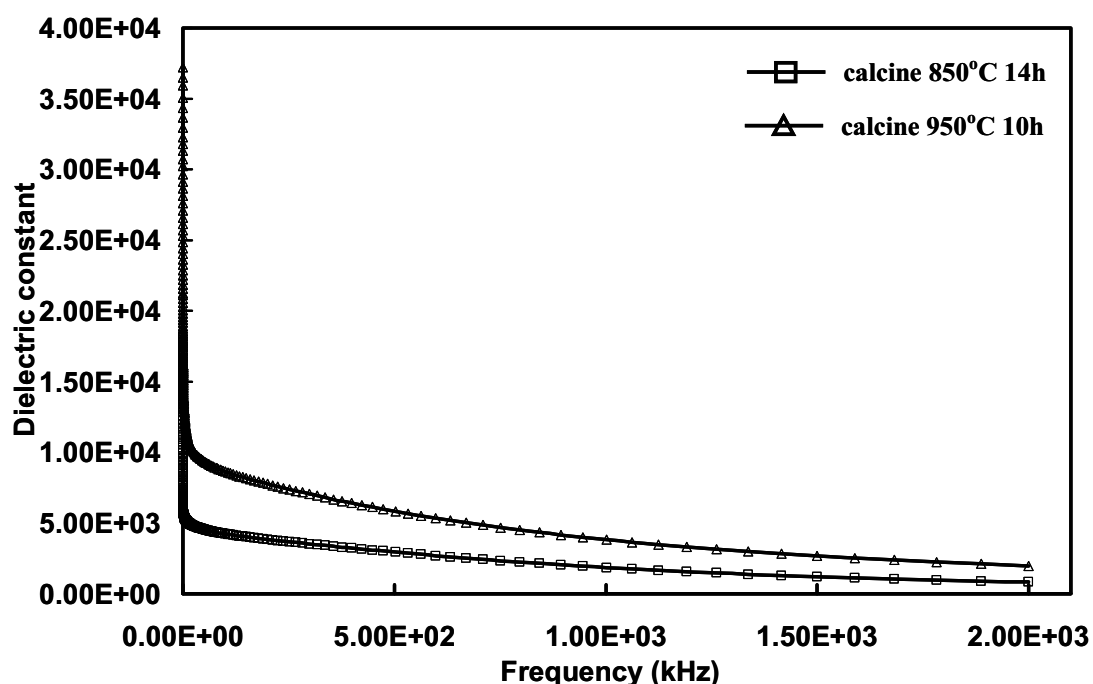


รูปที่ 16 ค่าคงที่ไดอิเล็กตริกเทียบกับความถี่ (kHz) ของสารประกอบ BFN ที่ผ่านการเผาแคล์โซนที่อุณหภูมิ 850 °C เป็นเวลา 14 ชั่วโมง และผ่านการเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1250 °C เป็นเวลา 4 ชั่วโมง ที่เตรียมโดยการฉายรังสีและไม่ฉายรังสีไมโครเวฟ

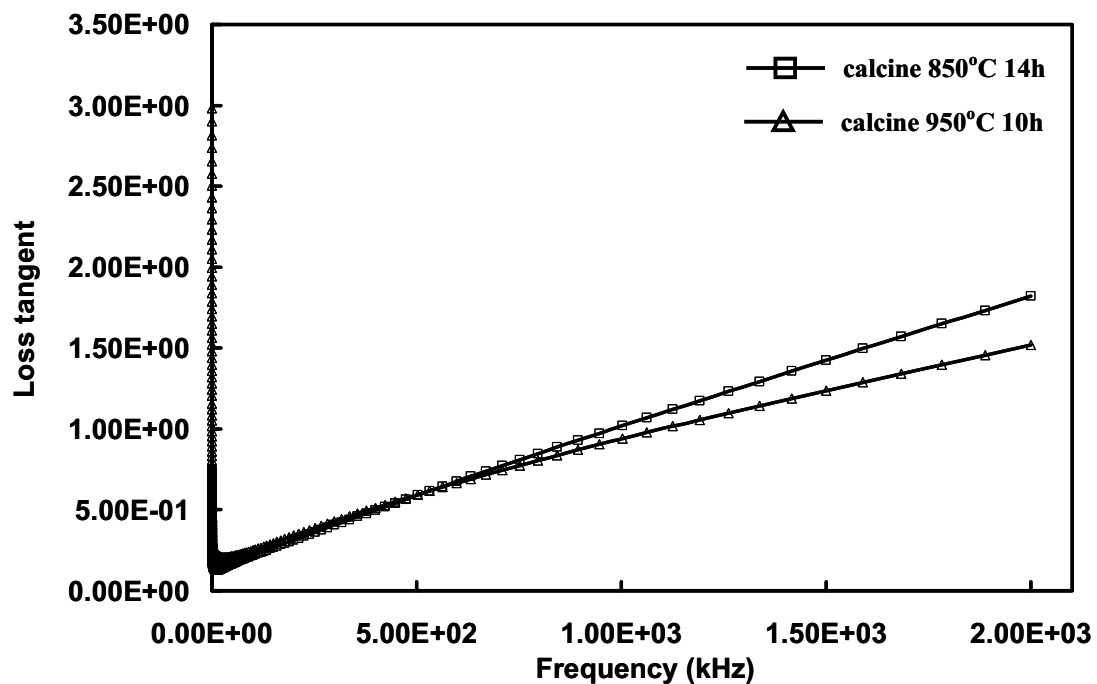


รูปที่ 17 ค่าสูญเสียไดอิเล็กตริกเทียบกับความถี่ (kHz) ของสารประกอบ BFN ที่ผ่านการเผาแคล์โซนที่อุณหภูมิ 850 °C เป็นเวลา 14 ชั่วโมง และผ่านการเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1250 °C เป็นเวลา 4 ชั่วโมง ที่เตรียมโดยการฉายรังสีและไม่ฉายรังสีไมโครเวฟ

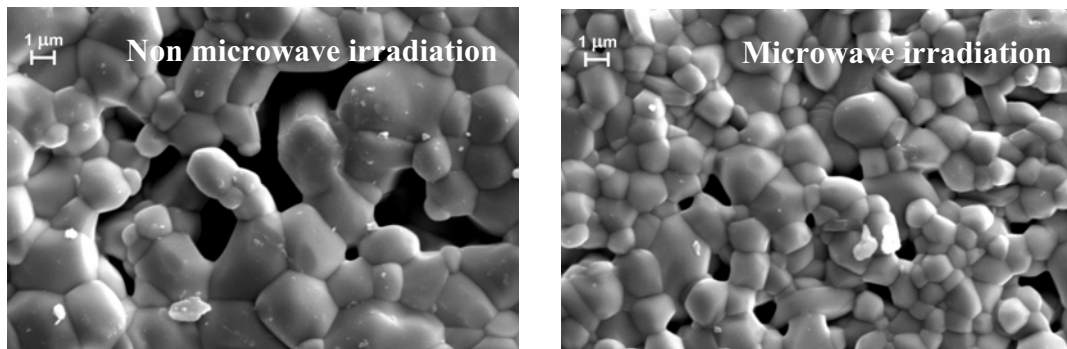
นอกจากนี้ยังทำการศึกษาค่าคงที่ไดอิเล็กตริกและค่าการสูญเสียไดอิเล็กตริกเพิ่มเติมเมื่อทำการเตรียมสารประกอบ BFN ที่ใช้อุณหภูมิในการเผาแคลไซน์ที่ต่างกันที่เตรียมขึ้นโดยการฉายรังสีไมโครเวฟ และผ่านการเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1250 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 4 ชั่วโมง ดังแสดงในรูปที่ 18 และ รูปที่ 19 พบว่าสารประกอบ BFN ที่ทำการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 14 ชั่วโมง จะมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกเพียง 18200 ขณะที่สารประกอบ BFN ที่ทำการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 10 ชั่วโมง จะมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกสูงถึง 37200 และสารประกอบ BFN ที่ผ่านการเผาแคลไซน์ที่ 2 อุณหภูมิจะมีค่าการสูญเสียไดอิเล็กตริกเท่ากับ 1.82 และ 2.98 ตามลำดับ ซึ่งแสดงว่าอุณหภูมิที่เผาแคลไซน์ที่ใช้ในการเตรียมสารประกอบ BFN ก็ส่งผลต่อค่าคงที่ไดอิเล็กตริก ของสารประกอบ BFN เช่นเดียวกัน โดยค่าคงที่ไดอิเล็กตริกที่ได้จะสอดคล้องกับขนาดอนุภาคและค่าความหนาแน่นของสารดังที่กล่าวมาแล้ว ซึ่งจะเห็นได้ว่าสารที่มีความหนาแน่นสูงก็จะมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกสูงตามไปด้วย ซึ่งจากรูปที่ 20 ซึ่งแสดงรูป SEM ของสารประกอบ BFN ที่ผ่านการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 10 ชั่วโมง ที่ไม่ผ่านการฉายรังสีไมโครเวฟจะมีขนาดอนุภาคใหญ่และความพรุนต่ำมาก (ความหนาแน่นน้อย) เมื่อเทียบกับสารประกอบ BFN ที่ผ่านการฉายรังสีไมโครเวฟและเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 10 ชั่วโมง



