



DOI: 10.5604/20830157.1166557

POMIARY WŁAŚCIWOŚCI ELEKTRYCZNYCH NANOKOMPOZYTÓW O STRUKTURZE STOP METALICZNY FeCoZr W MATRYCY DIELEKTRYCZNEJ PbZrTiO₃

Oleksandr Boiko^{1,2}, Tomasz N. Kotunowicz¹¹Politechnika Lubelska, Katedra Urządzeń Elektrycznych i Techniki Wysokich Napięć, ²Sumski Państwowy Uniwersytet, Katedra Fizyki Stosowanej

Streszczenie. W pracy przedstawiono wyniki pomiarów zmiennoprądowych właściwości elektrycznych ziarnistych nanokompozytów o strukturze (FeCoZr)_x(PZT)_(100-x). Praca zawiera wstępną analizę parametrów elektrycznych (pojemność C_p, tangens kąta strat dielektrycznych tgδ, rezystancja R_p oraz kąta przesunięcia fazowego θ) dla próbek nanokompozytów o różnych zawartościach fazy metalicznej x zbadanych w zakresie częstotliwości 50 Hz – 5 MHz oraz zakresie temperatur pomiarowych 15 K – 375 K. Ustalono, że w nanokompozytach występują zjawiska charakterystyczne dla konwencjonalnych układów RLC.

Słowa kluczowe: nanokompozyty, rozpylanie jonowe, układy RLC, pomiary częstotliwościowe

ВИМІРЮВАННЯ ЕЛЕКТРИЧНИХ ВЛАСТИВОСТЕЙ НАНОКОМПОЗИТІВ ЗІ СТРУКТУРОЮ МЕТАЛЕВОГО СПЛАВУ FeCoZr В ДІЕЛЕКТРИЧНІЙ МАТРИЦІ PbZrTiO₃

Аноатація. У роботі представлені результати вимірювань електричних властивостей зернистих наноконкомпозитів зі структурою (FeCoZr)_x(PZT)_(100-x) на змінному струмі. Робота включає в себе попередній аналіз електричних параметрів (ємність C_p, тангенс кута діелектричних втрат tgδ, опір R_p і кут зсуву фаз θ) для зразків наноконкомпозитів з різним вмістом металевої фази x досліджених в діапазоні частот 50 Гц – 5 МГц і в діапазоні температур від 15 К – 375 К. Було виявлено, що в наноконкомпозитах спостерігаються явища характерні для звичайних RLC ланцюгів.

Ключові слова: наноконкомпозити, іонне розпилення, RLC ланцюги, частотні вимірювання

MEASUREMENTS OF ELECTRICAL PROPERTIES OF NANOCOMPOSITE CONTAINING METALLIC ALLOY FeCoZr IN A PbZrTiO₃ DIELECTRIC MATRIX

Abstract. Here, the AC electrical properties measurements of (FeCoZr)_x(PZT)_(100-x) granular nanocomposites are studied. The work contains a preliminary analysis of the electrical parameters (capacitance C_p, loss coefficient tgδ, resistance R_p and phase angle θ) for nanocomposite samples with different metallic phase content x studied in the frequency range 50 Hz – 5 MHz and temperature range 15 K – 375 K. It was established that the AC phenomena are typical for the conventional RLC circuits.

Keywords: nanocomposites, ion beam sputtering, RLC circuits, frequency measurements

Wstęp

Obecnie, jednym z nowoczesnych kierunków rozwoju nauki i techniki jest nanotechnologia. Znane nam z makro skali właściwości materiałów konstrukcyjnych zmieniają się, gdy zaczynają funkcjonować w nanostrukturach. Zmieniają się ich właściwości chemiczne, mechaniczne, magnetyczne, optyczne i inne [5], w szczególności sposób zaczynają one zależeć od wielkości i kształtu cząsteczek. Z jednej strony z racji wielkości podlegają one już nie tylko prawom fizyki klasycznej, ale są dla nich właściwe także zachowania opisywane przez fizykę kwantową. Dualizm charakteru nanocząstek stanowi jedną z największych zalet tego rodzaju obiektów. Dodatkowo nanocząstki posiadają rozmiary, które pozwalają im na między innymi przenikanie przez większość barier, również tych na poziomie bioorganicznym.

Z pośród badań materiałów nanorozmiarowych wyróżniają się badania właściwości fizyko-chemicznych struktur, które zawierają metaliczne nanocząsteczki losowo rozmieszczone w objętości dielektryka, tzw. nanokompozyty typu metal-dielektryk [2, 4, 8, 7]. Wykazują one bardzo interesujące zjawiska elektryczne (ujemna pojemność, bezuzwojeniowa indukcyjność, zjawiska perkolacyjne) [2, 4, 8, 7], mechaniczne (wytrzymałość, odporność na korozję) [5, 6] oraz magnetyczne (przenikalność magnetyczna, namagnesowanie, anizotropia magnetyczna) [9] i mogą być powszechnie wykorzystywane w elektronice i elektrotechnice.

W pracy przedstawiono wyniki pomiarów zmiennoprądowych właściwości elektrycznych ziarnistych nanokompozytów, w których fazę metaliczną tworzy ferromagnetyk FeCoZr a materiał dielektryczny to piezoelektryk PbZrTiO₃, w skrócie PZT, który jest powszechnie znany w elektrotechnice jako ceramiczny perowskit.

Вступ

В даний час одним з напрямків розвитку сучасної науки і техніки є нанотехнологія. Відомі нам з макрорівнів властивості структурних матеріалів змінюються, коли починають функціонувати в nanostrukturach. Змінюються їх хімічні, механічні, магнітні, оптичні та інші властивості [5], а точніше, вони починають залежати від розміру і форми частинок. Беручи до уваги їх розмірність, вони підлягають не тільки законам класичної фізики, але й квантової фізики. Дуалізм природи наночастинок є одним з найбільших переваг цього типу об'єктів. Крім того, наночастинок мають розмір, який дозволяє їм проникати через більшість бар'єрів, у тому числі на біоорганічному рівні.

