

## ВЛИЯНИЕ ДОБАВОК ОКИСИ ТИТАНА НА СВОЙСТВА КОМПОЗИЦИОННОЙ КЕРАМИКИ ЦТС – ФЕРРИТ НИКЕЛЯ

<sup>1</sup>Лалетин В.М., <sup>2</sup>Филиппов Д.А.

<sup>1</sup>ГНУ «Институт технической акустики НАН Беларуси»,  
г. Витебск, Беларусь, E-mail: laletin57@rambler.ru

<sup>2</sup>«Новгородский государственный университет», г. Великий Новгород, Россия

### Введение

Спекание объемных композиционных материалов феррит – пьезоэлектрик сопровождается перекрестным легированием исходных компонентов [1,2]. Ионы титана диффундируют в магнитную фазу, а ионы железа в пьезоэлектрическую. Недостаток ионов титана в пьезоэлектрической фазе приводит к нарушению ее стехиометрии, что в свою очередь сопровождается ухудшением ее диэлектрических и пьезоэлектрических характеристик и влияет на величину магнитоэлектрического (МЭ) эффекта. Поэтому, с целью компенсации недостатка ионов титана в пьезоэлектрической фазе, представляет интерес исследовать влияние добавок окиси титана в объемный композит на его диэлектрические и МЭ характеристики [3].

### Изготовление образцов и методы исследований.

В качестве исследуемого материала использовалась композиционная керамика на основе ЦТС23 и модифицированного феррита никеля  $\text{NiFe}_{1,9}\text{Co}_{0,02}\text{O}_4$  с отношением феррита к пьезоэлектрику равным 50:50. Величина добавок  $\text{TiO}_2$  составила 0,3%, 0,7%, 1,5%, 3%, 5% по отношению к весу феррита с пьезоэлектриком. Полученные заготовки спекали в тиглях со свинец содержащей засыпкой в течение двух часов при температурах 1180, 1200, 1220, и 1240°C. Образцы имели форму дисков диаметром 8,7 – 8,8 мм и толщиной 0,8 – 0,9 мм. Поляризацию образцов осуществляли при температуре 80 – 100°C в течение двух часов в электрическом поле 4 кВ/мм с последующим охлаждением в этом поле.

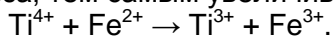
МЭ эффект исследовали путем измерения напряжения, возникающего на образце, при воздействии на него переменного и постоянного магнитных полей. МЭ коэффициент по напряжению ( $\alpha_E$ ) определяли исходя из толщины образца ( $t$ ), величины напряжения ( $u$ ) и напряженности переменного магнитного поля ( $h$ ):

$$\alpha_E = u/(h \cdot t).$$

Исследования проведены при двух различных ориентациях образца. В одном случае вектор электрической поляризации был перпендикулярен магнитным полям (поперечный эффект), в другом случае – параллелен (продольный эффект).

### Результаты исследований и обсуждение.

Условием существования МЭ эффекта является поляризация материала. От того насколько успешно она пройдет, зависит величина МЭ эффекта. Существование магнитной фазы снижает удельное сопротивление композита по сравнению с чистым пьезоэлектриком, что ухудшает условия поляризации. Поэтому в качестве магнитоэлектрической фазы использовался модифицированный феррит никеля ( $\text{NiFe}_{1,9}\text{Co}_{0,02}\text{O}_4$ ). Это позволило получить композиционную керамику с удельным сопротивлением  $5 \cdot 10^8 - 5 \cdot 10^9$  Ом м. Также установлено, что введение окиси титана приводит к росту сопротивления керамики в 3-5 раз. Кроме того, с увеличением температуры спекания удельное сопротивление возрастает в 2-3 раза. По-видимому, это связано с диффузией ионов титана в шпинельную фазу. Находясь в ней в трехвалентном состоянии, он способен понижать концентрацию двухвалентных ионов железа, тем самым увеличивая сопротивление магнитной фазы.