รูปที่ 18 ค่าคงที่ไดอิเล็กตริกเทียบกับความถี่ (kHz) ของสารประกอบ BFN ที่ผ่านการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 950 °C เป็นเวลา 10 ชั่วโมง และ 850 °C เป็นเวลา 14 ชั่วโมง และผ่านการเผาผนึกที่อุณหภูมิ 1250 °C เป็นเวลา 4 ชั่วโมง ที่เตรียมโดยการฉายรังสีไมโครเวฟ



รูปที่ 19 ค่าสูญเสียไดอิเล็กตริกเทียบกับความถี่ (kHz) ของสารประกอบ BFN ที่ผ่านการเผาแคลไซต์ที่อุณหภูมิ 950 °C เป็นเวลา 10 ชั่วโมง และ 850 °C เป็นเวลา 14 ชั่วโมง และผ่านการเผาผิวกที่อุณหภูมิ 1250 °C เป็นเวลา 4 ชั่วโมง ที่เตรียมโดยการฉายรังสีไมโครเวฟ



รูปที่ 20 แสดง ภาพถ่าย SEM ที่บริเวณผิวหน้าของสาร BFN precursors โดยการฉายรังสีไมโครเวฟแล้วนำไปเผาแคลไซต์ที่อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 10 ชั่วโมง และผ่านการเผาผิวกที่อุณหภูมิ 1250 °C เป็นเวลา 4 ชั่วโมง

สรุปผลการทดลอง

ในการศึกษานี้เป็นการคิดค้นวิธีใหม่ในการสังเคราะห์สารประกอบ $\text{BaFe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_3$ หรือ BFN ซึ่งเป็นสารที่มีโครงสร้างแบบ perovskite ที่มีค่าคงที่ไดอิเล็กตริก สูงมากในช่วงอุณหภูมิที่กว้าง จึงนิยมนำมาประยุกต์ใช้ในการทำเป็นตัวเก็บประจุ โดยใช้วิธีทางเคมีในการเตรียมสารละลายตั้งต้นในการเกิดปฏิกิริยาและอาศัยคลื่นรังสีไมโครเวฟ เพื่อช่วยให้ปฏิกิริยาเกิดได้อย่างสมบูรณ์ ซึ่งทำการศึกษาถึงปัจจัยต่างๆ ที่มีผลต่อการสังเคราะห์ เช่นเวลาที่ใช้ในการเกิดปฏิกิริยาหลังจากให้คลื่นรังสีไมโครเวฟ อุณหภูมิที่ใช้ในการเผาแคลไซน์ และระยะเวลาที่ใช้ในการเผาแคลไซน์ พบว่าโครงสร้างของสารประกอบแบเรียมไอรอนนีโอเบต จะเริ่มเกิดขึ้นเมื่อทำการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 750 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 5 ชั่วโมง และเมื่อทำการเพิ่มอุณหภูมิที่ใช้ในการเผาแคลไซน์ เป็นที่อุณหภูมิ 850 และ 950 องศาเซลเซียส จะพบว่าเกิดโครงสร้างของสารประกอบ BFN ได้ดีขึ้น โดยโครงสร้างของสารประกอบ BFN จะเกิดขึ้นได้อย่างสมบูรณ์เมื่อทำการเผาแคลไซน์ ที่อุณหภูมิ 850 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 14 ชั่วโมง นอกจากนี้ยังพบว่าเวลาที่ใช้ในการเกิดปฏิกิริยาหลังจากให้คลื่นรังสีไมโครเวฟ (microwave) ก็เป็นปัจจัยที่สำคัญในการสังเคราะห์สารประกอบ BFN ที่มีความบริสุทธิ์สูงด้วยเช่นกัน จากนั้นนำผงสารประกอบ BFN ที่บริสุทธิ์ไปอัดเม็ด แล้วทำการเผาซินเตอร์ ที่อุณหภูมิ 1250 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 4 ชั่วโมง แล้วนำไปศึกษาโครงสร้างทางจุลภาค เช่นขนาดอนุภาค และรูปร่างของผลึก โดยใช้กล้องจุลทรรศน์แบบส่องกราด พบว่าเมื่อทำการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิสูงขึ้นสารประกอบ BFN ที่ได้จะมีลักษณะความเป็นผลึกและความหนาแน่นมากขึ้น แต่เมื่อใช้เวลาในการเผาแคลไซน์เพิ่มขึ้นขนาดของอนุภาคและความหนาแน่นจะลดลง และเมื่อนำไปทำการศึกษาสมบัติทางไฟฟ้าในช่วงความถี่ตั้งแต่ 0 ถึง 20000 เฮิรตซ์ที่อุณหภูมิห้อง พบว่าเมื่อความถี่เพิ่มขึ้นสารประกอบ BFN จะมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกลดลง ซึ่งเป็นสมบัติที่สำคัญของสารประเภท relaxor ferroelectric และสารประกอบ BFN ที่เตรียมจากการผ่านรังสีไมโครเวฟจะมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริก ~ 18200 สูงกว่าสารประกอบ BFN ที่เตรียมโดยการไม่ใช้รังสีไมโครเวฟซึ่ง มีค่าคงที่ไดอิเล็กตริก ~ 8730 นอกจากนี้อุณหภูมิที่ใช้ในการเผาแคลไซน์เพื่อเตรียมสารประกอบ BFN ก็มีผลต่อค่าคงที่ไดอิเล็กตริกเช่นเดียวกันโดยสารประกอบ BFN ที่ผ่านการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 850 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 14 ชั่วโมงจะมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริก ~ 18200 ซึ่งน้อยกว่าค่าคงที่ไดอิเล็กตริกของสารประกอบ BFN ที่ผ่านการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 950 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 10 ชั่วโมงจะมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกสูงถึง ~ 37200 ซึ่งคาดว่าเกิดจากขนาดอนุภาคและความหนาแน่นของสารที่เตรียมได้

หนังสืออ้างอิง

1. C.C. Homes, T. Vogt, S.M. Shaprio, S. Wakimoto, M.A. Subramanian, A.P. Ramirez, Phys. Rev. B 67 (2003) 092106.
2. M.A. Subramanian, D. Li, N. Duan, B.A. Reisner, A.W. Sleight, J. Solid State Chem. 151 (2000) 323.
3. S. Saha, T.P. Sinha, Phys. Rev. B 65 (2002) 134103.
4. S. Saha, T.P. Sinha, J.Phys.: Condens. Matter 14 (2002) 249.
5. I.P. Raevski, S.A. Prosandeev, A.S. Bogatin, M.A. Malitskay, L. Jastrabik, J. Appl. Phys. 93 (2003) 4130.
6. S. Eitssayeam, U. Intatha, K. Pengpat, T. Tunkasiri, Curr. Appl. Phys. 6 (2006) 316.
7. Z. Wang, X.M. Chen, L. Ni, X.Q. Liu, Appl. Phys. Lett. 90 (2007) 022904.
8. S. Ke, H. Huang, H. Fan, H.L.W. Chan, L.M. Zhou, Ceram. Int. (2007),
doi:10.1016/j.ceramint.2007.09.079
9. U. Intatha, S. Eitssayeam, K. Pengpat, K.J.D. MacKenzie, T. Tunkasiri, Mater. Lett. 61 (2007) 196.
10. C.Y. Chung, Y.-H. Chang, G.-J. Chen, J. Appl. Phys. 96 (2004) 6624.
11. C.-Y. Chung, Y.-S. Chang, G.-J. Chen, C.-C. Chung, T.-W. Huang, Solid State Commun. 145 (2008) 212.
12. C.Y. Chung, Y.H. Chang, G.J. Chen, Y.L. J. Cryst. Growth 284 (2005) 100.
13. J. Tang, M. Zhu, T. Zhong, Y. Hou, H. Wang, H. Yan, Mater. Chem. Phys. 101 (2007) 475.

