

การสังเคราะห์และสมบัติทางไดอิเล็กตริกของวัสดุเซรามิก $(\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$

Preparation and Dielectric Properties of $(\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$ ceramics

พรทิพย์ สิริยา (Pomtip Siriya)* ดร.ประสิทธิ์ ทองใบ (Dr.Prasit Thongbai)**

บทคัดย่อ

ในงานวิจัยนี้ ได้สังเคราะห์วัสดุเซรามิก $(\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$ (INTO) โดยวิธีปฏิกิริยาสถานะของแข็ง และเผาผลาญที่อุณหภูมิ 1500 °C เป็นเวลา 10 ชั่วโมง ตัวอย่างที่สังเคราะห์ได้ถูกนำมาศึกษาของคัพประกอบเฟสและโครงสร้างทางจุลภาคด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์และกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด ตามลำดับ พบว่าวัสดุมีโครงสร้างเฟสรูไทล์และมีโครงสร้างทางจุลภาคที่แน่นตัวสูง วัสดุเซรามิก INTO ที่สังเคราะห์ได้มีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกและค่าแทนเจนต์ของการสูญเสียเท่ากับ 5568 และ 0.034 (ที่อุณหภูมิ 30 °C และความถี่ 1 kHz) ตามลำดับ นอกจากนี้ ค่าคงที่ไดอิเล็กตริกของวัสดุยังมีความเสถียรกับอุณหภูมิ ($\Delta\epsilon'/\epsilon'_{30} \leq \pm 15\%$) ในช่วงกว้างจาก -60 °C ถึง 210 °C จากการวิเคราะห์ด้วยเทคนิคอิมพีแดนซ์ พบว่าวัสดุที่สังเคราะห์ได้มีสมบัติทางการนำไฟฟ้าไม่เป็นเนื้อเดียวกัน ประกอบด้วยเกรนที่มีสมบัติเป็นสารกึ่งตัวนำและขอบเกรนที่มีสมบัติเป็นฉนวนไฟฟ้า สำหรับพฤติกรรมการมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกสูงของวัสดุสามารถอธิบายได้โดยใช้แบบจำลองตัวเก็บประจุไฟฟ้าแบบชั้นขวางกั้นภายใน โดยการเกิดโพลาริเซชันทางไฟฟ้าที่ผิวรอยต่อ ณ ขอบเกรน

ABSTRACT

In this work, $(\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$ (INTO) ceramic was prepared by a solid state reaction method and sintered at 1500 °C for 10 h. The phase composition and ceramic microstructure of the sintered ceramic were analyzed by X-ray diffraction technique and scanning electron microscope, respectively. The sintered ceramic has a rutile phase with highly dense microstructure. The INTO ceramic exhibits high dielectric constant and low dielectric loss tangent of about 5568 and 0.034 (at 30 °C and 1 kHz), respectively. In addition, good temperature stability of the dielectric constant ($\Delta\epsilon'/\epsilon'_{30} \leq \pm 15\%$) is achieved over a wide temperature range from -60 °C to 210 °C. According to the impedance spectroscopy analysis, it is confirmed that the INTO ceramic is electrically heterogeneous, consisting of semiconducting grains and insulating grain boundaries. The giant-dielectric response behavior of the INTO ceramic can be well described by the internal barrier layer capacitor (IBLC) model based on the interfacial polarization at the grain boundary interfaces.

คำสำคัญ: TiO_2 สมบัติทางไดอิเล็กตริก เซรามิก อิมพีแดนซ์

Keywords: TiO_2 , Dielectric properties, Ceramics, Impedance spectroscopy

* นักศึกษา หลักสูตรวิทยาศาสตรมหาบัณฑิต สาขาวิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยขอนแก่น