Серед досліджень нанорозмірних матеріалів виділяються дослідження фізико-хімічних властивостей структур, які містять металеві наночастинок розміщені випадковим чином в об'ємі діелектрика, так звані, наноконкомпозити метал-діелектрик [2, 4, 8, 7]. Вони демонструють незвичайні електричні властивості (відємна ємність, індуктивність при відсутності обмотки, перколяційні явища) [2, 4, 8, 7], механічні (міцність, стійкість до корозії) [5, 6] та магнітні (магнітна проникність, намагніченість, магнітна анізотропія) [9], і можуть широко застосовуватися в електроніці та електротехніці.

У роботі представлені результати вимірювань електричних властивостей гранульованих наноконкомпозитів на змінному струмі, в яких металеву фазу створює ферромагніт FeCoZr, а в якості діелектричного матеріалу використаний пізоелектрик PbZrTiO₃, (скорочено PZT), який широко відомий в електротехніці, як керамічний перовскіт.

Dielektryk $[\text{Pb}_{81}\text{Sr}_4(\text{Na}_{50}\text{Bi}_{50})_{15}(\text{Zr}_{57,5}\text{Ti}_{42,5})\text{O}_3]$ nazywany jest skrótowo PZT od pierwszych liter nazw łacińskich trzech głównych pierwiastków wchodzących w skład dielektryka – ołów Pb, cyrkon Zr oraz tytan Ti. Dzięki szerokiemu izomorfizmowi możliwości doboru procentowej zawartości składników Pb, Zr i Ti, rodzaju stosowanych domieszek oraz w zależności od stosowanej technologii i postaci wytworzonej ceramiki PZT (np.: objętościowe lub cienkowarstwowe elementy) piezoelektryk jest obiektem intensywnych badań podstawowych i aplikacyjnych [1].

1. Eksperyment

1.1. Otrzymanie nanokompozytów

Metody wytwarzania nanomateriałów można podzielić na dwie grupy: metody polegające na budowaniu struktury nanometrycznej z pojedynczych atomów lub cząstek – „oddołne” (bottom-up) i te polegające na rozdrabnianiu mikrometrycznej struktury do skali nanometrycznej – „odgórne” (top-down). W przypadku nanokompozytów typu metal-dielektryk dominującą metodą do wytwarzania z pośród metod bottom-up jest fizyczne osadzenie z fazy gazowej (PVD).

Nanokompozyty $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ gdzie x – zawartość fazy metalicznej [at.%], wytworzono według metody opisanej w pracach [3, 10]. W wyniku rozpylania otrzymano 2 zestawy próbek nanokompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ o zawartościach fazy metalicznej z przedziału 39,9 – 88,4 at.% (atmosfera argonu z małą zawartością tlenu) oraz 29 – 90 at.% (atmosfera argonu z dużą zawartością tlenu).

Do rozpylania zastosowano wiązki jonów argonu i tlenu o parcjalnych ciśnieniach $P_{\text{Ar}} = 6,6$ mPa i $P_{\text{O}_2} = 4,3$ mPa (zestaw 1) oraz $P_{\text{Ar}} = 7,4$ mPa i $P_{\text{O}_2} = 5,1$ mPa (zestaw 2). Współzależność faz metalicznej i dielektrycznej określano na podstawie eksperymentalnych danych jako stosunek sumarycznych koncentracji metali (Fe, Co i Zr) oraz komponentów wchodzących w skład matrycy dielektrycznej (Pb, Zr, Ti).

Nanokompozyty o podobnym składzie fazowym o strukturze ferromagnetyka FeCoZr w matrycach dielektrycznych CaF_2 [4], Al_2O_3 [8, 9] oraz Cu w matrycy z tlenku krzemu SiO_2 [7], w porównaniu do złożonej matrycy, takiej jak $[\text{Pb}_{81}\text{Sr}_4(\text{Na}_{50}\text{Bi}_{50})_{15}(\text{Zr}_{57,5}\text{Ti}_{42,5})\text{O}_3]$ mogą być wytworzone za pomocą rozpylania jonów czystego argonu i zachowują stabilność struktury. W celu uzyskania stabilnej nanoziarnistej struktury warstwy nanokompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ dodawanie tlenu do atmosfery syntezy jest niezbędne.

1.2. Pomiar parametrów elektrycznych nanokompozytów

Pomiary zmiennoprądowych właściwości elektrycznych ziarnistych nanokompozytów o strukturze $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ przeprowadzono na stanowisku zaprojektowanym w Katedrze Urządzeń Elektrycznych i Techniki Wysokich Napięć Politechniki Lubelskiej. Schemat blokowy stanowiska przedstawiono na rysunku 1.

Parametry elektryczne były mierzone w układzie zastępczym równoległym za pomocą zmiennoprądowych mostków impedancji MI1 oraz MI2 typu HIOKI 3532-50 LCR HiTESTER. Określono właściwości z zakresu częstotliwości z przedziału 50 Hz – 5 MHz. Próbkę nanokompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ są zamontowane w komorze próżniowej kriostatu helowego KSH. Pomiar temperatury próbki odbywał się przy użyciu diody silikonowej typu DT-670 w zakresie 15 K – 375 K podłączonej do kontrolera temperatury KT typu LakeShore 335 Temperature Controller. Schładzanie układu pomiarowego odbywa się za pomocą kompresora helowego KPH firmy Advanced Research Systems. W celu uzyskania próżni w komorze próżniowej o ciśnieniu $8 \cdot 10^{-5}$ Pa stosowana jest pompa próżniowa PP amerykańskiej firmy Kurt J. Lesker.

