

SINTESE E CARACTERIZAÇÃO DA CERÂMICA $MgTiO_3$ DOPADA COM 0,15% DE CuO

Freire, R. S. R.^a; Sales, A. J. M.^b; Romeu, M.C.^b; Campos
Filho, M.C.^b; Pereira, A. D. O.^a; Menezes, S. K.O.^b; Sales,
J. C.^b; Sombra, A. S. B.^b

^a Departamento de Licenciaturas Física e Matemática, Instituto Federal de
Educação, Ciência e Tecnologia (IFCE),

^b Laboratório de Telecomunicações e Ciências e Engenharia de Materiais
(LOCEM), Departamento de Física, Universidade Federal do Ceará UFC).

Endereço Postal Autor: Instituto Federal de Educação, Ciência e Tecnologia do
Ceará, Av. Treze de Maio, 2081, Campos Fortaleza, Fortaleza- CE Brasil.
e-mail: renatinha.samara@hotmail.com

RESUMO

Pesquisas atuais vêm explorando constantemente ressonadores dielétricos que passam por crescente pesquisa e investigação. Contudo, a miniaturização dos circuitos de micro-ondas requer materiais com alta constante dielétrica, baixa perda e boa estabilidade de temperatura. O objetivo do trabalho é melhorar as propriedades dielétricas a partir da dopagem de óxido CuO , à matriz cerâmica $MgTiO_3$. O preparo do MTO foi feito pelo método convencional cerâmico. Os pós passaram por processo de moagem de 4h e calcinados a $1100^\circ C$ por mais 4h. A caracterização estrutural foi feita por Difração de Raios-X (DRX). As amostras foram compactadas e sinterizadas para o estudo dielétrico usando a espectroscopia de impedância. Para frequência de 1MHz, à permissividade do $MgTiO_3$ puro apresentou valores próximos de 18,58 e para amostra dopada de 0,15% CuO apresentou 20,5. A amostra adicionada apresentou melhores resultados, por conta da melhor densificação.

Palavras-chave: $MgTiO_3$, método convencional cerâmico, difração de raios - X.

INTRODUÇÃO

Com o aumento das tecnologias e a necessidade de uma comunicação que detenha frequências bem definidas, cresce cada vez mais no mercado competitivo dos Sistemas de Comunicação. O mercado, exigente sobre os métodos utilizados no desenvolvimento dos aparelhos eletrônicos, cobra um estudo mais aprofundado e mais elaborado sobre novos rumos das tecnologias e as garantias de sistema. Para tanto, os materiais que usam de radiofrequência e micro-ondas são bastante usados no desenvolvimento deste seguimento tecnológico que tem como foco de pesquisa os ramos da Física do Estado Sólido e nas Engenharias de Materiais, Elétrica ou Eletrônica^(1,2).

A necessidade de trabalhar com frequências bem definidas é uma das principais exigências do mercado de sistema de comunicação, pois é essencial a boa operação dos aparelhos eletrônicos utilizados nas ações cotidianas. Necessidade essa, que aumenta a cada ano com a crescente demanda por novos dispositivos que disponham de alta velocidade de transferência de dados e que operem em faixa de radiofrequências e micro-ondas^(1,2).

Para melhorar as propriedades dielétricas e baixar a temperatura de sinterização das cerâmicas dielétricas, alvo de nosso estudo para tal tecnologia usa-se comumente algum dos três métodos a seguir: Adição de óxidos; tratamento químico; ou utilização de materiais de partículas de tamanho reduzido. O primeiro método é o mais praticado e será utilizado e discutido neste trabalho.

O MgTiO_3 (MTO), material por nós estudado, além de ter a permissividade dielétrica em micro-ondas desejável ($\epsilon_r' \sim 21$), bons fatores de qualidade e perda dielétrica, podendo ser otimizadas com adição de óxidos para obtenção de melhores densificações e baixas temperaturas^(3,4). Estudos anteriores revelam que o MTO apresenta estrutura Ortorrômbica e Romboédrica a partir de uma nova fase que se apresenta na forma de MgTiO_5 ⁽⁵⁾.

