



การเตรียมเซรามิกคอมโพสิต $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.94}(\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055})_{0.06}(\text{Ti}_{0.9946}\text{Sn}_{0.0054})\text{O}_3:\text{Y}_{2.7}\text{Bi}_{0.3}\text{Fe}_{4.7}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{12}$ ที่มีสมบัติแม่เหล็กเฟอร์โรอิกด้วยวิธีการเผาไหม้ของแข็ง

The Preparation of $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.94}(\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055})_{0.06}(\text{Ti}_{0.9946}\text{Sn}_{0.0054})\text{O}_3:\text{Y}_{2.7}\text{Bi}_{0.3}\text{Fe}_{4.7}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{12}$ Composite Ceramics with Multiferroic Properties Via Solid-State Combustion Technique

ชเนษฎ์ วิชาศิลป์¹, สุปรีย์ พิณจสุนทร²,ธีระชัย บงการณ³ และ จิตกรกร กรพรม^{1*}

Chanade Wichasilp¹, Supree Pinitsoontorn², Theerachai Bongkam³ and Chittakorn Kronphom^{1*}

¹ภาควิชาฟิสิกส์และวิทยาศาสตร์ทั่วไป คณะวิทยาศาสตร์และเทคโนโลยี มหาวิทยาลัยราชภัฏเชียงใหม่ ประเทศไทย

²ภาควิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยขอนแก่น ประเทศไทย

³ภาควิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยนเรศวร ประเทศไทย

¹Department of General Sciences and Physics, Faculty of Science and Technology,

Chiang Mai Rajabhat University, Thailand

²Department of Physics, Faculty of Science, Khon Kaen University, Thailand

³Department of Physics, Faculty of Science, Naresuan University, Thailand

Received : 1 April 2023, Received in revised form : 17 December 2023, Accepted : 20 December 2023

Available online : 9 January 2024

บทคัดย่อ

วัตถุประสงค์และที่มา : งานวิจัยนี้มีมุ่งเน้นการเตรียมเซรามิกคอมโพสิตที่มีสมบัติแม่เหล็กเฟอร์โรอิกของ $0.93(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{TiO}_3 - 0.07(\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055})(\text{Ti}_{0.91}\text{Sn}_{0.09})\text{O}_3:\text{Y}_{2.7}\text{Bi}_{0.3}\text{Fe}_{4.7}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{12}$ (BNT-BCTS: YBFMO) ที่อัตราส่วนต่างๆ ด้วยวิธีการเผาไหม้ของแข็ง ศึกษาผลของอัตราส่วนที่มีต่อโครงสร้างเฟส โครงสร้างจุลภาค สมบัติทางไฟฟ้า และสมบัติทางแม่เหล็กของเซรามิกคอมโพสิตที่เตรียมได้

วิธีดำเนินการวิจัย เซรามิกคอมโพสิต $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})_{0.94}(\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055})_{0.06}(\text{Ti}_{0.9946}\text{Sn}_{0.0054})\text{O}_3$ (BNT-BCTS) ผสมด้วยสาร $\text{Y}_{2.7}\text{Bi}_{0.3}\text{Fe}_{4.7}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{12}$ (YBFM) ที่อัตราส่วนของ BNT-BCTS:YBFM เป็น 9:1, 8:2, 7:3, 6:4, 5:5, 4:6 และ 3:7 โดยน้ำหนักเตรียมด้วยวิธีการเผาไหม้ของแข็ง โดยใช้ไกลซีนเป็นเชื้อเพลิง

ผลการวิจัย : พบว่าเซรามิกทุกอัตราส่วนแสดงโครงสร้างเฟสเพอโรฟสไกต์แบบเฟสร่วมของรอมโบฮีดรอลและเททะโกนอล ผสมกับโครงสร้างเฟสแบบการ์เนต ซึ่งค่าความเข้มของพีคโครงสร้างเฟสแบบการ์เนตมีค่าสูงขึ้นเมื่ออัตราส่วน YBFM สูงขึ้น เกรนเซรามิกมีขนาดใหญ่และเกรนขนาดเล็กผสมกันในทุกอัตราส่วนและมีลักษณะเป็นรูปหลายเหลี่ยม (polygonal grain) โดยเกรนมีขนาดเฉลี่ยที่เล็กลงขณะที่ค่าความหนาแน่นของเซรามิกมีค่าเพิ่มขึ้นจาก $5.75 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ เป็น $5.96 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ เมื่ออัตราส่วนของ YBFM มากขึ้น การวิเคราะห์สมบัติไดอิเล็กทริกที่อุณหภูมิห้อง วัดที่ความถี่ 1 kHz ของเซรามิกที่อัตราส่วนต่างๆ พบว่าเซรามิกมีค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ϵ_r) ลดลง ขณะที่ค่าสภาพการสูญเสียไดอิเล็กทริก ($\tan\delta_r$) มีค่าสูงขึ้น เมื่ออัตราส่วนของ YBFM เพิ่มขึ้น การวิเคราะห์สมบัติเฟอร์โรอิกเล็กทริกจากวงวนฮีสเทอรีซิส (P-E loops) ที่อุณหภูมิห้องของเซรามิก พบว่าวงวนฮีสเทอรีซิสแสดงวงวนที่ไม่อิ่มตัวในทุกตัวอย่าง และมีลักษณะขยายใหญ่ขึ้นมากขึ้นเมื่ออัตราส่วน เมื่ออัตราส่วนของ



YBFM เพิ่มขึ้น เนื่องจากการเกิดกระแสรั่วไหล ค่า P_s ของเซรามิกอยู่ระหว่าง 1.72 ถึง 5.97 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ เมื่ออัตราส่วนของ YBFM เพิ่มขึ้น ค่า P_r และ E_c มีค่ามากขึ้น สมบัติแม่เหล็กของเซรามิกทุกอัตราส่วนวัดที่อุณหภูมิ 27°C พบว่าเซรามิกทุกตัวแสดงสมบัติแม่เหล็กแบบเฟอร์โรแมกเนติก สำหรับค่าแมกนีโตเซชันอิ่มตัว (M_s) ค่าแมกนีโตเซชันคงค้าง (M) และค่าสนามแม่เหล็กลบล่าง (H_c) ของเซรามิก มีค่าอยู่ระหว่าง 0.12 ถึง 5.01 emu/g 0.003 ถึง 2.28 emu/g และ 61.25 ถึง 149.19 Oe ตามลำดับ โดยปริมาณเหล่านี้มีค่าสูงขึ้นเมื่อปริมาณส่วนของสาร YBFM เพิ่มขึ้น

สรุปผลการวิจัย : เซรามิกคอมโพสิตของ BNT-BCTS: YBFM แสดงสมบัติคู่ควมระหว่างเฟอร์โรอิเล็กทริกกับเฟอร์โรแมกเนติก ซึ่งเป็นลักษณะที่สำคัญของวัสดุแม่เหล็กเฟอร์โรอิก อย่างไรก็ตามปริมาณอัตราส่วน 5:5 ถึง 3:7 เซรามิกมีการรั่วไหลของกระแสไฟฟ้ามาก ซึ่งเป็นช่วงของอัตราส่วนที่ไม่เหมาะสม นอกจากนี้ไม่สามารถยืนยันได้ว่าอัตราส่วนของเซรามิกที่ดีที่สุด จึงต้องศึกษาในส่วนของคุณสมบัติแมกนีโตอิเล็กทริกเพิ่มเติมในอนาคต

คำสำคัญ : BNT-BCTS:YBFM ; วัสดุเฟอร์โรอิก ; วิธีการเผาไหม้ของแข็ง ; โครงสร้างเฟส ; สมบัติแม่เหล็ก

Abstract

Background and Objectives : This research focuses on the preparation of ceramic composites with multiferroic properties of $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5/0.94}(\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055})_{0.06}(\text{Ti}_{0.9946}\text{Sn}_{0.0054}))\text{O}_3$ (BNT-BCTS) with mixing $\text{Y}_{2.7}\text{Bi}_{0.3}\text{Fe}_{4.7}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{12}$ (YBFM) at various ratios by solid-state combustion technique. The effect of ratios on phase structure, microstructure, electrical properties, and magnetic properties of the prepared ceramic composites were studied.

Methodology : The ceramic composite of $(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5/0.94}(\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055})_{0.06}(\text{Ti}_{0.9946}\text{Sn}_{0.0054}))\text{O}_3$ (BNT-BCTS) with mixing $\text{Y}_{2.7}\text{Bi}_{0.3}\text{Fe}_{4.7}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{12}$ (YBFM) compound at various ratios of 9:1, 8:2, 7:3, 6:4, 5:5, 4:6, and 3:7 wt% was prepared by solid-state combustion with glycine as fuel.

