

**ผลของอนุภาคระดับนาโนของเซอร์โคเนียมออกไซด์ต่อโครงสร้างจุลภาค ค่าความแข็ง  
แบบวิกเกอร์ และสมบัติไดอิเล็กทริกของเซรามิก PZT**  
คชาภรณ์ แสนจุ่ม และ ชมพูนุช วรางคณากุล\*

**Effect of zirconium oxide nanoparticles on microstructure, Vickers hardness and  
dielectric properties of PZT ceramics**

Kachaporn Sanjoom and Chompoonuch Warangkanagool\*

ภาควิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยนครสวรรค์ จังหวัดพิษณุโลก 65000

Corresponding author. E-mail: chompoonuchp@nu.ac.th

**บทคัดย่อ**

งานวิจัยนี้ได้ศึกษาผลของผงเซอร์โคเนียมออกไซด์ ( $ZrO_2$ ) ในระดับนาโนที่มีต่อโครงสร้างจุลภาค ค่าความแข็งแบบวิกเกอร์ และสมบัติไดอิเล็กทริกของเซรามิกเลดเซอร์โคเนตไททานเนต ( $PbZr_{0.52}Ti_{0.48}O_3$ : PZT) จากการวิเคราะห์ผงผลึก PZT ที่เผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิต่างๆ กัน ด้วยเทคนิคการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์พบเงื่อนไขที่เหมาะสมในการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ  $800\text{ }^{\circ}C$  นาน 2 ชั่วโมง เมื่อเติมผงเซอร์โคเนียมออกไซด์ในระดับนาโนลงในผงผลึก PZT ที่เผาแคลไซน์แล้วในสัดส่วนโดยปริมาตรร้อยละ 0 ถึง 2 เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ  $1200\text{ }^{\circ}C$  เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ตรวจสอบโครงสร้างจุลภาคด้วยกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราดหาขนาดของเกรนเฉลี่ยโดยวิธีจุดตัดบนเส้นตรง ทดสอบค่าความแข็งด้วยเทคนิคการวิเคราะห์ความแข็งแบบวิกเกอร์ สมบัติไดอิเล็กทริกทำการวัดด้วยเครื่อง LCR ที่ความถี่ 1 kHz พบว่าเซรามิก PZT ที่เติมสารเจือในระดับนาโนของ  $ZrO_2$  มีขนาดของเกรนลดลง มีค่าความแข็งสูงขึ้นตามปริมาณของสารเจือ  $ZrO_2$  แต่ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกและค่าการสูญเสียความร้อนทางไดอิเล็กทริกมีค่าลดลง

**คำสำคัญ:** อนุภาคระดับนาโนของเซอร์โคเนียมออกไซด์ เซรามิกเลดเซอร์โคเนตไททานเนต  
ความแข็งแบบวิกเกอร์ สมบัติไดอิเล็กทริก

### Abstract

In this research, the effect of zirconium oxide ( $ZrO_2$ ) nanoparticles on microstructure, Vickers hardness and dielectric properties of lead zirconate titanate ( $PbZr_{0.52}Ti_{0.48}O_3$ ; PZT) ceramics were investigated. The optimum calcinations temperature of PZT powders was found at  $800\text{ }^{\circ}C$  for 2 h according to result of X-ray diffraction. The  $ZrO_2$  nanoparticles were blended with the calcined PZT powder in ratios of between 0 and 2 vol% and sinter at  $1200\text{ }^{\circ}C$  for 2 h. Microstructure was examined by Scanning Electron Microscope (SEM). Vickers hardness was determined using a Vickers indentation technique. The dielectric properties were verified by LCR meter at 1 kHz. It was found that, the addition of  $ZrO_2$  nanoparticles could significantly reduce the average grain size of PZT ceramics. The Vickers hardness of the composites tended to improve with the addition of the  $ZrO_2$  nanoparticles but the dielectric constant and dielectric loss tend to decreased.