Dielektryk $[\text{Pb}_{81}\text{Sr}_4(\text{Na}_{50}\text{Bi}_{50})_{15}(\text{Zr}_{57,5}\text{Ti}_{42,5})\text{O}_3]$ otrzymał nazwę PZT od pierwszych liter łacińskich nazw trzech jego głównych elementów - ołów (Pb), cyrkon (Zr) i tytan (Ti). Zавдяки широкому ізоморфізму можливостей підбору відсоткового складу компонентів Pb, Zr і Ti, типу використовуваних домішок, застосованого технологічного процесу і форм виробленої кераміки PZT (наприклад об'ємні або тонкошарові елементи), п'єзоелектрик став предметом інтенсивних наукових досліджень та широкого застосування [1].

1. Експеримент

1.1. Отримання наноконкомпозитів

Способи отримання наноматеріалів можуть бути розділені на дві групи: методи які полягають на створенні нанорозмірної структури окремих атомів або частинок - "знизу-вгору" (bottom-up) і ті, які полягають на подрібненню мікрметричної структури до нанометричної - "зверху-вниз" (top-down). У випадку наноконкомпозитів типу метал-діелектрик домінуючим методом отримання, з посеред методів bottom-up, є фізичне наплення з парової фази (PVD).

Наноконкомпозити $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$, де x – вміст металічної фази [at.%], отриманий методом, описаним в роботах [3, 10]. В результаті розпилення, отримано 2 серії зразків наноконкомпозиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ в яких вміст металічної фази в межах 39,9 – 88,4 ат. % (в атмосфері аргону з низьким вмістом кисню) і 29 – 90 ат. % (в атмосфері аргону з високим вмістом кисню).

Для розпилення використано іонні пучки аргону і кисню з парціальним тиском $P_{\text{Ar}} = 6,6$ мПа і $P_{\text{O}_2} = 4,3$ мПа (серія 1), $P_{\text{Ar}} = 7,4$ мПа і $P_{\text{O}_2} = 5,1$ мПа (серія 2). Взаємозалежність діелектричної і металічної фаз визначається на основі експериментальних даних, як співвідношення концентрації металів (Fe, Co і Zr) і компонентів, які входять до складу діелектричної матриці (Pb, Zr, Ti).

Наноконкомпозити з аналогічним фазовим складом, які мають структуру феромагнетика FeCoZr в діелектричній матриці типу CaF_2 [4], Al_2O_3 [8, 9], і Cu в матриці з оксиду кремнію SiO_2 [7], в порівнянні з комплексною матрицею, такою як $[\text{Pb}_{81}\text{Sr}_4(\text{Na}_{50}\text{Bi}_{50})_{15}(\text{Zr}_{57,5}\text{Ti}_{42,5})\text{O}_3]$, можуть бути отримані за допомогою розпилення іонів чистого аргону і зберігають стабільну структуру. Для того, щоб отримати стабільну нано-зернисту структуру шарів наноконкомпозиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ є необхідним додавання кисню до атмосфери синтезу.

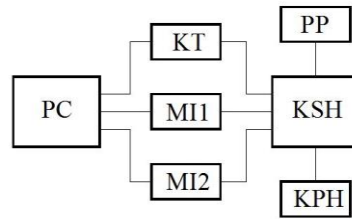
1.2. Вимірювання електричних параметрів наноконкомпозитів

Вимірювання електричних властивостей зернистих наноконкомпозитів зі структурою $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ на змінному струмі відбувалися на установці, запроєктованій на кафедрі електричних приладів та технологій високої напруги Люблінської Політехніки. Блок-схема вимірювальної установки показана на рис. 1.

Параметри були виміряні в паралельній схемі заміщення, з використанням вимірювальних приладів змінного струму (імпеданційних) MI1 і MI2 типу HIOKI 3532-50 LCR HiTESTER. Досліджено властивості в діапазоні частот від 50 Гц – 5 МГц. Зразки наноконкомпозитів $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ були розміщені в вакуумній камері гелієвого криостату KSH. Вимірювання температури зразка відбувалося з використанням кремнієвих діодів DT-670 в діапазоні 15 K – 375 K підключених до регулятора температури KT типу LakeShore 335 Temperature Controller. Охолодження вимірювальної системи здійснюється за допомогою гелієвого компресора KPH фірми Advanced Research Systems. Для того щоб отримати вакуум у вакуумній камері з тиском $8 \cdot 10^{-5}$ Па використовується вакуумний насос PP американської фірми Kurt J. Lesker.

Пробки нанокomпозитів $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ були wygrzewane w piecu rurowym w temperaturach z zakresu 298 K – 573 K z krokiem 25 K w celu uzyskania zmian struktury oraz określenia ich właściwości elektrycznych.

Зразки нанокomпозитів $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ були відпалені в резистанційній печі в температурах з інтервалу 298 K – 573 K з кроком 25 K з метою отримання змін у структурі досліджуваного матеріалу та визначення його електричних властивостей.



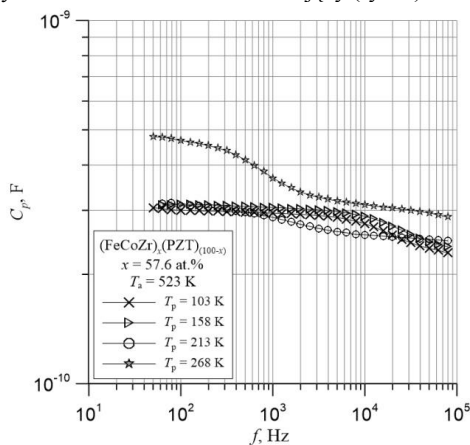
Rys. 1. Schemat blokowy stanowiska do pomiarów właściwości elektrycznych nanokompozytów $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$
 Рис. 1. Блок-схема установки до вимірювання електричних властивостей нанокomпозитів $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$

2. Wyniki i dyskusja

2.1. Nanokompozyty wytworzone w atmosferze argonu z małą zawartością tlenu

Na rysunkach 2 – 5 przedstawiono wybrane częstotliwościowe zależności parametrów elektrycznych nanokompozytów $(\text{CoFeZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 57,6$ at.% wytworzonych w atmosferze argonu z małą zawartością tlenu, zmierzone przy temperaturach z przedziału 15 K – 375 K. Nanokompozyt poddany został izochronicznemu 15 minutowemu wygrzewaniu w temperaturze $T_a = 523$ K.