Main Results : It was found that the ratio of all ceramics showed perovskite structure with coexisted phases of rhombohedral and tetragonal phases mixed a garnet structure. The intensity of the garnet structure increased with increasing of the YBFM ratios. Grain ceramics showed mixture of large grains and small grains in all ceramics and grains exhibited polygonal shapes. Average grain size density of the ceramics decreased while the density of the ceramics increased from 5.75 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ to 5.96 $\text{g}\cdot\text{cm}^{-3}$ when the YBFM ratios increased. In the analysis of dielectric property at room temperature with measuring at 1 kHz of the ceramics at various ratios, it was observed that the dielectric constant (ϵ_r) decreased. In contrast, the dielectric loss ($\tan\delta_r$) increased when the YBFM ratios increased. The analysis of ferroelectric properties from P-E loops at room temperature of all ceramics, it was found that all P-E loops showed non-saturated loops and the P-E loops showed bloated loops with increasing the YBFM ratios which indicated that leakage current was formed. The P_s value of the ceramics was in the range of 1.72 - 5.97 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$. When the YBFM ratios increased, the P_r and E_c values were increased. For magnetic property of all ceramic



ratios with measuring at 27°C, showed that all ceramics showed the ferromagnetic property. The value of saturated magnetic (M_s), Remnant magnetic (M_r), and Magnetic coercive field (H_c) of all ceramic ratios were in the range of 0.12-5.01 emu/g, 0.003-2.28 emu/g and 61.25-149.19 Oe, respectively, all values increased with increasing the YBFM ratios.

Conclusions : The BNT-BCTS:YBFM ceramic composite exhibited ferroelectric and ferromagnetic coupling properties, which were important characteristics of multiferroic materials. However, at volume ratios of 5:5 to 3:7, the ceramic has a large leakage current, which was a range of inappropriate ratios. Moreover, it is not possible to confirm that the ratio of ceramic was the best. Therefore, further study of the magnetoelectric coefficient is required in the future.

Keywords : BNT-BCTS:YBFM ; Multiferroic ; solid state combustion technique ; phase formation ; magnetic property

*Corresponding author. E-mail : chittakorn_kor@g.cmru.com

บทนำ

วัสดุแม่เหล็กเฟอร์โรอิก (multiferroic materials) เป็นวัสดุที่แสดงสภาพเฟอร์โรแมกเนติก (ferromagnetism) สภาพเฟอร์โรอิกเล็กทริก (ferroelectricity) หรือสภาพเฟอร์โรยืดหยุ่น (ferroelasticity) ในเฟสเดียวกัน โดยวัสดุแม่เหล็กเฟอร์โรอิกที่เกิดอันตรกิริยาคู่ควบระหว่างสมบัติเฟอร์โรอิกเล็กทริกและเฟอร์โรแมกเนติกในเฟสเดียวกัน จะเกิดเป็นปรากฏการณ์ที่เรียกว่าปรากฏการณ์ แมกนีโตอิกเล็กทริก (magnetoelectric effect; ME) ซึ่งการตอบสนองของปรากฏการณ์แมกนีโตอิกเล็กทริก คือ การเกิดขั้วทางไฟฟ้า (electric polarization; P) เมื่อให้สนามแม่เหล็ก (magnetic field; H) เข้าไปหรือเกิดสภาพความเป็นแม่เหล็ก (magnetization; M) เมื่อให้สนามไฟฟ้า (electric field; E) เข้าไปวัสดุชนิดนี้สามารถนำไปประยุกต์ใช้งานในกลุ่มของสปินทรอนิกส์ (spintronics) ตัวแปลงความถี่ หรือกระแส (transducers) แอคชูเอเตอร์ (actuators) ตัวเก็บประจุ (capacitors) เครื่องตรวจจับ (sensors) และหน่วยความจำ (memory) เป็นต้น (Vopson, 2015, Ortega *et al.*, 2015, Spaldin *et al.*, 2019) อย่างไรก็ตาม พบว่าวัสดุแม่เหล็กเฟอร์โรอิกแบบเฟสเดียวที่แสดง ME ที่ดีภายใต้อุณหภูมิห้องนั้นพบยาก เนื่องจากวัสดุแม่เหล็กเฟอร์โรอิกแบบเฟสเดียวส่วนใหญ่มีอุณหภูมิคูรีต่ำ รวมถึงมีสมบัติร่วมของเฟอร์โรอิกเล็กทริกและเฟอร์โรแมกเนติกต่ำด้วย (Ahmed, *et al.*, 2020, Wu, *et al.*, 2021)

ด้วยเหตุนี้ นักวิจัยจำนวนมากจึงทำการพัฒนาปรับปรุงวัสดุคอมโพสิตแม่เหล็กเฟอร์โรอิกเพื่อให้ได้สมบัติที่ดีเยี่ยมที่อุณหภูมิห้อง โดยการรวมวัสดุที่มีเฟสเฟอร์โรอิกเล็กทริกที่ตรงกับวัสดุที่มีเฟสเฟอร์โรแมกเนติกที่ดี (Grigalaitis, *et al.*, 2014, Singh, *et al.*, 2020) และเป็นที่น่าทึ่งที่พบว่าประสิทธิภาพของสมบัติแม่เหล็กเฟอร์โรอิกเล็กทริกที่ดีของวัสดุคอมโพสิตแม่เหล็กเฟอร์โรอิกที่ปราศจากสารตะกั่ว นั้นขึ้นอยู่กับสมบัติของแต่ละเฟสวัสดุ (เฟสเฟอร์โรอิกเล็กทริก และ เฟสเฟอร์โรแมกเนติก) เทคนิคการสังเคราะห์ และการเชื่อมต่อต่างๆ สำหรับวัสดุแม่เหล็กเฟอร์โรอิกเล็กทริกคอมโพสิตที่มีสมบัติที่ดีส่วนใหญ่พบในวัสดุที่มีตะกั่วเป็น



ส่วนประกอบ เช่น NiFe_2O_4 (NFO)- $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3$ (PZT) (Xu, *et al.*, 2018), CoFe_2O_4 (CFO)-PZT (Pradhan, *et al.*, 2018), $\text{Tb}_{1-x}\text{Dy}_x\text{Fe}_2$ (Terfenol-D)-PZT (Shi, *et al.*, 2005), NFO-Pb($\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}$) O_3 - PbTiO_3 (PMN-PT) (Ryu, *et al.*, 2002), $\text{Ni}_{0.8}\text{Zn}_{0.2}\text{Fe}_2\text{O}_4$ -PZT (Islam, *et al.*, 2008), $\text{Co}_{0.6}\text{Zn}_{0.4}\text{Mn}_2\text{O}_4$ -PZT (Srinivasan, *et al.*, 2003) ฯลฯ อย่างไรก็ตามเซรามิกที่มีตะกั่วก่อให้เกิดมลพิษอย่างมากและนำไปสู่ปัญหาสิ่งแวดล้อม อันเนื่องมาจากความเป็นพิษสูงของตะกั่วออกไซด์ ด้วยเหตุจึงมีความจำเป็นอย่างมากในการพัฒนาวัสดุคอมโพสิตที่มีสมบัติแม่เหล็กเฟอร์โรอิเล็กทริกที่ดีและปราศจากตะกั่วเพื่อทดแทนวัสดุที่มีตะกั่ว ดังนั้นจึงมีนักวิจัยจำนวนมากสนใจศึกษาและปรับปรุงสมบัติของเซรามิกเฟอร์โรอิเล็กทริกที่ปราศจากตะกั่ว ในหลายรูปแบบโดยเฉพาะอย่างยิ่งการพัฒนาเซรามิกคอมโพสิตที่ปราศจากตะกั่วในกลุ่มของเซรามิก $\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{TiO}_3$ (BNT), $\text{K}_{0.5}\text{Na}_{0.5}\text{NbO}_3$ (KNN) และ BaTiO_3 (BT) เพื่อนำมาใช้ทดแทนเซรามิกที่มีตะกั่วเป็นองค์ประกอบ