*Keywords:*  $ZrO_2$  nanoparticles, PZT ceramics, Vickers hardness, dielectric properties

### บทนำ

เลดเซอร์โคเนตไททานเนต (PZT) เป็นวัสดุที่ถูกนำมาใช้อย่างกว้างขวาง เช่น แอ็กทูเอเตอร์ (actuators) เครื่องสะท้อนเสียง (resonators) เครื่องตรวจจับ (sensors) ไมโครโฟน (microphone) และตัวเก็บประจุ (capacitors) เป็นต้น เนื่องจาก PZT มีสมบัติเพียโซอิเล็กทริกที่ดีเยี่ยม มีโครงสร้างแบบเพอร์รอฟสไกต์ (perovskite) เป็นสารประกอบที่เกิดจากสารเลดเซอร์โคเนต ( $PbZrO_3$ ) แสดงสมบัติเป็นแอนติเฟอร์โรอิเล็กทริก (antiferroelectric) ซึ่งมีโครงสร้างเป็นแบบออร์ทอโรมบิก (orthorhombic) กับสารเลดไททานเนต ( $PbTiO_3$ ) ซึ่งแสดงสมบัติเป็นเตตระโกนอล (tetragonal) สมบัติทางด้านไฟฟ้าของเลดเซอร์โคเนตไททานเนตนั้น แสดงสมบัติที่โดดเด่นมากในสัดส่วนของ Zr:Ti อยู่ที่ 52:48 หรือ 53:47 ซึ่งอยู่ ณ บริเวณที่เรียกว่ารอยต่อเฟสที่มีลักษณะเหมือนกัน (morphotropic phase boundaries: MPB) (Han *et al.*, 2000) สาร PZT ให้ค่าสัมประสิทธิ์เพียโซอิเล็กทริก (piezoelectric coefficient;  $d_{33}$ ) และค่าสภาพยอมสัมพัทธ์หรือค่าคงที่ไดอิเล็กทริก (relative permittivity or dielectric constant;  $\epsilon_r$ ) ที่สูง มีอุณหภูมิคูรีอยู่ที่  $390\text{ }^{\circ}C$  ทำให้สามารถใช้งานได้ดีที่อุณหภูมิสูง (Moulson and Herbert, 2003; Haertling, 1999) แต่เซรามิกเพียโซอิเล็กทริกที่เป็น PZT มีความทนทานต่อรอยแตกหัก และความเหนียวน้อยทำให้อายุการใช้งานของเซรามิกลดลง

ดังนั้นในงานวิจัยนี้จึงหาวิธีเพิ่มค่าความแข็งให้กับเซรามิก PZT เพื่อยืดอายุการใช้งานวัสดุที่ทำจากเซรามิกนี้ โดยเลือกการเติมสารเจือของ ZrO<sub>2</sub> ที่มีอนุภาคระดับนาโนเข้าไปในเซรามิก PZT (Tajima *et al.*, 1999) ในปริมาณต่างๆ กัน โดยมุ่งหวังให้มีการพัฒนาค่าความแข็งสูงขึ้น ขณะที่ค่าทางไฟฟ้าอย่างค่าคงที่ไดอิเล็กทริกจะไม่ลดลงมากนัก และยังคงมีค่าการสูญเสียความร้อนเนื่องจากไดอิเล็กทริกต่ำอยู่ โดยใช้วิธีการเตรียมแบบมิกซ์ออกไซด์แบบคั้งเดิม (Buchanan, 1986) ซึ่งเป็นวิธีการหนึ่งที่มีค่าใช้จ่ายไม่สูงมากนัก เมื่อเทียบกับวิธีอื่นๆ จึงทำให้เป็นที่นิยมใช้กันมาจนถึงปัจจุบัน