Objetivo maior neste trabalho é estudar a influencia da dopagem, de 0,15% de CuO na sinterização do MTO. Técnicas experimentais como a Difratometria de Raios-X (DRX) para identificação e análises de fases do material e espectroscopia de impedância para análise dielétrica, foram usadas.

As amostras foram investigadas com vistas à aplicação em capacitores cerâmicos para circuitos eletrônicos, neste sentido, a aplicação destes materiais já vem sendo discutida em outros trabalhos.

MATERIAL E MÉTODOS

No trabalho, inicialmente, a preparação da cerâmica MTO pura e adicionada com CuO, que foram cuidadosamente fabricadas através da reação de estado sólido. A princípio, os reagentes MgO e TiO₂ foram estequiometricamente pesados. O material puro MTO, foi usado para fins comparativos com a amostra adicionada com CuO.

Os pós foram devidamente pesados, misturados e moídos em um moinho de bolas de alta energia (moinho planetário Fritsch Pulverisette 6). A velocidade angular escolhida para promover a rotação dos invólucros lacrados contendo as misturas de pós foi de 370 rpm. A moagem foi realizada em temperatura ambiente em invólucros cujo volume aproximado é de 221,69 cm³, usando 98 gramas de esferas de Zircônia. O tempo gasto nesta operação foi de 4 h. A moagem é realizada com o intuito de prover maior homogeneização dos reagentes de partida e ativação do pó, promovendo um aumento da área superficial do material a partir da diminuição do tamanho da partícula, tornando o pó mais reativo. A composição foi então levada a fornos (JUNG – LF0912) em cadinho de alumina e sofreram calcinação com temperatura controlada a 1100°C em um processo de mais 4 h, partindo da temperatura ambiente com uma taxa de 5°C/min. Depois de calcinado os pós foram investigados por Difração de Raios-X (DRX) usando um Difratorômetro para amostras policristalinas modelo *DMAXB* fabricado pela *Rigaku* (Japão) constituído de um gerador de Raios-X com potência máxima de 2kW e tubo específico do tipo CuK_α usando a geometria de Bragg – Brentano numa taxa de 0.02°/min e uma faixa linear de 20° a 80° em 2θ. A confirmação da fase MgTiO₃ e caracterização da estrutura cristalina foi feita usando o programa *DBWS9807a* que utiliza o método de Rietveld para refinamento de estruturas cristalinas⁽⁶⁾. Após o processo de prensagem uniaxial que foi realizado com 3000 Kg/cm². Após a prensagem, as pastilhas foram ao forno para sinterização à temperatura de 1300°C por 4 h, com um degrau intermediário a 500°C por 120 min. Esse

degrau intermediário existe para eliminar umidade, resultando em quase completa.

RESULTADOS E DISCUSSÃO

A técnica de Difração de Raios-X (DRX) foi indispensável para caracterização da cerâmica MTO. A Figura 1 ilustra o difratograma obtido pela moagem mecânica de alta energia com a temperatura e tempo de calcinação para o pó do MTO, onde podemos observar duas fases apresentadas por ele e seus respectivos padrões cristalográficos.