ข้อเสนอแนะสำหรับงานวิจัยในอนาคต

จากการทำการเตรียมสารประกอบ BFN ที่บริสุทธิ์ โดยวิธีทางเคมีและใช้คลื่นไมโครเวฟเป็นตัวเร่งการเกิดปฏิกิริยาของสาร precursors ให้สมบูรณ์ขึ้นได้แล้วนั้น และเมื่อเปรียบเทียบค่าคงที่ไดอิเล็กตริกที่ได้จากการเตรียมสารประกอบ BFN ด้วยวิธีการนี้กับการทดลองที่ผ่านมา ด้วยวิธีมิคซ์ออกไซด์แบบดั้งเดิมหรือการเตรียมด้วยวิธีโซลเจล แล้วพบว่าค่าคงที่ไดอิเล็กตริกที่สูงและมีค่าใกล้เคียงกัน ดังนั้นงานวิจัยในอนาคตคือทำการเติมสารเจือปนต่างๆที่สามารถเข้าไปแทนที่อะตอมที่ตำแหน่งของ Ba site หรือ ที่ตำแหน่ง Fe site ด้วยธาตุที่มีขนาดอะตอมเท่าๆกัน แต่มีค่าเลขออกซิเดชันต่างกัน เพื่อดูถึงผลของเลขออกซิเดชันต่อโครงสร้างของ สารประกอบ BFN ที่เตรียมได้ รวมถึงค่าอุณหภูมิในการเผา หรือสมบัติทางไฟฟ้าเช่น ค่าคงที่ไดอิเล็กตริกของ สารประกอบ BFN ที่มีการเจือสารต่างๆ ลงไปในโครงสร้าง

Output จากโครงการวิจัยที่ได้รับทุนจาก สกว.

การเสนอผลงานในที่ประชุมวิชาการ

- เสนอผลงานวิชาการแบบโปสเตอร์ การประชุมนักวิจัยรุ่นใหม่พบเมธีวิจัยอาวุโส สกว. ครั้งที่ 7 ณ โรงแรมแอมบาสซาเดอร์ ซิตี้ จอมเทียน จ.ชลบุรี วันที่ 11-13 ตุลาคม 2550
- เสนอผลงานวิชาการแบบโปสเตอร์ 25th Annual Conference Microscopy Society of Thailand at Phitsanulok, Thailand, 9-11 January 2008 และได้รับรางวัลที่ 3 ของการบรรยายแบบโปสเตอร์
- เสนอผลงานวิชาการแบบบรรยาย การประชุมวิชาการ "Smartmat-'08 & IWOFM-2" / Chiang Mai, Thailand / 22-25 April 2008

ภาคผนวก

A novel route for the synthesis of barium iron niobate and its dielectric properties

Nipaphat Charoenthai^{a*}, Rakchart Traiphol^a, and Gobwute Rujijanagul^b

^aLaboratory of Advanced Polymers and Nanomaterials, Department of Chemistry,
Faculty of Science, Naresuan University, Phitsanulok, 65000 Thailand

^bDepartment of Physics, Faculty of Science, Chiang Mai University, Chiang Mai,
50200 Thailand

Abstract

Barium iron niobate (BFN) powders were prepared by using a novel and simple chemical route accompanied with microwave irradiation. This procedure yielded pure perovskite phase of BFN when precursors were calcined at 850 °C for 14 h. The analysis of X-ray diffraction pattern of the samples measured at room temperature showed a cubic symmetry. Particle sizes of BFN powder were in submicron range as revealed by scanning electron microscopy. The examination of dielectric spectra indicated that BFN ceramics prepared by this novel chemical route exhibited rather high dielectric constant (~30,000 at 300 °C for 1 kHz) with low dielectric loss (less than 0.6).

Key words: Ceramics, Dielectrics, Perovskites

** Corresponding author.* E-mail: nipaphatc@nu.ac.th

Tel.: + 66 55 261 000 ext 3453 ; Fax: +66 55 261 025

1. Introduction

In recent years, high dielectric materials play an important role in microelectronics and have been utilized in wide range of technological applications. For the development of capacitors, many investigators have tried to synthesize and study the materials that exhibit high dielectric constant [1-3]. However, most high dielectric materials contain lead that inevitably causes environmental problems due to the toxicity of lead oxide. Therefore, it is necessary and urgent to search for lead-free materials with excellent dielectric properties, which should be comparable with those found in the lead-based ceramics.

Recently, a non-lead $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})\text{O}_3$ (BFN) ceramic was reported to exhibit a very high value of dielectric constant (giant dielectric material). BFN was first synthesized via solid state reaction by Saha and Sinha in 2002 [3]. After that, many workers have studied properties of the BFN, including Yokosuka [4], Tezuka et al. [5], Raevski et al. [6], and Saha and Sinha [7]. It has been reported that BFN is a relaxor type ferroelectric material characterized by a broad dielectric transitions with frequency dependent [7]. The ferroelectric transition temperature of BFN is around 110 °C. BFN also shows very high values of dielectric constant ($\epsilon_r \approx 10^4$ - 10^5) covering a wide range of temperature [8].

Researchers normally utilize conventional mixed oxide method to synthesize BFN powders. The disadvantage of this method is that it requires rather high temperature for calcinations. It is known that a chemical route can be used to produce fine powders under low-temperature conditions of reaction. In present work, we report a novel chemical method for the synthesis of BFN powders. The characteristics of BFN powder and dielectric properties of BFN ceramic prepared by this route were also investigated.

2. Experimental procedure

The BFN powders were prepared by chemical process using barium chloride $[\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}]$, ferric nitrate $[\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}]$, niobium chloride $[\text{NbCl}_5]$ and citric acid anhydrous. Their purities are over 99.9%. The experimental procedure is illustrated in Fig. 1. Citric acid, ferric nitrate and barium chloride were dissolved in deionized water. To form niobium ethoxide, niobium chloride was dissolved in ethanol. All solutions were thoroughly mixed in ambient conditions using magnetic stirrer. The mixed solutions of precursors were transferred into closed microwave-transparent vessel. The sample were irradiated by microwave (240 watts) for 1 minute and incubated for 3 h. The precursors were dried at 110 °C for 10 h. After drying, the obtained powder was calcined at 850 °C for various soaking times to obtain the pure perovskite phase of BFN. In order to study the phase formation of the calcined powders, X-ray diffraction (XRD) analysis was performed using a diffractometer with CuK_α radiation (XRD; Philips PW 3040/60 X'PERT PRO Console). Powders of the optimum calcined condition were then pressed into a pellet and sintered at 1250 °C for 4 h under the heating and cooling rate of 5 °C/min. Microstructure of calcined powders and sintered samples were examined using scanning electron microscopy (LEO 1455 VP). The samples for dielectric measurements were polished and electroded with gold sputtering. The dielectric properties were measured with an HP-4284A LCR meter utilizing an environmental chamber for the temperature measurements.

3. Results and discussion

Fig.2 shows XRD patterns of powder samples calcined at 850 °C for various soaking times. For a soaking time of 7 h, the formation of BFN structure accompanied with second phase was observed. The crystal growth of BFN progressed with soaking time, indicated by the increase of relative intensities of their corresponding diffraction peaks. Pure perovskite phase of the BFN with a cubic symmetry was obtained when the soaking time reached 14 h. The analysis of XRD pattern was carried out based on ICSD database [9]. Our results were consistent with those obtained by Rama et al. who prepared the BFN via solid state reaction [10]. Saha and Sinha obtained monoclinic-type structure of BFN by using a standard computer program (POWD) analysis [3]. Further increasing time of the calcinations led to the formation of small amount of impurity phase. As widely known, Fe^{2+} changes to Fe^{3+} at high temperature causing defect of the crystal growth where the second phase may start to grow.

Morphology of BFN powder calcined at 850 °C for 14 h is illustrated in Fig. 3(a). Submicron-size particles with average diameter of about 0.7 μm were observed. The sample also appeared rather homogeneous. Fig.3 (b) shows microstructure of BFN ceramic sintered at 1250 °C for 4 h. By using intercept method, the average grain size of BFN ceramic was about 2.1 μm . We note that this chemical route can produce a fine grain ceramic with uniform grain size compared to that of the conventional method (>9 μm) [8, 11].

Fig. 4(a) shows the dielectric constant of BFN ceramics measured as a function of temperature up to 350 °C. The dielectric constant increased with increasing temperature and became broad curve from 200 °C onward. The dielectric constant measured at 1 kHz was in the range of 6,000 to 30,000. In addition, the dielectric constant was found to decrease with increasing frequency. This behavior may be due to

the fact that the dipoles are able to follow the applied at low frequency, but they do not follow to the field at higher frequency [12]. This result agrees with the experimental work done on the BFN ceramics prepared from the mixed oxide method. Fig.4(b) shows the variation of dielectric loss as a function of temperature. At room temperature, the dielectric loss of our ceramics was in the range of 0.5 to 0.1. For the temperature below 250 °C, the dielectric loss value of less than 0.6 was observed. Above 250 °C, however, high values of dielectric loss were found for all samples. Compared with the ceramics prepared by mixed oxide method (dielectric loss >1.0), the BFN ceramic in the present work shows a lower dielectric loss which is suitable for use in capacitor applications.

4. Conclusion

In the present work, a novel chemical route is proposed for the synthesis of BFN powder. Pure perovskite phase with cubic symmetry was obtained. The BFN ceramics prepared by our route exhibited high dielectric constant. In addition, low dielectric loss of the BFN ceramics indicated a potential use of this material for capacitor applications.

Acknowledgements

This work was financially supported by The Thailand Research Fund (TRF) and ministry of higher education (CHE) (MRG4980186). Faculty of science, Naresuan University and faculty of science, Chiang Mai University are acknowledged for supporting research facilities. The authors would like to thank Prof. Dr. Tawee Tunkasiri for his help in many facilities.