**ระเบียบวิธีการวิจัย**

ในการทดลองนี้ได้เตรียมเซรามิกเลดเซอร์โคเนตไททานเตด (PbZr<sub>0.52</sub>Ti<sub>0.48</sub>O<sub>3</sub>: PZT) โดยใช้สารตั้งต้นเลดออกไซด์ (PbO) เซอร์โคเนียมไดออกไซด์ (ZrO<sub>2</sub>) และไททานเนียมไดออกไซด์ (TiO<sub>2</sub>) ทำการบดผสมเปียกโดยใช้ลูกบดเซอร์โคเนียเป็นตัวบด และใช้เอทานอลเป็นตัวช่วยกระจายตัวของอนุภาค เป็นเวลา 24 ชั่วโมง จากนั้นนำสารผสมที่บดละเอียดแล้วมาทำให้แห้งแล้วคั่งขนาดโดยการร่อนผ่านตะแกรง นำผงผสมที่ได้ทำการเผาแคลไซน์ด้วยเตาไฟฟ้า ผลิตโดยบริษัท Lenton Furnances รุ่น 4279 ที่อุณหภูมิ 500-900 °C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง ด้วยอัตราการให้ความร้อน 5 °C/นาที วิเคราะห์การก่อเกิดเฟสโดยใช้เครื่องตรวจสอบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ (X-ray diffraction: XRD) รุ่น X'Pert ผลิตโดยบริษัท Philips ประเทศเนเธอร์แลนด์เพื่อหาอุณหภูมิที่เหมาะสมในการเผาแคลไซน์ นำผงผลิต PZT ที่เผาแคลไซน์แล้วมาผสมกับสารเจือ ZrO<sub>2</sub> ที่มีอนุภาคในระดับนาโน ในปริมาณร้อยละ โดยปริมาณเป็น 0.5, 1 และ 2 (หรือเขียนแทนเป็น PZT + 0.5, 1, 2 vol.%ZrO<sub>2</sub>) และผสมกับโพลีไวนิลแอลกอฮอล์ (Polyvinyl alcohol: PVA) ซึ่งเป็นสารยึดเหนี่ยวในปริมาณร้อยละ 1 โดยน้ำหนัก นำไปอัดขึ้นรูปให้เป็นทรงกระบอกที่มีขนาดเส้นผ่านศูนย์กลางประมาณ 10 mm และหนาประมาณ 1.5 mm โดยใช้เครื่องอัดระบบไฮดรอลิก (SPACAC) ด้วยความดันขนาด 40 MPa เป็นเวลานาน 25 - 30 วินาที แล้วเผาซินเตอร์ ณ อุณหภูมิ 1200 °C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง วิเคราะห์การก่อเกิดเฟสอีกครั้งด้วยเครื่อง XRD ตรวจสอบโครงสร้างจุลภาคด้วยเครื่อง SEM รุ่น LEO-1455VP จากประเทศอังกฤษคำนวณหาขนาดของเกรนเฉลี่ยด้วยวิธีจุดตัดบนเส้นตรง ทดสอบค่าความแข็งแบบวิกเกอร์โดยใช้เครื่องวัดค่าความแข็งในระดับจุลภาค โดยการนำเซรามิกที่ต้องการทดสอบมาขัดผิวหน้าให้มันวาวเป็นกระจก กดด้วยโหลดขนาด 300 กรัม เป็นเวลา 15 วินาที ท้าวผิวหน้าของสารตัวอย่าง นำมาหาค่าความแข็งแบบวิกเกอร์ในหน่วย GPa ตามสมการที่ (1) (Instructure Manual, Matsuzawa Seiki Co.,LTD.) แล้วนำมาหาค่าเฉลี่ย

$$H_v = (1854.4) \frac{P}{d^2} \tag{1}$$

เมื่อ H<sub>v</sub> คือ ค่าความแข็งในหน่วยของวิกเกอร์ (GPa)

P คือ โหลดที่ให้แก่หัวกด (N)

d คือ ค่าความยาวเฉลี่ยของเส้นทแยงมุมของรอยกด ( $\mu\text{m}$ )

สำหรับสมบัติไดอิเล็กทริกนั้น ทำการวัดโดยนำเซรามิกที่ผ่านการเผาซินเตอร์แล้วมาขัดผิวหน้าให้เรียบและทำขั้วไฟฟ้าด้วยกาวเงิน มาวัดค่าความจุไฟฟ้า และค่าการสูญเสียความร้อนทางไดอิเล็กทริกของเซรามิก ด้วยเครื่อง LCR (Precision LCR meter) รุ่น E 4980 A, 20 Hz – 2 MHz บริษัท Agilent ประเทศญี่ปุ่นที่มีความถี่ 1 kHz ณ อุณหภูมิห้อง เพื่อคำนวณหาค่าคงที่ไดอิเล็กทริกตามสมการ (2)