Z rysunku 2 widać, że pojemność nanokompozytu wykazuje słabe zależności częstotliwościowe i oscyluje na poziomie $5 \cdot 10^{-9}$ F. Lekki spadek pojemności jest obserwowany przy częstotliwościach powyżej 10^4 Hz. Rezystancja nanokompozytu w układzie równoległym wykazuje temperaturowe zależności o czym świadczy przesunięcie przebiegów. W obszarze niskich częstotliwości rezystancja nie zależy od częstotliwości. Po przekroczeniu $f = 10^3$ Hz rezystancja zmienia się prawie o 2 rzędy wielkości i ma charakter malejącej (rys. 3).



Rys. 2. Częstotliwościowa zależność pojemności C_p dla wybranych temperatur pomiarowych nanokompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 57,6$ at.% wygrzanego w temperaturze $T_a = 523$ K

Рис. 2. Частотна залежність ємності C_p для вибраних температур вимірювання нанокomпозиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ із вмістом металічної фази $x = 57,6$ ат.% відпаленого в температурі $T_a = 523$ K

Частотна залежність kąta przesunięcia fazowego θ badanego nanokompozytu w całym zakresie częstotliwości posiada wartości ujemne (rys. 4) co świadczy o pojemnościowym charakterze przewodnictwa elektrycznego. W obszarze niskich częstotliwości jest obserwowany gwałtowny spadek kąta przesunięcia fazowego do wartości bliskich $\theta = -90^\circ$ z ustabilizowaniem wartości po przekroczeniu częstotliwości 10^4 Hz.

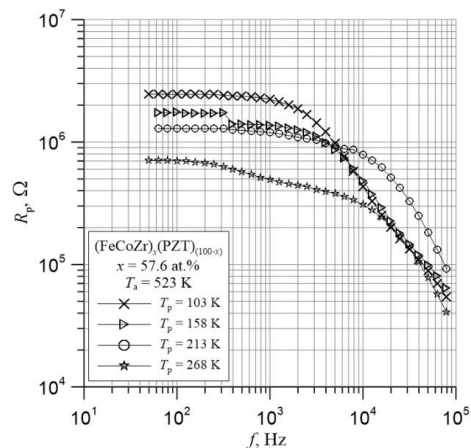
Na rysunku 5 przedstawiono częstotliwościową zależność współczynnika stratności dielektrycznych $\text{tg}\delta$, kształt której jest podobny do kształtu częstotliwościowej zależności kąta przesunięcia fazowego θ . Widać, iż wartości współczynnika stratności dielektrycznych $\text{tg}\delta$ maleją w obszarze częstotliwości 50 Hz – 10^4 Hz, a po przekroczeniu tej granicy następuje ustabilizowanie wartości na poziomie ok. 0,1.

2. Результати та обговорення

2.1. Нанокomпозити отримані в атмосфері аргону з низьким вмістом кисню

На рис. 2 – 5 відображені вибрані частотні залежності електричних параметрів нанокomпозитів $(\text{CoFeZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$, які мають вміст металічної фази $x = 57,6$ ат.%, створені в атмосфері аргону з низьким вмістом кисню, виміряні в температурах від 15 K – 375 K. Нанокomпозит був відпалений протягом 15 хвилин в температурі $T_a = 523$ K.

З рис. 2 можна зауважити, що ємність нанокomпозиту проявляє слабку частотну залежність і коливається на рівні $5 \cdot 10^{-9}$ F. Незначне зниження ємності спостерігається при частотах вищих за 10^4 Гц. Опір нанокomпозиту, вимірний в паралельній схемі заміщення, демонструє температурну залежність, про що свідчать зсуви залежностей. В діапазоні низьких частот опір не залежить від частоти. При досягненні значень частоти, більших за $f = 10^3$ Гц опір змінюється майже на 2 порядки і має тенденцію до зменшення (рис. 3).

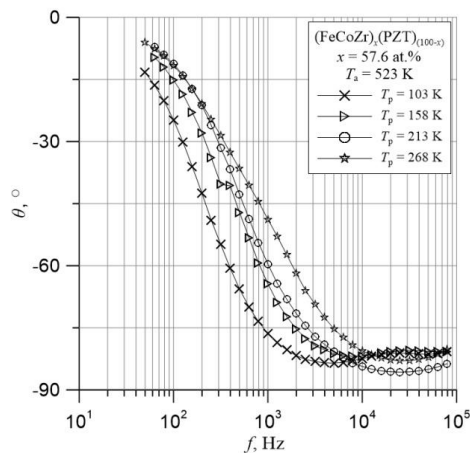


Rys. 3. Częstotliwościowa zależność rezystancji R_p dla wybranych temperatur pomiarowych nanokompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 57,6$ at.% wygrzanego w temperaturze $T_a = 523$ K

Рис. 3. Частотна залежність резистанції R_p для вибраних температур вимірювання нанокomпозиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ із вмістом металічної фази $x = 57,6$ ат.% відпаленого в температурі $T_a = 523$ K

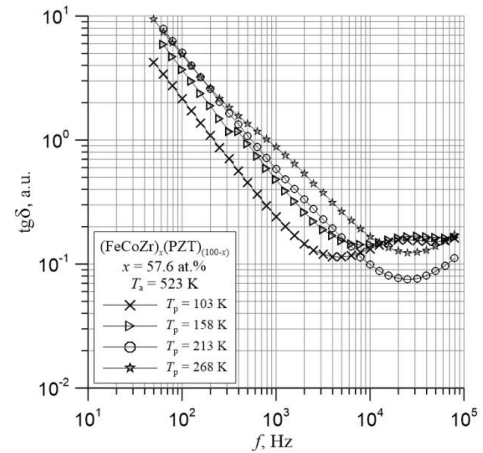
Частотна залежність кута зсуву фаз θ досліджуваного нанокomпозиту у всьому діапазоні частот має від'ємне значення (рис. 4), що вказує на ємнісний характер електричної провідності. В діапазоні низьких частот спостерігається різке зменшення кута зсуву фаз, близько до значення $\theta = -90^\circ$ з подальшою стабілізацією після досягнення значення частоти 10^4 Гц.

