

بررسی افزودنی اکسید تیتانیوم بر ریزساختار و خواص دی الکتریکی اکسید روی

فصلنامه
سرامیک ایران

اسماعیل صادقی ده چنانی، هاجر احمدی مقدم*

گروه مهندسی مواد، دانشکده فنی و مهندسی، دانشگاه شهر کرد

چکیده: اکسید روی به دلیل ویژگی های منحصربه فرد به صورت گسترش دهنده در زمینه های مختلف از قبیل دستگاه های الکترونیک، مبدل های پیزو الکتریک، وریستورها، کاتالیست ها و فوتوالکتریک استفاده می شود. در تحقیق حاضر، تأثیر افزودنی اکسید تیتانیوم (TiO_2) بر خواص سرامیک اکسید روی مطالعه شد. مقادیر ۵٪، ۱٪ و ۲٪ درصد وزنی TiO_2 به اکسید روی افزوده و خواص مختلف شامل چگالی، رفتار فازی، ریزساختار و خواص دی الکتریک اکسید روی مورد بررسی قرار گرفت. نمونه ها با چگالی نسبی بالا و در حد ۹۱ درصد چگالی تغیری با عملیات تفن جوشی در دمای ۱۲۵۰°C حاصل شد. طبق نتایج حاصل از پراش اشعه ایکس (XRD)، افزودنی TiO_2 منجر به ایجاد فاز ثانویه Zn_2TiO_4 شد. در اکسید روی می شود و با افزایش مقدار TiO_2 مقدار فاز تاخالصی افزایش و میزان جابجایی پیک ها به سمت زوایای پایین تر بیشتر می شود. نتایج بررسی ریزساختار نشان داد افزودنی TiO_2 تأثیر چشمگیری بر ریزساختار اکسید روی خواهد داشت به گونه ای که با افزایش مقدار افزودنی TiO_2 رشد دانه کاهش می یابد. افزودنی TiO_2 باعث کاهش خواص ثابت دی الکتریک و اتلاف دی الکتریک اکسید روی به میزان قابل توجهی شد. با افزودن ۲ درصد وزنی TiO_2 ثابت دی الکتریک اکسید روی از مقدار ۱۴۰۰ به ۱۴۰۰ و مقدار اتلاف دی الکتریک اکسید روی از مقدار ۲۰ به ۵٪ اندازه گیری شده در فر کانس ۱۰۰ کیلو هرتز کاهش یافت. کاهش در مقدار ثابت دی الکتریک اکسید روی می تواند به اندازه دانه کوچکتر، وجود فاز تاخالصی و عیب جای خالی کاتیون در حضور افزودنی TiO_2 نسبت داده شود.

كلمات کلیدی: : اکسید روی، اکسید تیتانیوم، چگالی، رفتار فازی، ثابت دی الکتریک، ریزساختار.



نویسندهای مسئول:

دکتر هاجر احمدی مقدم، مهندس

اسماعیل صادقی ده چنانی

دانشگاه شهر کرد

نوع مقاله: پژوهشی

صفحه های: ۳۳ تا ۲۵

شاپا چاپی: ۱۷۳۵-۳۳۵۱

شاپا الکترونیکی: ۲۷۸۳-۳۰۹۷

زبان نشریه: فارسی

دسترسی پذیر در نشانی:

www.JICERS.ir

تاریخ دریافت:

۱۴۰۰/۰۷/۰۶

تاریخ پذیرش:

۱۴۰۰/۰۹/۱۷

DOR: 20.1001.1.17353351.1400.17.0.4.3

۱- مقدمه
 مواد دی الکتریک با ضریب گذردهی (CP^۱) بالا به دلیل نیاز و ضرورت کوچک سازی قطعات الکترونیک و هم چنین کاربرد در سیستم های دخیره انرژی مانند خازن های سرامیکی چند لایه مورد توجه هستند. چند نوع مواد CP با ضریب گذردهی بالاتر از هزار توسعه و معرفی شده اند. در مواد پروسکایت پایه تیتانات باریم پدیده CP به دو مکانیزم پدیده فرو الکتریک و ظرفیت لایه سد داخلی (IBLC^۲) نسبت داده می شود. در موادی مانند اکسید نیکل دوب شده با Ti, Li, و اکسید مس پدیده IBLC دلیل CP گزارش شده است. اخیرا یک مکانیزم پلاریزا سیون دی الکتریک جدید یعنی دوقطبی های عیب الکترون پین شده (EPDD^۳) برای تو ضیح پدیده CP در TiO_2 دوب شده با In و Nb معرفی شده است. هم چنین گزارش شده است که در سرامیک های اکسید روی دوب شده با Mg ضریب گذردهی بالا که به مقدار ۱۰۰ می رسد، به دلیل مکانیزم IBLC است [۳-۱].