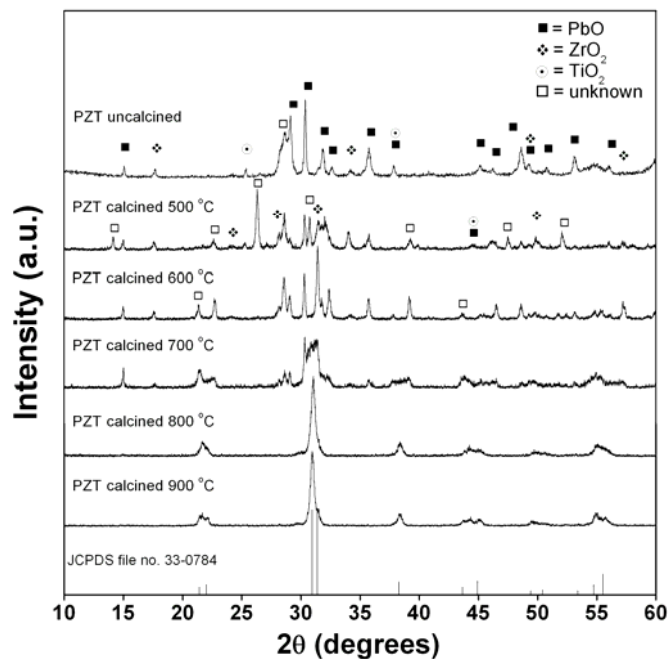
$$\epsilon_r = \frac{tC}{\epsilon_0 A} \quad (2)$$

โดยที่  $\epsilon_r$  เป็นค่าคงที่ไดอิเล็กทริกของชิ้นงาน

$\epsilon_0$  เป็นค่าคงที่ไดอิเล็กทริกของสุญญากาศมีค่าประมาณ  $8.854 \times 10^{-15}$  F/mm

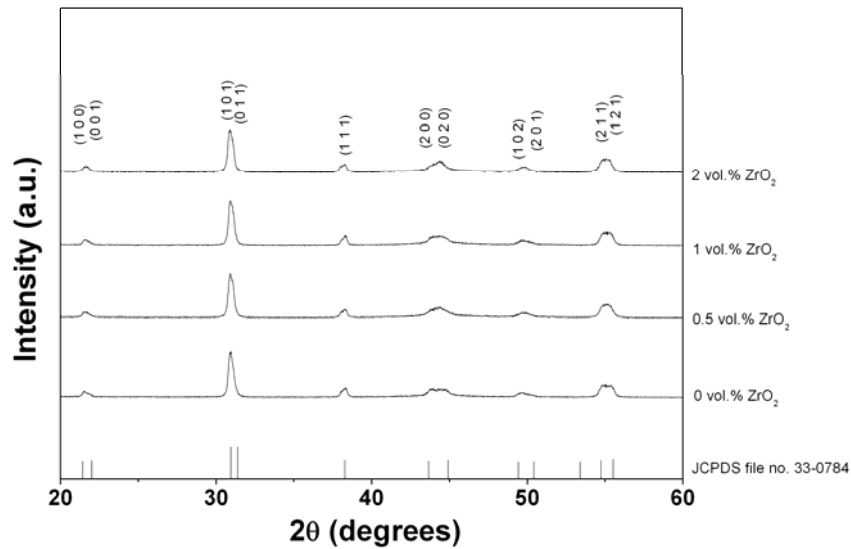
C เป็นค่าความจุไฟฟ้า, t เป็นความหนาของชิ้นงาน และ A เป็นพื้นที่หน้าตัดของชิ้นงาน

#### ผลการทดลองและการอภิปรายผล



รูป 1 รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของผง PZT ที่ยังไม่เผาแคลไซน์ และผงผลึก PZT ที่เผาแคลไซน์ ณ อุณหภูมิ 500-900 °C นาน 2 ชั่วโมง