На рис. 5 представлена частотна залежність коефіцієнту діелектричних втрат $\text{tg}\delta$, форма якої схожа на форму частотної залежності кута зсуву фаз θ . Можна зауважити, що значення коефіцієнту діелектричних втрат $\text{tg}\delta$ зменшуються в діапазоні частот 50 Гц – 10^4 Гц, а після перевищення граничного значення наступає стабілізація залежності приблизно $\text{tg}\delta = 0,1$.



Rys. 4 Częstotliwościowa zależność kąta przesunięcia fazowego θ dla wybranych temperatur pomiarowych nanokompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 57,6$ at.% wygrzanego w temperaturze $T_a = 523$ K

Рис. 4 Частотна залежність фазового кута зсуву θ для вибраних температур вимірювання наноконкомпозиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ із вмістом металічної фази $x = 57,6$ ат. % відпаленого в температурі $T_a = 523$ K



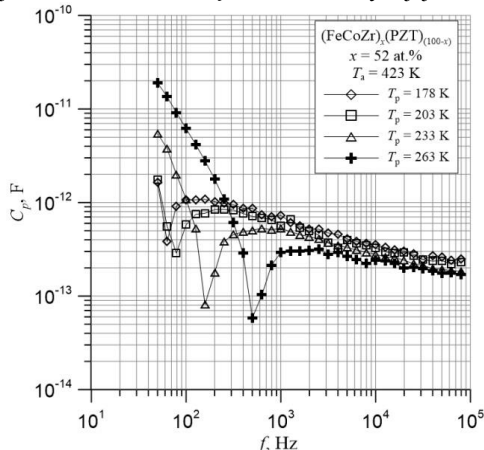
Rys. 5 Częstotliwościowa zależność tangensa kąta strat dielektrycznych $\text{tg}\delta$ dla wybranych temperatur pomiarowych nanokompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 57,6$ at.% wygrzanego w temperaturze $T_a = 523$ K

Рис. 5 Частотна залежність тангенса кута діелектричних втрат $\text{tg}\delta$ для вибраних температур вимірювання наноконкомпозиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ із вмістом металічної фази $x = 57,6$ ат. % відпаленого в температурі $T_a = 523$ K

2.2. Nanokompozyty wytworzone w atmosferze argonu z dużą zawartością tlenu

Na rysunkach 6, 7, 8 i 9 przedstawiono wybrane częstotliwościowe zależności parametrów elektrycznych nanokompozytów $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 52$ at.% wytworzonych w atmosferze argonu z dużą zawartością tlenu, zmierzone przy temperaturach z przedziału 15 K – 375 K. Nanokompozyt poddany został izochronicznemu 15 minutowemu wygrzewaniu w temperaturze $T_a = 423$ K.

Na częstotliwościowej zależności pojemności C_p (rys. 6) w obszarze niskich częstotliwości zaobserwowano ostre minima dla każdego z przebiegów. Związane jest to z występowaniem zjawiska rezonansu napięć, które jest powszechnie obserwowane w konwencjonalnych układach RLC . Częstotliwości, przy których widoczne są minima pokrywają się z częstotliwościami przy których przebiegi kąta przesunięcia fazowego (rys. 8) przechodzą przez $\theta = -90^\circ$, co kolejny raz potwierdza obecność zjawiska rezonansu napięć. Po przekroczeniu częstotliwości 10^3 Hz widoczne jest ustabilizowanie się wartości z małym jej obniżeniem.



Rys. 6. Częstotliwościowa zależność pojemności C_p dla wybranych temperatur pomiarowych nanokompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 52$ at.% wygrzanego w temperaturze $T_a = 423$ K

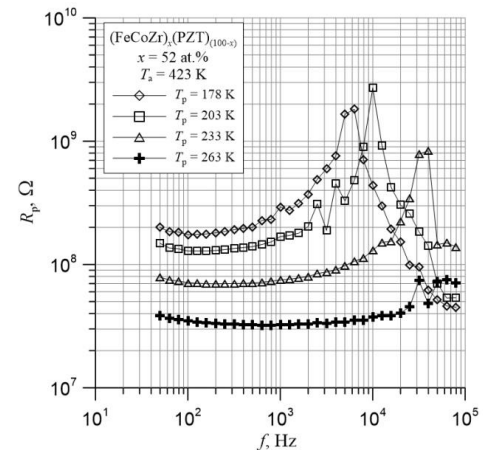
Рис. 6. Частотна залежність ємності C_p для вибраних температур вимірювання наноконкомпозиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ із вмістом металічної фази $x = 52$ ат. % відпаленого в температурі $T_a = 423$ K

Na rysunku 7 przedstawiono częstotliwościowe zależności rezystancji R_p nanokompozytu. Z przebiegów widać, że posiadają one ostre maksima w obszarze wyższych częstotliwości. Jest to związane z występowaniem zjawiska rezonansu prądów w nanokompozycie. O tym zjawisku świadczy również przejście przebiegów kąta przesunięcia fazowego θ przez wartość $+90^\circ$, widoczne na rysunku 8. Częstotliwości, przy których występują te przejścia odpowiadają częstotliwościom dla maksimów rezy-

2.2. Наноконкомпозити отримані в атмосфері аргону з високим вмістом кисню

Na рис. 6, 7, 8 i 9 показані обернені частотні залежності електричних параметрів наноконкомпозитів $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$, із вмістом металічної фази $x = 52$ ат. % утворені в атмосфері аргону з високим вмістом кисню, отримані при температурах з діапазону 15 K - 375 K. Наноконкомпозит був підданий ізохронічному 15-хвилинному відпалу при температурі $T_a = 423$ K.