** ผู้ช่วยศาสตราจารย์ ภาควิชาฟิสิกส์ สาขาวิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยขอนแก่น

บทนำ

ในปัจจุบัน อุตสาหกรรมอิเล็กทรอนิกส์มีความก้าวหน้าไปอย่างรวดเร็ว การพัฒนาอุปกรณ์อิเล็กทรอนิกส์ต่างๆ ถูกขับเคลื่อนโดยความต้องการอย่างไม่หยุดหย่อนจากผู้ใช้งาน ซึ่งมุ่งเน้นให้อุปกรณ์มีขนาดเล็กและมีประสิทธิภาพสูง รวมไปถึงความคงทนต่อการใช้งานในสภาวะแวดล้อมที่อุณหภูมิเปลี่ยนแปลงไป เพื่อให้ได้อุปกรณ์อิเล็กทรอนิกส์ขนาดเล็กที่เปี่ยมไปด้วยประสิทธิภาพในการทำงานนั้น วัสดุไดอิเล็กตริก (dielectric materials) ที่มีค่าคงที่ไดอิเล็กตริก (dielectric constant, ϵ') สูง จึงถูกนำมาใช้ในการประดิษฐ์ชิ้นส่วนอิเล็กทรอนิกส์ที่สำคัญต่างๆ ดังเช่น ตัวเก็บประจุไฟฟ้าชนิดเซรามิก (ceramic capacitor) และสิ่งประดิษฐ์ความจำ (memory devices) เป็นต้น (Homes et al., 2001) ซึ่งมีผู้ให้ความสนใจศึกษาและวิจัยเกี่ยวกับการเพิ่มค่าความจุไฟฟ้า (capacitance, C) ของตัวเก็บประจุไฟฟ้าที่ใช้ในอุปกรณ์อิเล็กทรอนิกส์ โดยการพัฒนาให้วัสดุมีค่าคงที่ไดอิเล็กตริกที่สูงขึ้น ดังเช่น $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ (Cross, 1987) และ $\text{PbMg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3}\text{O}_3$ (Wu et al., 2002) แต่อย่างไรก็ตาม วัสดุเหล่านี้ล้วนมีตะกั่วเป็นองค์ประกอบ ซึ่งค่อนข้างเป็นอันตรายต่อสิ่งมีชีวิตและสิ่งแวดล้อม

จนกระทั่งในปี 2000 ได้มีรายงานการค้นพบวัสดุเซรามิก $\text{CaCu}_3\text{Ti}_4\text{O}_{12}$ (CCTO) ซึ่งมีค่า $\epsilon' \sim 12,000$ ที่ความถี่ 100 kHz (Subramanian et al., 2000) แต่วัสดุ CCTO นั้น ยังมีค่าแทนเจนต์ของการสูญเสียทางไดอิเล็กตริก (dielectric loss tangent, $\tan\delta$) ที่สูงเกินกว่าค่ามาตรฐาน ($\tan\delta > 0.1$) ซึ่งไม่สามารถนำไปใช้งานได้จริง จึงต้องศึกษาวิจัยเพื่อปรับปรุงและพัฒนาลดค่า $\tan\delta$ ของวัสดุชนิดนี้ ซึ่งทำให้เกิดงานวิจัยใหม่ๆ เกี่ยวกับการพัฒนาวัสดุไดอิเล็กตริก CCTO รวมถึงวัสดุไดอิเล็กตริกชนิดอื่นๆ ตามมาอีกมากมาย ดังเช่น วัสดุไดอิเล็กตริกกลุ่มของ $\text{A}_x\text{B}_y\text{Ni}_{1-x-y}\text{O}$ (เมื่อ $\text{A} = \text{Li}, \text{Na}, \text{K}$ และ $\text{B} = \text{Ti}, \text{Al}, \text{La}$ และธาตุอื่นๆ) (Dang et al., 2003; Hsiao et al., 2007; Dakhel et al., 2009) วัสดุในกลุ่มของ $\text{AFe}_{1/2}\text{B}_{1/2}\text{O}_3$ (เมื่อ $\text{A} = \text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba}$ และ $\text{B} = \text{Fe}, \text{Sc}$) (Wang et al., 2007; Raevski et al., 2003) เป็นต้น แม้ว่ามีงานวิจัยที่ประสบผลสำเร็จในการปรับปรุงวัสดุให้มีค่า ϵ' สูง และ $\tan\delta$ ที่ต่ำ อย่างไรก็ตาม วัสดุดังกล่าวยังคงมีค่า ϵ' ที่เปลี่ยนแปลงกับอุณหภูมิค่อนข้างมาก โดยวัสดุไดอิเล็กตริกที่จะนำไปใช้งานจริงจะต้องมีค่า ϵ' คงที่กับอุณหภูมิในช่วงกว้าง นั่นคือมีการเปลี่ยนแปลงกับอุณหภูมิของค่า ϵ' น้อยกว่า $\pm 15\%$ เมื่อเทียบกับค่า ϵ' ที่อุณหภูมิห้อง ยกตัวอย่างเช่น ตัวเก็บประจุชนิด X7R จะต้องผลิตจากวัสดุไดอิเล็กตริกที่มีค่า ϵ' เปลี่ยนแปลงน้อยกว่า $\pm 15\%$ ในช่วงอุณหภูมิจาก -55°C ถึง 125°C (Moulson, Herbert, 2003) ไปจนถึงตัวเก็บประจุ X9R ซึ่งต้องใช้วัสดุไดอิเล็กตริกที่มีค่า ϵ' เปลี่ยนแปลงน้อยกว่า $\pm 15\%$ ในช่วงอุณหภูมิจาก -55°C ถึง 200°C (Gao et al., 2011) แต่วัสดุส่วนใหญ่ที่ใช้ในตัวเก็บประจุไฟฟ้าทั้งสองชนิดนี้ยังคงมีค่า ϵ' ไม่สูงมากนัก (< 2000) จึงยังคงต้องปรับปรุงและพัฒนาวัสดุไดอิเล็กตริกต่อไป