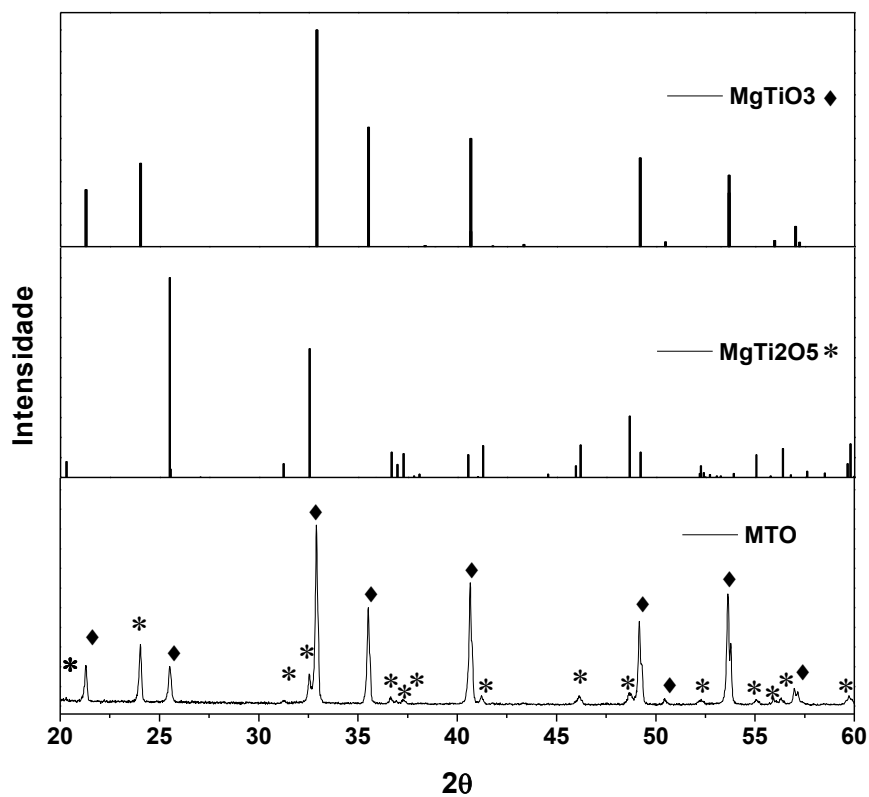


Figura 1 – Difratograma do pó do MTO após calcinação e difratogramas dos padrões da literatura.

A análise quantitativa de fase feita pelo refinamento da amostra calcinada é apresentada na figura 2, e confirma o aparecimento isolado da fase ortorrômbica do MTO, observando uma boa concordância entre o valor observado e o calculado, já que a diferença entre esses valores obtido foi mínima.

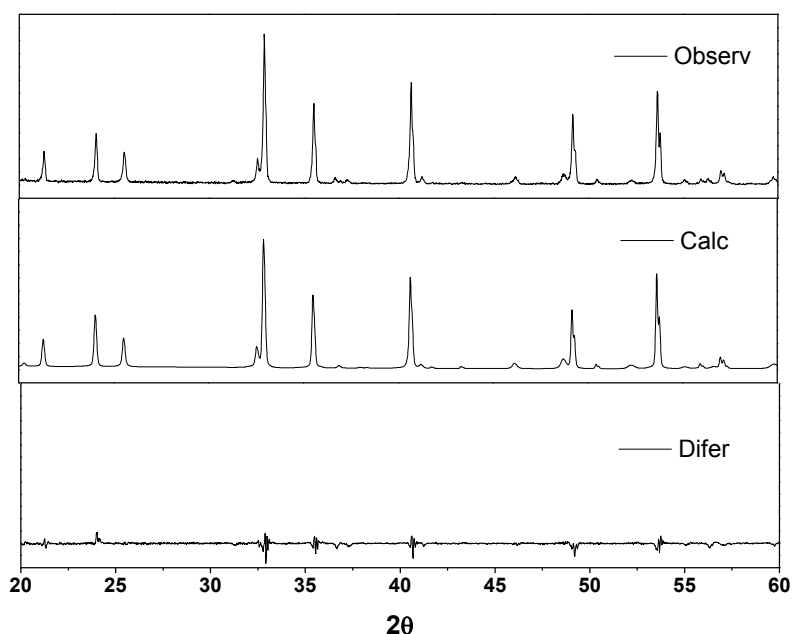


Figura 2 – Padrões de difração do refinamento de Rietveld para o pó do MTO Observado, Calculado e a Diferença (Observado – Calculado)

A tabela 1 apresenta os parâmetros estruturais do refinamento onde há a reafirmação do aparecimento da simetria cristalina ortorrômbica com os parâmetros estruturais obtidos. Os índices de confiança para o refinamento dessa estrutura R_{wp} , R_{exp} e S (“Goodness-of-fit”) mostram uma boa convergência para os valores calculados.

Tabela 1 – Parâmetros Estruturais do refinamento de Rietveld para o pó do MTO.

