# สมบัติเชิงกลแบบพลวัตและสมบัติเชิงแม่เหล็กไฟฟ้าของพอลิยูรีเทนคอมโพสิตที่ผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์

# The dynamic mechanical and electromagnetic properties of cobalt ferrite polyurethane composite

**อนุชิต ฮันเย็ก**[1*]

Anuchit Hunyek[1*]

**บทคัดย่อ**

โคบอลต์เฟอร์ไรต์ที่สังเคราะห์ด้วยวิธีโซล-เจลผสมกับพอลิยูรีเทน (PU) ในขั้นตอนการทำปฏิกิริยาพอลิเมอไรซ์ ได้ผลิตภัณฑ์เป็นพอลิยูรีเทนคอมโพสิต ศึกษาสัณฐานวิทยาด้วยกล้อง SEM พบการกระจายตัวของกลุ่มโคบอลต์เฟอร์ไรต์ในเนื้อพื้นพอลิยูรีเทนและมีขนาดใหญ่ขึ้น เมื่อปริมาณโคบอลต์เฟอร์ไรต์เพิ่มขึ้น ส่วนการศึกษาอิทธิพลของอุณหภูมิต่อค่ามอดูลัสด้วยเครื่อง DMA ที่ความถี่คงที่ แสดงให้เห็นการลดลงของค่ามอดูลัสตามอุณหภูมิที่เพิ่มขึ้น ขณะที่สมบัติเชิงแม่เหล็กของพอลิยูรีเทนคอมโพสิตค่าแมกนีไตเซชันที่เพิ่มเป็นเชิงเส้นกับปริมาณโคบอลต์เฟอร์ไรต์ และได้ค่าลบล้างทางแม่เหล็กที่สูงกว่าโคบอลต์เฟอร์ไรต์ที่สังเคราะห์ขึ้น นอกจากนี้ค่าสภาพยอมทางไฟฟ้าของพอลิยูรีเทนคอมโพสิตลดลงที่ความถี่ต่ำๆ และค่อนข้างคงที่เมื่อความถี่สูงขึ้น แต่อิทธิพลจากปริมาณโคบอลต์เฟอร์ไรต์ทำให้สภาพยอมทางไฟฟ้าที่ความถี่คงที่ใดๆ เพิ่มขึ้นเป็นเชิงเส้นเนื่องจากการสะสมประจุที่ผิวเพิ่มขึ้นและยังช่วยปรับเปลี่ยนค่าสภาพให้ซึมได้ทางแม่เหล็กของพอลิยูรีเทนอีกด้วย

**คำสำคัญ**: โคบอลต์เฟอร์ไรต์ พอลิยูรีเทน คอมโพสิต

**Abstract**

The cobalt ferrites were synthesized by sol-gel method, mixed with polyurethane (PU) in the process of polymerization. The product was PU composite. The morphology was studied by SEM, the results showed the distribution of cobalt ferrites cluster in PU matrix. Particularly, the cluster sizes were increased with increasing amounts of cobalt ferrites. The modulus was measured by DMA with fixed frequency, were decreased with increasing temperature. While, the magnetic properties of PU composite, the magnetization was linearly increased with increasing amount of cobalt ferrites. The coercivity of PU composite was higher than the synthetic cobalt ferrite. In addition, the permittivity of PU composite showed some decrease at low frequency, and then became relatively stable at higher frequency. The increasing amount of cobalt ferrite causes the permittivity to increase linearly with any fixed frequency, due to the enhanced surface charges accumulation. Lastly, the permeability of PU was also modified by cobalt ferrites.

**Keywords**: cobalt ferrite, polyurethane, composites

[1] คณะศิลปศาสตร์ มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีราชมงคลรัตนโกสินทร์ วิทยาเขตวังไกลกังวล ประจวบคีรีขันธ์ 77110

[1] Faculty of Liberal Arts, Rajamangala University of Technology Rattanakosin, Wang Klai Kangwon Campus, Prachuap Khiri Khan 77110, Thailand

* Corresponding author. E-mail: ahunyek@gmail.com, anuchit.hun@rmutr.ac.th

## บทนำ

การสังเคราะห์วัสดุคอมโพสิตเป็นการผสม (Blend) วัสดุตั้งแต่ 2 ประเภทขึ้นไป เพื่อนำคุณสมบัติเด่นของวัสดุแต่ละประเภทมาใช้ประโยชน์ร่วมกัน คอมโพสิตของแม่เหล็กและพอลิเมอร์ (magnetic polymer composites) เป็นวัสดุที่ผสานสมบัติที่เป็นเอกลักษณ์ของแม่เหล็กเข้ากับสมบัติเชิงกลที่โดดเด่นของพอลิเมอร์ (combined property) สามารถประยุกต์ใช้ได้กว้างขวาง และยังแสดงสมบัติที่เกิดขึ้นเฉพาะ (product property) ในคอมโพสิตของแม่เหล็กและพอลิเมอร์เท่านั้น เช่น ปรากฏการณ์ที่พอลิเมอร์สามารถปรับเปลี่ยนรูปร่างจากอิทธิพลของสนามแม่เหล็ก (magnetorheological effect) เป็นต้น และสืบเนื่องจากการใช้งานอุปกรณ์อิเล็กทรอนิกส์และอุปกรณ์สื่อสารอย่างแพร่หลายในปัจจุบัน ทำให้คลื่นแม่เหล็กไฟฟ้าในช่วงความถี่คลื่นวิทยุและไมโครเวฟส่งผลกระทบต่อการทำงานของอุปกรณ์ดังกล่าวใน 2 ลักษณะ (Winder, 2008) ได้แก่ ความสามารถของอุปกรณ์ไฟฟ้าอิเล็กทรอนิกส์ที่ทำงานได้โดยไม่ก่อให้เกิดคลื่นแม่เหล็กไฟฟ้ารบกวน (electromagnetic compatibility, EMC) และความสามารถของอุปกรณ์ไฟฟ้าอิเล็กทรอนิกส์ที่ทนต่อการถูกรบกวนจากคลื่นแม่เหล็กไฟฟ้าภายนอก (electromagnetic interference, EMI) จากปัญหานี้ทำให้ตัวดูดกลืนคลื่นแม่เหล็กไฟฟ้า (electromagnetic wave absorber) มีบทบาทสำคัญในกระบวนการผลิตและการใช้งานอุปกรณ์ไฟฟ้าอิเล็กทรอนิกส์ เพื่อลดผลกระทบจาก EMC และ EMI