ในปี 2013 ได้มีรายงานการค้นพบวัสดุไดอิเล็กตริกประสิทธิภาพสูงชนิดใหม่ คือ TiO_2 ที่ถูกเจือด้วยไอออนของ In^{3+} และ Nb^{5+} (INTO) สังเคราะห์โดยใช้วิธีปฏิกิริยาสถานะของแข็ง (solid state reaction) ที่ไม่ซับซ้อน พบว่าวัสดุชนิดนี้มีค่า ϵ' มากกว่า 10^4 ทั้งยังมีความเสถียรต่ออุณหภูมิในช่วง 50 - 450 K และความถี่ในช่วง $10^2 - 10^6$ Hz ตลอดจนมีค่า $\tan\delta$ น้อยกว่า 0.05 ในช่วงอุณหภูมิกว้าง (Hu et al., 2013) จากรายงานนี้ได้สร้างความสนใจและเปิดแนวทางใหม่สำหรับการพัฒนาวัสดุไดอิเล็กตริกในอนาคตเป็นอย่างมาก ทำให้เกิดงานวิจัยเกี่ยวกับวัสดุชนิดนี้เพิ่มมากขึ้น ทั้งในด้านของการพัฒนาเพื่อให้นำไปประยุกต์ใช้งานได้จริง รวมถึงการศึกษาพฤติกรรมทางไดอิเล็กตริกของวัสดุเซรามิก INTO เนื่องจากประเด็นเกี่ยวกับสาเหตุของการมีค่า ϵ' ที่สูงนั้น ยังคงเป็นข้อถกเถียงกันอยู่จนถึงทุกวันนี้ ดังนั้นในงานวิจัยนี้ จึงได้มุ่งเน้นทำการสังเคราะห์วัสดุเซรามิก TiO_2 ที่เจือด้วยไอออนของ In^{3+} และ Nb^{5+}

(INTO) โดยวิธีปฏิกิริยาสถานะของแข็ง และนำเสนอพฤติกรรมทางไดอิเล็กตริกที่สำคัญ ตลอดจนการนำเสนอกลไกที่ใช้อธิบายการมีค่า ϵ' ที่สูงของวัสดุเซรามิกชนิดนี้

วัตถุประสงค์การวิจัย

1. เพื่อสังเคราะห์วัสดุเซรามิก TiO_2 ที่เจือด้วยคู่อิออน In^{3+} และ Nb^{5+} โดยวิธีปฏิกิริยาสถานะของแข็ง
2. เพื่อศึกษาผลของการเจือไอออน In^{3+} และ Nb^{5+} ที่มีต่อโครงสร้างทางจุลภาคของวัสดุเซรามิก TiO_2
3. เพื่อศึกษาสมบัติทางไดอิเล็กตริกและสมบัติทางไฟฟ้าของวัสดุเซรามิก TiO_2 ที่เจือด้วยไอออน In^{3+} และ Nb^{5+}

วิธีการวิจัย

การสังเคราะห์วัสดุเซรามิก $(\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$ โดยวิธีปฏิกิริยาของแข็ง ในขั้นตอนแรกเริ่มต้นจากการผสมสารตั้งต้นที่ใช้เป็นตัวเจือ ได้แก่ In_2O_3 และ Nb_2O_5 ตามสูตร $(\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$ ลงในขวด จากนั้นเติมเอทานอล แล้วนำไปบดผสมด้วยลูกบอล ZrO_2 (ball milling) เป็นเวลานาน 24 ชั่วโมง เมื่อครบ 24 ชั่วโมง ใส่ผงของ TiO_2 ตามสัดส่วนที่ต้องการลงในขวดที่มีสารเจือผสมกัน แล้วนำไปบดด้วยลูกบอลแบบเปียกซ้ำ เป็นเวลานาน 24 ชั่วโมง จากนั้นนำขวดที่มีส่วนผสมของสารตั้งต้นทั้งหมดมาแยกเอาตะกอนของสารออกจากลูกบอลโดยใช้ตะแกรงกรอง แล้วนำตะกอนของสารที่ได้ไปอบให้แห้งที่อุณหภูมิ 100°C จากนั้นนำผงที่ได้ไปบดและร่อนผ่านตะแกรงกรองที่มีความละเอียด $125\ \mu\text{m}$ โครเมต แล้วนำผงที่ได้ไปขึ้นรูปเป็นชิ้นงาน (อัดเม็ด) โดยใช้วิธีการอัดแรงดันแบบทิศทางเดียว หลังจากนั้นนำชิ้นงานเซรามิกที่ผ่านการขึ้นรูปไปเผาที่อุณหภูมิ 1500°C เป็นเวลานาน 10 ชั่วโมง โดยใช้อัตราการเพิ่มและลดอุณหภูมิ $2^\circ\text{C}/\text{min}$