Parâmetros Estruturais					
a	5.0544	b	5.0544	c	13.8983
α	90	β	90	γ	120
Density (g/cm ³)	4.310	Mass (%)	91.46	Molar (%)	98.50
R-P (%)	15.31	R-WP (%)	21.96	R-EXPECTED (%)	16.48
S	1.32	D – W	0.34	Space group	R -3 H (148)

A Figura 3 apresenta uma comparação do padrão de difração das amostras SMTO e SMTOC sinterizadas a 1300 °C. Através do gráfico, podemos perceber que os picos principais do MTO calcinado são similares ao do SMTO. Todos os picos do SMTO aparecem no difratograma do SMTOC, isso sugere que a estrutura do SMTOC não foi alterada com a dopagem do CuO.

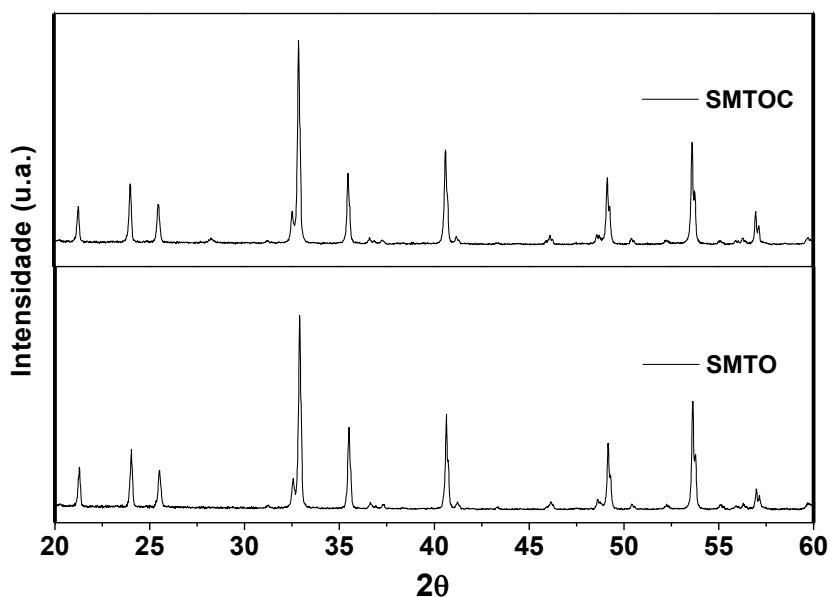


Figura 3 – Padrões de difração para as amostras padrão da capes e as amostras sinterizadas a 1300 °C: SMTO e SMTOC.

Ao estudarmos as propriedades dielétricas consideramos para frequência de 1MHz, a permissividade do MTO sinterizado, que apresentou valores próximos de 18,58 e para amostra dopada de 0,15% CuO tivemos como resultado 20,47 como mostra a figura 4.