เมื่อไม่นานมานี้ C. Kornphom และคณะ (Kornphom, *et al.* 2021) ได้ทำการปรับปรุงค่าสัมประสิทธิ์โพลาไรเซชัน (d₃₃) ของเซรามิก BNT-BCTS โดยการเจือสาร ($\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055}$)($\text{Ti}_{0.91}\text{Sn}_{0.09}$) O_3 ที่อัตราส่วนการเจืออยู่ระหว่าง $0.03 \leq x \leq 0.09$ และสังเคราะห์ด้วยวิธีเผาไหม้ของแข็ง พบว่าที่ปริมาณการเจือเท่ากับ 0.07 เซรามิกแสดงรอยต่อเฟสร่วม (MPB) ของโครงสร้างเฟสระหว่างรอมโบฮีดรอลกับเทตระโกนอล และแสดงสมบัติทางไฟฟ้าที่ดี โดยมีค่าคงที่โพลาไรเซชัน (d₃₃ ~202 pC/N) สัมประสิทธิ์ค่าสภาพขั้วคงค้างที่ดี ($P_r \sim 32.67 \mu\text{C}/\text{cm}^2$) และมีค่าสนามไฟฟ้าลบล้างที่ต่ำ ($E_c \cong 17.54 \text{ kV}/\text{cm}$) ดังนั้นเซรามิกดังกล่าวจึงมีความเหมาะสมที่เป็นเฟสเฟอร์โรอิเล็กทริกสำหรับการประดิษฐ์เซรามิกแม่เหล็กเฟอร์โรอิเล็กทริกคอมโพสิต ในกรณีของวัสดุเฟอร์โรแมกเนติก (ferromagnetic materials) ที่น่าสนใจได้แก่ $\text{Y}_{2.7}\text{Bi}_{0.3}\text{Fe}_{4.7}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{12}$ เนื่องจาก $\text{Y}_{2.7}\text{Bi}_{0.3}\text{Fe}_{4.7}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{12}$ (YBFMO) เป็นวัสดุแม่เหล็กอีกชนิดที่ได้รับความสนใจและศึกษาอย่างมากในปัจจุบัน เนื่องจาก YBFMO มีลักษณะโครงสร้างแบบการ์เนตและมีค่าแมกนีโตเซชันอิ่มตัว (M_s) ที่สูงประมาณ 18 emu/g และมีค่าสนามแม่เหล็กกลับล้าง (H_c) ต่ำประมาณ 14 Oe (Enayati *et al.*, 2020, Kornphom, *et al.* 2022) ด้วยเหตุนี้วัสดุ YBFMO จึงเหมาะสมสำหรับใช้เป็นเฟสเฟอร์โรแมกเนติกในการนำไปผสมกับวัสดุที่มีเฟสเฟอร์โรอิเล็กทริกที่ดีเพื่อประดิษฐ์เป็นวัสดุแม่เหล็กเฟอร์โรอิเล็กทริกแบบคอมโพสิตที่มีประสิทธิภาพสูง นอกจากนี้พบว่าเซรามิกคอมโพสิต $0.93(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{TiO}_3 - 0.07(\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055})(\text{Ti}_{0.91}\text{Sn}_{0.09})\text{O}_3 : \text{Y}_{2.7}\text{Bi}_{0.3}\text{Fe}_{4.7}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{12}$ ไม่มีผู้ทำการศึกษาวิจัย

ดังนั้น งานวิจัยนี้มีมุ่งเน้นการเตรียมเซรามิกคอมโพสิตที่มีสมบัติแม่เหล็กเฟอร์โรอิเล็กทริกของ $0.93(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{TiO}_3 - 0.07(\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055})(\text{Ti}_{0.91}\text{Sn}_{0.09})\text{O}_3 : \text{Y}_{2.7}\text{Bi}_{0.3}\text{Fe}_{4.7}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{12}$ (BNT-BCTS: YBFMO) ที่ปริมาณต่างๆ ด้วยวิธีการเผาไหม้ของแข็ง และศึกษาโครงสร้างผลึก โครงสร้างจุลภาค สมบัติทางไฟฟ้า และสมบัติทางแม่เหล็กของเซรามิก คอมโพสิตที่เตรียมได้

วิธีดำเนินการวิจัย

การบวกรวมเตรียมเซรามิกคอมโพสิต $0.93(\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5})\text{TiO}_3 - 0.07(\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055})(\text{Ti}_{0.91}\text{Sn}_{0.09})\text{O}_3 : \text{Y}_{2.7}\text{Bi}_{0.3}\text{Fe}_{4.7}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{12}$ (BNT-BCTS: YBFMO) ที่อัตราส่วนต่างๆ ด้วยวิธีการเผาไหม้ของแข็ง สารตั้งต้นที่ใช้ในการเตรียม ได้แก่ การเตรียมเซรามิกประกอบด้วย บิสมาทไนเตรต ($\text{Bi}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$) ความบริสุทธิ์ 98.8% โซเดียมไนเตรต (NaNO_3) ความบริสุทธิ์ 99.8% ไททานเนียมออกไซด์ (TiO_2) ความบริสุทธิ์ 98% แบเรียมไนเตรต ($\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$) ความบริสุทธิ์ 99% แคลเซียมคาร์บอเนต

(CaCO₃) ความบริสุทธิ์ 99% ทินออกไซด์ (SnO₂) ความบริสุทธิ์ 99% ไกลซีน (C₂H₅NO₂) ความบริสุทธิ์ 95% อิตเทรียมออกไซด์ (Y₂O₃) ความบริสุทธิ์ 99% เหล็ก (III) ออกไซด์ (Fe₂O₃) ความบริสุทธิ์ 99% และ แมงกานีส (IV) ออกไซด์ (MnO₂) ความบริสุทธิ์ 99% โดยการเตรียมเซรามิกคอมโพสิต BNT-BCTS: YBFMO แบ่งออกเป็นสามส่วนได้แก่

ส่วนที่ 1 การสังเคราะห์ผงผลึก BNT-BCTS ด้วยวิธีการเผาไหม้ของแข็ง นำสารตั้งต้นตามสมการเคมีทำการชั่งตามอัตราส่วนโดยมวลที่ได้จากการคำนวณปริมาณสารสัมพันธ์ จากนั้นนำไปบดย่อยแบบลูกบดเป็นเวลา 24 ชั่วโมง หลังจากนั้นทำการแยกเอาเอทานอลออกโดยใช้เครื่องกวนสารละลายพร้อมให้ความร้อน (Hot plat) ที่อุณหภูมิ 80°C นำสารที่ผ่านแห้งแล้วมาทำการบดอย่างหยาบโดยใช้ครกหยก (Agate) เพื่อคัดขนาดและเพื่อให้ได้ผงผลึกที่มีขนาดที่สม่ำเสมอ มาบดผสมไกลซีน โดยใช้อัตราส่วน 1:0.39 โดยน้ำหนักนำไปแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 650°C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง อัตราการขึ้นลงของอุณหภูมิ 5°C/min (Kornphom, *et al.* 2021)

ส่วนที่ 2 การสังเคราะห์ผงผลึก Y_{2.7}Bi_{0.3}Fe_{4.7}Mn_{0.3}O₁₂ (YBFM) ด้วยวิธีการเผาไหม้ของแข็ง นำสารตั้งต้นตามสมการเคมีทำการชั่งตามอัตราส่วนโดยมวลที่ได้จากการคำนวณปริมาณสารสัมพันธ์ จากนั้นนำไปบดย่อยแบบลูกบดเป็นเวลา 24 ชั่วโมง หลังจากนั้นทำการแยกเอาเอทานอลออกโดยใช้เครื่องกวนสารละลายพร้อมให้ความร้อน (Hot plat) ที่อุณหภูมิ 80°C นำสารที่ผ่านแห้งแล้วมาทำการบดอย่างหยาบโดยใช้ครกหยก (Agate) เพื่อคัดขนาดและเพื่อให้ได้ผงผลึกที่มีขนาดที่สม่ำเสมอ มาบดผสมไกลซีน โดยใช้อัตราส่วน 1:2 โดยน้ำหนักนำไปแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 950°C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง อัตราการขึ้นลงของอุณหภูมิ 5°C/min (Kornphom, *et al.* 2022)

ส่วนที่ 3 การเตรียมเซรามิก (Bi_{0.5}Na_{0.5})TiO₃ - (Ba_{0.945}Ca_{0.055})(Ti_{0.91}Sn_{0.09})O₃:Y_{2.7}Bi_{0.3}Fe_{4.7}Mn_{0.3}O₁₂ (BNT-BCTS: YBFMO) ที่อัตราส่วนต่างๆ โดยนำผงผลึกที่ได้จากส่วนที่ 1 และ 2 ที่อัตราส่วน 9:1, 8:2, 7:3, 6:4, 5:5, 4:6 และ 3:7 โดยน้ำหนักนำไปผสม PVA ลงไปเป็นปริมาณร้อยละ 5 โดยน้ำหนัก และบดย่อยแบบลูกบดเป็นเวลา 12 ชั่วโมง หลังจากนั้นทำการแยกเอาเอทานอลออกโดยใช้เครื่องกวนสารละลายพร้อมให้ความร้อน (Hot plat) ที่อุณหภูมิ 80°C นำสารที่ผ่านแห้งแล้วมาทำการบดอย่างหยาบโดยใช้ครกหยก (Agate) เพื่อคัดขนาด นำผงที่ได้ทำการอัดขึ้นรูปให้เป็นรูปเหรียญทรงกระบอกโดยใช้แม่พิมพ์โลหะที่มีขนาดเส้นผ่านศูนย์กลาง 1.5 cm โดยใช้ผงผลึก 1.3 g ในการอัดขึ้นรูปหนึ่งครั้งต่อหนึ่งอัตราส่วนของสาร โดยใช้ค่าความดันในการอัดขึ้นรูป 80 MPa ทำเผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิระหว่าง 1100°C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง โดยอัตราการขึ้นลงของอุณหภูมิเป็น 5 °C/min

