ธานินทร์ ปัจจุโส : สมบัติไจแอนต์ไดอิเล็กตริกของเซรามิกคอปเปอร์ออกไซด์ (GIANT DIELECTRIC PROPERTIES OF COPPER OXIDE CERAMICS)
อาจารย์ที่ปรึกษา : รองศาสตราจารย์ ดร.ประพันธ์ แม่นยำ, 153 หน้า.

วิทยานิพนธ์นี้เกี่ยวข้องกับการศึกษาคุณสมบัติไดอิเล็กตริกเซรามิกคอปเปอร์ออกไซด์ที่เตรียมจากผงคอปเปอร์ออกไซด์ที่แตกต่างกันสามวิธี ได้แก่ ผงคอปเปอร์ออกไซด์ที่ใช้ทางการค้า เตรียมด้วยการสลายตัวทางความร้อนอย่างง่าย และโดยวิธีการทางสารละลาย ผงคอปเปอร์ออกไซด์ที่เตรียมด้วยวิธีการสลายตัวทางความร้อนและวิธีการทางสารละลายถูกนำมาแคลไซด์ที่อุณหภูมิ 500 600 และ 700°C 6 ชั่วโมง หลังจากนั้นคอปเปอร์ออกไซด์ที่ได้ถูกนำมาศึกษาด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนรังสีเอกซ์ (XRD) และกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด (SEM) จากผลการวิเคราะห์ด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนด้วยรังสีเอกซ์ พบว่า ผงคอปเปอร์ออกไซด์ที่เตรียมประกอบด้วยเฟสของคอปเปอร์ออกไซด์มีขนาดของอนุภาคในช่วง 33-39 นาโนเมตรและ 26-34 นาโนเมตร สำหรับผงของคอปเปอร์ออกไซด์ที่เตรียมด้วยการสลายตัวทางความร้อนและสารละลาย ตามลำดับ ส่วนขนาดอนุภาคของคอปเปอร์ออกไซด์ที่เตรียมโดยใช้สารทางการค้ามีขนาดประมาณ 43 นาโนเมตร และพบว่าผงของคอปเปอร์ออกไซด์ที่เตรียมด้วยวิธีต่างๆ แสดงพีคหลักของคอปเปอร์ออกไซด์โดยไม่มีพีคอื่นเจือปน ส่วนผลจากการศึกษาโดยกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราดพบว่า ขนาดของอนุภาคมีค่าเพิ่มขึ้นเมื่อเพิ่มอุณหภูมิแคลไซด์ หลังจากนั้นนำผงคอปเปอร์ออกไซด์ที่เตรียมได้มาอัดเม็ด และแยกเผาผนึกขึ้นรูปที่อุณหภูมิ 900°C และ 950°C เป็นเวลา 10 ชั่วโมง ในบรรยากาศ จากผลการศึกษาลักษณะสัณฐานวิทยาพื้นผิวของเซรามิกคอปเปอร์ออกไซด์ที่เตรียมได้พบว่า ขนาดของเกรนอยู่ในช่วง 2-3 2-11 และ 1-36 ไมโครเมตร สำหรับเซรามิกที่เตรียมจากผงที่ใช้ทางการค้า ผงที่ได้จากการสลายตัวทางความร้อน และผงที่ได้จากวิธีสารละลายตามลำดับ ผลการศึกษาสมบัติไดอิเล็กตริกในช่วงอุณหภูมิ -50°C ถึง 100°C และที่ความถี่ 100 Hz ถึง 1 MHz พบว่า วัสดุเซรามิกคอปเปอร์ออกไซด์ที่เตรียมได้มีค่าไดอิเล็กตริกสูงมากโดยมีค่าประมาณ $10^4 - 10^5$ ในช่วงความถี่ 1-100 kHz และพบพฤติกรรมการปลดปล่อยพลังงานคล้ายเดอบาย ในช่วงอุณหภูมิต่ำพฤติกรรมทางไดอิเล็กตริกดังกล่าวสามารถอธิบายได้โดยอาศัยแบบจำลองสเปกตรัมความต้านทานเชิงซ้อน ซึ่งประกอบไปด้วยส่วนประกอบภายนอก ได้แก่ อิเล็กโทรดและชั้นฉนวน และส่วนประกอบภายใน ได้แก่ เกรนและขอบเขตของเกรน การวิเคราะห์ผลการทดลองโดยใช้แบบจำลองดังกล่าว พบว่า ความต้านทานเชิงซ้อนของส่วนประกอบภายนอกมีค่ามากกว่าความต้านทานเชิงซ้อนของส่วนประกอบภายใน และค่าไดอิเล็กตริกของเซรามิกเหล่านี้ลดลงหลังจากนำไปเผาภายใต้บรรยากาศอาร์กอน และกลับคืนมาเพิ่มขึ้นอีกครั้งหลังจากนำกลับมา