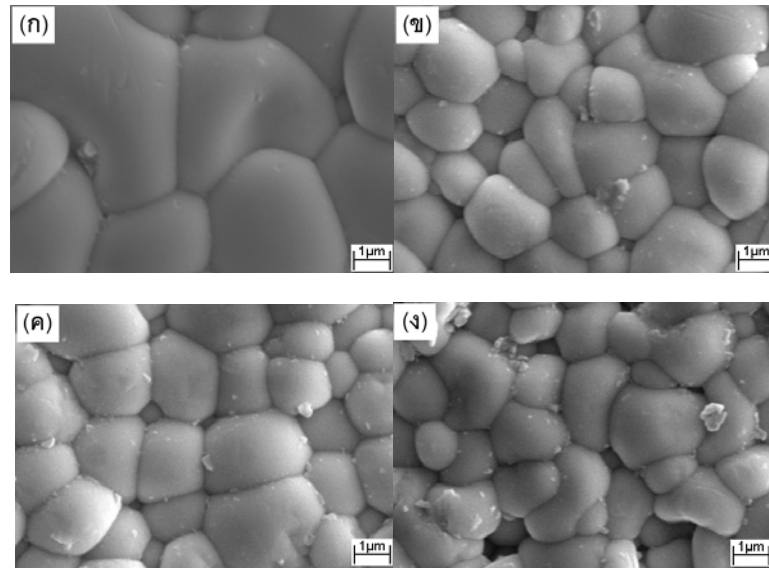
จากรูป 1 เป็นการเปรียบเทียบรูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของผง PZT ที่ยังไม่เผาแคลไซน์ และผงผลึก PZT ที่เผาแคลไซน์ ณ อุณหภูมิ 500-900 °C นาน 2 ชั่วโมง พบว่าผงผลึก PZT ที่เผาแคลไซน์ ณ อุณหภูมิ 800 °C และ 900 °C มีรูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์สอดคล้องกับข้อมูลมาตรฐาน PZT ในฐานข้อมูล 33-0784 (Powder Diffraction File, 2000) ส่วนผงผลึกที่เผาแคลไซน์ ณ อุณหภูมิต่ำกว่า 800 °C นั้น การฟอร์มตัวเป็นผงผลึก PZT ยังไม่สมบูรณ์ จึงยังมีเฟสแปลกปลอม และเฟสของสารตั้งต้นอยู่ ดังนั้นจึงเลือกอุณหภูมิที่เหมาะสมในการเผาแคลไซน์ที่อุณหภูมิ 800 °C



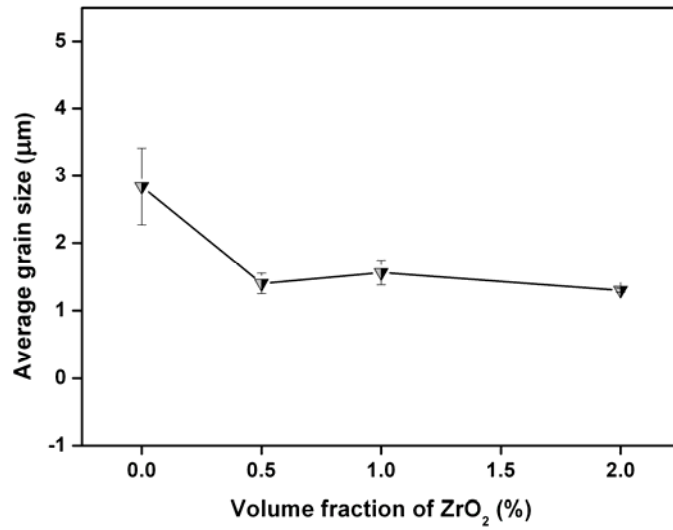
รูป 2 รูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของเซรามิก PZT + (0-2) vol.% ZrO<sub>2</sub> เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1200 °C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง

จากรูป 2 จะเห็นว่ารูปแบบการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของเซรามิก PZT ทั้งที่ไม่เติมสารเจือในระดับนาโน ZrO<sub>2</sub> และที่เติมสารเจือนี้ในปริมาณ 0.5, 1 และ 2 vol.% ให้รูปแบบเช่นเดียวกัน ยังคงสอดคล้องกับข้อมูลมาตรฐานของ PZT ในฐานข้อมูลหมายเลข 33-0784 (Powder Diffraction File, 2000) และไม่พบเฟสของ ZrO<sub>2</sub> ทั้งนี้เนื่องจากปริมาณของสารเจือ ZrO<sub>2</sub> นั้นน้อยกว่าที่เครื่อง XRD จะตรวจสอบได้ เช่นเดียวกับผงผลึก PZT เป็นผลการวิเคราะห์สารด้วยการเลี้ยวเบนของรังสีเอกซ์ของเซรามิก PZT ที่ไม่เติมสารเจือแต่เมื่อนำเซรามิก PZT + (0-2) vol.% ZrO<sub>2</sub> ที่เผาซินเตอร์ได้ทั้งหมดมาตรวจสอบลักษณะพื้นฐานวิทยาศาสตร์ด้วยกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราดพบว่าขนาดเกรนเฉลี่ยของเซรามิก PZT ที่เติมสารเจือนี้ในปริมาณเพียงเล็กน้อยก็ทำให้มีขนาดของเกรนเล็กลงอย่างเห็นได้