จากนั้น นำเซรามิกที่ผ่านการเผาซินเตอร์ในทุกอัตราส่วนไปวิเคราะห์โครงสร้างผลึกด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ (XRD, X'pert MPD 3040, Philips, Netherland) วิเคราะห์โครงสร้างจุลภาคด้วยกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด (Scanning electron microscope; SEM, Leo 1455VP) และศึกษาสมบัติไดอิเล็กทริกที่อุณหภูมิห้องที่ความถี่ 1 kHz ด้วยเครื่อง LCR (HP, 4284 A) วิเคราะห์สมบัติเฟอร์โรอิเล็กทริกที่อุณหภูมิห้องโดยใช้สนามไฟฟ้า 50 kV ด้วยเครื่อง computer controlled modified Sawyer-Tower circuit (Radiant, PLC2-1014346) วิเคราะห์สมบัติทางแม่เหล็กที่อุณหภูมิห้องด้วยเครื่องวัดสมบัติแม่เหล็กแบบสั่นตัวอย่าง (Vibrating sample magnetometer; VSM, LakeShore Model 7404)

ผลการวิจัย

การวิเคราะห์โครงสร้างผลึกของเซรามิกคอมโพสิต ($\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}$)_{0.94}($\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055}$)_{0.06}($\text{Ti}_{(0.9946)}\text{Sn}_{0.0054}$) O_3 (BNT-BCTS) ที่ผสมด้วยสาร $\text{Y}_{2.7}\text{Bi}_{0.3}\text{Fe}_{4.7}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{12}$ (YBFM) ที่อัตราส่วน BNT-BCTS:YBFM เป็น 9:1, 8:2, 7:3, 6:4, 5:5, 4:6 และ 3:7 เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1100°C เป็นเวลา 2 โดยเทคนิคการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์ (XRD) พิจารณาที่มุม 2 θ ระหว่าง 10° ถึง 60° พบว่าเซรามิกคอมโพสิตดังกล่าวแสดงโครงสร้างเฟสเพอโรฟสไกต์แบบเฟสร่วมของรอมโบอิดรอล (Rhombohedral) สอดคล้องกับฐานข้อมูลมาตรฐาน JCPDS NO. 360340 ของสาร ($\text{Bi}_{0.5}\text{Na}_{0.5}$) TiO_3 โดยแสดงความสัมพันธ์ของระนาบการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์กับมุม 2 θ ได้แก่ (101) (012) (110) (003) (021) (113) (211) (104) (122) ที่มุม 2 θ เท่ากับ 22.78° 32.41° 32.65° 39.85° 40.22° 46.66° 52.45° 52.78° 57.75° 58.19° ตามลำดับ และโครงสร้างเทตะโกนอล (Tetragonal) สอดคล้องกับฐานข้อมูลมาตรฐาน JCPDS NO. 030725 ของสาร BaTiO_3 โดยแสดงความสัมพันธ์ของระนาบการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์กับมุม 2 θ ได้แก่ (001) (101) (111) (002) (200) (102) (201) (112) (211) ที่มุม 2 θ เท่ากับ 22.26° 31.58° 31.65° 38.95° 44.83° 45.30° 50.67° 50.97° 56.02° 56.40° ตามลำดับ ดังแสดงใน Figure 1 ซึ่งเป็นลักษณะของโครงสร้างของเซรามิก BNT-BCTS (Kornphom, *et al.* 2021) นอกจากนี้รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์แสดงลักษณะของโครงสร้างเฟสแบบการ์เน็ต (Garnet) สอดคล้องกับฐานข้อมูล JCPDS NO. 712150 ของสาร $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ โดยแสดงความสัมพันธ์ของระนาบการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์กับมุม 2 θ ได้แก่ (321) (400) (420) (332) (201) (422) (431) (521) (440) (611) (620) (541) (631) (543) (640) (552) (642) (651) (800) ที่มุม 2 θ เท่ากับ 26.93° 28.83° 32.32° 33.94° 35.50° 37.01° 39.86° 41.23° 45.12° 46.36° 47.57° 49.94° 51.09° 52.22° 53.33° 54.43° 55.52° 58.69° 59.72° ตามลำดับ ซึ่งเป็นลักษณะของโครงสร้างผลึกของเซรามิก YBFM (Kornphom, *et al.* 2022) ดังแสดงใน Figure 1 จากการวิเคราะห์รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของเซรามิกคอมโพสิต ใน Figure 1 สามารถยืนยันได้ว่าเซรามิกที่อัตราส่วนต่างๆ เป็นวัสดุผสม เนื่องจากแสดงรูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของโครงสร้างของเซรามิก BNT-BCTS และ กับ YBFM แยกตัวออกจากกันชัดเจน

อย่างไรก็ตามระนาบการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์ของเซรามิกคอมโพสิตที่อัตราส่วนต่างๆ เมื่อเทียบกับระนาบของฐานข้อมูลมาตรฐาน JCPDS พบว่าพีคของระนาบที่มุม 2 θ บางระนาบ มีความคาบเคลื่อนไม่ตรงกับฐานข้อมูลมาตรฐาน JCPDS เนื่องจากสารที่สังเคราะห์ในการทดลอง ได้แก่ ($\text{Ba}_{0.945}\text{Ca}_{0.055}$)_{0.06}($\text{Ti}_{(0.9946)}\text{Sn}_{0.0054}$) O_3 (BCTS) และ $\text{Y}_{2.7}\text{Bi}_{0.3}\text{Fe}_{4.7}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{12}$ (YBFM) เป็นสารที่มีการเติมธาตุบางชนิดแทนที่ในบางตำแหน่งของโครงสร้างผลึกของสาร BaTiO_3 และ $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ตามลำดับ ซึ่งธาตุที่เติมมีขนาดรัศมีไอออนที่แตกต่างจากธาตุในตำแหน่งเดิม ส่งผลให้เกิดการบิดเบี้ยวของแลตทิซในโครงสร้างผลึกของสารชนิดนั้นๆ พิจารณาได้จากสาร YBFM ซึ่งมีการเติม Bi รัศมีไอออนเท่ากับ 1.230 Å เข้าไปในตำแหน่งของ Y รัศมีไอออนเท่ากับ 1.017 Å และเติม Mn รัศมีไอออนเท่ากับ 0.67 Å เข้าไปในตำแหน่งของ Fe รัศมีไอออนเท่ากับ 0.64 Å ของโครงสร้างผลึกของสาร $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ ตามอัตราส่วนที่กำหนด (Enayati, *et al.* 2022) โดยที่สาร YBFM ยังคงแสดงโครงสร้างเฟสแบบการ์เน็ตเช่นเดียวกับสาร $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (Enayati, *et al.* 2022, Kornphom, *et al.* 2022) แต่ระนาบการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์ที่เกิดขึ้นของสาร YBFM มีมุม 2 θ ที่คาบเคลื่อนไปจากสาร $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ เมื่อนำมาเทียบลักษณะโครงสร้างจากข้อมูลมาตรฐาน JCPDS NO. 712150 สำหรับสาร BCTS มีลักษณะโครงสร้างผลึกเช่นเดียวกับสาร BaTiO_3 แต่ระนาบการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์ที่มุม 2 θ คาบเคลื่อนเมื่อเทียบกับข้อมูลมาตรฐาน JCPDS NO. 030725 เช่นกัน

เมื่อพิจารณาค่าความเข้มของการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ โดยวิเคราะห์จากข้อมูลพีคกราฟการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ทั้งหมดของโครงสร้างเพอโรฟสไกต์ และพีคกราฟทั้งหมดของโครงสร้างการ์เนตใน Figure 1 พบว่าค่าความเข้มของระนาบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของโครงสร้างเพอโรฟสไกต์มีค่าลดลง ในขณะที่ค่าความเข้มของระนาบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของโครงสร้างการ์เนตมีค่าสูงขึ้น ดังแสดงใน Figure 2 ซึ่งค่าความเข้มที่เปลี่ยนแปลงสอดคล้องกับการเปลี่ยนแปลงปริมาณอัตราส่วนของเซรามิก BNT-BCTS กับเซรามิก YBFM เมื่อปริมาณเซรามิก YBFM สูงขึ้นค่าความเข้มการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของโครงสร้างการ์เนตมีปริมาณสูงขึ้น และค่าความเข้มการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของโครงสร้างเพอโรฟสไกต์ลดลง เนื่องจากปริมาณสาร BNT-BCTS ลดลง

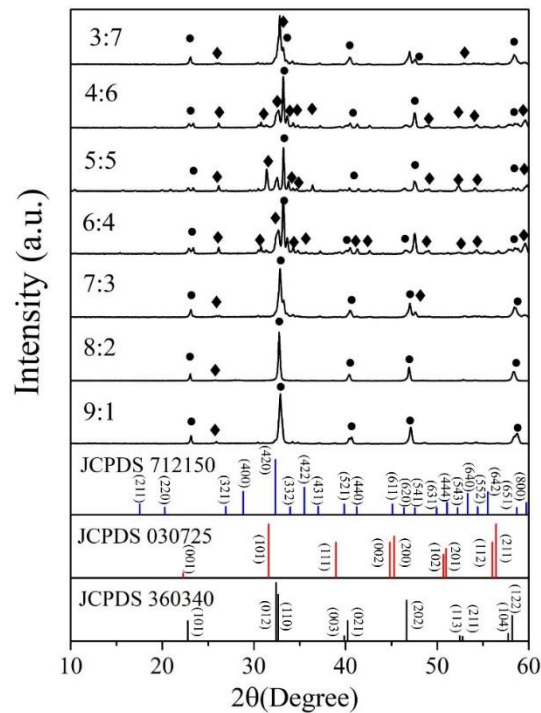


Figure 1 XRD pattern at 2θ between 10 and 60° of BNT-BCTS ceramics with various ratios of YBFM content as;
 (●) perovskite structure and (◆) garnet structure.