References

- [1] Homes CC, Vogt T, Shaprio SM, Wakimoto S, Subramanian MA, Ramirez AP. Phys Rev B 2003;67:092106-9.
- [2] Subramanian MA, Li D, Duan N, Reisner BA, Sleight AW. J Solid State Chem 2000;151:323-5.
- [3] Saha S, Sinha TP. Phys Rev B 2002;65:134103-1-7.
- [4] Yokosuka M. Jpn J Appl Phys 1995;34:5338-40.
- [5] Tezuka K, Henmi K, Hinatsu Y. J Solid State Chem 2000;154:591-7.
- [6] Raevski IP, Prosandeev SA, Bogatin AS, Malitskay MA, Jastrabik L. J Appl Phys 2003;93:4130-6.
- [7] Saha S, Sinha TP. J Phys; Condens Matter 2002;14:249-58.
- [8] Intatha U, Eitssayeam S, Pengpat K, MacKenzie Kenneth JD, Tunkasiri T. Mat Lett 2007;61:196-200.
- [9] The Inorganic Crystal Structure database (ICSD) code. 52835.
- [10] Rama N, Philipp JB, Opel M, Chandrasekaran K, Sankaranarayanan V, Gross R, Rao Ramachandra MS. J Appl Phys 2004;95:7528-30.
- [11] Eitssayeam S, Intatha U, Pengpat K, Tunkasiri T. Curr Appl Phys 2006;6:316-8.
- [12] Chung CY, Chang YH, Chen GJ, Chai YL. J Cryst Growth 2005;284:100-7.

Figure captions

Fig.1 A schematic illustration for the preparation of BFN powder and BFN ceramic

Fig.2 XRD patterns of BFN powders prepared by using various calcination times at 850 °C

Fig. 3 SEM micrographs of (a) BFN powder and (b) BFN ceramic

Fig.4 (a) Dielectric constant and (b) dielectric loss of BFN ceramic measured at various frequencies over broad temperature range

List of Figures

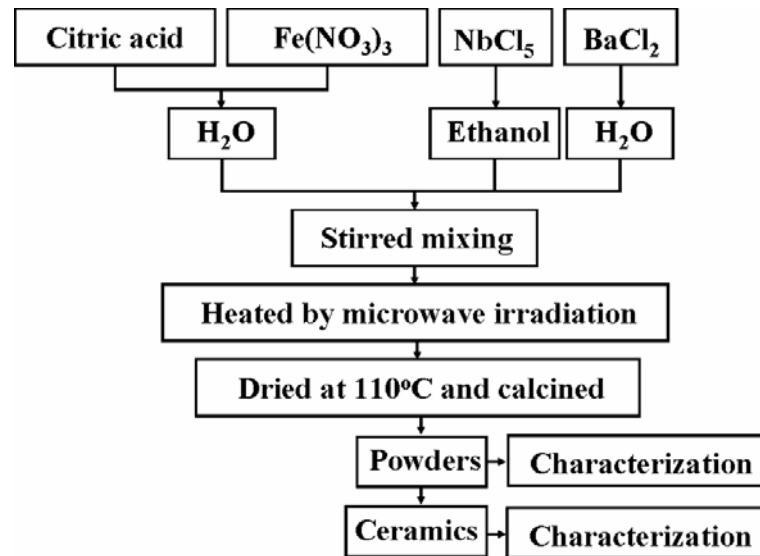


Fig.1

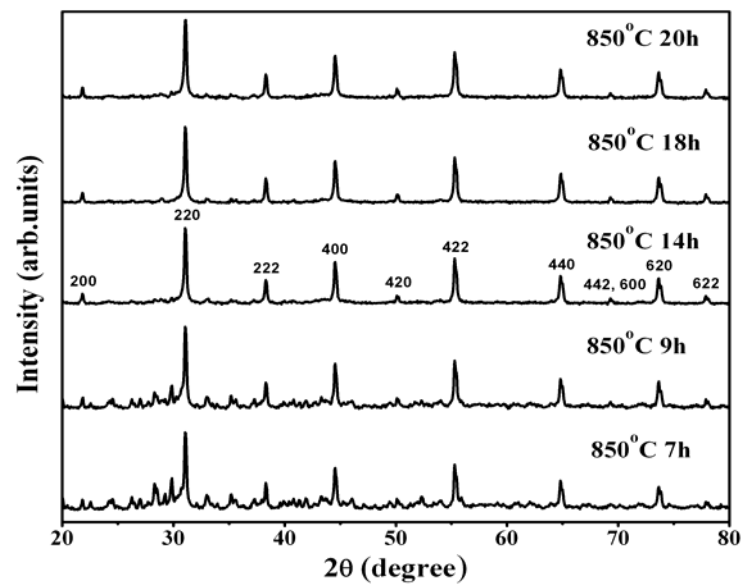


Fig.2

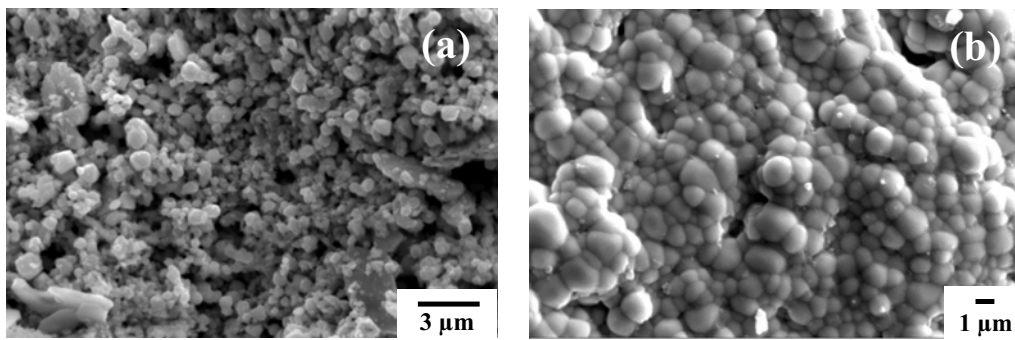


Fig.3

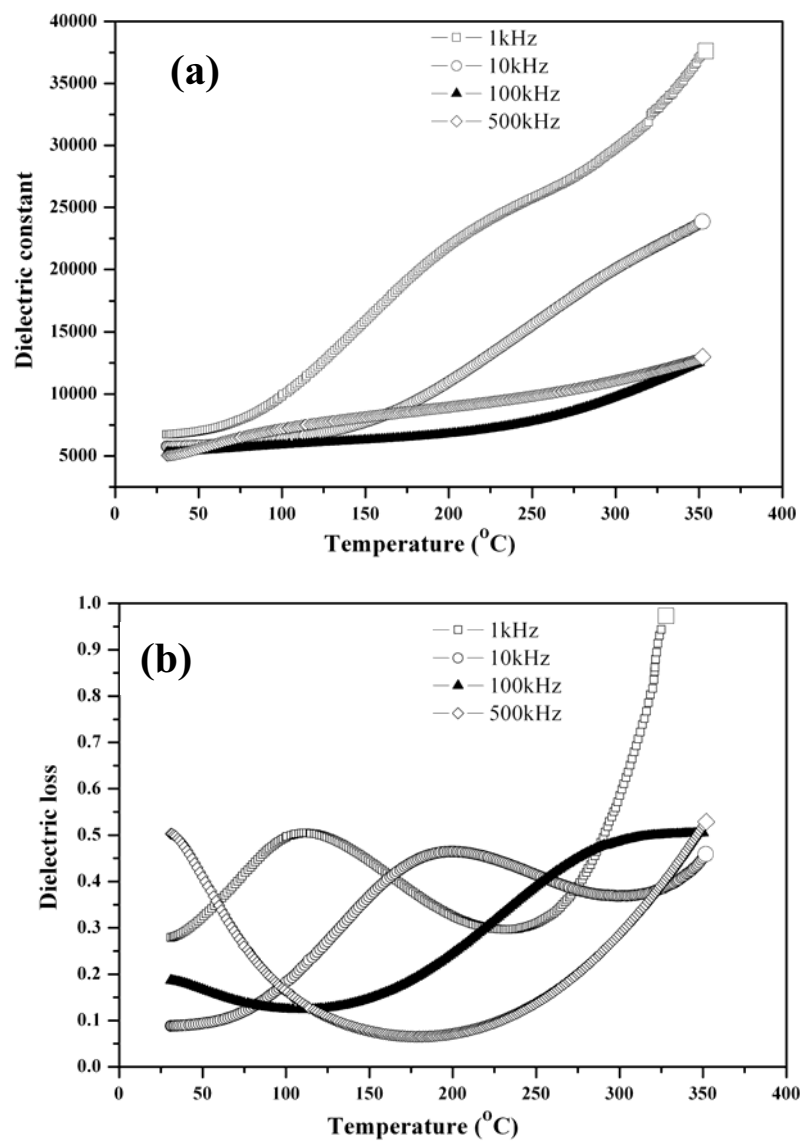


Fig.4

Title Page

Progress in Synthesis of Ba(Fe_{0.5}Nb_{0.5})O₃ Ceramics: A Co-precipitation Method

