

**ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ ХАРАКТЕРИСТИКИ ОБЪЕМНОГО 3-0
КОМПОЗИТА ЦТС42 – NiFe_{1.9}Co_{0.02}O₄**

Лалетин В.М., Шут В.Н., Сырцов С.Р., Трубловский В.Л.
ГНУ «Институт технической акустики НАН Беларуси»,
г. Витебск, Беларусь, E-mail: shut@vitebsk.by

Введение

В последние годы сохраняется устойчивый интерес к магнитоэлектрикам – классу материалов, в которых сосуществуют магнитное и электрическое упорядочение. Взаимодействие электрической и магнитной подсистем в этих материалах проявляется в виде магнитоэлектрического (МЭ) эффекта [1, 2].

Наиболее перспективным с точки зрения практического применения являются двухфазные МЭ композиты со связностью 3-0 – вещества, состоящие из двух механически связанных друг с другом фаз: магнитострикционной и пьезоэлектрической. В качестве материалов для магнитострикционной и пьезоэлектрической фаз чаще всего используются различные ферриты и сегнетоэлектрические керамики. Кроме высоких МЭ коэффициентов, важным фактором, определяющим эффективность использования объемных композитов в различных электронных устройствах, является их высокие электрофизические характеристики. Целью данной работы является исследование электрофизических и сегнетоэлектрических характеристик объемного 3-0 композита (1-x)ЦТС42 – xNiFe_{1.9}Co_{0.02}O₄ (x=0.1–0.8) в диапазоне температур 20–200°C.

Экспериментальная часть

Объемные композиты были получены путем спекания смесей однофазных компонентов. Выбор модифицированного магнитомягкого феррита никеля NiFe_{1.9}Co_{0.02}O₄ в качестве магнитной составляющей композита, наряду с высокими магнитострикционными параметрами и низким коэрцитивным полем, обусловлен его повышенным удельным сопротивлением. В качестве материала для пьезоэлектрической фазы композита использовалась ЦТС42 – керамика «средней жесткости» с высокими значениями пьезокоэффициентов $d_{13} \approx 130$ пКл/Н и температуры фазового перехода $T=275^\circ\text{C}$.

Образцы системы ЦТС42 – NiFe_{1.9}Co_{0.02}O₄ с содержанием феррита 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70 и 80 масс.% спекались в тиглях со свинецсодержащей засыпкой в течение двух часов при температурах 1240°C. Скорость охлаждения образцов не превышала 50°C в час. Образцы имели форму дисков диаметром 8.7–8.8 мм и толщиной 0.8–0.9 мм. Поляризацию материалов осуществляли при температуре 70–100°C в течение двух часов в электрическом поле 4 кВ/мм с последующим охлаждением в этом поле до комнатной температуры в течение полчаса.

Исследования диэлектрической проницаемости ϵ и тангенса угла диэлектрических потерь $\text{tg}\delta$ проводились на автоматизированной установке, созданной на базе измерителей импеданса E7-12, E7-14 и универсального LCR-моста E7-8 (на частоте 1 кГц). Определение поляризации P и величины коэрцитивного поля E_k проводилось путем исследования петель гистерезиса (схема Sawyer–Tower).

Результаты и их обсуждение

Результаты дифракционного анализа композитов различных составов и чистых исходных компонентов, представлены на рисунке 1. Они свидетельствуют о том, что используемая в настоящей работе технология позволяет получать двухфазные структуры: ферромагнитная фаза NiFe₂O₄ (со структурой шпинели) и сегнетоэлектрическая фаза ЦТС42 (с тетрагональной перовскитной структурой) раздельно сосуществует в композитах всех составов.

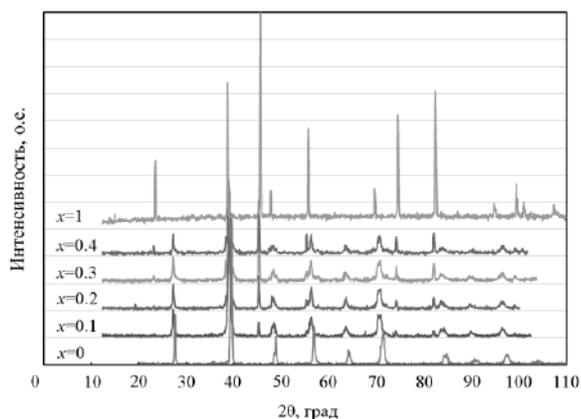


Рисунок 1 – Дифрактограммы композитов $(1-x)\text{ЦТС42} - x\text{NiFe}_{1.9}\text{Co}_{0.02}\text{O}_4$

Из дифрактограмм следует, что интенсивности пиков, соответствующих ферритной фазе, увеличиваются с ростом ее концентрации в композите. Других промежуточных или межграницных фаз в системе с помощью рентгеновского дифракционного анализа обнаружено не было. Образцы всех исследуемых составов имели достаточно высокие сопротивления ($\rho \approx 10^9 \text{ Ом}\cdot\text{м}$), позволяющие проводить их эффективную поляризацию, необходимую для достижения высоких МЭ характеристик.

