

# ВЛИЯНИЕ ОСОБЕННОСТЕЙ МИКРОСТРУКТУРЫ НА МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА СЛОИСТЫХ ГЕТЕРОСТРУКТУР НИКЕЛЬ – ЦИРКОНАТ-ТИТАНАТ СВИНЦА

Поддубная Н. Н.<sup>1</sup>, Клубович В. В.<sup>1</sup>, Кузнецова Т. А.<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Институт технической акустики НАН Беларуси, г. Витебск, Беларусь,

<sup>2</sup> Институт порошковой металлургии НАН Беларуси, г. Минск, Беларусь.

E-mail: [poddubnaya.n@rambler.ru](mailto:poddubnaya.n@rambler.ru)

С момента обнаружения гигантского магнитоэлектрического (МЭ) эффекта в композиционных структурах [1] число публикаций, посвященных аналогичным исследованиям, значительно возросло. Тем не менее, большинство изученных материалов касаются объемных композиционных структур либо монокристаллических образцов. Изучению слоистых МЭ структур посвящен ряд теоретических работ [2, 3]. Практическое исследование свойств слоистых магнитоэлектрических материалов началось сравнительно недавно и проводилось на модельных образцах, выполненных с использованием полимерной связующей компоненты для феррит-пьезоэлектрических композиционных структур. Первые исследования двухфазных металл – пьезоэлектрических материалов представлены в работах [4, 5]. Нынешняя работа являлась продолжением начатых исследований и ставила целью изучение влияния свойств микроструктуры слоистых мультиферроиков никель – цирконат-титанат свинца (ЦТС) на МЭ свойства.

Пьезокомпонента структуры изготовлена из порошка на основе ЦТС 42 и ЦТС 23 различной степени дисперсности. Размер зерен исходного порошка определялся длительностью помола в шаровой мельнице. Синтезированная керамика имела форму диска с диаметром 8,8 – 9,0 мм высотой 0,4 мм. Заготовки поляризовались в электрическом поле 3,5-4 кВ/см·Э. Магнитоэлектрические покрытия получены методами химического и электрохимического осаждения меди и никеля.

Для изучения МЭ свойств на образцы воздействовали постоянным полем электромагнита и переменным магнитным полем, генерируемым катушками Гельмгольца. МЭ коэффициент по напряжению рассчитан по формуле:  $\alpha_E = \frac{dU}{(h \cdot dH)}$ ,

где  $dU$  – измеренное значение электрической напряженности,  $dH$  – изменение напряженности приложенного к образцу постоянного магнитного поля,  $h$  – толщина пьезокерамики. Изучение МЭ свойств проводилось при поперечной ориентации магнитных полей к направлению вектора электрической поляризации структуры, как показано на рис. 1. При измерениях низкочастотного коэффициента по напряжению величина переменного магнитного поля составляла 10 Э, частота 1 кГц. Постоянное магнитное поле изменялось от 0 до 2,0 кЭ. В случае изучения резонансного эффекта измерения коэффициента по напряжению проводили в переменном магнитном поле 100 Э. Частота переменного и величина напряженности постоянных магнитных полей подбирались так, чтобы наблюдаемое приращение амплитуды напряжения было максимальным для каждого конкретного образца.