การวิเคราะห์องค์ประกอบเฟส โครงสร้างผลึก และโครงสร้างทางจุลภาคของวัสดุศึกษาโดยเทคนิคการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์และกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด ตามลำดับ โดยข้อมูลที่ได้จากเทคนิคการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์จะบ่งบอกถึงโครงสร้างผลึกและองค์ประกอบเฟสของวัสดุ ในขณะที่ข้อมูลที่ได้จากกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราดจะบ่งบอกถึงรูปร่าง การจัดเรียงตัว และขนาดเกรนของวัสดุ

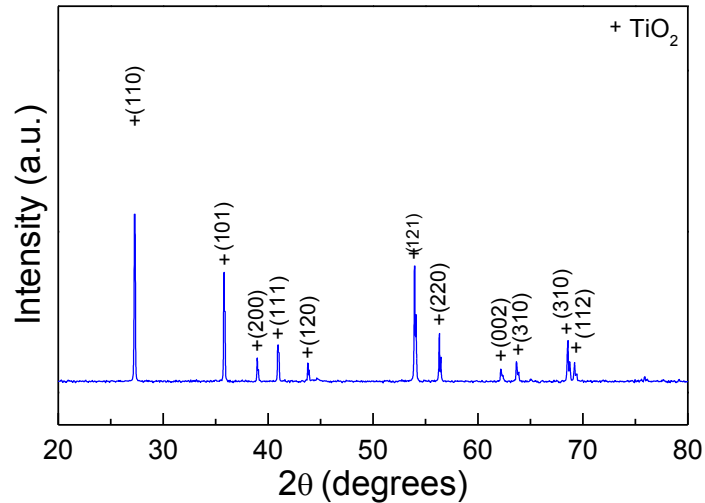
วัสดุที่ผ่านการเผาผนึกจะถูกนำมาศึกษาสมบัติทางไดอิเล็กตริกและสมบัติทางไฟฟ้าโดยใช้เทคนิคตัวเก็บประจุแผ่นคู่ขนาน โดยใช้เครื่อง KEYSIGHT E4990A Impedance Analyzer ตั้งอยู่ที่ ภาควิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยขอนแก่น โดยในงานวิจัยนี้จะทดสอบที่ความถี่ $40\ \text{Hz} - 10^7\ \text{Hz}$ ในช่วงอุณหภูมิ -60°C ถึง 210°C ซึ่งข้อมูลที่วัดได้จะอยู่ในรูปของค่าความจุไฟฟ้า (capacitance, C) และค่าแทนเจนต์ของการสูญเสีย ($\tan\delta$) จากนั้นจึงนำข้อมูลที่ได้อธิบายค่าพารามิเตอร์ไดอิเล็กตริกและวิเคราะห์สมบัติทางไฟฟ้าของวัสดุต่อไป

ผลการวิจัย

ผลการศึกษาการเกิดเฟสและโครงสร้างของวัสดุเซรามิก $(\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$ โดยเทคนิค XRD

ผลการศึกษาการเกิดเฟสของวัสดุเซรามิก INTO โดยเทคนิค XRD สามารถแสดงได้ดังภาพที่ 1 พบว่าตัวอย่างที่สังเคราะห์ได้มีโครงสร้างผลึกเป็นแบบรูไทล์ (rutile) สอดคล้องกับข้อมูลมาตรฐาน JCPDS 21-1276 และไม่มีพบเฟสเจือปนใดๆ จากการคำนวณค่าแลตทิซพารามิเตอร์ (a และ c) พบว่าวัสดุเซรามิก INTO ที่สังเคราะห์ได้มีค่า a และ c เท่ากับ $4.614(5)\ \text{\AA}$ และ $2.981(1)\ \text{\AA}$ ตามลำดับ โดยมีขนาดใหญ่มากกว่า TiO_2 เนื่องจากรัศมีไอออนของ In^{3+} ($r_{\text{In}^{3+}} = 94\ \text{pm}$) และ Nb^{5+} ($r_{\text{Nb}^{5+}} = 78\ \text{pm}$) มีขนาดใหญ่มากกว่ารัศมีไอออนของ Ti^{4+} ($r_{\text{Ti}^{4+}} = 74\ \text{pm}$) (Hu et al., 2013; Hu et al., 2015) จึง