เผาภายใต้บรรยากาศออกซิเจนที่อุณหภูมิ 700°C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง การลดลงและการเพิ่มขึ้นของค่าไดอิเล็กตริกมีความสัมพันธ์กับปริมาณออกซิเจนเวคเคนซี (ออกซิเจนไอออน) ในวัสดุคอปเปอร์ออกไซด์ และยังพบว่าค่าไดอิเล็กตริกของวัสดุคอปเปอร์ออกไซด์ที่เตรียมโดยวิธีการสลายตัวทางความร้อนมีค่าสูงกว่าวัสดุคอปเปอร์ออกไซด์ที่เตรียมจากผงคอปเปอร์ออกไซด์ที่ใช้ทางการค้า และที่เตรียมด้วยวิธีทางสารละลาย ส่วนค่าการสูญเสียทางไดอิเล็กตริกของวัสดุคอปเปอร์ออกไซด์ที่เตรียมด้วยวิธีการสลายตัวทางความร้อนมีค่าสูงกว่าวัสดุคอปเปอร์ออกไซด์ที่เตรียมจากผงคอปเปอร์ออกไซด์ในทางการค้าและที่เตียมจากวิธีทางสารละลาย นอกจากนี้ยังพบว่า ค่าคงที่ไดอิเล็กตริกมีค่าลดลงเมื่อเพิ่มความต่างศักย์และกระแสตรงระหว่างทำการวัดค่าคงที่ไดอิเล็กตริก ซึ่งการลดลงของค่าไดอิเล็กตริกนี้เกิดจาก ประจุอิสระได้รับพลังงาน และสามารถข้ามบ่อศักย์ขององค์ประกอบภายนอกของวัสดุคอปเปอร์ออกไซด์ จากการศึกษาผลของความเค้นอัดแกนเดี่ยว พบว่า ค่าคงที่ไดอิเล็กตริกและค่าการสูญเสียทางไดอิเล็กตริกของวัสดุคอปเปอร์ออกไซด์มีค่าเพิ่มขึ้นเมื่อเพิ่มขนาดความเค้นจนมีค่าสูงสุด และจากนั้นมีค่าลดลงเมื่อเพิ่มขนาดความเค้น พฤติกรรมทางไดอิเล็กตริกที่ขึ้นกับความเค้นนี้ สามารถอธิบายได้โดยการโพลาไรซ์ทางไฟฟ้าที่รอยต่อระหว่างอิเล็กโตรดกับผิวของวัสดุตัวอย่าง

สาขาวิชาฟิสิกส์ ลายมือชื่อนักศึกษา_____

ปีการศึกษา 2552 ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษา_____

ลายมือชื่ออาจารย์ที่ปรึกษาร่วม_____

THANIN PUTJUSO : GIANT DIELECTRIC PROPERTIES OF COPPER OXIDE CERAMICS. THESIS ADVISOR : ASSOC. PROF. PRAPUN MANYUM, D.Phil. 153 PP.

DIELECTRIC/COPPER OXIDE/SEM/XRD

This thesis is concerned with the study of the dielectric properties of CuO ceramics prepared from the CuO powder obtained from commercial, direct thermal decomposition (DT) and polymer pyrolysis solution route (PR) methods. The DT and PR prepared precursors were calcined at 500, 600 and 700°C in air for 6 h to obtained the crystalline CuO powders with the particle size in the range of 33 - 39 nm and 26 - 34 nm for the DT and PR powders, respectively. The particles size of the commercial crystalline powder is about 43 nm. XRD analysis of these powders shows main phase of the CuO. SEM micrographs reveal that the particle size of the powders increased with increasing calcination temperature. CuO ceramics are prepared from the synthesized powders by sintering. Sintering is conducted in air at 900°C and 950°C for 10 h. The grain sizes of the ceramics obtained from the sintering of the commercial, DT and PR powder are in the range of 2 - 3 μm, 2 - 11 μm and 1 - 36 μm, respectively. All of the sintered CuO ceramics show similar dielectric behavior at the temperature between -50 to 100°C at the frequency between 100 Hz to 1 MHz. Specifically, they exhibit a Debye-like relaxation and showed giant dielectric response with a giant dielectric constant of $\varepsilon' \sim 10^4$ - 10^5 in the frequency range of 1 - 100 kHz. To study the annealing effect on the dielectric properties, the obtained ceramics are then annealed in Ar atmosphere. The dielectric behavior of the as-, Ar-samples can be explained based on a impedance spectroscopy (IS) model. This impedance spectroscopy model and

its equivalent circuit consist of a series connection with external and internal part. From the fitting results with this model, it is found that the external resistance (R_{ext}) is higher than the internal resistance (R_{int}). The dielectric constant of these ceramics is decreased after annealing in argon, and can be increased again by re-annealing in oxygen at 700°C for 2 h. The decrease and increase of the dielectric constant are closely related to the concentration of the oxygen vacancies (oxygen ion) in the ceramics. The giant dielectric constant of the ceramics prepared from the DT powder is higher than those of the ceramics prepared from the commercial and PR powder. The dielectric loss tangent of the DT ceramics is higher than those of the other two ceramics. In addition, the dielectric constant is decreased with the increase in the dc-bias voltage since free charge carriers activate to overcome the potential well of the external part of CuO ceramics. The dielectric constant and dielectric loss tangent depend also on the uniaxial compressive stress. Both parameters increase to the maximum value with increasing the compressive stress. They then begin to decrease with further increasing of the compressive stress. This stress-dependent dielectric behavior can be ascribed based on the electrical polarization at interface between electrode and sample surface.

School of Physics

Academic Year 2009

Student's Signature _____

Advisor's Signature _____

Co-Advisor's Signature _____