Nipaphat Charoenthai^{a*}, Rakchart Traiphol^a and Gobwute Rujijanagul^{b*}

^aLaboratory of Advanced Polymers and Nanomaterials, Department of Chemistry,
Faculty of Science, Naresuan University, Phitsanulok, 65000 Thailand

^bDepartment of Physics, Faculty of Science, Chiang Mai University, Chiang Mai,
50200 Thailand

***Corresponding Authors:** Nipaphat Charoenthai; e-mail: nipaphatc@nu.ac.th

Tel.: +66 55 261000 ext.3453; fax: +66 55 261025

Gobwute Rujijanagul; e-mail: rujijanagul@yahoo.com

Tel.: + 66 53 943 376; fax: +66 53 357 512

Total number of page: 14 (including this page)

Number of Figure: 6

Abstracts

$\text{BaFe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_3$ (BFN) is a class of material that exhibits very high value of dielectric constant over wide range of temperature, rendering it a promising candidate for capacitor application. In this contribution, we report a versatile route for synthesis of BFN ceramic via co-precipitation process. The method simply involved mixing of solutions of precursors in ambient conditions. The mixed solution was dried at 110 °C and subsequently calcined at 850 °C for different periods of time. The formation of perovskite structure of BFN was followed by utilizing X-ray diffraction and Fourier transformed infrared spectroscopy. The pure perovskite phase was obtained upon the calcination at 850 °C for 14 h, a much milder conditions compared to normal solid-state reaction. The powder samples were pressed into pellets and sintered at 1250 °C for 4 h. The examination by scanning electron microscopy observed cubic-like crystals. The grain sizes were also found to vary with soaking time of the calcinations. The field dependences of dielectric response and dielectric loss were measured in a frequency range of 20 Hz to 2 MHz at room temperature. The maximum values of dielectric constant and dielectric loss are ~9000 and ~1.1, respectively. In addition, the measured dielectric constants of the samples exhibit frequency dependent, suggesting that the BFN is a relaxor ferroelectric.

Key words: Barium iron niobate, High dielectric constant, Co-precipitation, Ferroelectric

1. Introduction

Complex perovskites such as $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3)$, $\text{CaCu}_3\text{Ti}_4\text{O}_{12}$ are very promising for electroceramic applications. This is mainly due to their high values of the dielectric constant over wide range of temperature [1]. $\text{Ba}(\text{Fe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})\text{O}_3$ (BFN) is one of the materials in this family that has been known to exhibit temperature- and frequency-dependent dielectric values [2-4]. The maximum value of 30,000 was detected at around 170 °C [2,3]. The synthesis of BFN can be achieved via routine solid state reaction, which normally takes place at the temperature above 1000 °C [2,3,5-7]. However, the apparent disadvantage of this method is that it is rather difficult to control stoichiometry and homogeneity of BFN powders. Moreover, this method requires high temperature to obtain complete solid solution and phase-pure BFN powder. Continuous efforts have been made in order to improve the synthetic methods that yield BFN ceramic with, at least, comparable dielectric properties [7-10]. Recent study by Tunkasiri et.al showed that the addition of LiF into system caused the reduction of sintering temperature by about 150-200 °C [8]. However, the values of dielectric constant were found to decrease with increasing amount of the doped LiF. Other studies have shown that the dielectric constant of BFN ceramic can be increased by doping some metals such as bismuth and lanthanum [9,10].

The synthetic method of BFN can be reduced to milder conditions by utilizing a wet chemical process. The method also provides a route for thin film fabrication of the ceramic and has a better control over final composition. It was demonstrated by Chang et.al that the synthesis of BFN can be accomplished via sol-gel route [11]. The calcination temperature required for obtaining pure perovskite BFN was much lower than that of the solid state reaction. It was found that the crystallization into perovskite BFN occurred at 550 °C and eventually completed at 850 °C. In this study, a co-

precipitation route for fabrication of BFN ceramic was explored. It was recently shown that this method was successfully used to prepare $\text{Pb}(\text{Fe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})\text{O}_3$ [12]. The procedure simply involved the mixing of precursor solutions in atmospheric conditions. The pure perovskite powder was obtained by using mild conditions for calcinations comparable to those of the sol-gel method.

2. Experimental procedure

The $\text{BaFe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_3$ powders were prepared by co-precipitation process using barium chloride [$\text{BaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$], ferric nitrate [$\text{Fe}(\text{NO}_3)_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$], niobium chloride [NbCl_5] and citric acid anhydrous. The purities of all chemicals are over 99.9%. The diagram depicting the details of experimental procedure is shown in Fig. 1. The citric acid, ferric nitrate and barium chloride were dissolved in deionized water while the niobium chloride was dissolved in ethanol. All solutions were thoroughly mixed in an ambient atmosphere using magnetic stirrer. The precipitates of precursors were obtained after continuous stirring for 3 h. The solutions containing the co-precipitates were dried at 110 °C for 10 h. The samples were subsequently calcined at 850 °C for various soaking time. The progress of reaction was followed by utilizing X-ray diffraction (XRD) with $\text{Cu K}\alpha$ ($\lambda=1.54 \text{ \AA}$) radiation (XRD; Philips PW 3040/60 X'PERT PRO Console) and Fourier transformed infrared spectroscopy (FT-IR; Perkin-Elmer). The powder samples were pressed into pellets and sintered at 1250 °C for 4 h under the heating and cooling rate of 5 °C/min. Microstructures of the ceramics were examined by scanning electron microscopy (LEO 1455 VP). The sintered samples were polished to obtain parallel surfaces and electroded with gold sputtering for dielectric measurements. The dielectric properties of the pellet sample were measured

at room temperature and various frequencies ranging between 20 Hz-2 MHz by using an LCR meter (Hioki model 3532-50).

3. Results and discussion

The preparation of BFN powders by sol-gel route in previous study showed that pure perovskite phase was obtained when calcined at 850 °C [11]. Therefore, we selected this temperature for calcinations of our sample. Structural evolution of the sample was then followed by utilizing XRD and FT-IR. Fig. 2 illustrates XRD patterns of powder samples obtained from the calcinations at 850 °C for different soaking times. A crystallization of BFN into perovskite structure is observed when the soaking time is 9 h. However, a considerable amount of residual phases still remains. The crystallization progresses with increasing of the soaking time. It is clear that nearly single perovskite phase is obtained when time of the calcinations reaches 14 h. Further increasing time of the calcinations to 20 h hardly affects structure of the powder sample. Our XRD pattern is consistent with previous works, reporting a monoclinic structure of BFN with $\beta = 90.11^\circ$, $a = 4.0743 \text{ \AA}$, $b = 4.0388 \text{ \AA}$ and $c = 2.876 \text{ \AA}$ [2,3].

Fig. 3 shows FT-IR spectra of BFN powders prepared by using different conditions for calcinations. The intense broad band detected at approximately 600 cm^{-1} is attributed to the absorption of metal oxide bonds in the perovskite structure of BFN. The existence of some H_2O and hydroxyl group in the system contributes to the broad band at $2700\text{-}3400 \text{ cm}^{-1}$ while the peaks at about 1633 cm^{-1} are due to asymmetric stretching vibration of COO^- group. The measurements by FT-IR are in agreement with the XRD results. The broad absorption band at low frequency, mainly associated with the vibrations of metal-oxygen bonds, is detected at 9 h of the calcinations. However, the spectrum also constitutes of other absorption bands of residual organic fraction. Its

concentrations indicated by the intensity of their corresponding absorption bands decrease with increasing soaking time of the calcinations. Only small fraction of the organic residuals remains in the samples when soaking times of the calcinations reach 14 h and 20 h.

Microstructure of the BFN powder revealed by scanning electron microscopy is illustrated in Fig. 4. The powder consists of fine particles with averaged grain size of about 0.99 μm . It also shows a good homogeneity of the sample. Fig. 5 shows surface micrograph of the BFN ceramics sintered at 1250 $^{\circ}\text{C}$ for 4 h. The pellets were prepared by using powder samples obtained from different soaking times of the calcinations. The crystals of all samples exhibit a cubic-like structure. However, the grain size of each sample is found to vary significantly. The average grain sizes are about 4.83 μm , 1.53 μm and 1.28 μm when the soaking times of calcinations are 9 h, 14 h and 20 h, respectively.

The field dependences of the dielectric response and dielectric loss were measured in a frequency range from 20 Hz to 2 MHz at room temperature as shown in Fig. 6. The maximum value of dielectric constant detected at 20 Hz is $\sim 9,000$. The value decreases significantly upon increasing frequency and reaches about 2,500 at 1 kHz. This behavior is due to the fact that the dipoles are able to follow the applied field at low frequency while it becomes more difficult at higher frequency. This frequency-dependent of dielectric constants of the samples suggests that the BFN is a relaxor ferroelectric. The values of dielectric loss ($\tan\delta$) are in the range of 1.1 to 0.1. It is important to note that the dielectric response and dielectric loss of our samples are comparable to the values of BFN ceramics prepared by solid state synthesis [9].

