

## МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ В КЕРАМИКЕ НА ОСНОВЕ ЦИРКОНАТА-ТИТАНАТА СВИНЦА И НИКЕЛЬ-ЦИНКОВЫХ ФЕРРИТОВ

В.М. Лалетин<sup>1</sup>, Н.Н. Поддубная<sup>1</sup>, G. Srinivasan<sup>2</sup>.

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

<sup>2</sup>Oakland University, Rochester, Michigan 48309, USA

В настоящее время известно большое количество однофазных сегнетомагнетиков. Однако все они обладают малой величиной магнитоэлектрического (МЭ) взаимодействия. Поэтому существенный интерес представляют композиционные материалы. Исследования показали, что они имеют величину МЭ эффекта в десятки и сотни раз превышающую аналогичное значение для лучших однофазных материалов [1]. Необходимо отметить, что выбор составляющих компонентов для изготовления композитов имеет огромное значение. В качестве магнитной фазы обычно используется феррит никеля, имеющий большую магнитострикцию и высокое удельное сопротивление. Однако в работе [2], посвященной исследованию слоистых структур феррит-пьезоэлектрик, отмечается, что максимальный МЭ эффект наблюдается при использовании феррита состава  $Ni_{0,8}Zn_{0,2}Fe_2O_4$ . В этой связи нами проведены исследования объемных композитов, содержащие никель-цинковые ферриты.

Композиционные материалы феррит-пьезоэлектрик получены путем спекания смесей однофазных компонентов. С этой целью были приготовлены образцы системы ЦТС – никель-цинковый феррит с весовым отношением феррита к пьезоэлектрику равным 3:7, 4:6, 5:5, 6:4. В качестве пьезоэлектрической фазы использовалась промышленная пьезокерамика ЦТС-42. Для магнитной фазы применяли никель-цинковые ферриты стехиометрического состава  $Ni_{1-x}Zn_xFe_2O_4$  ( $x = 0, 0.1, 0.2, 0.3$ ) и никель-цинковые ферриты с недостатком по железу, модифицированные кобальтом  $Ni_{1-x}Zn_xFe_{1,9}Co_{0,02}O_4$  ( $x = 0, 0.1, 0.2, 0.3$ ). Образцы спекали в тиглях со свинецсодержащей засыпкой в течение двух часов при температуре  $1200^{\circ}C$ . Поляризацию материалов осуществляли при температуре  $80^{\circ}C$  в течение пяти часов в электрическом поле 2-3 кВ/мм, возрастающем при охлаждении до 5 кВ/мм.

МЭ эффект исследовали путем измерения напряжения, возникающего на образце, при наложении на него переменного и постоянного магнитных полей. МЭ коэффициент  $dE/dH$  определялся исходя из толщины пьезоэлектрика  $h$ , величины напряжения  $dV$  и напряженности переменного магнитного поля  $dH$ ,  $dE/dH = dV/(h \cdot dH)$ . Исследования были проведены при двух различных ориентациях образца. В одном случае вектор электрической поляризации был перпендикулярен магнитным полям (поперечный эффект), в другом случае – параллелен (продольный эффект).

Полевые зависимости МЭ коэффициента для образца состава ЦТС42 – 50 масс.%,  $NiFe_{1,9}Co_{0,02}O_4$  – 50 масс.%, демонстрирующего максимальный МЭ эффект, при продольном и поперечном эффектах представлены на Рис.1. Измерения были сделаны на частоте 1 кГц. В случае поперечного эффекта (кривая 1), МЭ коэффициент достигает максимальной величины 110 мВ/(см·Э) в магнитном поле равным 330 Э. В случае продольного эффекта (кривая 2), МЭ коэффициент принимает максимальное значение 140 мВ/(см·Э) при 1080 Э. Такие результаты объясняются различными значениями поперечной и продольной магнитострикций, а также влиянием размагничивающего фактора образца на МЭ эффект.

Исследование влияния состава феррита, используемого для изготовления композиционного материала, на МЭ эффект позволило установить следующие закономерности. С увеличением содержания цинка  $x = 0.1, 0.2, 0.3$  МЭ коэффициент уменьшается примерно на 10%, 20% и 40%. Это справедливо как для продольного, так и для поперечного МЭ эффектов. Однако, необходимо отметить, что в случае поперечного эффек-