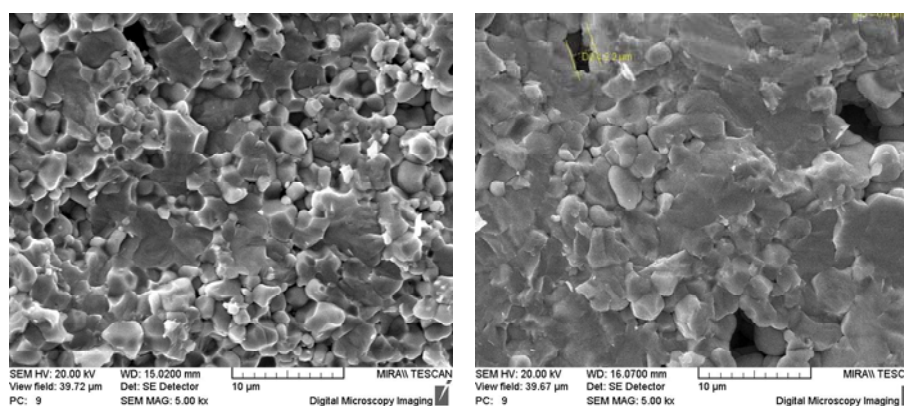


Рис. 1. Ориентация образца при МЭ измерениях

Зависимость плотности керамических образцов от длительности помола исходного порошка представлена в таблице. Исследования микроструктуры керамики показали отличие в размере зерен и величине пористости керамики различных марок. Средний размер зерен образцов ЦТС 42 несколько уступает величине зерен ЦТС 23. Пористость заготовок керамики ЦТС 42 несколько меньше пористости керамики 23.

**Таблица.** Зависимость электрических характеристик в различных типах слоистых структур

Вид керамики			ЦТС 23, $T_{\text{синтеза}} = 1210^{\circ}\text{C}$				ЦТС 42, $T_{\text{синтеза}} = 1210^{\circ}\text{C}$			
длительность помола			0	1	5	10	0	1	5	10
			мин	мин	мин	мин	мин	мин	мин	мин
	$h$	мм	0,4	0,4	0,4	0,4	0,65	0,35	0,4	0,4
	$\rho$	г/см <sup>3</sup>	7,17	7,26	7,12	7,17	7,02	6,52	7,14	6,89
Ag- ЦТС- Ag	$U_{\text{поляризации}}$	кВ/мм	3,5	3,5	3,5	3,5	4	4	3,5	3,5
	$C$	пФ	495	507	565	626	460	1200	1500	1300
	$\text{tg } \alpha$		0,01	0,01	0,01	0,01	0,012	0,004	0,006	0,006
Cu- ЦТС- Cu	$C$	пФ	520	643	600	705	503	1300	1700	1500
	$\text{tg } \alpha$		0,02	0,023	0,031	0,034	0,04	0,04	0,06	0,099
	$Q$		25,57	-	101,8	61,96	37,84	56,24	18,28	-



**Рис. 2.** Микроструктура керамики ЦТС 42 – слева и ЦТС 23 – справа.

Снижение плотности керамики ЦТС 42 на начальном этапе может быть обусловлено существенным разбросом в величине зерен порошка и возрастанием пористости в спёке. Увеличение длительности помола порошка до 5 мин приводит к существенному снижению доли крупных зерен в керамическом порошке, росту концентрации мелких частиц, постепенному заполнению пор и росту плотности синтезированной керамики. Одновременно с ростом содержания мелких частиц в порошке снижается температура, необходимая для синтеза керамики. По этой причине продолжение механического воздействия до 10 мин приводит лишь к незначительному снижению среднего размера зерен порошка, формированию микротрещин из-за превышения температуры синтеза и незначительном уменьшении плотности образцов ЦТС 42.

Несколько другим будет картина в керамике ЦТС 23. Керамики марки 42 и 23 близки по размеру зерен. Однако общая пористость керамики 23 изначально несколько выше, а зерна – более хрупкие. По этой причине уже непродолжительный помол порошка приводит к существенному снижению размера зерен порошка и возрастанию плотности. С ростом длительности помола средний размер зерен уменьшается, а предельная температура синтеза снижается. Это приводит к росту количества микротрещин в синтезированных образцах и отражается в поведении плотности: существенный рост на начальном этапе, и постепенный спад при продолжении длительности помола. Емкость образцов определяется свойствами керамики и качеством нанесенного контактного слоя. С уменьшением среднего размера зерен керамики емкость образцов снижается и несколько возрастает с превышением предельной температуры синтеза. Если величина плотности и емкости зависит непосредственно от свойств керамики, то на значение тангенса угла диэлектрических потерь в большей мере влияние оказывает выбор металлического проводящего слоя. Значения тангенса для образцов с контактами меди выше этой величины в структурах с серебряными электродами, но ниже, чем в

материалах с контактами никеля [6]. Незначительное возрастание угла потерь с длительностью помола, вероятно, обусловлено глубиной проникновения металлического покрытия в керамику. Добротность МЭ гетероструктур определяется множеством факторов, наиболее существенными из которых является адгезия покрытий к поверхности керамики. На рис. 3 приводятся данные исследования МЭ эффекта в области низких частот. Поведение МЭ эффекта в области резонанса показано на рис. 4.