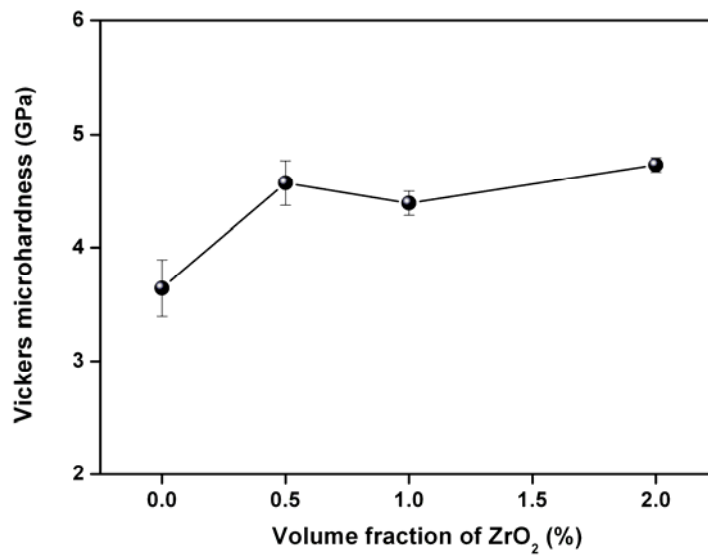
ชุดดังรูป 3 ซึ่งเป็นภาพถ่าย SEM บริเวณผิวหน้าของเซรามิก PZT + (0-2) vol.% ZrO<sub>2</sub> โดยขนาดของเกรนเฉลี่ยจะลดลงจากประมาณ 3  $\mu\text{m}$  เหลือประมาณ 1.5  $\mu\text{m}$  ดังกราฟความสัมพันธ์ระหว่างขนาดของเกรนเฉลี่ยกับปริมาณสารเจือ ZrO<sub>2</sub> ที่เติมลงในเซรามิก PZT ในรูป 4 จึงได้ว่าสารเจือในระดับนาโนของ ZrO<sub>2</sub> นั้น ไปทำการยับยั้งหรือขัดขวางการเติบโตของเกรนของในเซรามิก PZT นั้นเอง สอดคล้องกับผลงานวิจัยของกลุ่ม Tajima และกลุ่มของ Puchmark (Tajima *et al.*, 2000; Puchmark *et al.*, 2006) ซึ่งทั้งสองกลุ่มได้ศึกษาการเติมสารเจือในระดับนาโนของ Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ลงในเซรามิก PZT แล้วทำให้ขนาดของเกรนเฉลี่ยของเซรามิก PZT มีการลดลงเช่นกัน



รูป 3 ภาพถ่ายจากกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราดที่บริเวณผิวหน้าของเซรามิก PZT ที่เติมสารเจือในระดับนาโน ZrO<sub>2</sub> ในปริมาณต่างๆ กัน เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ 1200 °C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง: (ก) PZT ไม่เติมสารเจือ, (ข) PZT+0.5 vol.% ZrO<sub>2</sub>, (ค) PZT+1 vol.% ZrO<sub>2</sub> และ (ง) PZT+2 vol.% ZrO<sub>2</sub>