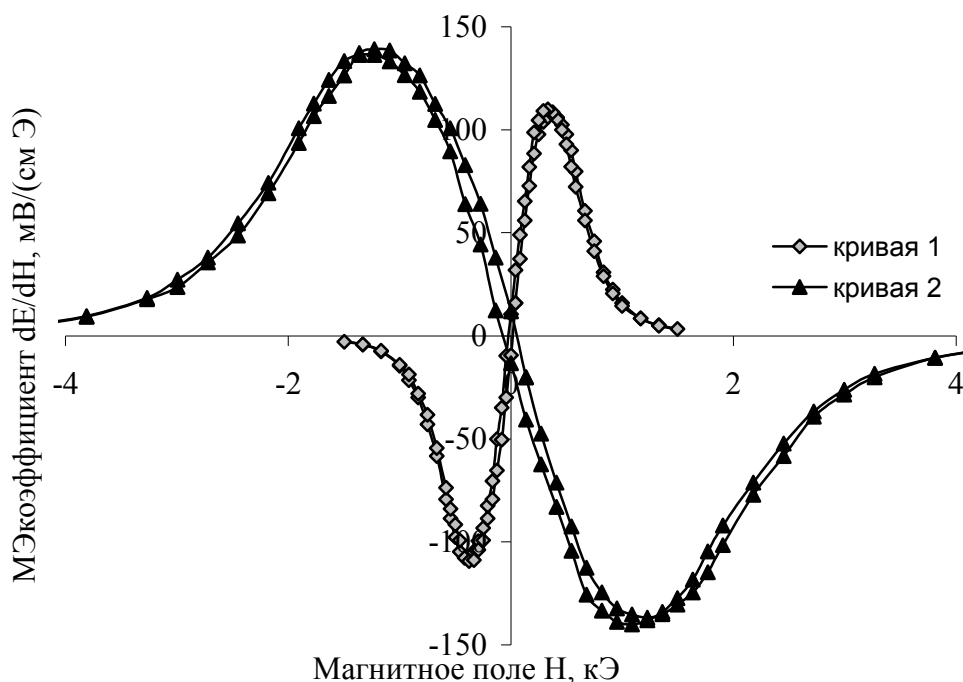


Рис.1 Полевые зависимости поперечного (кривая 1) и продольного (кривая 2) МЭ коэффициентов для образца состава ЦТС42 – 50 масс.%,  $\text{NiFe}_{1,9}\text{Co}_{0,02}\text{O}_4$  – 50 масс.%.

та уменьшение МЭ коэффициента также сопровождается уменьшением значения постоянного магнитного поля при котором наблюдается максимальный сигнал. В результате этого, на начальном участке кривой намагничивания (30 Э) значение МЭ коэффициента для композита содержащего  $\text{Ni}_{0,8}\text{Zn}_{0,2}\text{Fe}_{1,9}\text{Co}_{0,02}\text{O}_4$  оказалось больше на 30% по сравнению с МЭ коэффициентом полученным для композита содержащего  $\text{NiFe}_{1,9}\text{Co}_{0,02}\text{O}_4$ . Этот факт может быть интересным при исследовании МЭ эффекта в отсутствие подмагничивающего поля.

Одним из необходимых условий существования МЭ эффекта является поляризация материала. От того насколько успешно она пройдет будет зависеть величина МЭ эффекта. Существование магнитной фазы снижает удельное сопротивление композита по сравнению с чистым пьезоэлектриком. Поэтому, в настоящее время в качестве магнитной фазы обычно применяется феррит никеля модифицированный добавками марганца и кобальта. В данной работе мы использовали ферриты следующих составов:  $\text{Ni}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Fe}_2\text{O}_4$ ,  $\text{Ni}_{1-x}\text{Zn}_x\text{Fe}_{1,9}\text{Co}_{0,02}\text{O}_4$  ( $x = 0, 0.1, 0.2, 0.3$ ). Во всех случаях применение модифицированного феррита увеличило удельное сопротивление композита в 2-4 раза. Благодаря этому значения МЭ коэффициента для композитов содержащих модифицированный феррит никеля оказались на (10 – 30)% больше по сравнению с композитами содержащие феррит стехиометрического состава.

Частотная зависимость поперечного эффекта для образца состава ЦТС42 – 40 масс.%,  $\text{NiFe}_{1,9}\text{Co}_{0,02}\text{O}_4$  – 60 масс.% приведена на Рис.2. Измерения МЭ коэффициента проводили в постоянном магнитном поле, равном 300 Э. На частоте 383 кГц обнаружен радиальный резонанс с величиной  $dE/dH$  равной 150 В/(см·Э), что соответствует добротности резонатора 1100 единиц. Для всех остальных образцов величина добротности колеблется от 400 до 1200, при изменяющемся резонансном МЭ коэффициенте от 20 В/(см·Э) до 150 В/(см·Э). В случае продольного эффекта значения МЭ коэффициента оказались в несколько раз меньше по сравнению с поперечным эффектом. По-видимому это связано с наведением вихревыми токами в электродах образца переменного магнитного поля.