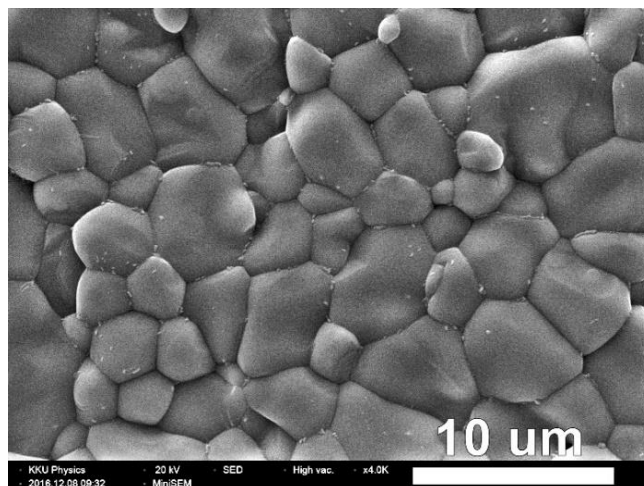
ส่งผลให้ค่าแฉกซ์พารามิเตอร์ของวัสดุเซรามิก INTO เพิ่มขึ้น และบ่งบอกว่าไอออนของ In^{3+} และ Nb^{5+} สามารถเข้าไปแทนที่ไอออนของ Ti^{4+} ที่อยู่ภายในโครงสร้างของ TiO_2 ได้จริง



ภาพที่ 1 รูปแบบการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์ในวัสดุเซรามิก $(\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$

ผลการศึกษาโครงสร้างทางจุลภาคของวัสดุเซรามิก $(\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$ โดยเทคนิค SEM

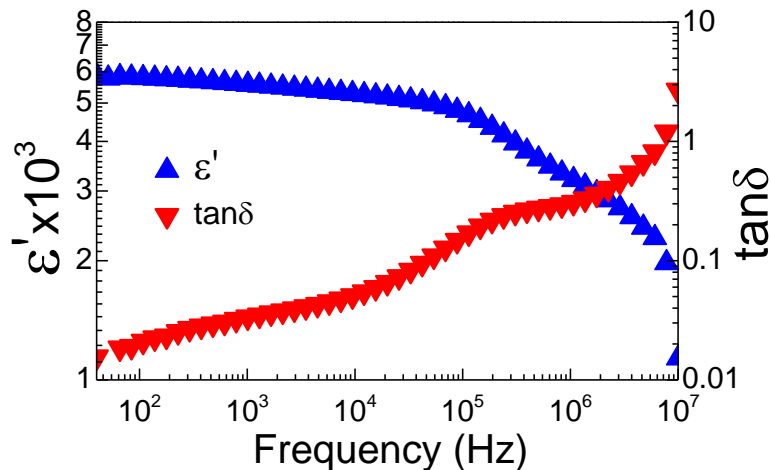
ภาพที่ 2 แสดงลักษณะโครงสร้างทางจุลภาคของวัสดุเซรามิก INTO พบว่ามีโครงสร้างทางจุลภาคที่ประกอบด้วยเกรนและขอบเกรน บ่งชี้ถึงวัสดุเซรามิกแบบหลายผลึก (polycrystalline ceramic) โดยที่เกรนของวัสดุที่สังเคราะห์ได้มีลักษณะรูปร่างหลายเหลี่ยม และมีการอัดเรียงตัวของเกรนที่ดีและปราศจากรูพรุน และมีขนาดเกรนเฉลี่ยประมาณ 5.18 ไมโครเมตร



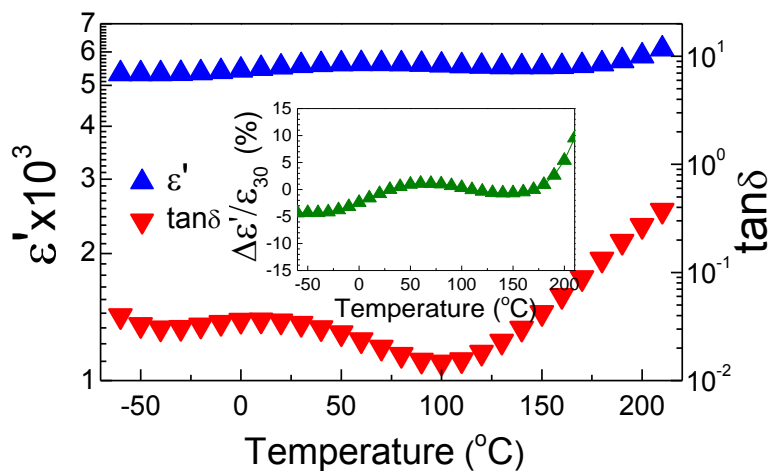
ภาพที่ 2 ภาพถ่ายพื้นผิวโดยเทคนิค SEM ของวัสดุเซรามิก $(\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5})_{0.1}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$

ผลการศึกษาสมบัติทางไดอิเล็กตริกของวัสดุเซรามิก ($\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$)