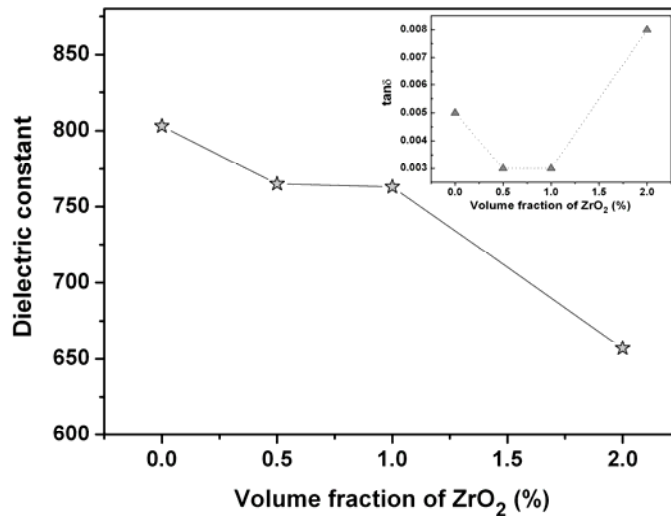


รูป 4 ขนาดเกรนเฉลี่ยของเซรามิก PZT + (0-2) vol.% ZrO<sub>2</sub> เผาซินเตอร์ ณ อุณหภูมิ 1200 °C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง



รูป 5 ความแข็งแบบวิกเกอร์ของเซรามิก PZT + (0-2) vol.% ZrO<sub>2</sub> เผาซินเตอร์ ณ อุณหภูมิ 1200 °C เป็นเวลา 2 ชั่วโมง

เมื่อนำเซรามิก PZT ที่เติมสารเจือระดับนาโนของ  $ZrO_2$  ในปริมาณต่างๆ กัน มาหาค่าความแข็งแบบวิกเกอร์ พบว่าค่าความแข็งของเซรามิก PZT นี้ มีแนวโน้มเพิ่มขึ้นตามปริมาณสารเจือ  $ZrO_2$  ดังรูป 5 ที่เป็นเช่นนี้เนื่องมาจาก สารเจือ  $ZrO_2$  มีสมบัติความแข็งที่ดี เมื่อเทียบกับขนาดของเกรนเฉลี่ย พบว่าขนาดของเกรนเฉลี่ยเล็กลงในขณะที่ค่าความแข็งเพิ่มขึ้น ความสัมพันธ์นี้อธิบายได้ว่า ขนาดเกรนที่เล็กลงส่งผลให้มีจำนวนขอบเกรนมากขึ้น ซึ่งขอบเกรนจะทำหน้าที่ขัดขวางการเคลื่อนที่ของการเปลี่ยนตำแหน่ง (dislocation) ถ้าหากในผลึกมีทิศทางที่ต่างกันมาก จะทำให้ขอบเกรนมีความสามารถในการขวางการเคลื่อนที่ของรอยแตกได้ดี ส่งผลให้เซรามิกมีความแข็งมากขึ้น (Meyers and Chawla, 1999)



รูป 6 ค่าคงที่ไดอิเล็กทริก และค่าการสูญเสียความร้อนเนื่องจากไดอิเล็กทริกของเซรามิก PZT ที่เติมสารเจือในปริมาณต่างๆ เผาซินเตอร์ที่อุณหภูมิ  $1200^{\circ}C$  เป็นเวลา 2 ชั่วโมง

วัดสมบัติไดอิเล็กทริก โดยการวัดค่าความจุไฟฟ้าของเซรามิก PZT ที่เติมสารเจือ  $ZrO_2$  ในปริมาณต่างๆ กัน ที่ความถี่ 1 kHz อุณหภูมิห้อง แล้วนำมาคำนวณเป็นค่าคงที่ไดอิเล็กทริก ดังสมการ (2) และวัดค่าการสูญเสียความร้อนเนื่องจากไดอิเล็กทริกของเซรามิกในคราวเดียวกัน นำมาเขียนกราฟตามรูป 6 ซึ่งพบว่าเมื่อเติมสารเจือ  $ZrO_2$  ลงในเซรามิกเพียง 0.5 และ 1 vol.% ทำให้ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกของเซรามิก PZT ลดลงประมาณ 4.7% และค่าการสูญเสียความร้อนเนื่องจากไดอิเล็กทริกลดลงอย่างมากถึง 40% เมื่อเทียบกับเซรามิกที่ไม่เติมสารเจือ แต่เมื่อปริมาณของสารเจือ  $ZrO_2$  ในเซรามิก PZT เพิ่มขึ้นเป็น 2 vol.% ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกที่ได้ลดลงไปมาก ค่าการสูญเสียความร้อนทางไดอิเล็กทริกกลับเพิ่มมาก