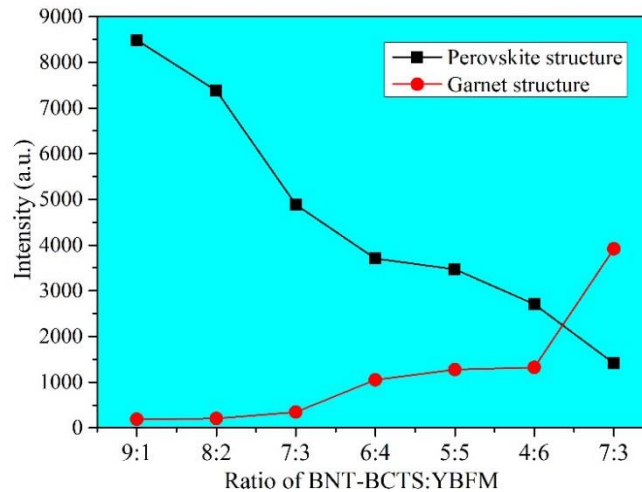


Figure 2 X-ray intensity of the perovskite structure and the garnet structure of BNT-BCTS with various ratios of YBFM content

การศึกษาโครงสร้างจุลภาคด้วยกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด (SEM) ของเซรามิก BNT-BCTS ผสมด้วยสาร YBFM ที่อัตราส่วนต่างๆ ภายหลังจากขัดผิวเซรามิกและกัดผิวด้วยความร้อน ดังแสดงใน Figure 3 (a) – (g) ซึ่งพบว่าเกรนของเซรามิกในทุกตัวอย่างมีลักษณะเป็นรูปหลายเหลี่ยม (polygonal grain) และมีการผลึกตัวที่ดีในทุกตัวอย่าง เมื่อพิจารณาเซรามิกที่ผสมด้วยสาร YBFM อัตราส่วน 9:1 และ 3:7 พบว่าเกรนเซรามิกประกอบด้วยเกรนที่มีขนาดใหญ่และเกรนขนาดเล็กผสมกันในทุกตัวอย่าง โดยเกรนขนาดเล็กแทรกตัวอยู่บริเวณขอบเกรนของเกรนขนาดใหญ่ โดยที่ปริมาณสาร YBFM มากขึ้นเห็นได้ว่าเกรนขนาดเล็กที่แทรกตัวอยู่มีปริมาณมากขึ้น ดังแสดงใน Figure 3 (a) – (g) ซึ่งสันนิษฐานว่าเป็นการผืนตัวแยกกันของเซรามิก BNC-BCTS ที่เป็นเกรนขนาดใหญ่ กับเกรนขนาดเล็กของเซรามิก YBFM จากการหาขนาดเฉลี่ยของเกรนเซรามิกพบว่าเมื่อปริมาณอัตราส่วนของสารผสม YBFM มากขึ้น ดังแสดงใน Table 1

การวิเคราะห์ค่าความหนาแน่นของเซรามิก BNT-BCTS ที่ผสมด้วยสาร YBFM ที่อัตราส่วนต่างๆ พบว่าความหนาแน่นมีค่าเพิ่มขึ้นจาก 5.75 g.cm^{-3} เป็น 5.96 g.cm^{-3} เมื่อปริมาณสารผสมของ YBFM เพิ่มขึ้น การเพิ่มขึ้นของค่าความหนาแน่นอาจเป็นผลจากสาร YBFM มีค่าความหนาแน่นสูง (Jiaqian *et al.*, 2011, Enayati *et al.*, 2020) ดังนั้นเมื่อปริมาณการเติมสาร YBFM ผสมเข้าไปในเซรามิก BNT-BCTS มากขึ้น ทำให้ค่าความหนาแน่นของเซรามิกผสมมีค่าความหนาแน่นสูงตามปริมาณการเติมสาร YBFM ดังแสดงใน Table 1

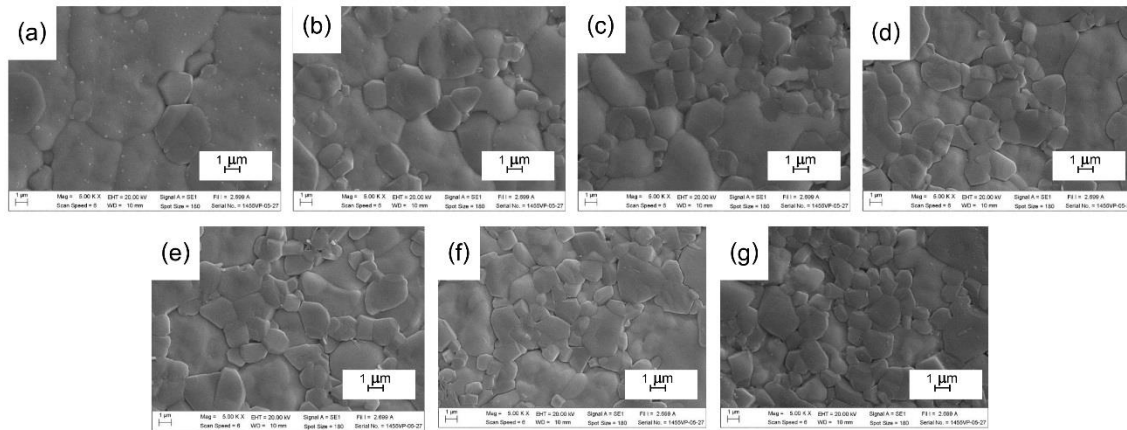


Figure 3 SEM image of BNT-BCTS with various ratios of YBFM content as;
 (a) 9:1 (b) 8:2 (c) 7:3 (d) 6:4 (e) 5:5 (f) 4:6 (g) 3:7.

Table 1 Average grain size and measured density of BNT-BCTS with various ratios of YBFM content

Ratios of BNT- BCTS:YBFM	Average grain size (μm)	Measured density (g/cm^3)
9:1	6.02 ± 3.17	5.75
8:2	4.85 ± 1.72	5.78
7:3	2.45 ± 0.79	5.82
6:4	1.86 ± 0.58	5.87
5:5	2.15 ± 0.76	5.91
4:6	1.91 ± 0.74	5.94
3:7	1.82 ± 0.41	5.96

การศึกษาสมบัติไดอิเล็กทริกที่อุณหภูมิห้องของเซรามิก BNT-BCTS ที่ผสมด้วยสาร YBFM ที่อัตราส่วนต่างๆ โดยการวิเคราะห์ที่ความถี่ 1 kHz แสดงใน Table 2 พบว่าเซรามิกมีค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ϵ_r) ลดลง จาก 290.77 ถึง 58.96 ขณะที่ค่าสภาพการสูญเสียไดอิเล็กทริก ($\tan\delta_r$) มีค่าสูงขึ้นจาก 0.0631 ถึง 0.2012 เมื่อปริมาณอัตราส่วนของสาร YBFM มีค่าสูงขึ้น ซึ่งแสดงให้เห็นว่าเซรามิกมีสภาพนำไฟฟ้าสูงขึ้น เนื่องจากเซรามิก YBFM มีค่าการนำไฟฟ้าที่สูง

การวิเคราะห์สมบัติเพอร์โรอิเล็กทริกจากวงวนฮีสเทอรีซิส (P-E loops) ที่อุณหภูมิห้องของเซรามิก BNT-BCTS ที่ผสมด้วยเซรามิก YBFM ที่อัตราส่วนต่างๆ โดยการตรวจวัดที่ 50 kV/cm แสดงใน Figure 4 พบว่าวงฮีสเทอรีซิสแสดงวงที่