ในงานวิจัยนี้ได้ศึกษาสมบัติไดอิเล็กตริกของวัสดุเซรามิก INTO จากพฤติกรรมการเปลี่ยนแปลงกับค่า ϵ' กับ $\tan\delta$ ในช่วงความถี่จาก $40 - 10^7$ Hz และศึกษาพฤติกรรมการเปลี่ยนแปลงกับอุณหภูมิของค่า ϵ' กับ $\tan\delta$ ในช่วงอุณหภูมิจาก -60 ถึง 210 °C ดังแสดงในภาพที่ 3 และภาพที่ 4 ตามลำดับ พบว่าวัสดุเซรามิก INTO ที่สังเคราะห์ได้มีค่า ϵ' และ $\tan\delta$ ประมาณ 5568 และ 0.034 ตามลำดับ (ที่อุณหภูมิ 30 °C และที่ความถี่ 1 kHz) เมื่อพิจารณาที่ความถี่สูงพบว่าค่า ϵ' ลดลงอย่างรวดเร็ว ในขณะที่ค่า $\tan\delta$ เพิ่มสูงขึ้น โดยสามารถอธิบายพฤติกรรมทางไดอิเล็กตริกได้ดังนี้ เนื่องจากที่ความถี่สูง ไดโพลไฟฟ้า (dipole) ในวัสดุไม่สามารถกลับทิศทางตามสนามไฟฟ้าได้อย่างสมบูรณ์ ส่งผลให้ความเข้มของการโพลาไรเซชัน (polarization intensity) ของวัสดุลดลง เป็นผลให้ค่า ϵ' ของวัสดุลดลงตามไปด้วย ซึ่งสอดคล้องกับการเกิดพีคของ $\tan\delta$ เมื่อพิจารณาการเปลี่ยนแปลงกับอุณหภูมิของ ค่า ϵ' และ $\tan\delta$ ในช่วงอุณหภูมิจาก -60 °C ถึง 210 °C (ที่ความถี่ 1 kHz) รวมถึงร้อยละการเปลี่ยนแปลงของค่า ϵ' ที่อุณหภูมิต่างๆ เทียบกับค่า ϵ' ที่อุณหภูมิ 30 °C ของวัสดุเซรามิก INTO พบว่าวัสดุเซรามิก INTO ที่สังเคราะห์ได้มีความเสถียรกับอุณหภูมิ ($\Delta\epsilon'/\epsilon'_{30} < \pm 15\%$) ในช่วงกว้างตั้งแต่ -60 °C ถึง 210 °C



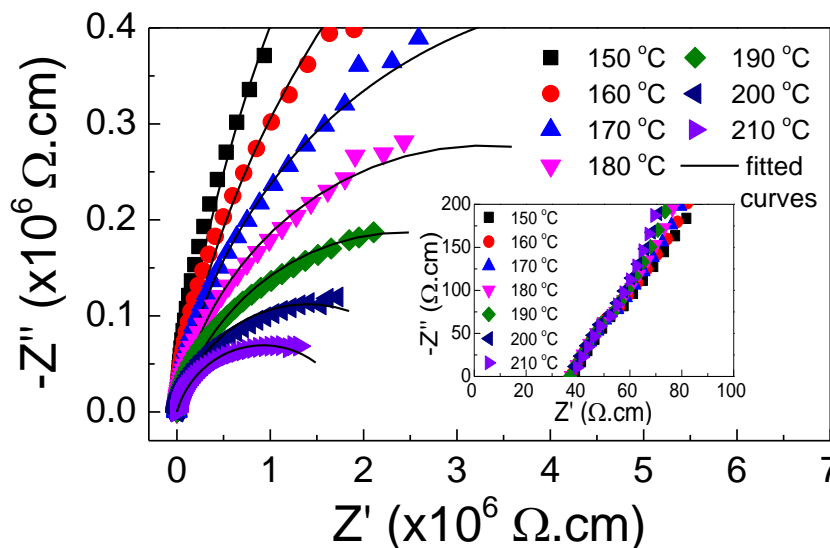
ภาพที่ 3 การเปลี่ยนแปลงกับค่าของค่า ϵ' และ $\tan\delta$ ที่อุณหภูมิ 30 °C ของวัสดุเซรามิก ($\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$)



ภาพที่ 4 การเปลี่ยนแปลงกับอุณหภูมิของค่า ϵ' และ $\tan\delta$ ภาพแทรกแสดงร้อยละการเปลี่ยนแปลงกับอุณหภูมิของค่า ϵ' ที่อุณหภูมิต่างๆ เทียบกับค่า ϵ' ที่อุณหภูมิ 30 °C ที่ความถี่ 1 kHz ของวัสดุเซรามิก ($\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$)