Зависимость диэлектрической проницаемости ϵ при комнатной температуре (20°C) от содержания ферритовой фазы в композите приведена на рисунке 2. Она имеет характерный для композиционной системы сегнетоэлектрик – феррит вид: проницаемость уменьшается с ростом феррита от $\epsilon \approx 420$ при $x=0.1$ до $\epsilon \approx 60$ при $x=0.6$.

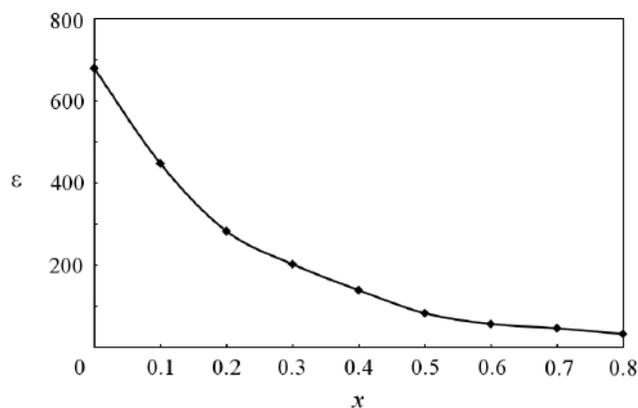


Рисунок 2 – Зависимость диэлектрической проницаемости ϵ от содержания ферритовой фазы (при 20°C)

Температурная зависимость тангенса угла диэлектрических потерь $\text{tg}\delta$ композитов различных составов в диапазоне температур $20\text{--}200^\circ\text{C}$ представлена на рисунке 3. В практически важном температурном диапазоне $20\text{--}100^\circ\text{C}$ в композитах с магнитной фазой менее 40 масс.% потери находятся на удовлетворительно низком уровне – $\text{tg}\delta \leq 0.05$. Существенный рост потерь в композитах с концентрацией низкоомной ферритовой фазы свыше 50 масс.% объясняется более высокими потерями в ней и проявлением перколяционного эффекта.

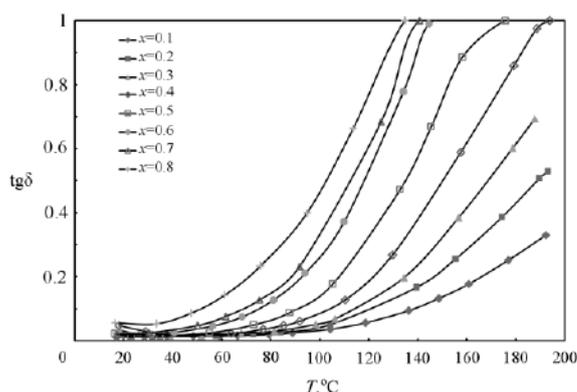


Рисунок 3 – Температурная зависимость диэлектрических потерь $\text{tg}\delta$ композитов

Изменение сегнетоэлектрических свойств композита по мере увеличения в нем концентрации несегнетоактивной фазы феррита определялось с помощью исследования характеристик петель гистерезиса (рис. 4).

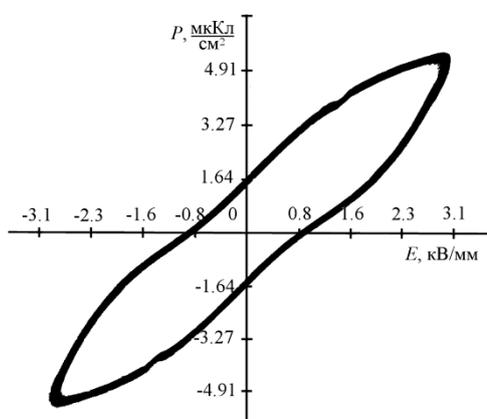


Рисунок 4 – Петля гистерезиса для композита $0.9\text{ЦТС}42 - 0.1\text{NiFe}_{1.9}\text{Co}_{0.02}\text{O}_4$ (20°C , $f=50$ Гц)

При возрастании концентрации $\text{NiFe}_{1.9}\text{Co}_{0.02}\text{O}_4$ величина остаточной поляризации P_r уменьшается от 1.64 мкКл/см² при $x=0.1$ до 0.03 мкКл/см² при $x=0.8$ (рис. 5), коэрцитивное поле E_c уменьшается с 0.85 кВ/мм до 0.44 кВ/мм соответственно.