На частотній залежності ємності C_p (рис. 6) при низьких частотах спостерігаються різкі мінімуми для кожної з залежностей. Це можна пояснити виникненням резонансу напруги, який зазвичай спостерігається у звичайних RLC ланцюгах. Частоти, при яких спостерігаються мінімуми збігаються з частотами, залежностей кута зсуву фаз (рис. 8), які проходять через $\theta = -90^\circ$, що ще раз підтверджує наявність резонансу напруги. Після досягнення значення частоти, більшого за 10^3 Гц, спостерігається стабілізація значень з невеликим її зниженням.



Rys. 7. Częstotliwościowa zależność rezystancji R_p dla wybranych temperatur pomiarowych nanokompozytu $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 52$ at.% wygrzanego w temperaturze $T_a = 423$ K

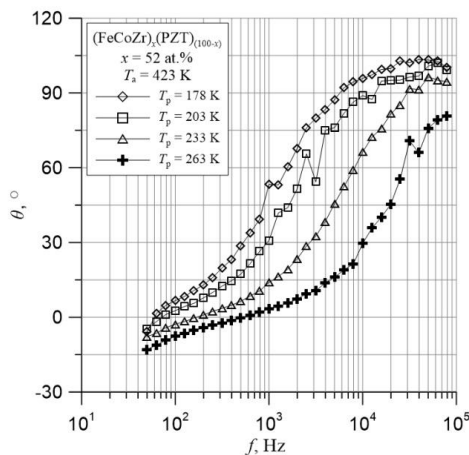
Рис. 7. Частотна залежність опору R_p для вибраних температур вимірювання наноконкомпозиту $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ із вмістом металічної фази $x = 52$ ат. % відпаленого в температурі $T_a = 423$ K

Рис. 7 показує частотну залежність опору R_p наноконкомпозиту. З графіків можна побачити, що вони мають гострі максимума при більш високих частотах. Це пов'язано з виникненням резонансних струмів в наноконкомпозиті. Про це явище також свідчать залежності кута зсуву фаз при $\theta = +90^\circ$, як показано на рис. 8. Частоти, при яких мають місце ці переходи відповідають частотам для максимумів опору на рис. 7.

stancji na rysunku 7.

Na rysunkach 8 i 9 przedstawione są zależności współczynnika stratności dielektrycznych $tg\delta$ oraz kąta przesunięcia fazowego θ w funkcji częstotliwości f . Na tych przebiegach widzimy silne temperaturowe i częstotliwościowe zależności mierzonych wielkości. Kąt przesunięcia fazowego w obszarze niskich częstotliwości dla niektórych temperatur pomiarowych posiada ujemne wartości, natomiast wraz ze wzrostem częstotliwości jego wartości wzrastają i stabilizują się przy wartości ok. $+90^\circ$. W nanokompozycie $(FeCoZr)_x(PZT)_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 52$ at.% obserwujemy występowanie indukcyjnej składowej przewodności elektrycznej.

Na rysunku 9 przedstawiono częstotliwościową zależność $tg\delta$. Widoczne minima w obszarze wyższych częstotliwości świadczą o wyżej wspomnianych zjawiskach. W obszarze niskich częstotliwości (10^2 Hz – 10^3 Hz) widzimy wzrastanie przebiegu tangensa kąta strat dielektrycznych $tg\delta$. Przy występowaniu zjawiska rezonansu napięć teoretyczna wartość $tg\delta$ dąży do nieskończoności. W tym przypadku pomiary $tg\delta$ są ograniczone przez zakres pomiarowy mostka impedancji HIOKI, maksymalna wartość którego wynosi 10 a.u. W obszarze wyższych częstotliwości są obserwowane minima, które mają wartości bliskie do $tg\delta = 0$ a.u. (zjawisko rezonansu prądów).



Rys. 8. Częstotliwościowa zależność kąta przesunięcia fazowego θ dla wybranych temperatur pomiarowych nanokompozytu $(FeCoZr)_x(PZT)_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 52$ at.% wygrzanego w temperaturze $T_a = 423$ K

Rys. 8. Частотна залежність фазового кута зсуву θ для вибраних температур вимірювання наноконкомпозиту $(FeCoZr)_x(PZT)_{(100-x)}$ із вмістом металічної фази $x = 52$ at.% відпаленого в температурі $T_a = 423$ K

3. Podsumowanie

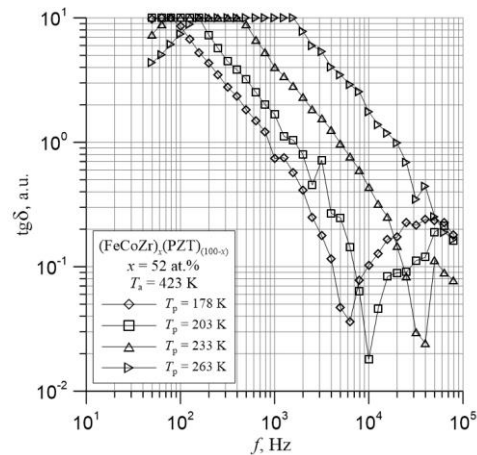
W pracy zbadano zmiennoprądowe właściwości elektryczne (pojemność C_p , tangens kąta strat dielektrycznych $tg\delta$, rezystancja R_p oraz kąta przesunięcia fazowego θ) nanokompozytów typu metal-dielektryk o strukturze $(FeCoZr)_x(PZT)_{(100-x)}$ wytworzonych za pomocą jonowo-wiązkowego rozpylenia. Nanokompozyty o zawartościach faz metalicznych $x = 57,6$ at.% wytworzone w atmosferze argonu z małą zawartością tlenu i $x = 52$ at.% w atmosferze argonu z dużą zawartością tlenu zostały poddane izochronicznemu wygrzewaniu w temperaturach $T_a = 523$ K oraz $T_a = 423$ K odpowiednio.