ผลการศึกษาสมบัติทางไฟฟ้าของวัสดุเซรามิก ($\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$) โดยเทคนิค Impedance spectroscopy

ภาพที่ 5 แสดงแสดงสเปกตรัมอิมพีแดนซ์เชิงซ้อนที่อุณหภูมิต่างๆ ของวัสดุเซรามิก INTO พบว่าเส้นผ่านศูนย์กลางของครึ่งวงกลมอิมพีแดนซ์มีแนวโน้มใหญ่ขึ้นเมื่ออุณหภูมิกายนอกลดลง เมื่อขยายสเปกตรัมอิมพีแดนซ์ที่บริเวณตำแหน่งเข้าใกล้จุดกำเนิด (ดังแสดงในภาพแทรก) พบว่าสเปกตรัมอิมพีแดนซ์ไม่บรรจบที่ศูนย์ (nonzero intercept) กล่าวคือ มีครึ่งวงกลมอิมพีแดนซ์ 2 วง บ่งบอกว่าค่าความต้านทานรวมของวัสดุเซรามิก INTO เกิดจากการตอบสนองทางไฟฟ้าที่มาจากสององค์ประกอบ ได้แก่ ส่วนที่มาจากเกรนที่มีสมบัติเป็นสารกึ่งตัวนำ และส่วนที่มาจากขอบเกรนที่มีสมบัติเป็นฉนวน หรือมีลักษณะ โครงสร้างทางจุลภาคเป็นแบบตัวเก็บประจุแบบชั้นขวางกั้นภายใน (internal barrier layer capacitors, IBLC) (Sinclair et al., 2002; Adams et al., 2006) โดยกลไกการโพลาไรเซชันในวัสดุที่มีโครงสร้างแบบ IBLC นี้ เป็นกระบวนการโพลาไรเซชันที่บริเวณผิวรอยต่อ (interfacial polarization) ซึ่งมักเกิดขึ้นที่บริเวณรอยต่อระหว่างเกรน หรือที่เรียกว่าขอบเกรน (grain boundary) ของวัสดุ เนื่องจากขอบเกรนของวัสดุมีสมบัติเป็นชั้นฉนวนไฟฟ้า เมื่อให้สนามไฟฟ้าจากภายนอกแก่วัสดุ ประจุอิสระที่อยู่ภายในเกรนจะไม่สามารถเคลื่อนที่ผ่านขอบเกรนไปได้ จึงส่งผลให้เกิดการสะสมประจุที่บริเวณขอบเกรนของวัสดุ และทำให้การโพลาไรเซชันทางไฟฟ้าที่ขอบเกรนมีความเข้มสูงมาก เป็นผลให้วัสดุมีค่า ϵ' สูง



ภาพที่ 5 สเปกตรัมอิมพีแดนซ์เชิงซ้อน ภาพแทรก เส้นสเปกตรัมอิมพีแดนซ์ที่ความถี่สูงใกล้จุดกำเนิด ที่อุณหภูมิต่างๆ ของวัสดุเซรามิก ($\text{In}_{0.5}\text{Nb}_{0.5}\text{Ti}_{0.9}\text{O}_2$)

อภิปรายและสรุปผลการวิจัย

การเจือไอออนของ In^{3+} และ Nb^{5+} เข้าไปใน TiO_2 สามารถช่วยปรับปรุงสมบัติทางไดอิเล็กตริกของวัสดุให้ดีขึ้นได้ โดยมีค่า ϵ' และ $\tan\delta$ ที่ความถี่ 1 kHz ณ อุณหภูมิ 30 °C ประมาณ 8375 และ 0.040 ตามลำดับ ทั้งยังมีค่า ϵ' ที่เสถียรกับอุณหภูมิในช่วงกว้างจาก -60 – 210 °C ในขณะที่ค่า ϵ' ของวัสดุ TiO_2 มีค่าเพียง ≈ 250 เท่านั้น (Hu et al., 2013; Hu et al., 2015) ผลการทดลองที่ได้จากเทคนิคอิมพีแดนซ์ พบว่าความต้านทานรวมของวัสดุมาจากสององค์ประกอบ คือ ส่วนที่เกิดจากการตอบสนองทางไฟฟ้าบริเวณของเกรนที่มีสมบัติเป็นสารกึ่งตัวนำ กับส่วนที่มาจาก การตอบสนองทางไฟฟ้าบริเวณขอบเกรนที่มีสมบัติเป็นฉนวนไฟฟ้า เมื่อให้สนามไฟฟ้าจากภายนอกแก่วัสดุ ความ