ขณะที่โคบอลต์เฟอร์ไรต์ (cobalt ferrite) เป็นวัสดุแม่เหล็กแบบซอฟต์ที่ง่ายต่อการทำให้เกิดหรือหมดสภาวะแม่เหล็ก ด้วยการแมกนีไตซ์หรือดีแมกนีไตซ์ตามลำดับ มีสมบัติสำคัญ คือ ค่าสภาพยอมทางไฟฟ้า (permittivity) และค่าสภาพให้ซึมได้ทางแม่เหล็ก (permeability) และแมกนีไตเซชันอิ่มตัวสูง ส่วนค่าลบล้างทางแม่เหล็กต่ำเมื่อแมกนีไตซ์หรือดีแมกนีไตซ์ซ้ำๆ กันจะมีการสูญเสียพลังงานจากฮีสเทอรีซีส (Hysteresis) น้อย นิยมใช้เป็นชิ้นส่วนในอุปกรณ์ที่ใช้งานที่ความถี่สูง เพราะสามารถลดการสูญเสีย เนื่องจากกระแสไหลวน (eddy current) ที่เกิดขึ้นเนื่องจากผลของการเปลี่ยนแปลงทางแม่เหล็กได้ดี และสามารถดูดกลืนคลื่นแม่เหล็กไฟฟ้ารวมถึงคลื่นวิทยุความถี่สูง และคลื่นไมโครเวฟได้ (Liu *et al*., 2014) แต่ตัววัสดุโคบอลต์เฟอร์ไรต์ยังขาดความยืดหยุ่นสามารถแตกหักได้ง่าย รองรับความเค้นได้น้อย ส่วนพอลิยูรีเทน (polyurethane, PU) มีโครงสร้างที่ได้จากกระบวนการพอลิเมอไรเซชันแบบขั้นของไดไอโซไซยาเนต (diisocyanate) ที่เป็นส่วนแข็ง (hard segment) กับพอลิออล (polyol) ที่เป็นส่วนอ่อน (soft segment) ภายในโครงสร้างของสายโซ่โมเลกุล และส่งผลให้เกิดผลิตภัณฑ์ที่มีสมบัติหลากหลายจากการเปลี่ยนอัตราส่วนของไดไอโซไซยาเนตและพอลิออล ความหลากหลายมีความสำคัญต่อผลิตภัณฑ์ในรูปแบบต่างๆ ได้แก่ โฟม เส้นใย กาว หรืออิลาสโตเมอร์ ฯลฯ ซึ่งสามารถสังเคราะห์ได้ด้วยปฏิกิริยาพอลิเมอไรซ์

ดังนั้นจึงมีความสนใจในการสังเคราะห์และวิเคราะห์วัสดุคอมโพสิต ที่ใช้เป็นวัสดุดูดกลืนคลื่นวิทยุความถี่สูงและคลื่นไมโครเวฟ ซึ่งสามารถลดผลกระทบของ EMC และ EMI โดยเลือกคอมโพสิตที่เตรียมจากผงแม่เหล็กโคบอลต์เฟอร์ไรต์กับพอลิยูรีเทนเพราะพอลิยูรีเทนเป็นกลุ่มเทอร์โมพลาสติกอิลาสโตเมอร์ที่มีจุดเด่นคือ เมื่อผสมกับผงแม่เหล็กเฟอร์ไรต์ที่เป็นเซรามิกส์ จะช่วยให้แม่เหล็กเฟอร์ไรต์มีกระบวนการ

แปรรูปง่ายคล้ายพลาสติก และยืดหยุ่นบิดงอได้เหมือนยาง สามารถผลิตชิ้นงานที่ซับซ้อนได้สะดวกมากขึ้น และจากการเปลี่ยนอัตราส่วนของไดไอโซ-ไซยาเนตและพอลิออลที่ส่งผลต่อสถานะของวัสดุคอมโพสิต จึงสามารถที่จะทำวัสดุคอมโพสิตให้สามารถใช้งานตามสถานะที่ต้องการได้

## วิธีการศึกษา

สังเคราะห์โคบอลต์เฟอร์ไรต์ด้วยวิธีโซล-เจล (Hunyek *et al*., 2011) โดยการเติมโคบอลต์ไนเตรท (Sigma Aldrich, 99.90%) และไอรอนไนเตรท (Sigma Aldrich, 99.95%) ตามสูตร $CoFe_2O_4$ ลงในกาวน้ำยี่ห้อม้า (Horse) ผลิตโดยบริษัทนานมีอุตสาหกรรม จำกัด กวนทิ้งไว้ประมาณ 3 ชั่วโมง เพื่อให้ความเข้มข้นที่ส่งผลต่อความหนืดในปฏิกิริยาคงที่ และเพิ่มอุณหภูมิเป็น 80 องศาเซลเซียส จนได้ผลิตภัณฑ์ที่แห้งสนิทนำเจลที่แห้งสนิทเผาที่อุณหภูมิ 800 องศาเซลเซียส เป็นเวลา 4 ชั่วโมง เมื่ออุณหภูมิลดลงจนถึงอุณหภูมิห้อง จะได้ผลิตภัณฑ์เป็นโคบอลต์เฟอร์ไรต์ นำมาบดละเอียดแล้วนำไปหา XRD pattern ด้วยเครื่อง XRD ยี่ห้อ Philips รุ่น X'Pert MPD ซึ่งใช้ทองแดงเป็นเป้าสำหรับกำเนิดรังสีเอ็กซ์ ($K_\alpha$, wavelength = 1.54058°A) ความต่างศักย์ระหว่างขั้วแคโทดกับเป้า 40 กิโลโวลต์ สแกนมุม $2\theta$ จาก 10 ถึง 80 องศา เพื่อยืนยันเนื้อของโคบอลต์เฟอร์ไรต์โดยยอดสูงสุดที่ได้ สามารถคำนวณขนาดผลึก (crystallite sizes) แล้ววิเคราะห์หากราฟฮีสเทอรีซีสลูปจากเครื่องวัดสมบัติแม่เหล็กโดยวิธีการสั่นตัวอย่างภายใต้สนามแม่เหล็ก (VSM) ระหว่าง -10 kOe และ +10 kOe ความถี่การสั่น 42 เฮิรตซ์ ซึ่งเป็นเครื่องที่พัฒนาขึ้นเองโดยนักวิจัยของภาควิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยเกษตรศาสตร์ วิทยาเขตบางเขน เพื่อให้เกิดแมกนีไตซ์และดีแมกนีไตซ์จนได้กราฟฮีสเทอรีซีสลูป

นำโคบอลต์เฟอร์ไรต์ที่ผ่านการวิเคราะห์สมบัติความเป็นแม่เหล็กแล้วผสมกับพอลิยูรีเทนในระหว่างขั้นตอนการทำปฏิกิยาพอลิเมอไรซ์ของไดไซโซไซยาเนต (disocyanate) ที่เป็นส่วนแข็งกับพอลิออล (polyol) ที่เป็นส่วนอ่อน สัดส่วน 0, 15, 30 และ 45 เปอร์เซ็นต์ของมวลรวมของไดไอโซไซยาเนตและพอลิออลได้เป็นตัวอย่างพอลิ-ยูรีเทน ปราศจากการผสมโคบอลต์-เฟอร์ไรต์ (PU-CF00) พอลิยูรีเทนผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์ 15 เปอร์เซ็นต์ (PU-CF15) พอลิยูรีเทนผสมโคบอลต์-เฟอร์ไรต์ 30 เปอร์เซ็นต์ (PU-CF30) และพอลิยูรีเทนผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์ 45 เปอร์เซ็นต์ (PU-CF45) ตามลำดับ เริ่มต้นด้วยการกระจายตัวโคบอลต์เฟอร์ไรต์ในน้ำมันซิลิโคนแล้วผสมกับพอลิออลน้ำหนัก 20 กรัม เพิ่มอุณหภูมิ เป็น 70-75 องศาเซลเซียส กวนทิ้งไว้ประมาณ 10 นาที เติมไดไอโซไซยาเนตลงไป 2.1 กรัม กวนต่อเนื่องโดยไม่ให้เกิดฟองอากาศประมาณ 15 นาที จึงเติมสารตัวเร่ง รอจนกระทั่งสารเริ่มมีความหนืดแล้วเทลงในเบ้าที่มีความลึก 1 มิลลิเมตร ปิดเบ้าทิ้งไว้จนแห้งสนิท (Sirisathitkul *et al*., 2010) นำออกจากเบ้ามาตัดเป็นชิ้นทดสอบสมบัติเชิงกลแบบพลวัตด้วยเครื่อง DMA ยี่ห้อ Perkin elmer รุ่น DMA 8000 เพื่อศึกษาการให้แรงกระทำต่อคอมโพสิตด้วยความถี่ 1 เฮิรตซ์ ช่วงอุณหภูมิห้อง -180 องศาเซลเซียส ตรวจสอบลักษณะทางสัณฐานวิทยาด้วยกล้องจุลทรรศอิเล็กตรอนแบบส่องกราด (SEM) ยี่ห้อ JEOL รุ่น 5800LV เพื่อดูการกระจายตัวและความเข้ากันได้ วิเคราะห์กราฟฮีสเทอรีซีสลูปที่ได้จากเครื่อง VSM และวัดสภาพยอม