ไม่อ้อมตัวในทุกตัวอย่าง โดยที่ปริมาณอัตราส่วนของสาร YBFM ระหว่าง 9:1 พบว่าลักษณะวง P-E loops มีลักษณะที่บางมาก และเมื่อปริมาณเซรามิก YBFM มากขึ้น ลักษณะวง P-E loops มีลักษณะที่ขยายกว้างมากขึ้นอย่างเห็นได้ชัด จากการวิเคราะห์ค่าสภาพขั้วอ้อมตัว (situated polarization; P_s) ค่าสภาพขั้วคงค้าง (remnant polarization; P_r) และค่าสนามไฟฟ้าลบล้าง (coercive field; E_c) พบว่าเซรามิกมีค่า P_s อยู่ระหว่าง 1.72 ถึง 5.97 $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ สำหรับค่า P_r และ E_c มีค่าเพิ่มขึ้น เมื่ออัตราส่วนปริมาณสาร YBFM เพิ่มขึ้นจาก 9:1 เป็น 7:3 ดังแสดงใน Table 2 อย่างไรก็ตามค่า P_r ของตัวอย่างเซรามิกที่อัตราส่วน 5:5, 4:6, และ 3:7 มีค่ามากกว่าค่า P_s ดังแสดงใน Table 2 อีกทั้งวงวน P-E loops ของอัตราส่วนดังกล่าวกว้างและขยายเป็นอย่างมาก ซึ่งสันนิษฐานว่าเกิดจากการรั่วไหลของกระแสไฟฟ้า (leakage current) เกิดขึ้น เนื่องจากปริมาณอัตราส่วนของเซรามิก YBFM มากส่งผลให้เซรามิกมีสภาพการนำไฟฟ้าที่สูงขึ้น ซึ่งสอดคล้องกับสมบัติไดอิเล็กทริก

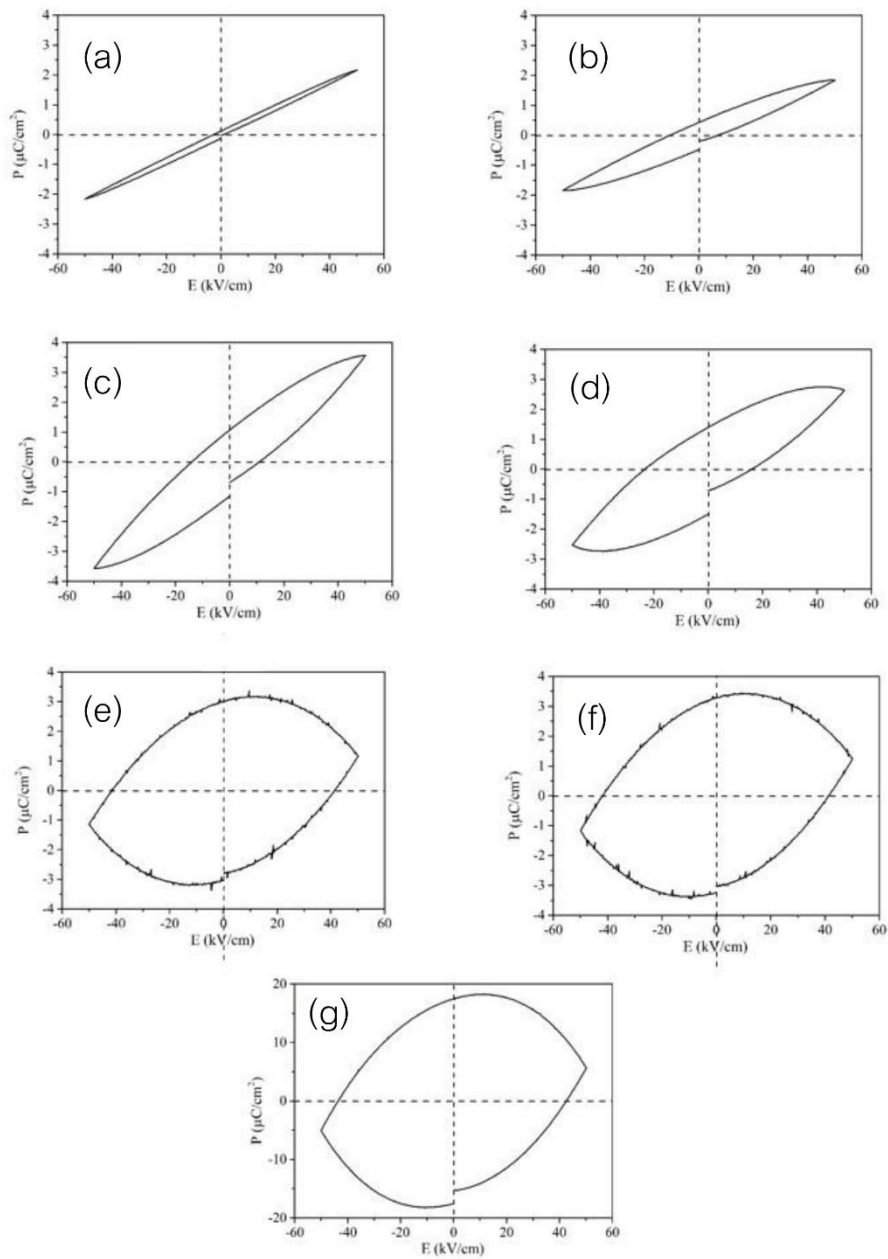


Figure 4 P-E loops of BNT-BCTS with various ratios of YBFM content as;

(a) 9:1 (b) 8:2 (c) 7:3 (d) 6:4 (e) 5:5 (f) 4:6 (g) 3:7.



Table 2 Dielectric properties and ferroelectric properties at room temperature of BNT-BCTS with various ratios of YBFM content

Ratios of BNT- BCTS:YBFM	ϵ_r	$\tan\delta_r$	P_s ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	P_r ($\mu\text{C}/\text{cm}^2$)	E_c (kV/cm)
9:1	290.77	0.0631	2.04	0.12	8.04
8:2	265.34	0.0823	1.97	0.42	12.77
7:3	221.88	0.0920	3.14	1.06	18.54
6:4	135.19	0.0946	2.97	1.40	22.97
5:5	99.45	0.0958	1.65	3.01	41.67
4:6	75.18	0.1275	1.72	3.28	42.55
3:7	58.96	0.2012	5.97	17.18	44.15

การวิเคราะห์สมบัติแม่เหล็กของของเซรามิก BNT-BCTS ที่ผสมด้วยสาร YBFM ที่อัตราส่วนต่างๆ ด้วยเครื่องวัดสมบัติแม่เหล็กแบบสั่นตัวอย่าง (Vibrating sample magnetometer; VSM) โดยตรวจวัดที่อุณหภูมิ 27°C ภายใต้สนามแม่เหล็กที่ -10,000 ถึง 10,000 Oe ดังแสดงใน Figure 5 (a)-(g) แสดงลักษณะวง $M-H$ ฮีสเทอรีซิส ที่แสดงความสัมพันธ์ระหว่างสภาพการเหนี่ยวนำแม่เหล็กไฟฟ้ากับสนามแม่เหล็ก จากภาพพบว่าเซรามิกคอมโพสิตแสดงสมบัติแม่เหล็กแบบเฟอร์โรแมกเนติกในทุกตัวอย่าง เมื่อพิจารณาลักษณะกราฟ $M-H$ ฮีสเทอรีซิส พบว่ามีความกว้างมากขึ้นเมื่ออัตราส่วนของสาร YBFM สูงขึ้น สำหรับการวิเคราะห์ค่าแม่เหล็กอิ่มตัว (Saturated magnetic; M_s) ค่าแม่เหล็กคงค้าง (Remnant magnetic; M_r) และค่าสนามแม่เหล็กกลับล้าง (Magnetic coercive field; H_c) ของเซรามิกดังกล่าวแสดงใน Table 3 พบว่าค่า M_s , M_r และ H_c มีค่าเพิ่มขึ้นเมื่อปริมาณอัตราส่วนของ YBFM เพิ่มขึ้น