Ustalono że próbka nanokompozytu $(FeCoZr)_x(PZT)_{(100-x)}$ o zawartościach fazy metalicznych $x = 57,6$ at.% posiada słabe temperaturowe i częstotliwościowe zależności. Charakter przewodnictwa elektrycznego jest określony jako pojemnościowy, ponieważ wartości kąta przesunięcia fazowego θ wykazują wartości ujemne.

W przypadku próbki nanokompozytu $(FeCoZr)_x(PZT)_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 57,6$ at.% obserwujemy zjawiska rezonansów prądów i napięć, które również występują w konwencjonalnych układach RLC. O tym świadczą przebiegi częstotliwościowe pojemności C_p , rezystancji R_p oraz tangensa kąta strat dielektrycznych $tg\delta$, na których są widoczne minima lub maksima przy częstotliwościach, przy których kąt przesunięcia fazowego θ przechodzi przez wartości $\theta = 0^\circ$ oraz $\theta = +90^\circ$.

Na rys. 8 i 9 pokazane są zależności współczynnika stratności dielektrycznych $tg\delta$ i kąta zsuwu faz θ jak funkcji częstotliwości f . Na krzywych obserwują się silne temperaturowe i częstotliwościowe zależności mierzonych wielkości. Kąt zsuwu faz w obszarze niskich częstotliwości dla niektórych temperatur pomiarowych posiada ujemne wartości, natomiast wraz ze wzrostem częstotliwości jego wartości wzrastają i stabilizują się przy wartości ok. $+90^\circ$. W nanokompozycie $(FeCoZr)_x(PZT)_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 52$ at.% obserwujemy występowanie indukcyjnej składowej przewodności elektrycznej.

Na rys. 9 pokazano częstotliwościową zależność $tg\delta$. Widoczne minima w obszarze wyższych częstotliwości świadczą o wyżej wspomnianych zjawiskach. W obszarze niskich częstotliwości (10^2 Hz – 10^3 Hz) widzimy wzrastanie przebiegu tangensa kąta strat dielektrycznych $tg\delta$. Przy występowaniu zjawiska rezonansu napięć teoretyczna wartość $tg\delta$ dąży do nieskończoności. W tym przypadku pomiary $tg\delta$ są ograniczone przez zakres pomiarowy mostka impedancji HIOKI, maksymalna wartość którego wynosi 10 a.u. W obszarze wyższych częstotliwości są obserwowane minima, które mają wartości bliskie do $tg\delta = 0$ a.u. (zjawisko rezonansu prądów).



Rys. 9. Częstotliwościowa zależność tangensa kąta strat dielektrycznych $tg\delta$ dla wybranych temperatur pomiarowych nanokompozytu $(FeCoZr)_x(PZT)_{(100-x)}$ o zawartości fazy metalicznej $x = 52$ at.% wygrzanego w temperaturze $T_a = 523$ K

Rys. 9. Частотна залежність тангенса кута діелектричних втрат $tg\delta$ для вибраних температур вимірювання наноконкомпозиту $(FeCoZr)_x(PZT)_{(100-x)}$ із вмістом металічної фази $x = 52$ at.% відпаленого в температурі $T_a = 523$ K

3. Висновок

В роботі досліджувалися електричні властивості (ємність C_p , тангенс кута діелектричних втрат $tg\delta$, опір R_p і кут зсуву фаз θ) на змінному струмі наноконкомпозитів типу метал-діелекрик зі структурою $(FeCoZr)_x(PZT)_{(100-x)}$ отриманих за допомогою іонного-пучкового розпилення. Наноконкомпозити з вмістом металічної фази $x = 57,6$ at.% отримані в атмосфері аргону з низьким вмістом кисню а також $x = 52$ at.% в атмосфері аргону з високим вмістом кисню були відпалені в температурах $T_a = 423$ K і $T_a = 523$ K.

Було виявлено, що зразок наноконкомпозиту $(FeCoZr)_x(PZT)_{(100-x)}$ з вмістом металічної фази $x = 57,6$ at.% має слабку температурну і частотну залежність. Характер електропровідності визначається, як ємнісний, тому значення кута зсуву фаз θ має від'ємні значення.

Для зразка наноконкомпозиту $(FeCoZr)_x(PZT)_{(100-x)}$, з вмістом металічної фази $x = 57,6$ at.% спостерігаються явища резонансу струмів і напруг, які характерні в конвенціональних ланцюгах RLC. Підтвердженням цього є частотні залежності ємності C_p , опору R_p і тангенсу кута діелектричних втрат $tg\delta$, на яких наявні мінімуми або максимуми при частотах, для яких кут θ проходить через значення $\theta = 0^\circ$ і $\theta = +90^\circ$.

Badania właściwości elektrycznych nanokompozytów o strukturze $(\text{FeCoZr})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$ otwierają perspektywy do stosowania tych materiałów w elektrotechnice jako materiały magnetorezystywne o różnych przeznaczeniach oraz w elektronice do zastępowania rzeczywistych elementów elektronicznych RLC.

Podziękowania

Praca powstała w ramach projektu PL-NTU Transgraniczna wymiana doświadczeń PBU.03.01.00-06-386/11-00 współfinansowanego w ramach Programu Współpracy Transgranicznej Polska-Białoruś-Ukraina 2007–2013 finansowanego ze środków Unii Europejskiej w ramach Europejskiego Instrumentu Ścisłości i Partnerstwa.

Niniejsza publikacja została stworzona przy pomocy Unii Europejskiej. Wyłączną odpowiedzialność za zawartość niniejszej publikacji ponoszą Aleksandr Boiko i Tomasz Norbert Kołtunowicz oraz w żaden sposób nie może być ona postrzegana jako odzwierciedlenie poglądów Unii Europejskiej.