ทางไฟฟ้าและสภาพให้ซึมได้ทางแม่เหล็กด้วยเครื่องวิเคราะห์ความต้านทานเชิงซ้อน (impedance analyzer) ยี่ห้อ Hewlett-Packard รุ่น HP16453A ช่วงความถี่ 1 เมกะเฮิรตซ์ - 1 กิกะเฮิรตซ์ เพื่อศึกษาสมบัติเชิงแม่เหล็กไฟฟ้าของพอลิยูรีเทนคอมโพสิต

## ผลการศึกษาและอธิปรายผล

1. ผลการศึกษาผงโคบอลต์เฟอร์ไรต์

1.1 ผลการวิเคราะห์เนื้อจากกราฟที่ได้จากเครื่อง XRD

จากยอดของรังสีเอ็กซ์ตาม (Figure 1) สามารถเทียบกับฐานข้อมูลอ้างอิง JCPDF 22-1086 ว่าตัวอย่างเฟอร์ไรต์ที่สังเคราะห์ขึ้นนั้น เกิดเนื้อของโคบอลต์-เฟอร์ไรต์ และมีโครงสร้างผลึกแบบสปินเนลลูกบาศก์ โดยยอดที่มุม 30.1°, 35.4°, 37.0°, 43.0°, 53.4°, 56.9° และ 62.6° สอดคล้องกับการเลี้ยวเบนจากระนาบ (220) (311) (222) (400) (422) (511) และ (440) ตามลำดับ ปรากฏเพียงยอดที่แสดงเนื้อของโคบอลต์-เฟอร์ไรต์ โดยไม่ปรากฏยอดที่แสดงถึงการเจือปนของเนื้อสารอื่นๆ จึงสามารถคำนวณขนาดจากระนาบการเลี้ยวเบน (311) ของ XRD pattern โดยใช้สมการของเชอเรอร์ (Scherrer equation) ดังสมการที่ (1) ได้ขนาดผลึกที่ประมาณ 57.7 นาโนเมตร

$$d = \frac{0.9\lambda}{\beta \cos\theta_B} \qquad (1)$$

เมื่อ $\lambda$ ความยาวคลื่นของรังสีเอ็กซ์

$\beta$ full width at half maximum (FWHM)

1.2 ผลการวิเคราะห์กราฟฮีสเทอรีซีสลูปที่ได้จากเครื่อง VSM

จากกราฟฮีสเทอรีซีสลูป (Figure 2) แสดงความเป็นแม่เหล็กเฟร์รี เนื่องจากกลุ่มของอนุภาคเฟอร์ไรต์ที่มีการแมกนีไตเซชันไม่อิ่มตัวในสนามแม่เหล็กประมาณ 10 kOe แต่ประมาณเป็นค่าแมกนีไตเซชันอิ่มตัว ได้ค่าพารามิเตอร์แม่เหล็ก คือ ค่าลบล้างทางแม่เหล็ก (จุดที่กราฟตัดแกน x ในจตุภาคที่ 2) เป็น 803.5 Oe และ squareness (สัดส่วนของค่าแมกนีไตเซชันคงค้างต่อแมกนีไตเซชันอิ่มตัว) เป็น 0.3 เนื่องจากความเข้มข้นของกาวน้ำจะเป็นตัวกำหนดความหนืด ที่มีผลต่อการทำปฏิกิริยาระหว่างที่มีการระเหยของน้ำ ซึ่งทำให้เกิดผลึกของโคบอลต์เฟอร์ไรต์ดีขึ้น ส่วนสัดส่วนของปริมาตรเจลต่อโคบอลต์และเหล็กไนเตรทช่วยควบคุมอัตราการเกิดปฏิกิริยา ทำให้ได้ผงโคบอลต์เฟอร์ไรต์ที่มีการกระจายขนาดและสมบัติแม่เหล็กแตกต่างกัน

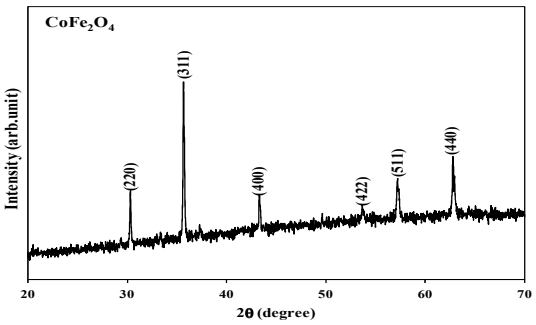


**Figure 1** XRD pattern of the sample.

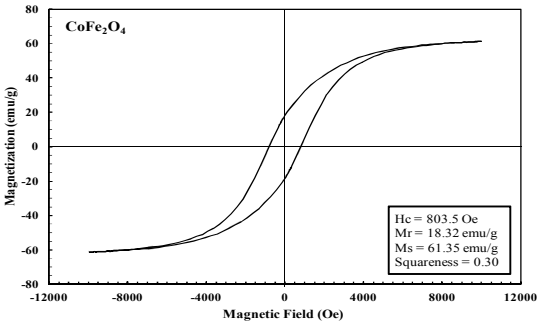


**Figure 2** Hysteresis loops of cobalt ferrite sample.

2. ผลการศึกษาพอลิยูรีเทนคอมโพสิต

2.1 ผลการวิเคราะห์ลักษณะทางสัณฐานวิทยา

ภาพถ่ายลักษณะทางสัณฐานวิทยาของพอลิยูรีเทนคอมโพสิต จากกล้องจุลทรรศน์อิเล็กตรอนแบบส่องกราด ด้วยกำลังขยายระดับ 100 เท่า (Figure 3) พบลักษณะพื้นผิวของพอลิยูรีเทนที่ไม่ได้ผสมโคบอลต์-เฟอร์ไรต์มีร่องรอยการซ้อนทับกันของสายโซ่โมเลกุลเป็นแนวยาว และเมื่อผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์ในขั้นตอนการทำปฏิกิริยาพอลิเมอร์ไรซ์ อนุภาคขนาดไมครอนจะกระจายตัวอยู่ในเนื้อของพอลิยูรีเทนได้ดีกว่าการผสมด้วยเครื่องผสมแบบสองลูกกลิ้ง (two-roll mill) (Hunyek *et al*., 2013) ซึ่งเป็นการเปรียบเทียบกับผลการวิจัยที่มีการตีพิมพ์ก่อนหน้า (เครื่องผสมแบบสองลูกกลิ้งเป็นเครื่องผสมแบบเปิดที่มีลูกกลิ้งสองลูกวางตัวในแนวนอนขนานกัน หมุนเข้าหากันด้วยความเร็วต่างกัน ทำให้เกิดแรงเฉือนที่ช่วยในการบดผสมพอลิเมอร์กับสารเคมีหรือสารตัวเติมใดๆ ได้) จากภาพแนวการซ้อนทับของสายโซ่สั้นลงอย่างเห็นได้ชัด และเมื่อเพิ่มปริมาณโคบอลต์เฟอร์ไรต์สูงถึง 45 เปอร์เซ็นต์ สังเกตเห็นการปรากฏของอนุภาคโคบอลต์-เฟอร์ไรต์ชัดเจนขึ้น พร้อมทั้งช่องว่างที่เกิดขึ้นระหว่างอนุภาคที่เกาะกันเป็นกลุ่ม ซึ่งเกิดจากการหลุดออกของกลุ่ม ขณะเตรียมชิ้นทดสอบ แต่จะเล็กกว่ากลุ่มที่เกิดขึ้นในกระบวนการผสมด้วยเครื่องผสมแบบสองลูกกลิ้ง ซึ่งเป็นการยืนยันว่าการผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์ในขั้นตอนการทำปฏิกิริยาพอลิเมอร์ไรซ์ ทำให้อนุภาคกระจายตัวได้ดีกว่าการผสมด้วยเครื่องผสมแบบสองลูกกลิ้ง และยังคงสังเกตเห็นช่องว่างภายในคอมโพสิตที่ทำให้เกิดรูพรุนเล็กลงกว่าด้วย