4. Conclusions

Our study demonstrated a co-precipitation method for synthesis of $\text{BaFe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_3$ ceramics. This novel route is rather versatile and requires milder conditions compared to common solid-state reaction. The single phase of perovskite BFN was obtained when calcined at 850 °C for 14 h. The variation of soaking time of the calcinations is also found to affect the grain size of BFN ceramics.

Acknowledgements

The authors thank Thailand research fund (TRF) and ministry of higher education for financial supports (MRG4980186). Faculty of science, Naresuan University is acknowledged for supporting research facilities.

References

- [1] M.A. Subramanian, A.W. Sleight, Solid State Sci. 4 (2002) 347.
- [2]. S. Saha, T.P. Sinha, J.Phys.: Condens. Matter 14 (2002) 249.
- [3] S. Saha, T.P. Sinha, Phys. Rev. B 65 (2002) 134103.
- [4] I.P. Raevski, S.A. Prosandeev, A.S. Bogatin, M.A. Malitskay, L. Jastrabik, J. Appl. Phys. 93 (2003) 4130.
- [5] S. Eitssayeam, U. Intatha, K. Pengpat, T. Tunkasiri, Curr. Appl. Phys. 6 (2006) 316.
- [6] Z. Wang, X.M. Chen, L. Ni, X.Q. Liu, Appl. Phys. Lett. 90 (2007) 022904.
- [7] S. Ke, H. Huang, H. Fan, H.L.W. Chan, L.M. Zhou, Ceram. Int. (2007), doi:10.1016/j.ceramint.2007.09.079

- [8] U. Intatha, S. Eitssayeam, K. Pengpat, K.J.D. MacKenzie, T. Tunkasiri, *Mater. Lett.* 61 (2007) 196.
- [9] C.Y. Chung, Y.-H. Chang, G.-J. Chen, *J. Appl. Phys.* 96 (2004) 6624.
- [10] C.-Y. Chung, Y.-S. Chang, G.-J. Chen, C.-C. Chung, T.-W. Huang, *Solid State Commun.* 145 (2008) 212.
- [11] C.Y. Chung, Y.H. Chang, G.J. Chen, Y.L. J. *Cryst. Growth* 284 (2005) 100.
- [12] J. Tang, M. Zhu, T. Zhong, Y. Hou, H. Wang, H. Yan, *Mater. Chem. Phys.* 101 (2007) 475.

Figure captions

Fig.1 Illustration of the preparation of the BFN powders and BFN ceramic via co-precipitation process

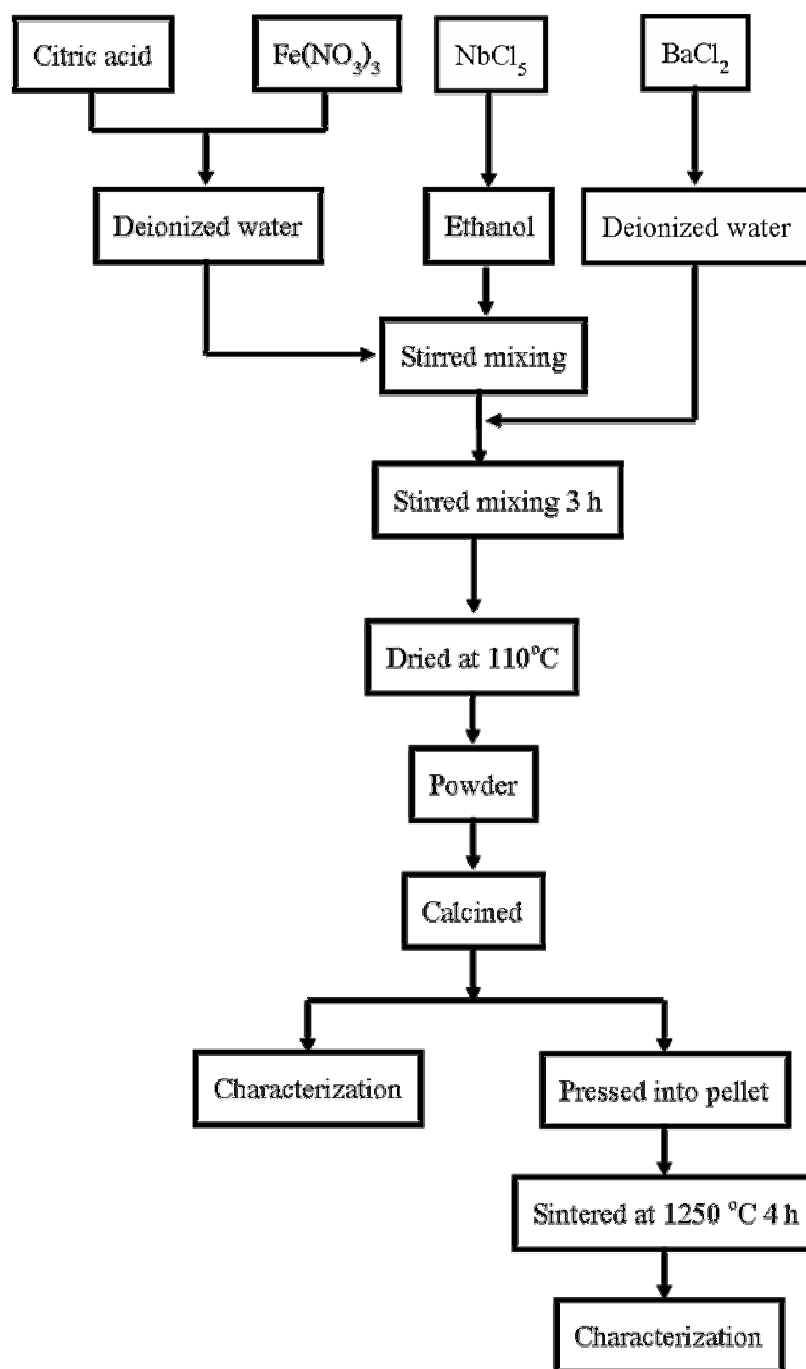
Fig.2 XRD patterns of BFN powders calcined at 850 °C for various soaking times

Fig.3 FT-IR spectra of BFN powders calcined at 850 °C for various soaking times

Fig.4 SEM micrographs of BFN powder calcined at 850 °C for 14 h

Fig.5 SEM micrographs of BFN ceramic sintered at 1250 °C for 4 h. The pellets were prepared from powders calcined at 850 °C for (a) 9 h (b) 14 h and (c) 20 h.

Fig.6 Dielectric properties at room temperature of BFN ceramics sintered at 1250 °C for 4 h. The pellets were prepared from powders calcined at 850 °C for 14 h.