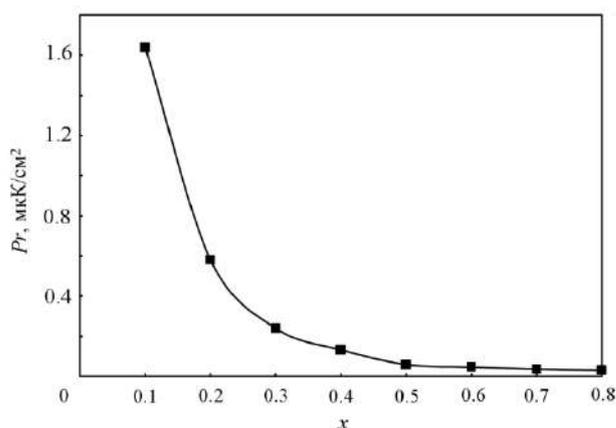


Рисунок 5 – Зависимость остаточной поляризации P_r от содержания ферритовой фазы (20°C)

Изготовленные образцы обладают высокими МЭ характеристиками. Полевая зависимость МЭ коэффициента по напряжению для образца состава ЦТС42 – 40 масс.%, $\text{NiFe}_{1.9}\text{Co}_{0.02}\text{O}_4$ – 60 масс.%, демонстрирующего максимальный МЭ сигнал при продольном и поперечном эффектах, представлена на рисунке 6.

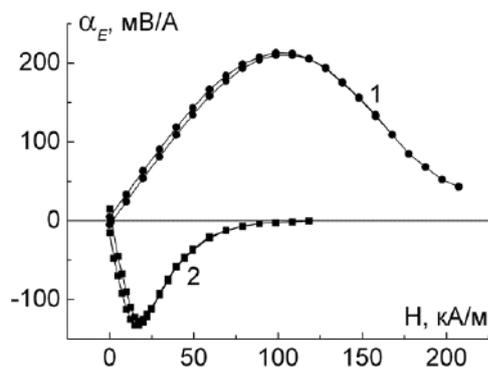


Рисунок 6 – Полевая зависимость продольного (1) и поперечного (2) МЭ коэффициентов (на частоте 1 кГц) для композита 0.4ЦТС42 – 0.6NiFe_{1,9}Co_{0,02}O₄

В случае продольного эффекта (кривая 1), МЭ коэффициент по напряжению достигает максимальной величины 213 мВ/А в магнитном поле, равном 100 кА/м. В случае поперечного эффекта (кривая 2) коэффициент по напряжению принимает максимальное значение 133 мВ/А при 16 кА/м. Магнитоэлектрический сигнал на резонансной частоте 380 кГц в композите данного состава превышает низкочастотный на три порядка и достигает 130 В/А. Полевые зависимости МЭ коэффициентов, полученные для образцов других составов, имеют аналогичный вид, отличающийся величиной сигнала и значением подмагничивающего поля [3].

Заключение

По керамической технологии изготовлены объемные композиты (1-x)ЦТС42 – xNiFe_{1,9}Co_{0,02}O₄ (x=0.1–0.8) со связностью 3-0. С помощью рентгеноструктурного анализа подтверждено, что используемая технология позволяет получать двухфазные структуры, состоящие из ферромагнитной фазы NiFe₂O₄ (со структурой шпинели) и сегнетоэлектрической фазы ЦТС42 (с тетрагональной перовскитной структурой).

Изменением содержания NiFe_{1,9}Co_{0,02}O₄ в системе можно регулировать ее электрофизические и сегнетоэлектрические свойства. Полученные образцы демонстрируют высокие МЭ характеристики – коэффициент по напряжению для x=0.6 составляет 213 мВ/А на частоте 1 кГц и 130 В/А на резонансной частоте, равной 380 кГц.

Список литературы:

1. Recent Progress in Multiferroic Magnetoelectric Composites: from Bulk to Thin Films / J. Ma [et al.] // *Adv. Mater.* – 2011. – Vol. 23, № 9. – P. 1062–1087.
2. Mitoseriu, L. Intrinsic/extrinsic interplay contributions to the functional properties of ferroelectric-magnetic composites / L. Mitoseriu, V. Buscaglia // *Phase Transitions.* – 2006. – Vol. 79, № 12. – P. 1095–1121.
3. Лалетин, В.М. Магнитоэлектрические свойства композиционной керамики цирконат-титанат свинца – феррит никеля / В.М. Лалетин // *Материалы, технологии, инструменты.* – 2014. – Т. 19, №4. – С. 56–60.