2.2 ผลการทดสอบสมบัติเชิงกลแบบพลวัต

ผลการทดสอบด้วยเครื่อง DMA จะได้กราฟของค่ามอดูลัสสะสม (Figure 4) และมอดูลัสสูญเสีย (Figure 5) ของพอลิยูรีเทนและพอลิยูรีเทนคอมโพสิต โดยค่ามอดูลัสสะสมใช้วิเคราะห์การตอบสนองของเนื้อที่เป็นอิลาสติก (elastic phase) คือ พลังงานที่พอลิยูรีเทนคอมโพสิตรับเข้าไปจะสามารถนำกลับมาได้ (recoverable) ส่วนค่ามอดูลัสสูญเสียใช้วิเคราะห์การตอบสนองของเนื้อที่เป็นความหนืด (viscous phase) คือ พลังงานที่พอลิยูรีเทนคอมโพสิตรับเข้าไปและเปลี่ยนรูปไปไม่สามารถที่จะนำกลับมาได้ (unrecoverable) (Hu *et al*., 2017)

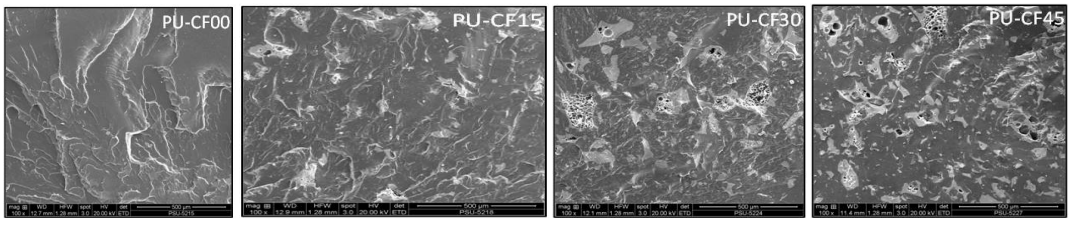


**Figure 3** SEM images of the sample.

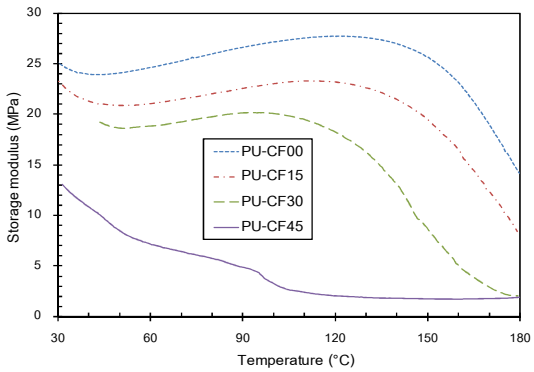


**Figure 4** Variations of storage modulus as a function of temperatures for the polyurethane composites.

ผลของการเพิ่มอุณหภูมิทำให้ค่ามอดูลัสสะสม (storage modulus) ของพอลิยูรีเทนคอมโพสิตทุกสัดส่วน มีการเปลี่ยนแปลงเป็น 3 บริเวณ (ยกเว้น PU-CF45) คือบริเวณที่อุณหภูมิต่ำกว่า 50 องศาเซลเซียส เป็นบริเวณที่มอดูลัสสะสมลดลงตามอุณหภูมิช่วงต่ำๆ เนื่องจากการเพิ่มอุณหภูมิเป็นการเพิ่มพลังงานให้กับสายโซ่โมเลกุล (Lei *et al*., 2017) ทำให้เกิดการรีแลกซ์ของสายโซ่บริเวณที่เป็นส่วนอ่อนในองค์ประกอบพอลิยูรีเทน เพื่อลดความเค้นที่ได้รับ ทำให้พอลิยูรีเทนมีความอ่อนตัว หลังจากนั้น มีการเพิ่มขึ้นของค่ามอดูลัสสะสมในช่วงอุณหภูมิหนึ่ง แต่ช่วงอุณหภูมินี้ไม่ได้เป็นช่วงเดียวกันสำหรับทั้งสามสัดส่วน ช่วงอุณหภูมิที่เกิดขึ้น จะลดลงไปเมื่อมีส่วนผสมของโคบอลต์เฟอร์ไรต์มากขึ้น โดย PU-CF00 PU-CF15 และ PU-CF30 อยู่ในช่วง 40-13040-120 และ 50-100 องศาเซลเซียส ตามลำดับ บ่งชี้ให้เห็นว่าการรีแลกซ์ของสายโซ่เพื่อลดความเค้นที่ได้รับของส่วนอ่อนเกิดขึ้นได้น้อยลง บริเวณที่เป็นส่วนแข็งที่มีความเป็นอิลาสติกน้อย จึงแสดงตัวเด่นออกมามากขึ้น และเมื่ออุณหภูมิสูงขึ้น สายโซ่โมเลกุลส่วนแข็งจะได้รับพลังงานในระดับที่ทำให้เกิดการรีแลกซ์มอดูลัสสะสมจึงลดต่ำลงอย่างรวดเร็ว แต่สำหรับการผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์ 45 เปอร์เซ็นต์ แสดงให้เห็นค่ามอดูลัสที่ลดลงอย่างต่อเนื่อง ซึ่งหมายถึงการผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์จนเกิดการเชื่อมโยงกันของกลุ่มอนุภาคที่เรียกว่า เปอร์โคเลชั่น ทรีตโฮล (percolation threshold) (Das and Satapathy, 2011) ซึ่งเป็นระดับสูงสุดที่ฟิลเลอร์ต่างๆ จะมีการกระจายตัวเป็นกลุ่มไม่เชื่อมต่อกันระหว่างกลุ่มหากเกิดการเชื่อมต่อจะทำให้สารตัวเติมกลายเป็นเนื้อแบบต่อเนื่อง (continuous phase) คุณสมบัติของคอมโพสิตจะกลายเป็นสมบัติของสารตัวเติมแทน กล่าวคือเป็นระดับของปริมาณโคบอลต์เฟอร์ไรต์สูงสุดที่สามารถผสมได้ โดยไม่แสดงสมบัติเด่นของโคบอลต์เฟอร์ไรต์ออกมา และคอมโพสิตยังคงสามารถแสดงความเป็นอิลาสติกของพอลิยูรีเทนอยู่ ขณะที่อิทธิพลจากปริมาณการผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์สัดส่วน 0, 15, 30 และ 45 เปอร์เซ็นต์ ทำให้มอดูลัสสะสมมีค่าแตกต่างกัน โดยมีค่ามอดูลัสลดลงตามเปอร์เซ็นต์การผสม เนื่องจากการผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์เป็นการแทรกตัวขัดขวางการเกิดผลึกและเพิ่มบริเวณอสัณฐาน (Malini *et al*., 2003) โดยการเกิดผลึกเป็นลักษณะการจัดเรียงชิดติดกันของสายโซ่โมเลกุลอย่างเป็นระบบ ขณะที่บริเวณอสัณฐานสายโซ่โมเลกุลไม่ได้เรียงชิดกันอย่างเป็นระบบ ดังนั้นการผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์จึงมีแนวโน้มทำลายการจัดเรียงชิดติดกันของสายโซ่โมเลกุลที่เป็นระบบ จนทำให้บริเวณที่เป็นอสัณฐานเพิ่มมากขึ้น สายโซ่สามารถรีแลกซ์ได้ง่ายเมื่อได้รับพลังงานความร้อนตามหลักการของเอนโทรปี (Entropy) เป็นเหตุให้มอดูลัสสะสมต่ำ (Pawar *et al*., 2016)