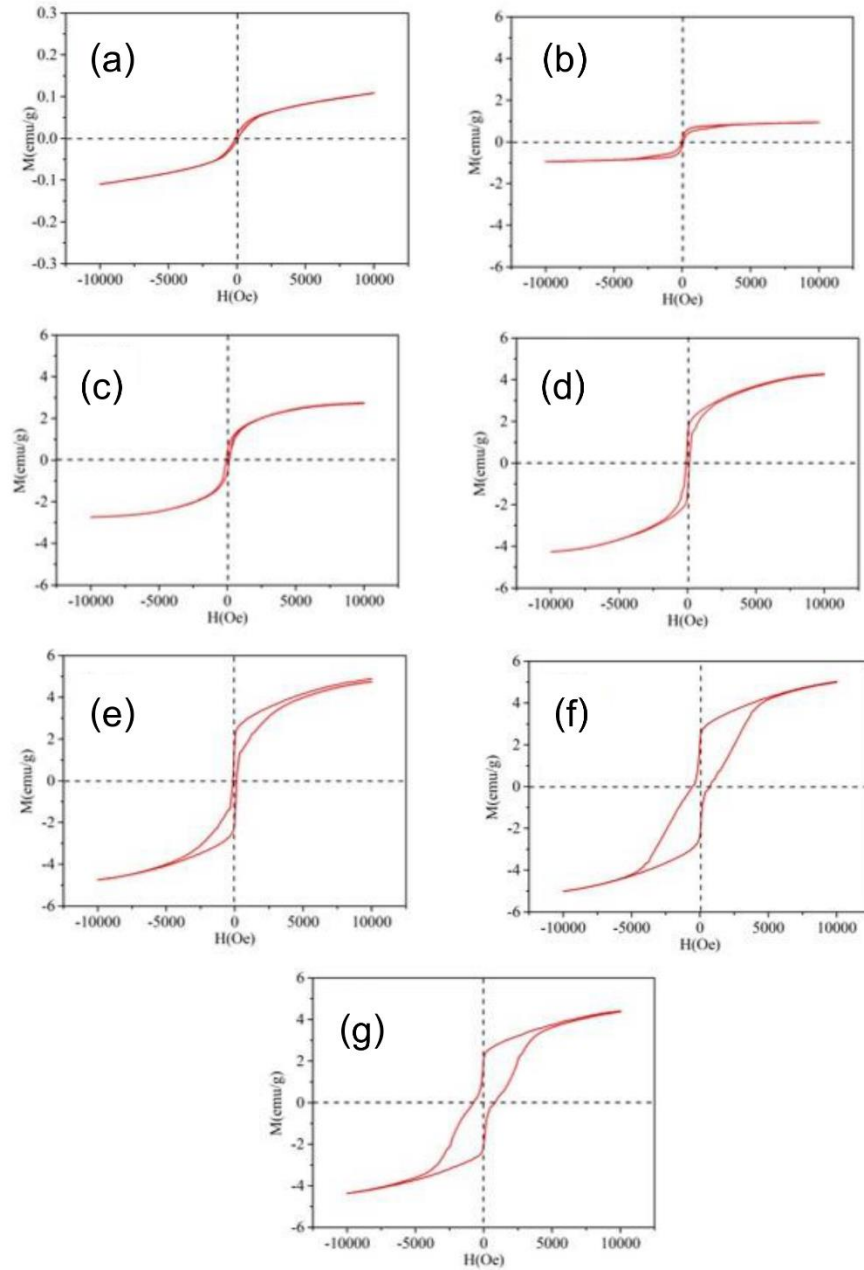


Figure 5 M-S loops of BNT-BCTS with various ratios of YBFM content as;
(a) 9:1 (b) 8:2 (c) 7:3 (d) 6:4 (e) 5:5 (f) 4:6 (g) 3:7.



Table 3 Magnetic properties of BNT-BCTS with various ratios of YBFM content with measuring at 27°C

Ratios of BNT-BCTS:YBFM	M_s (emu/g)	M_r (emu/g)	H_c (Oe)
9:1	0.12	0.003	61.25
8:2	0.94	0.061	78.29
7:3	2.74	0.28	83.95
6:4	4.25	1.15	103.98
5:5	4.35	1.23	172.29
4:6	4.74	2.14	190.98
3:7	5.01	2.28	249.19

วิจารณ์ผลการวิจัย

การเตรียมเซรามิกคอมโพสิตของ $(Bi_{0.5}Na_{0.5})_{0.94}(Ba_{0.945}Ca_{0.055})_{0.06}(Ti_{(0.9946)}Sn_{0.0054})O_3$ (BNT-BCTS) ที่ผสมสาร $Y_{2.7}Bi_{0.3}Fe_{4.7}Mn_{0.3}O_{12}$ (YBFM) ในอัตราส่วนของ BNT-BCTS:YBFM เป็น 9:1, 8:2, 7:3, 6:4, 5:5, 4:6 และ 3:7 โดยน้ำหนัก ด้วยวิธีการเผาไหม้ของแข็ง และใช้โกลด์ซินเป็นเชื้อเพลิง เซรามิกแสดงลักษณะโครงสร้างเฟสที่ผสมกันของโครงสร้างเฟสเพอโรฟไทต์กับโครงสร้างเฟสแบบการ์เนต โดยลักษณะโครงสร้างผลึกของ BNT-BCTS และ YBFM แยกกันชัดเจนและมีค่าความเข้มของพีคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของเฟสการ์เนตมากขึ้นเมื่ออัตราส่วนของ YBFM สูงขึ้น การลดลงของขนาดเกรนเซรามิกสันนิษฐานว่าปริมาณของอัตราส่วน YBFM ที่มากขึ้น ก่อให้เกิดเกรนขนาดเล็กบริเวณขอบเกรนเซรามิกที่มีขนาดใหญ่มากขึ้น ส่งผลให้ยับยั้งการโตของเกรนทำให้เกรนที่มีขนาดใหญ่ไม่สามารถโตขึ้นได้ ซึ่งมีลักษณะคล้ายกับงานวิจัยในอดีต (Kornphom *et al.*, 2023) สำหรับการเพิ่มขึ้นของค่าความหนาแน่นของเซรามิกเมื่ออัตราส่วนของ YBFM มากขึ้น เนื่องจาก YBFM มีค่าความหนาแน่นสูง นอกจากนี้การเพิ่มปริมาณอัตราส่วนของ YBFM มากขึ้นทำให้ค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (ϵ_r) ลดลงขณะที่ค่าสภาพการสูญเสียไดอิเล็กทริก ($\tan\delta_r$) มีค่าสูงขึ้น เนื่องจาก YBFM มีค่าความนำไฟฟ้าสูง (conductivity) ทำให้เซรามิกมีค่าสภาพนำไฟฟ้าที่เพิ่มขึ้น เมื่อปริมาณ YBFM มากขึ้น นำไปสู่การขยายที่กว้างขึ้นของวงวนฮีสเทอรีซิส (P-E loops) เนื่องจากการเกิดกระแสรั่วไหลมากขึ้น กระแสรั่วไหลเป็นพารามิเตอร์สำคัญที่อาจส่งผลกระทบต่อประสิทธิภาพของเซรามิกทั้งในด้านการทนต่อสนามไฟฟ้าภายนอก และมีผลต่อสภาพไดอิเล็กทริกของเซรามิก สำหรับค่าแมกนีโตเซชันอิ่มตัว (M_s) ค่าค่าแมกนีโตเซชันคงค้าง (M_r) และค่าสนามแม่เหล็กกลับล้าง (H_c) ของเซรามิกมีค่าเพิ่มขึ้น เนื่องจาก



เซรามิกมีปริมาณของเฟสที่มีสมบัติแม่เหล็กเพิ่มขึ้น กล่าวคือปริมาณของ YBFM เพิ่มขึ้น ซึ่งสอดคล้องกับผลการวิเคราะห์โครงสร้างผลึกด้วย XRD และมีลักษณะคล้ายกับงานวิจัยในอดีตที่ศึกษาผลของการเติมสาร Mg_2FeO_4 ในเซรามิก BNT-BCTS (Komphom *et al.*, 2023) นอกจากนี้ขนาดเกรนที่มีขนาดเล็กส่งผลต่อการเพิ่มขึ้นของค่า H_c เนื่องจากเซรามิกที่มีขนาดเกรนเล็กมีค่าแมกเนติกแอนไอโซโทรปีสูง ซึ่งส่งผลต่อการปรับทิศทางของโมเมนต์แม่เหล็กเพื่อตอบสนองต่อสนามแม่เหล็กภายนอกได้ยากขึ้น (Devi, N. K. *et al.*, 2022)

ดังนั้นเซรามิกคอมโพสิตของ BNT-BCTS: YBFM แสดงสมบัติคู่ควมระหว่างเฟอร์โรอิเล็กทริกกับเฟอร์โรแมกเนติกในทุกอัตราส่วนซึ่งเป็นลักษณะที่สำคัญของวัสดุแม่เหล็กเฟอร์โรอิก จากผลการวิเคราะห์ P-E loops พบว่าอัตราส่วน 6:4 เป็นอัตราส่วนที่แสดงสมบัติเฟอร์โรอิเล็กทริกที่ดีที่สุดโดยมีค่า P_s และ P_r สูง เมื่อเทียบกับอัตราส่วน 9:1, 8:2, 7:3 ซึ่งแสดงวง P-E loops ที่ไม่มีกระแสรั่วไหล อย่างไรก็ตามที่อัตราส่วน 5:5 ถึง 3:7 เซรามิกมีการรั่วไหลของกระแสไฟฟ้ามากขึ้น สังเกตได้จากความกว้างของวง P-E loops ที่กว้างมากขึ้นอย่างเห็นได้ชัด ส่งผลให้อัตราส่วนในช่วงดังกล่าวแสดงสมบัติเฟอร์โรอิเล็กทริกที่ไม่เหมาะสมสำหรับงานวิจัยนี้ไม่สามารถยืนยันว่าอัตราส่วนของเซรามิกคอมโพสิตใดมีสมบัติแม่เหล็กเฟอร์โรอิกที่ดีที่สุด จึงควรศึกษาค่าสัมประสิทธิ์แมกเนโตอิเล็กทริกของเซรามิกที่อัตราส่วน 9:1, 8:2, 7:3 และ 6:4 เพิ่มเติมในอนาคต เนื่องจากอัตราส่วน 5:5 ถึง 3:7 แสดงสมบัติเฟอร์โรอิเล็กทริกที่ไม่ดีมีการรั่วไหลของกระแสไฟฟ้าสูง