Полевые зависимости низкочастотного и резонансного МЭ коэффициентов совпадают друг с другом. При этом установлено, что на полевую зависимость резонансного МЭ коэффициента оказывает влияние  $\delta$ -E эффект, наблюдаемый в магнитных материалах. С увеличением магнитного поля резонансная частота возрастает. Относительное изменение резонансной частоты зависит от содержания магнитной фазы и колеблется примерно от 0,3% до 0,5% в зависимости от состава образца.

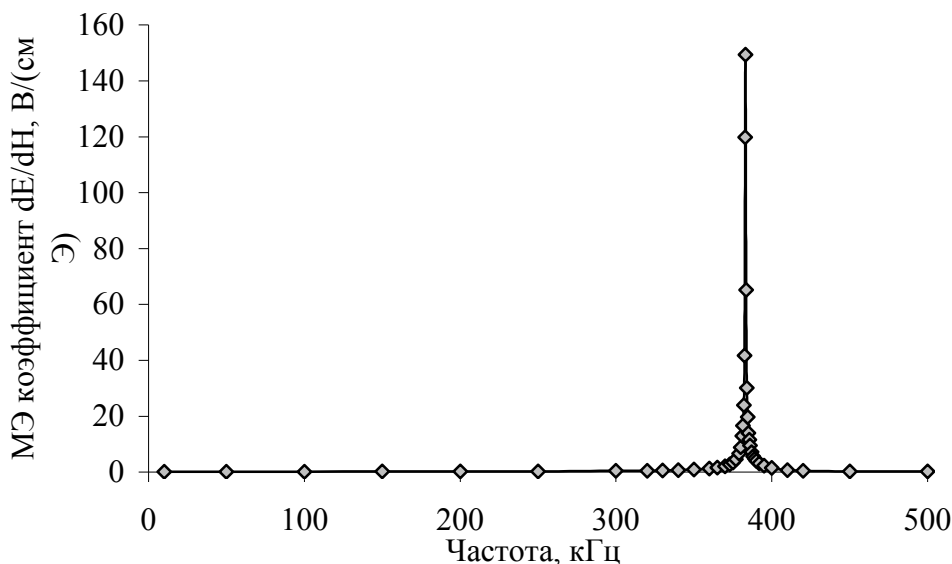


Рис.2. Частотная зависимость поперечного МЭ коэффициента для образца состава ЦТС42 – 40 масс.%, NiFe<sub>1,9</sub>Co<sub>0,02</sub>O<sub>4</sub> – 60 масс.%.

В работе проведены исследования влияния никель-цинковых ферритов на МЭ эффект в объемных композиционных материалах феррит-пьезоэлектрик. Замещение никеля цинком сопровождается уменьшением МЭ коэффициента. Применение ферритов с недостатком по железу, модифицированных кобальтом увеличило удельное сопротивление композита в 2-4 раза, повысило МЭ коэффициент на (10 - 30)%, по сравнению с результатами полученными с использованием ферритов стехиометрического состава. Полученное максимальное значение МЭ эффекта в области низких частот 140 мВ/(см·Э) на 20% выше по сравнению с аналогичным результатом представленным в работе [3] для объемных композитов. В области резонанса, достигнутая величина МЭ эффекта 150 В/(см·Э) на 65% больше аналогичного параметра полученного в трехслойных структурах пермендюр-ЦТС-пермендюр [4].

#### ЛИТЕРАТУРА

1. A.M.J.G. Van Run, D.R. Terrell, J.H. Scholing. An in situ grown eutectic magnetoelectric composite material, *J. Mat. Sci.*, 9, pp.1710-1714, (1974).
2. G.Srinivasan, V.M.Laletsin, R.Hayes, N.Paddunaya, E.T.Rasmussen, D.J.Fekel. Giant magnetoelectric effects in layered composites of nickel zinc ferrite and zirconate titanate. *Solid State Communications*, v.124, pp.373-378, (2002).
3. J.Ryu, A.Vazquez, K.Uchino, H.Kim. Piezoelectric and Magnetoelectric Properties of Lead Zirconate Titanate/Ni-Ferrite Particulate Composites. *Journal of Electroceramics*, 7, pp.17-24, (2001).
4. V.M.Laletin, N.N.Paddubnaya, G.Srinivasan, M.I.Bichurin. Magnetoelectric Effects in Ferromagnetic Metal - Piezoelectric Oxide Layered Structures. *Magnetoelectric Interaction Phenomena in Crystals. Mathematics, Physics and Chemistry* – v.164, pp.57-63, (2004).