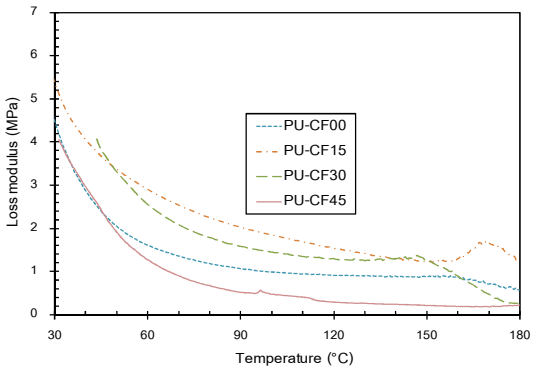


**Figure 5** Variations of loss modulus as a function of temperatures for the polyurethane composites.

ค่ามอดูลัสสูญเสีย (loss modulus) ของพอลิยูรีเทนและพอลิยูรีเทนคอมโพสิตทุกสัดส่วน (Figure 5) เป็นฟังก์ชันกับอุณหภูมิ โดยมีค่าลดลงอย่างต่อเนื่อง ปรากฏยอดที่แสดงถึงอุณหภูมิการเปลี่ยนสภาพคล้ายแก้ว (glass transition temperature, $T_g$) (Jawaid *et al*., 2012) ในตัวอย่าง PU-CF15,PU-CF30 และ PU-CF45 ที่ประมาณ 170 และ 148 และยอดเล็กๆ ที่ 97 องศาเซลเซียส ตามลำดับ แต่ไม่ปรากฏยอดในตัวอย่างที่เป็น PU-CF00 เนื่องจากอยู่นอกช่วงของการทดสอบ (Hunyek *et al*., 2011) เป็นการบ่งชี้ว่าการผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์ด้วยปริมาณที่เพิ่มขึ้นทำให้อุณหภูมิการเปลี่ยนสภาพคล้ายแก้วลดต่ำลง และเมื่อเปรียบเทียบการผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์กับไม่ผสม พบว่าการผสมทำให้ค่ามอดูลัสสูญเสียมีค่าเพิ่มขึ้นแบบไม่เป็นเชิงเส้นในตัวอย่าง PU-CF15 และ PU-CF30 เนื่องจากการผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์เป็นการขัดขวางการเกิดเนื้อที่เป็นผลึกและเพิ่มเนื้อที่เป็นอสัญฐานตามที่มีการอธิบายไว้ก่อนหน้า เมื่อเนื้อที่เป็นอสัญฐานเพิ่มมากขึ้นทำให้สามารถรองรับพลังงานที่มาจากความเค้นเพื่อการผิดรูป (distortion) ได้มากขึ้น (Ni *et al*., 2015) จึงทำให้มอดูลัสสูญเสียที่แสดงถึงการตอบสนองของเนื้อที่เป็นความหนืด (สภาพต้านทานต่อการผิดรูป) มีค่าสูงตามไปด้วย แต่ผลกระทบจากการผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์เกินระดับเปอร์โคเลชั่นทรีตโฮลสำหรับการผสมที่ 45 เปอร์เซ็นต์ ทำให้ค่ามอดูลัสต่ำกว่าพอลิยูรีเทนที่ไม่ผสมเช่นเดียวกับมอดูลัสสะสม

ค่าสัมประสิทธิ์การหน่วง (damping coefficient) หรือที่เรียกว่าค่า Tan δ เป็นค่าที่แสดงถึงความสมดุลของเนื้ออิลาสติกและเนื้อความหนืด หาจากสัดส่วนของค่ามอดูลัสสูญเสียต่อมอดูลัสสะสม โดย (Figure 6) แสดงให้เห็นความสมดุลที่ลดลงอย่างต่อเนื่องเมื่อเพิ่มอุณหภูมิ และปรากฏยอดของ Tan δ เปลี่ยนแปลงลดลงตามปริมาณโคบอลต์-เฟอร์ไรต์สอดคล้องกับงานของ Pawar *et al*. (2016) ที่ผสมผงหินแกรนิต (granite powder) ลงในคาร์บอน-อีพอกซี่ (carbon epoxy) เนื่องจากค่าสัมประสิทธิ์การหน่วงของคอมโพสิตเกี่ยวข้องกับอันตรกิริยาและแรงเสียดทานระหว่างเมทริกซ์กับฟิลเลอร์ (Hamdan *et al*., 2004) ดังนั้นจึงสันนิฐานได้ว่าโคบอลต์เฟอร์ไรต์และเมทริกซ์พอลิยูรีเทนมีอันตรกิริยาระหว่างกันน้อย ไม่มีการเชื่อมต่อทางเคมีใดๆ เพียงแต่เข้าไปแทรกตัวอยู่ระหว่างสายโซ่โมเลกุลเท่านั้น ยอดของ Tan δ จึงลดลง โดยค่าอุณหภูมิการเปลี่ยนสภาพคล้ายแก้ว ($T_g$) จะสอดคล้องกับ ยอดของ Tan δ มากกว่ายอดของมอดูลัสสูญเสีย (Pawar *et al*., 2016) และปรากฏชัดขึ้นสำหรับการผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์ 45 เปอร์เซ็นต์