Literatura || Література

- [1] Bochenek D.: Wytwarzanie i badanie ceramiki 54/46 PZT domieszkowanej barem I niobem, *Materiały Ceramiczne/Ceramic materials*, 62(1), 2010, 32-36.
- [2] Boiko O., Czarnaćka K., Bondariev V., Kierczyński K., Protsenko S., An effect of annealing on electric properties of nanocomposites $(\text{Co}_45\text{Fe}_45\text{Zr}_{10})_x(\text{PZT})_{(100-x)}$, 5th International Conference on Radiation Interaction with Materials: Fundamentals and Applications, Kaunas, Lithuania, May 12-15, 2014, 336–341.
- [3] Kalinin Yu. E., Ponomarenko A. T., Sitnikov A. V., Stogney O. V.: Granular metal-insulator nanocomposites with amorphous structure. *Physics and Chemistry of Materials Treatment* 5, 2001, 14–20.
- [4] Kołtunowicz T. N., Zhukowski P., Bondariev V., Fedotova J. A., Fedotov A. K.: Annealing of $(\text{CoFeZr})_x(\text{CaF}_2)_{(100-x)}$ nanocomposites produced by the ion-beam sputtering in the Ar and O₂ ambient. *Acta Physica Polonica A* 123(5), 2013, 932–934.
- [5] Pogrebniak A. D., Beresnev V. M.: *Nanocoatings nanosystems nanotechnologies*. Nanocoatings Nanosystems Nanotechnologies, Bentham Books, 2012.
- [6] Pogrebniak A. D., Kravchenko Yu. A., Kislytsyn S. B., Ruzimov Sh. M., Noli F., Misaelides P., Hatzidimitriou A.: TiN/Cr/Al₂O₃ and TiN/Al₂O₃ hybrid coatings structure features and properties resulting from combined treatment. *Surface and Coatings Technology*, 201(6), 2006, 2621–2632.
- [7] Svitlo I., Fedotov A. K., Kołtunowicz T. N., Zhukowski P., Kalinin Yu., Sitnikov A., Czarnaćka K., Saad A.: Hopping of electron transport in granular $\text{Cu}_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ nanocomposite films deposited by ion-beam sputtering. *Journal of Alloys and Compounds*, 615(1), 2014, 371–374.
- [8] Svitlo I., Fedotova J. A., Milosavljević M., Zhukowski P., Kołtunowicz T. N., Saad A., Kierczyński K., Fedotov A. K.: Influence of sputtering atmosphere on hopping conductance in granular nanocomposite $(\text{FeCoZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$ films. *Journal of Alloys and Compounds*, 615(1), 2014, 344–347.
- [9] Zhukowski P., Sidorenko J., Kołtunowicz T. N., Fedotova J. A., Larkin A. V.: Magnetic properties of nanocomposites $(\text{CoFeZr})_x(\text{Al}_2\text{O}_3)_{1-x}$. *Przegląd Elektrotechniczny*, 86(7), 2010, 296–298.
- [10] Zolotukhin I. V., Kalinin Yu. E., Ponomarenko A. T., Shevchenko V. G., Sitnikov A. V., Stogney O. V., Figovsky O.: Metal-dielectric nanocomposites with amorphous structure. *Journal of Nanostructured Polymers and Nanocomposites*, 2, 2006, 23–34.

Mgr inż. Aleksandr Boiko

e-mail: oleksandr.boiko@pollub.edu.pl

Urodzony w Sumskim obwodzie na Ukrainie w 1991 roku. Ukończył studia inżynierskie w Sumskim Państwowym Uniwersytecie na kierunku „Elektrotechnika” w 2012 r. po czym rozpoczął naukę na Politechnice Lubelskiej gdzie w 2013 r. otrzymał tytuł magistra inżyniera na kierunku „Elektrotechnika”, specjalność: Projektowanie urządzeń elektrycznych. Obecnie doktorant w Katedrze Urządzeń Elektrycznych i Techniki Wysokich Napięć Politechniki Lubelskiej. Zajmuje się badaniami właściwości elektrycznych nanokompozytów o strukturze metal-dielektryk.



Магістр інж. Олександр Бойко

e-mail: oleksandr.boiko@pollub.edu.pl

Народився в Сумській області на Україні в 1991 році. Отримав ступінь інженера в Сумському державному університеті за напрямком "Електротехніка" в 2012 році, після чого вступив до Люблінської Політехніки, де в 2013 році отримав ступінь магістра в галузі "Електротехніка", за спеціальністю проектування електричних приладів. В даний час є аспірантом кафедри електричних приладів і техніки високої напруги в Люблінській Політехніці. Займається дослідженнями електричних властивостей наноконкомпозитів зі структурою метал-діелектрик.

Dr inż. Tomasz N. Kołtunowicz

e-mail: t.koltunowicz@pollub.pl

Urodził się w 1979 roku. W Katedrze Urządzeń Elektrycznych i Techniki Wysokich Napięć Wydziału Elektrotechniki i Informatyki Politechniki Lubelskiej pracuje od października 2004 roku początkowo na stanowisku asystenta a od marca 2011 roku adiunkta. W swojej pracy naukowej zajmuje się badaniami wpływu procesów technologicznych na właściwości elektryczne nanokompozytów i półprzewodników wytwarzanych technikami jonowymi.



К.т.н. інж.Томаш Норберт Колтунівч

e-mail: t.koltunowicz@pollub.pl

Народився в 1979 році. На кафедрі електричних приладів і технологій високої напруги факультету електротехніки та інформатики Люблінської Політехніки працює з жовтня 2004 року спочатку, як асистент, а з березня 2011 року на посаді адюнкта. У своїй науково-дослідній роботі займається вивченням впливу технологічних процесів на електричні властивості наноконкомпозитів і напівпровідників утворених методами іонізації.