สรุปผลการวิจัย

สรุปผลการเตรียมเซรามิกคอมโพสิตของ $(Bi_{0.5}Na_{0.5})_{0.94}(Ba_{0.945}Ca_{0.055})_{0.06}(Ti_{0.9946}Sn_{0.0054})O_3$ (BNT-BCTS) ผสมด้วย $Y_{2.7}Bi_{0.3}Fe_{4.7}Mn_{0.3}O_{12}$ (YBFM) ที่อัตราส่วน BNT-BCTS:YBFM เป็น 9:1, 8:2, 7:3, 6:4, 5:5, 4:6 และ 3:7 โดยน้ำหนัก ด้วยวิธีการเผาไหม้ของแข็ง เซรามิกแสดงโครงสร้างเฟสเพอโรฟสไกต์แบบเฟสร่วมของรอมโบฮีดรอลและเททราโงนอลผสมกับโครงสร้างแบบโกเมน โครงสร้างเฟสทั้งสองแยกจากกันอย่างชัดเจนในทุกตัวอย่าง เมื่อปริมาณอัตราส่วนของ YBFM เพิ่มขึ้นค่าความหนาแน่นมีค่าสูงขึ้น ขณะที่ขนาดเกรนเฉลี่ยมีค่าลดลง การเพิ่มอัตราส่วนของ YBFM ในเซรามิกคอมโพสิตส่งผลให้สมบัติไดอิเล็กทริกลดต่ำลง เนื่องจากมีค่าสภาพนำไฟฟ้ามากขึ้น สำหรับสมบัติเฟอร์โรอิเล็กทริกแสดงวง P-E loops อิ่มตัวและมีการขยายของวงวน P-E loops เมื่ออัตราส่วน YBFM เพิ่มขึ้น เนื่องจากการเกิดกระแสรั่วไหล สำหรับค่า P_s , P_r และ E_c มีค่าเพิ่มขึ้นสอดคล้องกับอัตราส่วนของ YBFM ที่มากขึ้น สำหรับเซรามิกคอมโพสิตทุกอัตราส่วนแสดงสมบัติแม่เหล็กแบบเฟอร์โรแมกเนติกโดยมีค่า M_s , M_r และ H_c ของเซรามิกที่สูงขึ้น เมื่อปริมาณอัตราส่วนของสาร YBFM เพิ่มขึ้น เซรามิกคอมโพสิตของ BNT-BCTS: YBFM แสดงสมบัติคู่ควมระหว่างเฟอร์โรอิเล็กทริกกับเฟอร์โรแมกเนติกซึ่งเป็นลักษณะที่สำคัญของวัสดุแม่เหล็กเฟอร์โรอิก อย่างไรก็ตามปริมาณอัตราส่วน 5:5 ถึง 3:7 เซรามิกมีการรั่วไหลของกระแสไฟฟ้ามาก ซึ่งเป็นช่วงของอัตราส่วนที่ไม่เหมาะสมแต่ไม่สามารถยืนยันได้ว่าอัตราส่วนใดมีค่าดีที่สุด จึงต้องศึกษาในส่วนของคุณสมบัติแมกเนโตอิเล็กทริกเพิ่มเติมในอนาคต

กิตติกรรมประกาศ

งานวิจัยนี้ได้รับทุนอุดหนุนจากกองทุนวิจัยมหาวิทยาลัยราชภัฏเชียงใหม่ ประจำปี 2566 เลขที่สัญญา มรขม.



เอกสารอ้างอิง

- Ahmed, S., Atif, M., Nadeem, M., Ali, Z., Khalid, W. & Khan, M. N. (2020) Impedance spectroscopy and conduction mechanism of ferroelectric rich $\text{PbZr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48}\text{O}_3\text{-CoFe}_2\text{O}_4$ magnetoelectric composite. *Ceram. Int.*, 46, 21090-21096.
- Devi, N. K., Wareppam, B., Singh, L. H. (2022) Sintering temperature dependence on evolving microstructure and magnetic characteristics of cobalt ferrites. *Mater. Today: Proceed*, 68, 196-199.
- Enayati, E., Hashemian, S., & Hakimi, M. (2020) Effect of Bi and Mn doping on the structure and magnetic properties of $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ nanopowders synthesized by mechanochemical milling. *Materials Chemistry and Physics*, 242, 122042.
- Grigalaitis, R., Vijatovič Petrovič, M.M., Bobič, J.D., Dzunuzovic, A., Sobiestianskas, R., Brilingas, A., Stojanovič, B.D. & Banys, J. (2014) Dielectric and magnetic properties of $\text{BaTiO}_3\text{-NiFe}_2\text{O}_4$ multiferroic composites. *Ceram. Int.* 40, 6165-6170.
- Islam, R.A. & Priya, S. (2008) Effect of piezoelectric grain size on magnetoelectric coefficient of $\text{Pb}(\text{Zr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48})\text{O}_3\text{-Ni}_{0.8}\text{Zn}_{0.2}\text{Fe}_2\text{O}_4$ particulate composites. *J. Mater. Sci.* , 43, 3560-3568.
- Jiaqian, W., Jian, Y., Yulong, J., & Tai, Q., (2011) Effect of manganese addition on the microstructure and electromagnetic properties of YIG. *Journal of Rare Earths*, 29, 562-566.
- Kornphom, C., Yotthuan, S., Kidkhunthod, P. & Bongkarn, T. (2021) Stabilization of the morphotropic phase boundary in (1-x)BNT-xBCTS ceramics prepared by the solid-state combustion technique. *Radia. Phys. Chem*, 188, 109638.
- Kornphom, C., Wongyai, N., Tanon, N., Pinitsoontorn, S. & Bongkarn, T. (2022) The Synthesis High Magnetization of $\text{Y}_{2.7}\text{Bi}_{0.3}\text{Fe}_{4.7}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{12}$ Magnetic Powders by Simplified Solid State Combustion Technique. *Burapha Science Journal*, 27(3), 1715-1727.



- Kornphom, C., Saenkam, K., P. Jantaratana, S. Pinitsoontorn, Bongkarn, T., (2023) Investigations on the Multiferroic Properties of Lead Free BNT-BCTS:MFO Ceramic Composites Fabricated by the Solid-State Combustion Technique, *JOM*, 75, 2669–2683
- Ortega, N., Kumar, A., Scott, J.F. & Katiyar, R.S., (2015) Multifunctional magnetoelectric materials for device applications. *J. Phys. Condens. Matter*, 27, 504002.
- Pradhan, L.K., Pandey, R., Kumar, R. & Kar, M. (2018) Lattice strain induced multiferroicity in PZT-CFO particulate composite. *J. Appl. Phys.*, 123, 074101.
- Ryu, J., Priya, S., Uchino, K. & Kim, H.E. (2002) Magnetoelectric Effect in Composites of Magnetostrictive and Piezoelectric Materials. *J. Electroceram*, 8, 107-119.
- Vopson, M.M., (2015) Fundamentals of Multiferroic Materials and Their Possible Applications. *Crit. Rev. Solid State Mater. Sci.*, 40, 223-250.
- Singh, K., (2020) Process-structure-property correlation of $(1-x)\text{CoFe}_2\text{O}_4 + x\text{BaTiO}_3$ ($x = 0.2, 0.5, 0.8$) composites. *Mater. Today Proc.*, 33, 5324-5327.
- Shi, Z., Nan, W., Zhang, J., Cai, N. & Li, J.-F. (2005) Magnetoelectric effect of $\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3/\text{Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3$ rod arrays in a $(\text{Tb,Dy})\text{Fe}_2/\text{epoxy}(\text{Tb,Dy})\text{Fe}_2/\text{epoxy}$ medium. *Appl. Phys. Lett.*, 87, 012503.
- Spaldin, N.A. & Ramesh R., (2019) Advances in magnetoelectric multiferroics. *Nat. Mater.*, 18, 203-212.
- Srinivasan, G., Rasmussen, E.T., & Hayes, R. (2003) Magnetoelectric effects in ferrite-lead zirconate titanate layered composites: The influence of zinc substitution in ferrites. *Phys. Rev. B*, 67, 014418.
- Wu, H., Ao, H., Li, W., Zeng, Z., Gao, R., Fu, C., Chen, G., Deng, X., Wang, Z., Lei, X. & Cai, W. (2021) Improvement of magnetoelectric coupling effect in $\text{Ba}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{TiO}_3\text{-Co}_{0.5}\text{Cu}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ multiferroic fluids by tuning the composition. *Mater. Today Chem.*, 21, 100511.



Xu, R., Wang, Z., Gao, R., Zhang, S., Zhang, Q., Li, Z., Li, C., Chen, G., Deng, X., Cai, W. & Fu, C. (2018) Effect of molar ratio on the microstructure, dielectric and multiferroic properties of $\text{Ni}_{0.5}\text{Zn}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$ - $\text{Pb}_{0.8}\text{Zr}_{0.2}\text{TiO}_3$ nanocomposite. *J. Mater. Sci. Mater. Electron.*, 29, 16226-1623.