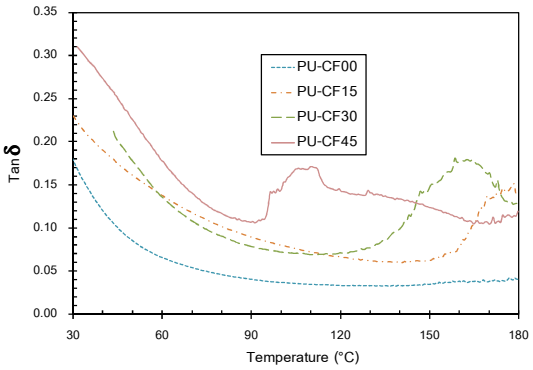


**Figure 6** Variations of damping factor (Tan δ) as a function of temperatures for the polyurethane composites.

2.3 ผลการวิเคราะห์กราฟฮีสเทอรีซีสลูปที่ได้จากเครื่อง VSM

ผลการศึกษาสมบัติทางแม่เหล็กของพอลิยูรีเทนคอมโพสิตที่ผสมในขั้นตอนการทำปฏิกิริยาพอลิเมอไรซ์ด้วยวิธีการสั่นตัวอย่าง แสดงค่าแมกนีไตเซชันเพิ่มขึ้นแบบเชิงเส้นตามปริมาณโคบอลต์เฟอร์ไรต์ เนื่องจากค่าพารามิเตอร์ทางแม่เหล็กมีความเกี่ยวข้องกับมวลรวมของโคบอลต์-เฟอร์ไรต์ที่เป็นสารแม่เหล็ก ดังนั้นหากผสมโคบอลต์-เฟอร์ไรต์มากขึ้น ค่าพารามิเตอร์ทางแม่เหล็กควรมีค่ามากขึ้นไปด้วย (Lin *et al*., 2017) สอดคล้องกับงานของ Said *et al*. (2016) ที่ผสมอนุภาคนีโอดีเนียม-ไอรอนโบรอน (NdFeB) ลงในพอลิไดเมททิลไซเลน (PDMS) โดยพอลิยูรีเทนคอมโพสิตที่ได้แสดงพฤติกรรมเป็นแม่เหล็กเฟร์รี (ferri magnetisms) ตามสมบัติทางแม่เหล็กของโคบอลต์เฟอร์ไรต์ (Jiles, 1996) และสามารถระบุค่าลบล้างทางแม่เหล็ก (coercivity) แมกนีไตเซชันคงค้าง (remanent magnetization) และแมกนีไตเซชันอิ่มตัว (saturation magnetization) ได้จากกราฟฮีสเทอรีซีสลูป (Figure 7) ค่าการแมกนีไตเซชันเพิ่มตามสนามแม่เหล็กเข้าใกล้จุดอิ่มตัวเมื่อให้สนามแม่เหล็กสูงถึง 10 kOe โดยแมกนีไตเซชันอิ่มตัวเพิ่มขึ้นตามการเพิ่มของโคบอลต์เฟอร์ไรต์ สอดคล้องกับสมการจากกฎการผสม (rule of mixtures, ROM) ดังสมการที่ (2) (Hunyek *et al*., 2013)

$$M_c = M_f W_f \quad (2)$$

เมื่อ $M_c$ แมกนีไตเซชันของคอมโพสิต

$M_f$ แมกนีไตเซชันอิ่มตัว

$W_f$ สัดส่วนโดนน้ำหนักของฟิลเลอร์แม่เหล็ก

โดยสามารถทำนายแมกนีไตเซชันอิ่มตัวในคอมโพสิตของแม่เหล็กและพอลิเมอร์ได้ สำหรับตัวอย่างที่ไม่ผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์ จะเห็นความแตกต่างของค่าแมกนีไตเซชันได้อย่างชัดเจนเมื่อเทียบกับตัวอย่างที่ผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์โดยมีค่าใกล้เคียงและค่อนข้างคงที่ ไม่เปลี่ยนแปลงตามปริมาณโคบอลต์เฟอร์ไรต์ที่เพิ่มขึ้น แสดงดัง (Table 1) สอดคล้องกับงานของ Hunyek *et al*. (2011) และค่าลบล้างทางแม่เหล็กของพอลิยูรีเทนคอมโพสิต (~840 Oe) ที่ได้เป็นการยืนยันว่าพอลิยูรีเทนเกิดสมบัติทางแม่เหล็กจากการผสมโคบอลต์-เฟอร์ไรต์

**Table 1** Magnetic properties of the polyurethane composites.

| sample | saturation magnetization (emu/g) | remanentagnetization (emu/g) | coercivity (Oe) | squareness |
|---|---|---|---|---|
| PU-CF00 | 0.01 | 0.00 | N/A | N/A |
| PU-CF15 | 6.89 | 2.05 | 843.50 | 0.30 |
| PU-CF30 | 13.23 | 3.93 | 844.00 | 0.30 |
| PU-CF45 | 17.26 | 5.11 | 839.00 | 0.30 |

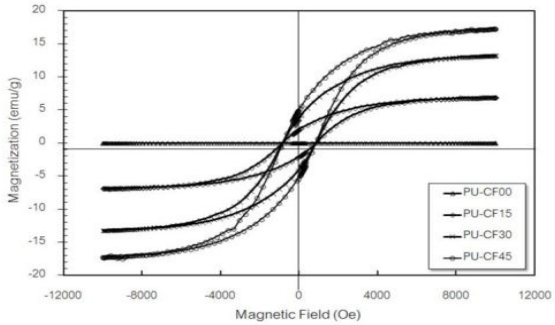


**Figure 7** Hysteresis loops of the polyurethane composites.

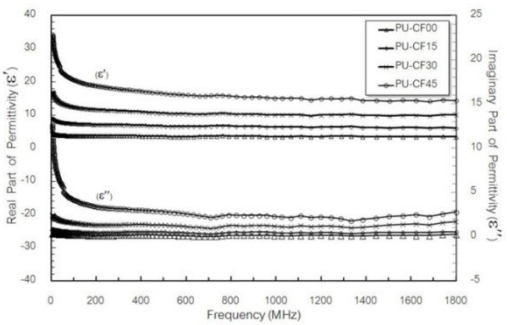


**Figure 8** Permittivity (ε) of the polyurethane composites.

2.4 ผลการวิเคราะห์กราฟสภาพยอมทางไฟฟ้าที่ได้จากเครื่องวิเคราะห์ความต้านทานเชิงซ้อน

ค่าสภาพยอมทางไฟฟ้า (ε) เป็นค่าเฉพาะของวัสดุแต่ละชนิด ที่แสดงถึงความสามารถในการต้านทานทางไฟฟ้าของวัสดุที่อยู่ภายใต้อิทธิพลของสนามไฟฟ้าแบบเชิงซ้อน โดยมีองค์ประกอบเป็นค่าสภาพยอมทางไฟฟ้าส่วนจริง (ε′) หรือเรียกว่า ค่าคงที่ไดอิเล็กทริกซึ่งเป็นค่าที่มีความเกี่ยวข้องกับพลังงานสะสมภายในวัสดุและส่วนจินตภาพ (ε′′) หรือเรียกว่าค่าการสูญเสียไดอิเล็กทริก ซึ่งเป็นค่าที่มีความเกี่ยวข้องกับพลังงานที่สูญเสียไปภายในวัสดุ

ผลการวัดค่าสภาพยอมทางไฟฟ้าส่วนจริง (ε′) ของพอลิยูรีเทนมีค่า 5.34 ที่ 1 เมกะเฮิรตซ์ และลดลงตามความถี่ถึง 3.58 ที่ 1.8 กิกะเฮิรตซ์ และส่วนจินตภาพ (ε′′) มีค่า 0.38 ที่ 1 เมกะเฮิรตซ์ ลดลงตามความถี่ถึง 0.11 ที่ 1.8 กิกะเฮิรตซ์ (Figure 8) แสดงให้เห็นถึงค่าสภาพยอมทางไฟฟ้ามีการเปลี่ยนแปลงตามความถี่เล็กน้อย แต่หากพิจารณาถึงอิทธิพลของปริมาณการผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์ จาก 15-45 เปอร์เซ็นต์ พบค่าสภาพยอมทางไฟฟ้ามีการเปลี่ยนแปลงแตกต่างกับกรณีที่ไม่ผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์ (PU-CF00) อย่างชัดเจน และยังเปลี่ยนแปลงเป็นเชิงเส้นกับปริมาณโคบอลต์เฟอร์ไรต์สอดคล้องกับ