**Fig.1**

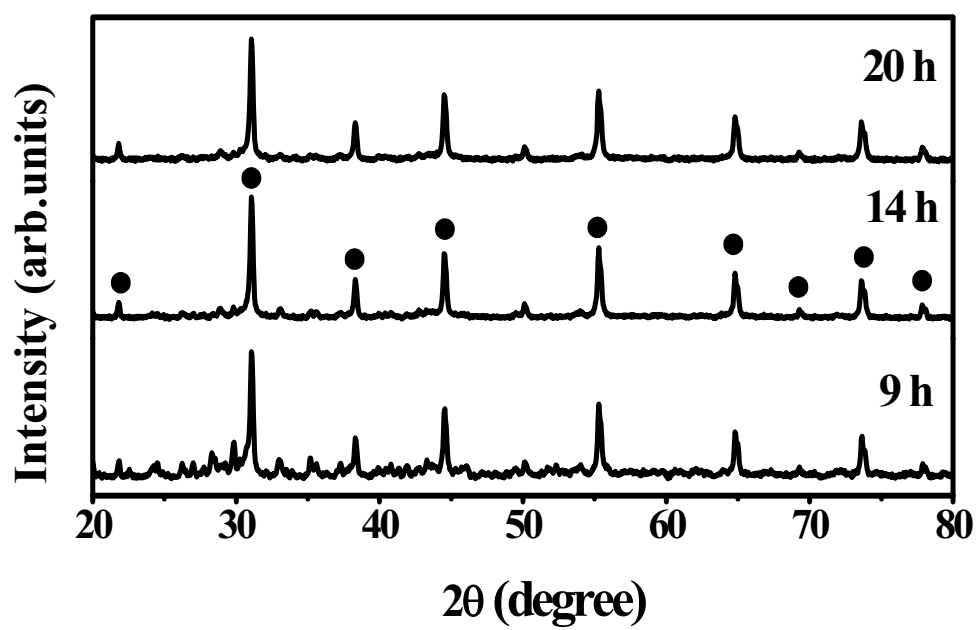


Fig.2

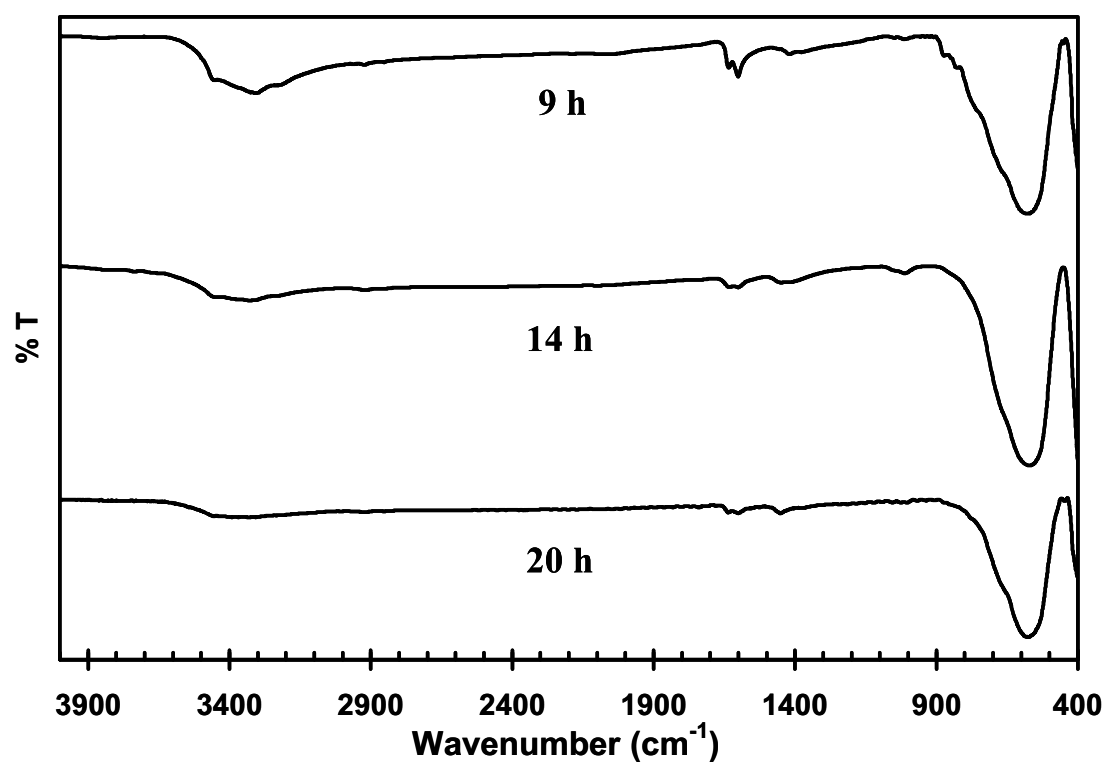


Fig.3

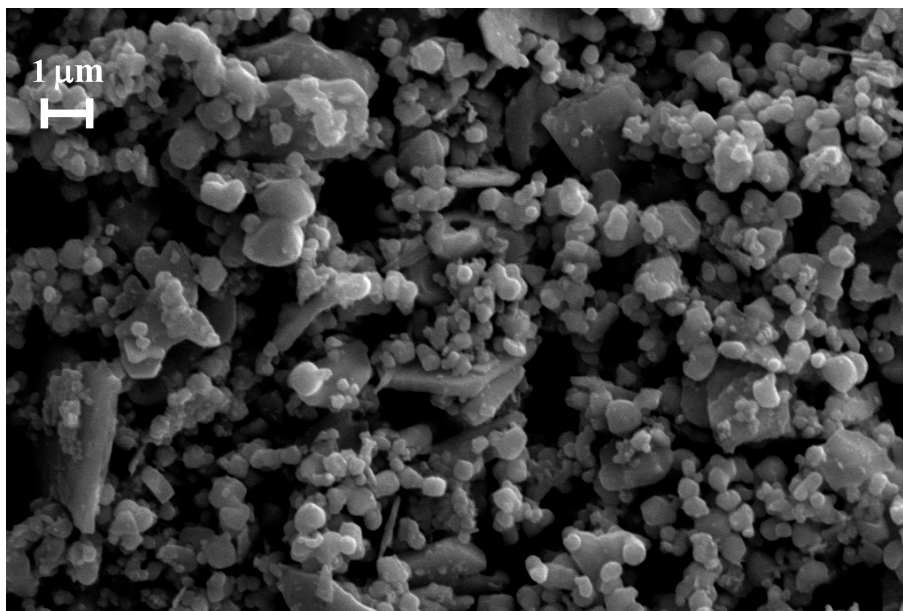
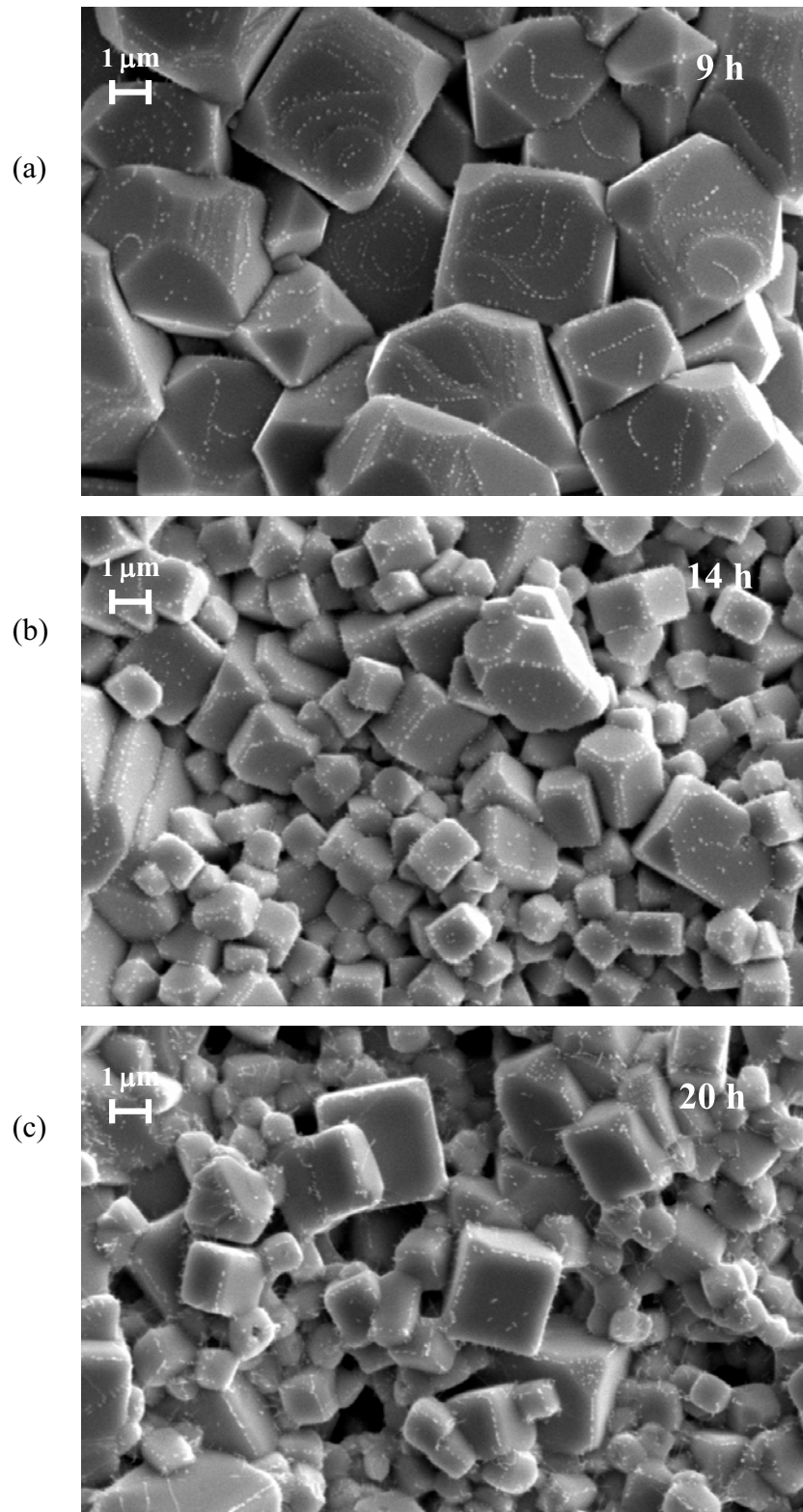