แตกต่างของสมบัติทางไฟฟ้าที่ทั้งสองบริเวณนี้จะส่งผลให้เกิดการโพลาไรเซชันที่บริเวณผิวรอยต่อ โดยประจุอิสระที่อยู่ภายในเกรนจะไม่สามารถเคลื่อนที่ผ่านชั้นฉนวนขอบเกรนไปได้ ส่งผลให้เกิดการสะสมประจุที่บริเวณขอบเกรนของวัสดุ และทำให้การโพลาไรเซชันทางไฟฟ้าที่ขอบเกรนมีความเข้มสูง สอดคล้องกับทฤษฎี IBLC (Sinclair et al., 2002; Adams et al., 2006) เป็นผลให้วัสดุชนิดนี้มีค่า ϵ' สูง

กิตติกรรมประกาศ

ผู้วิจัยขอขอบคุณทุนเรียนดุษฎีศาสตรบัณฑิตแห่งประเทศไทย ที่มอบทุนการศึกษาตลอดหลักสูตรในระดับปริญญาโท ของขอขอบคุณภาควิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยขอนแก่น ที่ให้การสนับสนุนการใช้เครื่องมือในการทำงานวิจัยครั้งนี้ และขอขอบพระคุณ ศศ.ดร. ประสิทธิ์ ทองใบ อาจารย์ที่ปรึกษาโครงการงานวิจัยเป็นอย่างสูง ที่ให้ความกรุณาให้คำปรึกษาและข้อเสนอแนะต่างๆ ในการทำงานวิจัย

เอกสารอ้างอิง

- Adams TB, Sinclair DC, West AR. Influence of processing condition on the electrical properties of $\text{CaCu}_3\text{Ti}_4\text{O}_{12}$ ceramics. *Journal of American Ceramic Society* 2006; 89(10): 3129-3135.
- Cross LE. Relaxor ferroelectrics. *Ferroelectrics* 1987; 76: 241.
- Dang ZM, Wu JB, Fan LZ, Nan CW. Dielectric behavior of Li and Ti co-doped NiO/PVDF composites. *Chemical Physics Letters* 2003; 376: 389–394.
- Dakhel AA. Giant dielectric permittivity in Li and Pr co-doped NiO ceramics. *Journal of Alloys and Compounds* 2009; 488: 31–34.
- Gao S, Wu S, Zhang Y, Yang H, Wang X. Study on the microstructure and dielectric properties of X9R ceramics based on BaTiO_3 . *Materials Science and Engineering B* 2011; 176: 68-71.
- Homes CC, Vogt T, Shapiro SM, Wakimoto S, Ramirez AP. Optical response of high-dielectric-constant perovskite-related oxide. *Science* 2001; 293: 673-676.
- Hsiao YJ, Chang YS, Fang TH, Chai YL, Chung CY, Chang YH. High dielectric permittivity of Li and Ta codoped NiO ceramics. *Journal of Physics D: Applied Physics* 2007; 40: 863-868.
- Hu WB, Liu Y, Withers RL, Frankcombe TJ, Norén L, Snashall A, et al. Electron-pinned defect-dipoles for high-performance colossal permittivity materials. *Nature Materials* 2013; 12: 821.
- Hu WB, Lau K, Liu Y, Withers RL, Chen H, Fu L, et al. Colossal dielectric permittivity in (Nb+Al) codoped rutile TiO_2 ceramics: compositional gradient and local structure. *Chemistry of Materials* 2015; 27: 4934-4942.
- Moulson AJ, Herbert JM. *Electroceramics*. 2nd ed. New York: John Wiley & Sons; 2003.
- Raevski IP, Prosandeev SA, Bogatin AS, Malitskaya MA, Jastrabik L. High dielectric permittivity in $\text{AFe}_{1/2}\text{B}_{1/2}\text{O}_3$ nonferroelectric perovskite ceramics (A=Ba, Sr, Ca; B = Nb, Ta, Sb). *Journal of Applied Physics* 2003; 93: 4130–4136.
- Sinclair DC, Adams TB, Morrison FD, West AR. $\text{CaCu}_3\text{Ti}_4\text{O}_{12}$: One-step internal barrier layer capacitor. *Applied Physics Letters* 2002; 80: 2153-5.



- Subramanian MA, Li D, Duan N, Reisner BA, Sleight AW. High dielectric constant in $ACu_3Ti_4O_{12}$ and $ACu_3Ti_3FeO_{12}$ phases. *Journal of Solid State Chemistry* 2000; 151: 323-325.
- Wang Z, Chen XM, Ni L, Liu YY, Liu XQ. Dielectric relaxations in $Ba(Fe_{1/2}Ta_{1/2})O_3$ giant dielectric constant ceramics. *Applied Physics Letters* 2007; 90: 102905.
- Wu JB, Nan CW, Lin YH, Deng Y. Giant dielectric permittivity observed in Li and Ti doped NiO. *Physical Review Letters* 2002; 89(21): 217601.