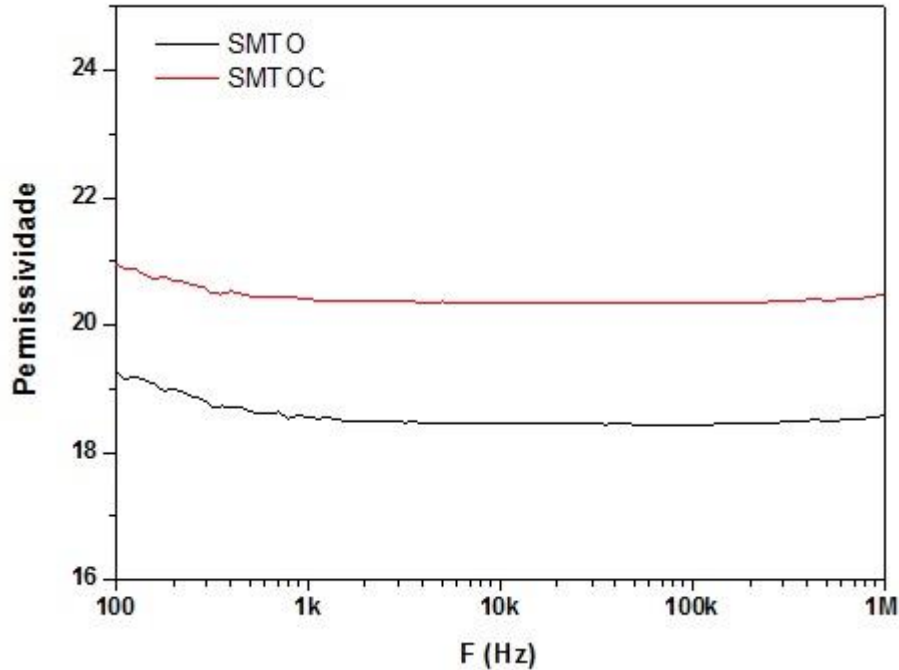


Figura 4 – Gráfico de permissividade x frequência para as amostras sinterizadas: SMTO e SMTOC

Os valores da permissividade e da tangente de perda são apresentados na tabela 2, onde percebemos que houve uma redução da tangente de perda em frequências abaixo de 1MHz e aumento da permissividade com a dopagem.

Tabela 2 - Valores de Permissividade e tangente de perda das amostras SMTO e SMTOC.

Amostras	100Hz		10kHz		1MHz	
	ϵ'	Tan δ	ϵ'	Tan δ	ϵ'	Tan δ
SMTO	19,29	6,6E-02	18,46	1,6E-03	18,58	2,3E-02
SMTOC	20,95	3,3E-02	20,35	8,9E-04	20,47	2,3E-02

A amostra adicionada apresentou melhores resultados por conta da melhor densificação.

CONCLUSÃO

As conclusões do nosso trabalho podem ser listadas abaixo:

- As amostras de MTO, teve sua fase obtida através do método convencional de reação de estado sólido a altas temperaturas.

- A Difração de Raios-X e o posterior refinamento de Rietveld confirmaram o aparecimento de duas fases no MTO com estrutura cristalina ortorrômbica e romboédrica.
- A amostra de MTO com dopagem de 0,15% de CuO apresentou uma boa densificação e demonstra ser um potencial candidato para atender a propriedades exigidas como: alta permissividade dielétrica e baixas perdas elétricas com possível aplicabilidade em capacitores cerâmicos.

AGRADECIMENTOS

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico – CNPq e a Universidade Federal do Ceará – UFC.

REFERÊNCIAS

- (1) A. J. Moulson and J. M. Herbert (Eds.). *Electroceramics: Materials, Properties, Applications*. 2nd. Edition. John Wiley & Sons, Ltd. (2003).
- (2) M. T. Sebastian (Eds.). *Dielectric Materials for Wireless Communications*. 1nd. Edition. Elsevier Ltd. (2008).
- (3) I. E. Grey; C. Li, and I. C. Madsen *Journal of Solid State Chemistry* 113, 62 – 73 (1994).
- (4) Lei Li, Xiang Ming Chen; Xei Chenge Fan; *Journal of European Ceramic Society* 26 (2006)
- (5) Yi-Cheng Liou; Song-Ling Yang; *Material Science Engineering B* 142 (2007) 116-120.
- (6) Young, R. A.; Larson, A. C.; Paiva Santos, C. O. *Rietveld Analysis of X-ray and Neutron Powder Diffraction Patterns – user’s guide to program DBWS 9807a*, 2000.

SYNTHESIS AND CHARACTERIZATION OF MgTiO₃ DOPED WITH 0.15% OF CuO

ABSTRACT

Current researches are constantly exploring dielectric resonators that go through growing research and investigation. However, the miniaturization of microwave circuits requires materials with high dielectric constant, low loss and good temperature stability. The objective is to improve the dielectric properties from the doping of CuO oxide ceramic matrix to MgTiO₃. The preparation of MTO was made by conventional ceramic method. The powders have undergone grinding process 4h and calcined at 1100 ° C for a further 4h. The structural characterization was performed by X-ray diffraction (XRD). The samples were compacted and sintered to the dielectric study using impedance spectroscopy. For frequency of 1MHz, the permittivity of pure MgTiO₃ showed similar values of 18.58 and 0.15% doped CuO showed 20.5. The added sample showed better results, due to the better densification.

Keywords: MgTiO₃, conventional ceramic method, X ray diffraction – X