### สรุปผลการทดลอง

จากผลของการเติมสารเจือในระดับนาโนของ  $ZrO_2$  ลงในเซรามิก PZT นี้ จะพบว่าเมื่อเติมสารเจือ  $ZrO_2$  ในปริมาณน้อยๆ เพียง 0.5 ถึง 1 vol.% ทำให้โครงสร้างจุลภาคของเซรามิก PZT เปลี่ยนแปลงขนาดของเกรนให้เล็กลง และเพิ่มค่าความแข็งได้ดีขึ้น ขณะเดียวกันค่าการสูญเสียความร้อนทางไดอิเล็กทริกก็ลดลง ถึงแม้ว่าค่าคงที่ไดอิเล็กทริกจะลดลงตามแต่ลดลงไม่เกิน 5% แต่เมื่อเพิ่มปริมาณสารเจือเป็น 2 vol.% จะทำให้เซรามิก PZT มีค่าความแข็งเพิ่มขึ้นอีกเล็กน้อย แต่ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกลดลงมาก ส่วนค่าการสูญเสียความร้อนทางไดอิเล็กทริกกลับเพิ่มขึ้น ดังนั้นปริมาณสารเจือในระดับนาโนของ  $ZrO_2$  ที่เหมาะสมสำหรับเซรามิก PZT นี้ จึงไม่เกิน 1 vol.%

### กิตติกรรมประกาศ

งานวิจัยนี้ได้รับทุนอุดหนุนการวิจัยจากมหาวิทยาลัยนเรศวร งบประมาณแผ่นดิน ปีงบประมาณ 2554 ได้รับความสะดวกในการใช้เครื่องมือทดลอง ณ ภาควิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยนเรศวร และผู้วิจัยขอกราบขอบพระคุณศาสตราจารย์เกียรติคุณ ดร.ทวีตันฉศิริ และศาสตราจารย์ ดร.กอบวุฒิ รุจิงานกุล ที่อำนวยความสะดวกในการใช้เครื่องมือวัดในห้องปฏิบัติการอิเล็กทรอนิกส์ โพรเซรามิก ภาควิชาฟิสิกส์และวัสดุศาสตร์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยเชียงใหม่

### เอกสารอ้างอิง

- Buchanan, R.C. (1986). *Ceramic Materials for Electronics: Processing, Properties and Applications*, (1<sup>st</sup> ed.), New York: Marcel Dekker, Inc.
- Haertling, G.H. (1999). Ferroelectric ceramics: history and technology. *J. Am. Ceram. Soc.*, 82, 797-818.
- Han, K.R., Koo, H.J., Hong, M.J. and Lim, C.S. (2000). Simple synthesis of submicrometer lead titanate powder by precipitation of  $TiO_2$  precursor on  $PbO$  particulates. *J. Am. Ceram. Soc.*, 83, 971-973.
- Instructure Manual, Microhardness Tester MXT-  $\alpha$ 3, MXT-  $\alpha$ 7, MXT-  $\alpha$ 3e, MXT-  $\alpha$ 7e, Matsuzawa Seiki Co., LTD.
- Meyers, M.A. and Chawla, K.K. (1999). *Mechanical Behaviors of Materials*, Prentice-Hall International, Inc.

- Moulson, A.J. and Herbert, J.M. (2003). *Electroceramics: Material, Properties and Applications*, (2<sup>nd</sup> ed.), Chapman & Hall, London.
- Powder Diffraction File, Card No. 33-0784. Joint Committee for Powder Diffraction Standards (JCPDS) PDF-4. (2000). International Centre for Diffraction Data (ICDD).
- Puchmark, C., Rujijanagul, G., Jiansirisomboon, S., Tunkasiri, T., Vittayakorn, N., Comyn, T. and Milne, S.J. (2006). Mechanical property evaluation of PZT/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> composites prepared by a simple solid-state mixed oxide method. *Curr. Appl. Phys.*, 6, 323–326.
- Tajima, K., Hwang, H.J., Sando, M. and Niihara, K. (1999). PZT nanocomposites reinforced by small amount of oxides. *J. Eur. Ceram. Soc.*, 19, 1179-1182.
- Tajima, K., Hwang, H.J., Sando, M. and Niihara, K. (2000). Electric-Field-Induced Crack Growth Behavior in PZT/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Composites. *J. Am. Ceram. Soc.*, 83, 651-653.