งานของ Kim *et al*. (2016) ที่ผสมแบเรียมไททาเนตลงในอีพรอกซี่โดยสามารถอธิบายได้ว่าค่าสภาพยอมทางไฟฟ้าของคอมโพสิตจะถูกกำหนดด้วยปริมาณประจุที่เกิดจากการโพลาไรซ์บริเวณผิวรอยต่อระหว่างฟิลเลอร์กับเมทริกซ์ (Yao *et al*., 2016) ดังนั้นค่าสภาพยอมทางไฟฟ้าของพอลิยูรีเทนคอมโพสิต จึงมีค่าเพิ่มขึ้นตามปริมาณโคบอลต์เฟอร์ไรต์ เนื่องจากการสะสมประจุบริเวณระหว่างผิวรอยต่อที่มากขึ้น จึงมีข้อสันนิษฐานสำหรับพอลิยูรีเทนคอมโพสิตที่เตรียมด้วยการผสมในขั้นตอนการทำปฏิกิริยาพอลิเมอไรซ์ว่ามีการกระจายตัวของอนุภาคได้ดีทำให้เกิดกลุ่มที่เล็ก ช่วยเพิ่มพื้นที่การสะสมประจุบริเวณระหว่างผิวรอยต่อ เกิดการโพลาไรซ์แบบแม็กซ์เวลล์-วากเนอร์ดี (Maxwell-Wagner) (Borah and Bhattacharyya, 2012) ส่งผลให้เป็นฟังก์ชันกับปริมาณโคบอลต์เฟอร์ไรต์ ส่วนการโพลาไรซ์ที่บริเวณผิวของพอลิยูรีเทน (PU-CF00) จะเป็นตัวกำหนดลักษณะกราฟของค่าสภาพยอมทางไฟฟ้าส่วนจริงและส่วนจินตภาพ (Ahmad *et al*., 2016) โดยผลการทดสอบได้ลักษณะกราฟที่เป็นเส้นตรงไม่เปลี่ยนแปลงขึ้นลงเหมือนรูปคลื่น เมื่อเทียบกับการเทคนิคเครื่องผสมแบบสองลูกกลิ้ง (Hunyek *et al*., 2013) หมายถึง รอยแยกและรูพรุนน้อย ค่าสภาพยอมทางไฟฟ้าที่ตอบสนองต่อค่าความถี่ใดๆ ไม่แตกต่างกัน

2.5 ผลการวิเคราะห์กราฟค่าสภาพให้ซึมได้ทางแม่เหล็กที่ได้จากเครื่องวิเคราะห์ความต้านทานเชิงซ้อน

ค่าสภาพให้ซึมได้ทางแม่เหล็ก ($\mu$) เป็นค่าบ่งชี้ถึงระดับการแมกนีไตเซชันของวัสดุแต่ละชนิด เมื่ออยู่ภายใต้อิทธิพลของสนามแม่เหล็กแบบเชิงซ้อน มีองค์ประกอบเป็นค่าสภาพให้ซึมได้ทางแม่เหล็กส่วนจริง ($\mu'$) ที่มีความเกี่ยวข้องกับพลังงานสะสมภายในวัสดุและส่วนจินตภาพ ($\mu''$) ที่เกี่ยวข้องกับพลังงานสูญเสียไปภายในวัสดุ

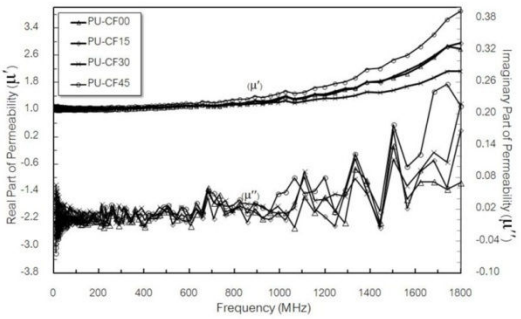


**Figure 9** Permeability ($\mu$) of the polyurethane composite samples.

ผลการวัดค่าสภาพให้ซึมได้ทางแม่เหล็กส่วนจริง ($\mu'$) และส่วนจินตภาพ ($\mu''$) (Figure 9) พบว่าโคบอลต์เฟอร์ไรต์ช่วยเปลี่ยนแปลงค่าสภาพให้ซึมได้ทางแม่เหล็กของพอลิยูรีเทน แต่ไม่เป็นฟังก์ชันกับปริมาณโคบอลต์เฟอร์ไรต์ และจะเห็นความแตกต่างชัดเจนทั้งส่วนจริงและส่วนจินตภาพที่ความถี่ตั้งแต่ 600 เมกะเฮิรตซ์ จนกระทั่งความถี่สูงขึ้นถึง 1.8 กิกะเฮิรตซ์ จะเห็นค่าในส่วนจริงที่สัดส่วน 45 เปอร์เซ็นต์ มีค่าสภาพให้ซึมได้ทางแม่เหล็กสูงสุด แต่ส่วนจินตภาพจะมีลักษณะกราฟที่แกว่งไปมาคล้ายรูปคลื่นจึงได้ว่าค่าสภาพให้ซึมได้ทางแม่เหล็กที่ความถี่ต่ำๆ มีการตอบสนองต่อสนามแม่เหล็กขึ้นกับเวลาน้อย แต่จะตอบสนองได้ดีที่ความถี่สูงกว่า 600 เมกะเฮิรตซ์ โดยทั่วไปค่าสภาพให้ซึมได้ทางแม่เหล็กจะถูกกำหนดด้วยกลไกการเกิดแมกนีไตเซชันที่เกี่ยวข้องกับการเคลื่อนไหวของผนังโดเมน (domain wall movement) และแมกนีไตเซชัน-โรเตชั่น (magnetization rotation) ที่เกิดขึ้นในระดับ

จุลภาค (Tsutaoka *et al*., 1997) ดังนั้นจากระบบและวิธีการวัดที่ใช้สนามแม่เหล็กที่เกิดจากกระแสสลับ (A.C.) ที่มีค่าน้อยและความถี่สูง ค่าสภาพให้ซึมได้ทางแม่เหล็กที่เกิดขึ้นจึงเป็นผลจากแมกนีไตเซชัน-โรเตชั่นของกลุ่มแม่เหล็กที่มีขนาดเล็ก การแกว่งของค่าสภาพให้ซึมได้ทางแม่เหล็กหรือการเกิดยอดเรโซแนนซ์ (Resonant peak) ของพอลิยูรีเทนคอมโพสิต จึงถูกสันนิษฐานในเบื้องว่าเกิดจากขนาดอนุภาคโคบอลต์-เฟอร์ไรต์ที่แตกต่างกัน (Wu *et al*., 2005; Zhou *et al*., 2005) เกาะกันเป็นกลุ่มขนาดเล็กกระจายตัวอยู่ในคอมโพสิต โดยขนาดอนุภาคจะเกี่ยวข้องกับโดเมนแม่เหล็กที่ส่งผลต่อค่าสภาพให้ซึมได้ทางแม่เหล็กทำให้มีการตอบสนองต่อสนามแม่เหล็กที่ขึ้นกับเวลาที่ความถี่ใดๆ แตกต่างกัน