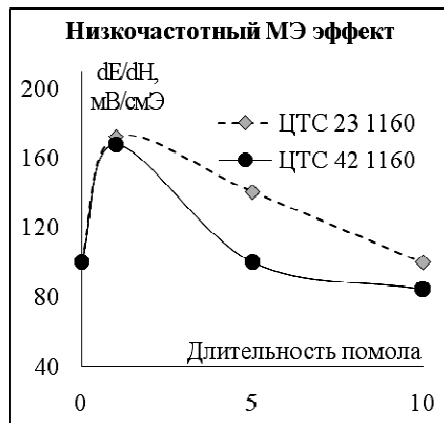


Рис. 3. Низкочастотный МЭ эффект

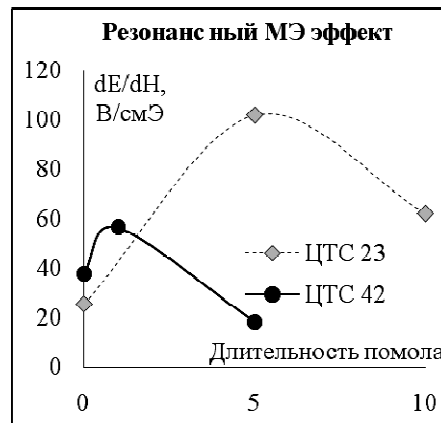


Рис. 4. Резонансный МЭ эффект

МЭ свойства композиционных структур являются комбинацией между магнито-стрикционными и пьезоэлектрическими качествами компонент и степенью связности в гетероструктуре. В случае низкочастотного МЭ эффекта наибольший вклад в величину отклика вносят стрикционные свойства каждой из входящих в состав гетероструктуры компонент. Лучшей комбинацией свойств (плотности, емкости, тангенса угла диэлектрических потерь) в обоих типах пьезокерамики обладают структуры после 1 мин. помола, и величина низкочастотного отклика в них максимальна. При резонансном эффекте существенно возрастает роль взаимосвязи между компонентами слоистой структуры, которая определяется добротностью. В этом случае величина резонансного МЭ коэффициента для керамики ЦТС 42 принадлежит образцам, полученным после 1 мин. помола. У керамики ЦТС 23 максимум резонансного эффекта наблюдается в образцах после 5 мин. дробления.

1. Д.Н. Астров / Магнитоэлектрический эффект в окиси хрома // ЖЭТФ. - 1961. - Т. 40. - С. 1035-1041.
2. G. Srinivasan, V.M. Laletsin, R. Hayes, N. Puddubnaya, E.T. Rasmussena, D.J. Fekel /Giant magnetoelectric effects in layered composites of nickel zinc ferrite and lead zirconate titanate // Solid State Communications 124 (2002) 373–378
3. D.A. Filippov, M.I. Bichurin, V.M. Petrov, V.M. Laletin, N.N. Poddubnaya, and G.Srinivasan / Giant Magnetoelectric Effect in Composite Materials in the Region of Electromechanical Resonance// Technical Physics Letters, Vol. 30, No. 1, 2004, pp. 6–8
4. В.М. Лалетин, Н.Н. Поддубная /Магнитоэлектрические свойства композиционных слоистых металл - пьезоэлектрических структур.// Сб. тр. V межд. науч. – пр. конф. «Исследование, разработка и применение высоких технологий в промышленности», 28-30 мая 2008 г., Санкт-Петербург, Россия, Том. 12 С. 258-259.
5. Н.Н. Поддубная, В.М. Лалетин /Магнитоэлектрические свойства металл – пьезоэлектрических слоистых структур.// Материалы докладов ХLI науч.-технич. конф. преподавателей и студентов ВГУ, Витебск 2008 г., С. 68-70
6. Н.Н. Поддубная, В.М. Лалетин /Электрический отклик в слоистых металл – пьезоэлектрических структурах.// Материалы докладов респ. науч.-пр. конф. студентов, аспирантов и молодых ученых «III Машеровские чтения», 24 – 25 марта 2009 г., ВГУ, Витебск, С. 258-260.