Fig.4

**Fig.5**

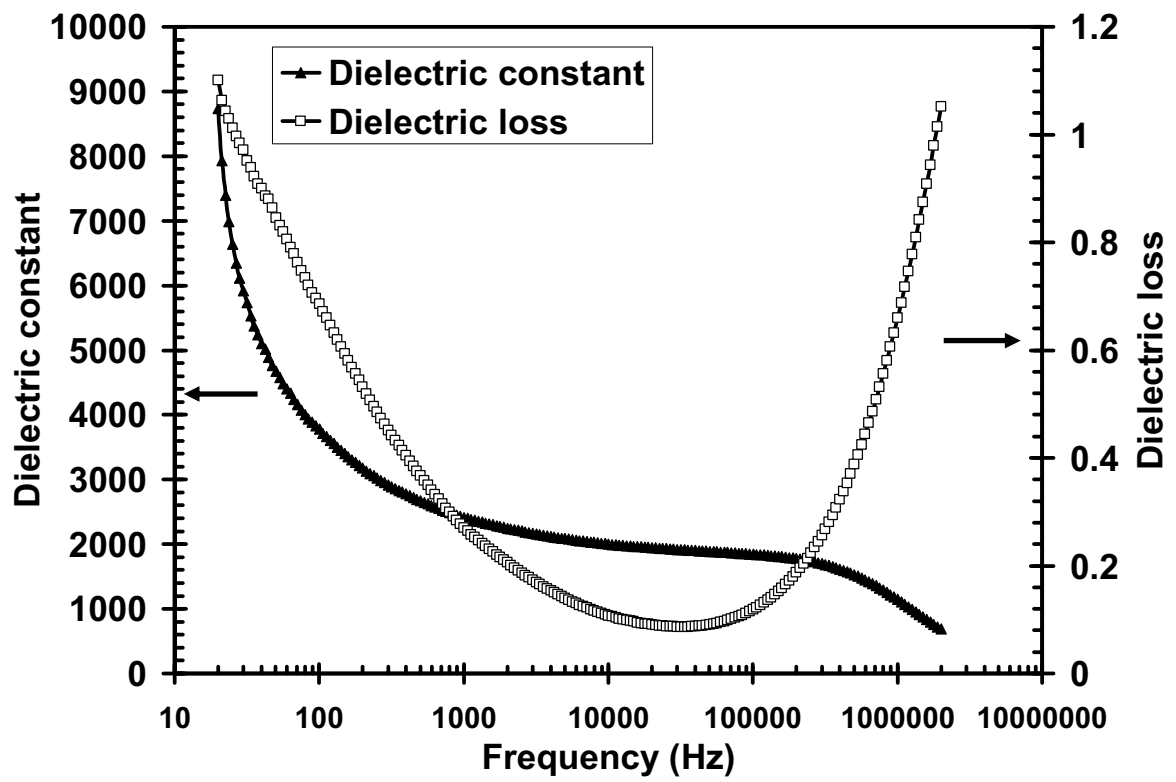


Fig.6

**Novel Route for Preparation of
Barium Iron Niobate ($\text{BaFe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_3$) Ceramic: Microwave Assisted**

Charoenthai, N.^{1*}, Sriprang, N.¹, Rujijanagul, G.²

¹*Department of Chemistry, Faculty of Science, Naresuan University, Phitsanulok, Thailand*

²*Department of Physics, Faculty of Science, Chiangmai University, Chiangmai, Thailand*

Abstract

$\text{BaFe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_3$ (BFN) ceramic is a ferroelectric relaxor material, exhibiting very high value of dielectric constant over wide range of temperature. Therefore, it has been frequently used in high voltage capacitors and other applications. In this research, the new route to prepare BFN ceramic is explored. The reaction to obtain the BFN compound proceeds by wet chemical process of the precursors in a microwave digestion container. The solutions of precursors are heated by microwave irradiation. Various experimental parameters including reaction time in microwave vessel and calcined temperature are investigated. The progress of reaction is followed by utilizing X-ray diffraction and Fourier transformed infrared spectrometry. It can be seen that the structure of BFN starts to form when calcined at 750 °C for 5 hrs. Increasing the temperature to 850 °C and 950 °C accelerates the reaction process. For the calcination at 850 °C, the pure BFN is obtained at 18 hrs. We also observe that the reaction time of precursors in microwave vessel is an important parameter for obtaining the BFN with high purity.

Keywords : ferroelectric relaxor, microwave assisted synthesis, BFN

*Corresponding author.

Tel. : 0-5526-1000 ext.3453 ; Fax : 0-5526-1025

E-mail : nipaphatc@nu.ac.th

Poster Presentation

Microstructure of BaFe_{0.5}Nb_{0.5}O₃ Ceramic Prepared by Chemical Process with Microwave Irradiation

N. Charoenthai^{1*}, Y. Proykoksong¹, W. Saiprom¹, R. Traiphol¹, N. Sriprang¹ and G. Rujijanagul²

¹Laboratory of Advanced Polymers and Nanomaterials, Department of Chemistry, Faculty of Science, Naresuan University, Phitsanulok, Thailand

²Department of Physics, Faculty of Science, Chiangmai University, Chiangmai, Thailand

BaFe_{0.5}Nb_{0.5}O₃ (BFN) ceramic is a perovskite-type compound that exhibits very high value of dielectric constant over wide range of temperature. The high dielectric property of this material makes it a promising candidate for capacitor application. In this research, the BFN ceramic is prepared by wet chemical process accompanied with microwave irradiation. Various experimental parameters including reaction time in microwave vessel and calcined temperature are investigated. The phase identification of calcined powders is performed by utilizing X-ray diffraction and Fourier transformed infrared spectrometry. The structure of BFN starts to form when calcined at 750 °C for 5 h. Increasing the temperature to 850 °C and 950 °C accelerates the reaction process. For the calcination at 850 °C, the pure BFN is obtained at 18 h. We also observe that the reaction time of precursors in microwave vessel is an important parameter for obtaining the BFN with high purity. The powders is then pressed into pellet and sintered at 1250 °C for 4 h. The microstructure of the ceramics such as grain size and shape, examined by the scanning electron microscopy, is found to vary with experimental parameters. The calcination at high temperature causes higher crystallinity. Moreover, the grain size decreases with increasing calcination time.

Acknowledgement

The authors would like to thank TRF for financial supports (MRG4980186) and faculty of science, Naresuan university for supports research facilities.

References

1. Saha, S. and Sinha, T.P. Structural and dielectric studies of BaFe_{0.5}Nb_{0.5}O₃. *J. Phys.: Condens. Matter.* 2002, 14 : 249-258.
2. Raevski, I.P., Prosandeev, S.A., Bogatin, A.S., Malitskay, M.A. and Jastrabik, L. High dielectric permittivity in AFe_{1/2}Nb_{1/2}O₃ non ferroelectric perovskite ceramics (A = Ba, Sr, Ca ; B = Nb, Ta, Sb). *J. Appl. Phys.* 2003, 93: 4130-4136.
3. Eitssayeaml, S., Intatha, U., Pengpat, K. and Tunkasiri, T. Preparation and characterization of barium iron niobate (BaFe_{0.5}Nb_{0.5}O₃) ceramics. *Curr. Appl. Phys.* 2006, 6: 316-318.
4. Chung, C.Y., Chang, Y.H., Chen, G.J. and Chai, Y.L. Preparation ,structure and ferroelectric properties of BaFe_{0.5}Nb_{0.5}O₃ powders by sol-gel method. *J. Cryst. Growth.* 2005, 284: 100-107.

*Corresponding author : nipaphatc@nu.ac.th

Microscopy Society of Thailand

Poster Presentation Award 2008

3rd Prize

Material science

Microstructure of BaFe_{0.5}Nb_{0.5}O₃ Ceramic Prepared by Chemical Process with Microwave Irradiation

*N. Charoenthai, Y. Proykoksoong, W. Saiprom, R. Traiphol,
N. Sriprang and G. Rujijanagul*

Presented at
XXVth Annual Conference
on Microscopy

on January 9 - 11, 2008
Phitsanulok, Thailand

Sukl Chykhun
Sukumal Chongthammakun
President

บทคัดย่อในการเสนอผลงานวิชาการแบบบรรยาย การประชุมวิชาการ"Smartmat-'08 & IWOFM-2" / Chiang Mai, Thailand / 22-25 April 2008

**Characterization of $\text{BaFe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_3$ prepared by
a simple new chemical route**
N. Charoenthai^{1*}, R. Traiphol¹, N. Sriprang¹ and G. Rujijanagul²

¹ *Laboratory of Advanced Polymers and Nanomaterials, Department of Chemistry, Faculty of Science,*

Naresuan University, Phitsanulok 65000, Thailand

² *Department of Physics, Faculty of Science, Chiang Mai University, Chiang Mai 50200, Thailand*

* Corresponding Author: nipaphatc@nu.ac.th

Abstract

The ferroelectric $\text{BaFe}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{O}_3$ (BFN) ceramic is a perovskite-type compound which exhibits very high dielectric constant over wide range of temperature. The high dielectric property of this material makes it a promising candidate for capacitor applications. However, most researchers have synthesized BFN by solid-state reaction which requires high-temperature conditions. Therefore, in this research, we proposed a new chemical route to prepared BFN fine powder. Various processing parameters of the new method were studied in order to obtain the pure phase of BFN. Properties of the BFN powders were also investigated.