## สรุป

กระบวนการโซล-เจลใช้สังเคราะห์สารตัวเติมโคบอลต์เฟอร์ไรต์ได้จากกาวน้ำ โดยยืนยันเนื้อจากการทดสอบ XRD และมีสมบัติแม่เหล็กก่อนการผสมปรากฏชัดเจน เมื่อนำไปผสมกับพอลิยูรีเทนในกระบวนการทำปฏิกิริยาพอลิเมอไรซ์ แล้วตรวจสอบลักษณะทางสัณฐานวิทยาพบว่ามีการกระจายตัวในเมทริกซ์ของพอลิยูรีเทนได้ดีเมื่อผสมไม่เกิน 30เปอร์เซ็นต์ หากผสมในปริมาณที่มากกว่า จะทำให้เห็นหลุมที่เกิดจากการหลุดออกของสารตัวเติมที่เกาะกลุ่มกัน ขณะที่ค่ามอดูลัสสะสมและมอดูลัสสูญเสีย เป็นฟังก์ชันกับอุณหภูมิ ผลการเพิ่มอุณหภูมิทำให้ค่ามอดูลัสลดลง เนื่องจากเกิดการรีแลกซ์ของสายโซ่เพื่อลดความเค้นที่ได้รับ ส่วนสมบัติทางแม่เหล็กของพอลิยูรีเทนคอมโพสิต แสดงค่าการแมกนีไตเซชันเพิ่มขึ้นตามปริมาณของโคบอลต์-เฟอร์ไรต์ ขณะที่ค่าลบล้างทางแม่เหล็กและค่า squareness ของพอลิยูรีเทนมีค่าเปลี่ยนไป จากการผสมโคบอลต์เฟอร์ไรต์เท่านั้น ไม่ได้เป็นฟังก์ชันกับปริมาณโคบอลต์เฟอร์ไรต์ผลการวัดค่าสภาพยอมทางไฟฟ้าส่วนจริงและส่วนจินตภาพมีการเปลี่ยนแปลงตามความถี่น้อยแต่มีค่าเปลี่ยนแปลงตามปริมาณโคบอลต์เฟอร์ไรต์ชัดเจน เนื่องจากการสะสมประจุบริเวณระหว่างผิวรอยต่อที่มากขึ้นผลการวัดค่าสภาพะยอมให้ซึมได้ทางแม่เหล็กส่วนจริงและส่วนจินตภาพ พบการเปลี่ยนแปลงค่าที่ไม่เป็นฟังก์ชันกับปริมาณโคบอลต์เฟอร์ไรต์ และตอบสนองต่อสนามแม่เหล็กขึ้นกับเวลาค่อนข้างน้อย

## คำขอบคุณ

งานวิจัยนี้ได้รับการสนับสนุนทุนจากงบประมาณเงินแผ่นดิน มหาวิทยาลัยเทคโนโลยีราชมงคลรัตนโกสินทร์ ประจำปี 2559 ภายใต้เลขที่สัญญา A49/2559 และผู้ช่วยศาสตราจารย์ ดร. พงศกร จันทรัตน์ ภาควิชาฟิสิกส์ คณะวิทยาศาสตร์ มหาวิทยาลัยเกษตรศาสตร์ ที่ให้ความอนุเคราะห์เครื่อง VSM ในการหากราฟฮีสเทอรีซีสลูป

## เอกสารอ้างอิง

Ahmad, A.F., Z. Abbas, S.J. Obaiys, N.A. Ibrahim, M.F. Zainuddin and A. Salem. 2016. Permittivity properties of nikel zinc ferrite-oil palm empty fruit bunch-polycaprolactone composite. *Procedia Chem 19*: 603-610.

Borah, K. and N.S. Bhattacharyya. 2012. Magnetodielectric composite with ferrite inclusions as substrates

for microstrip patch antennas at microwave frequencies. *Compos. Part B-Eng 43(1)*: 1309-1314.

Das, A., and B.K. Satapathy. 2011. Structural, thermal, mechanical and dynamic mechanical properties of cenosphere filled polypropylene composites. *Mater. Design 32(3)*: 1477-1484.

Hamdan, S., D. M.A. Hashim and M. Yusop. 2004. Dynamic mechanical thermal analysis (DMTA) of thermoplastic natural rubber (TPNR) barium ferrite ($BaFe_2O_{19}$) composites. *AJSTD 21(1)*: 69-79.

Hu, D., Y. Xing, M. Chen, B. Gu, B. Sun and Q. Li. 2017. Ultrastrong and excellent dynamic mechanical properties of carbon nanotube composites. *Compos. Sci. Technol 141*: 137-144.

Hunyek, A., C. Sirisathitkul and P. Harding. 2011. Formation of cobalt ferrites from aqueous solutions of metal nitrates containing PVA: effects of the amount of PVA and annealing temperature. *J. Ceram. Soc. Jpn 119(6)*: 541-543.

Hunyek, A., C. Sririsathitkul and P. Jantaratana. 2013. Magnetic and dielectric properties of natural rubber and polyurethane composites filled with cobalt ferrite. *Plast. Rubber Compos 42*(3): 89-92.

Jawaid, M., H.P.S. Abdul Khalil and O.S. Alattas. 2012. Woven hybrid biocomposites: dynamic mechanical and thermal properties. *Compos. Part A-Appl. S 43(2)*: 288-293.

Jiles, D.C. 1996. Introduction to magnetism and magnetic materials. Chapman & Hall, London.

Kim, D.S., C. Baek, H.J. Ma and D.K. Kim. 2016. Enhanced dielectric permittivity of $BaTiO_3$/epoxy resin composites by particle alignment. *Ceram. Int.* 42*(6)*: 7141-7147.

Lei, M., K. Yu, H. Lu and H.J. Qi. 2017. Influence of structural relaxation on thermomechanical and shape memory performances of amorphous polymers. *Polymer 109*: 216-228.

Lin, Y., X. Liu, H. Yang, F. Wang and C. Liu. 2017. Magnetic and dielectric properties of laminated $Ca(Zn_{1/3}Nb_{2/3})O_3Ni_{0.8}Zn_{0.2}Fe_2O_4$ magneto-dielectric composites. *Mater. Res. Bull 86*: 101-106.

Liu, Y., X. Liu and X. Wang. 2014. Double-layer microwave absorber based on $CoFe_2O_4$ ferrite and carbonyl iron composites. *J. Alloys. Compd 584*: 249-253.

Malini, K.A., P. Kurian and M.R. Anantharaman. 2003. Loading dependence similarities on the cure time and mechanical properties of rubber ferrite composites containing nickel zinc ferrite. *Materials Letters 57(22-23):* 3381-3386.

Ni, X., A. Dong, X. Fan, Q. Wang, Y. Yu and A.C. Paulo 2015. Jute/polypropylene composites: effect of enzymatic modification on thermo-mechanical and dynamic mechanical properties. *Fiber and Polymers 16(10)*: 2276-2283.

Pawar, M. J., A. Patnaik and R. Nagar. 2016. Mechanical and thermo-mechanical analysis based numerical simulation of granite powder filled polymer composites for wind turbine blade. *Fiber. Polym. 17(7)*: 1078-1089.

Said, M.M., J. Yunas, R.E. Pawinanto, B.Y. Majlis and B. Bais. 2016. PDMS based electromagnetic actuator membrane with embedded magnetic particles in polymer composite. *Sensor. Actuat. A-Phys 245*: 85-96.

Sirisathitkul, C., P. Saramolee, P. Lertsuriwat and C. Pholnak. 2010. Influence of cobalt fillers on electromagnetic and thermal properties of

polyurethanes. *Sci. Eng. Compos. Mater 17(2)*: 111-118.

Tsutaoka, T., T. Kasagi, T. Nakamura and K. Hatakeyama. 1997. High frequency permeability of Mn-Zn ferrite and its compostie materials. *J. Phys IV France 7(C1)*: C1-557- C1-558.

Winder, D. 2008. Power supplies for LED driving. Newnes, Burlington.

Wu, L.Z., J. Ding, H.B. Jiang, L.F. Chen and C.K. Ong. 2005. Particle size influence to the microwave properties of iron based magnetic particulate composites. *J. Magn. Magn. Mater 285(1-2)*: 233-239.

Yao, X., X. Kou and J. Qiu. 2016. Nano-$Al_2O_3$/PANI composites with high negative permittivity. *Organic Electronics 39*: 133-137.

Zhou, P.H., L.J. Deng, J.L. Xie, D.F. Liang, L. Chen and X.Q. Zhao. 2005. Nanocrystalline structure and particle size effect on microwave permeability of FeNi powders prepared by mechanical alloying. *J. Magn. Magn. Mater 292*: 325-331.