Исследования диэлектрических характеристик показали, что введение добавок окиси титана вызывает рост диэлектрической проницаемости в 1,5-2,0 раза. Это также сопровождается уменьшением в два раза тангенса угла диэлектрических потерь (рис. 1). Проанализируем возможные причины, вызвавшие это явление. Композиционный материал состоит из двух фаз: магнитной и пьезоэлектрической. Хорошо известно, что

диэлектрическая проницаемость ферритов может достигать десятки и сотни тысяч единиц. Однако это всегда сопровождается ростом тангенса угла диэлектрических потерь. В нашем случае тангенс угла диэлектрических потерь уменьшается. Следовательно, магнитная фаза не может нести ответственность за это явление. Поэтому можно предположить, что полученный результат является следствием изменения свойств пьезоэлектрической фазы и это происходит следующим образом. Диффузия ионов титана в магнитную фазу приводит к возникновению нестехиометрии в составе пьезоэлектрической фазы, что сопровождается уменьшением диэлектрической проницаемости. Введение добавки  $TiO_2$  компенсирует их недостаток в пьезоэлектрической фазе, что в свою очередь приводит к росту диэлектрической проницаемости.

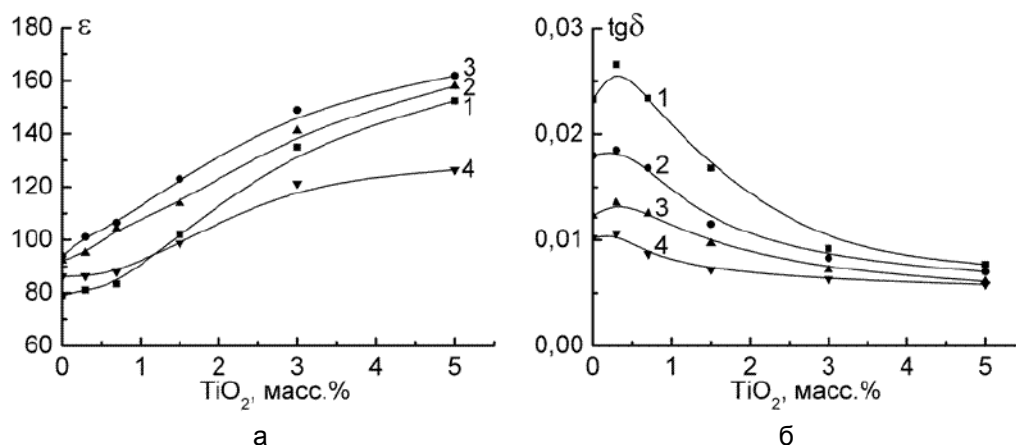


Рисунок 1 – Зависимость диэлектрической проницаемости (а) и тангенса угла диэлектрических потерь (б) керамики ЦТС23 –  $NiFe_{1.9}Co_{0.1}O_4$  от добавок  $TiO_2$ , полученной при температурах спекания 1180°C (1), 1200°C (2), 1220°C (3), 1240°C (4)

Результаты исследований влияния добавок окиси титана на низкочастотный МЭ коэффициент при различных температурах спекания композиционной керамики представлены на рисунке 2. С увеличением температуры спекания от 1180°C до 1240°C наблюдается рост МЭ сигнала. При температуре спекания 1240°C МЭ коэффициент имеет максимальную величину и составляет 260 мВ/А при продольном эффекте и 173 мВ/А при поперечном. Введение добавок окиси титана вызывает рост МЭ сигнала примерно на 9-11%. Максимальная величина МЭ коэффициента наблюдается при добавке окиси титана равном 0,7 масс.%. В случае резонансного эффекта рост поперечного МЭ сигнала достигает 18% при добавках окиси титана в количестве 0,7-1,5 масс.% (рис. 3). Максимальная величина МЭ коэффициента составляет 260 В/А при добротности равной 2600. По-видимому, такие закономерности обусловлены неоднозначным влиянием диэлектрической проницаемости ( $\epsilon$ ) и пьезомодуля ( $d_{33}$ ) на МЭ коэффициент, так как введение добавок окиси титана вызывает рост обоих параметров:

$$\alpha_E \sim d_{33} / \epsilon.$$

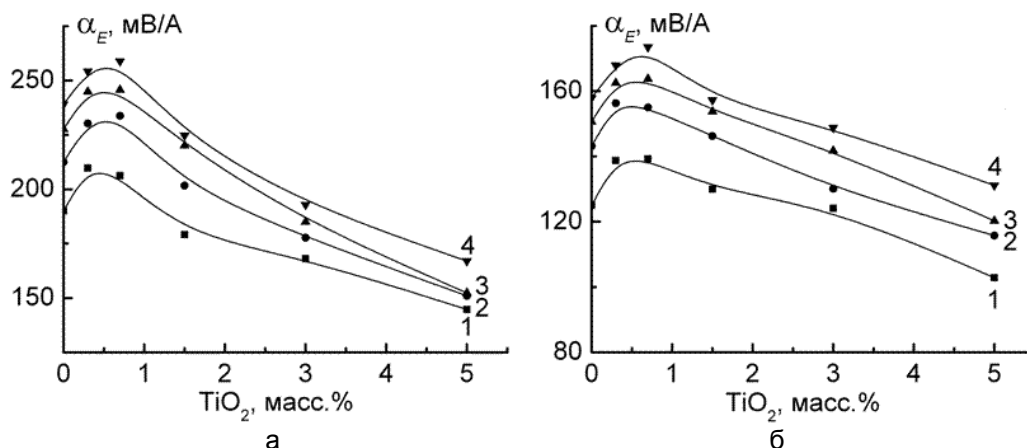


Рисунок 2 – Зависимость продольного (а) и поперечного (б) низкочастотного МЭ коэффициента по напряжению от добавки  $\text{TiO}_2$  керамики ЦТС23 –  $\text{NiFe}_{1,9}\text{Co}_{0,02}\text{O}_4$  при температурах спекания  $1180^\circ\text{C}$  (1),  $1200^\circ\text{C}$  (2),  $1220^\circ\text{C}$  (3),  $1240^\circ\text{C}$  (4)

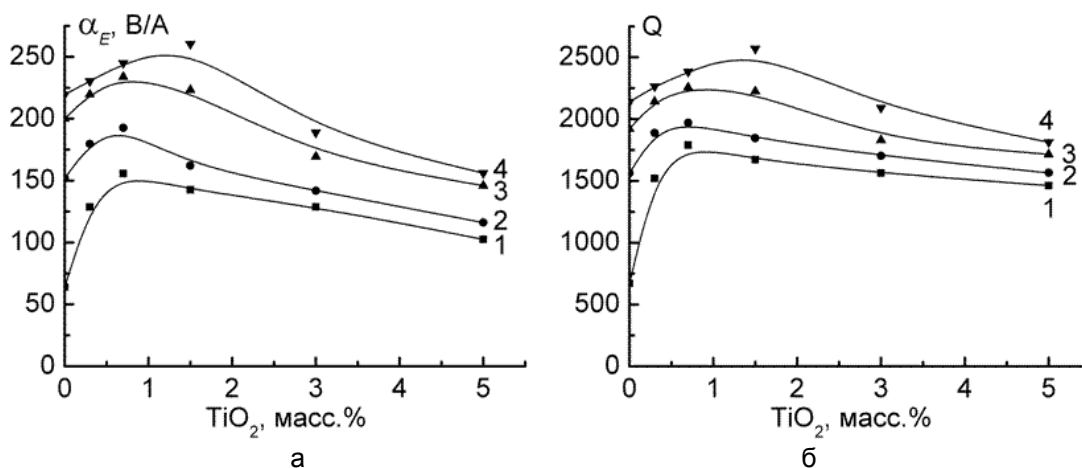


Рисунок 3 – Зависимость резонансного МЭ коэффициента по напряжению (а) и добротности (б) от добавки  $\text{TiO}_2$  керамики ЦТС23 –  $\text{NiFe}_{1,9}\text{Co}_{0,02}\text{O}_4$  при температурах спекания  $1180^\circ\text{C}$  (1),  $1200^\circ\text{C}$  (2),  $1220^\circ\text{C}$  (3),  $1240^\circ\text{C}$  (4)

### Выводы

Получена керамика ЦТС23 – феррит никеля, легированная окисью титана с МЭ коэффициентом, равным 260 мВ/А на частоте 1 кГц и 260 В/Ана резонансной частоте при добротности, равной 2600. Введение окиси титана в композиционную керамику увеличивает МЭ коэффициент от 10% до 20%. При этом также наблюдается рост в 1,5 – 2,0 раза диэлектрической проницаемости и уменьшение в два раза тангенса угла потерь. Полученные результаты объясняются компенсацией ионов титана, диффундирующих из пьезоэлектрической фазы в магнитную.

Работа выполнена при поддержке гранта совместного конкурса РФФИ – БРФФИ: Российский проект № 16-52-00184 и Белорусский проект № Ф16Р-130.

### Список литературы:

1. J.Ryu, A.Vazquez, K.Uchino, et al., Journal of Electroceramics, V.7, p.17, (2001).
2. J.Y.Zhai, N.Cai, L.Liu, et al., Materials Science and Engineering, B99, p.329, (2003).
3. Boomgard van den J., Born R.A.J., Journal of Materials Science, V.13, p.1538, (1978).