اکسید روی (ZnO) به دلیل خواص نیمه سان، الکتریکی، نوری و فرو مغناطیس خود در بسیاری از تکنولوژی ها مانند ترانزیستورها،

¹ colossal dielectric permittivity

² internal barrier layer capacitance (IBLC) of Schottky barriers.

³ electron-pinned defect dipole mechanism



حافظه‌ها، انتشار دهنده‌های اشعه مادره بنفس، حسگرهای گازی، رساناهای شفاف، وسایل نوری، کاتالیزورها، سلول‌های خورشیدی و هم چنین در مواد ضد باکتری، زیست پزشکی و پیزو الکترویک کاربرد دارد [۶-۱۴].

یکی از روش‌ها رایج برای بهبود و تغییر خواص مواد به ویژه در سرامیک‌ها استفاده از افزودنی‌ها است. خواص مختلف اکسید روی مانند نوری، الکترویکی و ساختاری می‌تواند توسط مواد افزودنی

کنترل و ارتقاء یابد. چند و همکارانش گزارش کردند حضور دوپت کروم در ساختار ZnO منجر به کاهش ثابت دی‌الکترویک و افزایش اتلاف دی‌الکترویک آن می‌شود. ورود یون کروم در ساختار ZnO منجر به کاهش اندازه بلورک‌ها شد که می‌تواند چرخش دوقطبی‌ها را دشوار کند و در نتیجه باعث افت در ثابت دی‌الکترویک و افزایش اتلاف دی‌الکترویک شود [۷]. تاثیر استفاده از افزودنی کربنات پتا سیم بر خواص مختلف ZnO بروزی شد. کربنات پتا سیم منجر به افزایش ثابت دی‌الکترویک و هم چنین افزایش اتلاف دی‌الکترویک ZnO شد. افزایش در ثابت دی‌الکترویک به افزایش اندازه دانه‌ها با استفاده از افزودنی کربنات پتا سیم نسبت داده شد [۸]. در تحقیقی به بررسی یون لیتیم و آلومینیوم با ترکیب $(\text{Li}_{x}, \text{Al}_{y})\text{Zn}_{1-x-y}\text{O}$ بر خواص دی‌الکترویک ZnO پرداخته شد. مقدار ثابت دی‌الکترویک وابسته به مقدار افزودنی‌های اضافه شده بود و ترکیب $(\text{Li}_{0.033}, \text{Al}_{0.067})\text{Zn}_{0.99}\text{O}$ به عنوان ترکیب بهینه با مقدار ثابت دی‌الکترویک بالا (۹۸۶۲) گزارش شد [۹]. کاهش در ثابت دی‌الکترویک ZnO در نمونه‌های دوب شده با Pr به دلیل ایجاد چگالی بالا عیوب در شبکه ZnO و کرنش ایجاد شده در شبکه بلوری ZnO به دلیل بزرگتر بودن شعاع افزودنی Pr^{3+} ($1/0.1 \text{ \AA}$) نسبت به کاتیون Zn^{2+} ($0/0.74 \text{ \AA}$) نسبت داده شد [۱۰].

در تحقیق حاضر به بررسی تاثیر افزودنی اکسید تیتانیوم (TiO_2) بر خواص سرامیک ZnO پرداخته می‌شود. به دلیل شعاع یونی نزدیک Ti^{4+} ($0/0.76 \text{ \AA}$) به شعاع یونی Zn^{2+} ($0/0.74 \text{ \AA}$) اکسید تیتانیوم به عنوان افزونی انتخاب شد. به این منظور مقادیر $0/5$ ، $1/0$ و $2/0$ درصد وزنی TiO_2 به پودر ZnO افزوده شد و نمونه‌ها با روش پرس تهیه و بعد از تلف جوشی، خواص مختلف شامل خواص دی‌الکترویک و ریزساختار مورد مطالعه قرار گرفت.

۲- فعالیت‌های تجربی

در این مطالعه از پودر نانو اکسید روی (شرکت مرک با درجه خلوص ۹۹/۹٪) و پودر نانو اکسید تیتانیوم (شرکت مرک با درجه خلوص ۹۹/۹٪) به عنوان مواد اولیه استفاده شد. مقادیر $0/5$ ، $1/0$ و $2/0$ درصد وزنی TiO_2 به ZnO اضافه شد. به منظور دست یابی به مخلوط یکنواخت از آسیاب سیاره‌ای استفاده شد. پودرها توزین شده به درون ظرف آسیاب با جنس پلیمر فشرده وارد شد و گلوله‌های آلومینیمی با قطر به قطر 5 mm بازیابی شد و با نسبت وزنی گلوله به پودر $15/1$ به $1/0$ و اتانول نیز به درون ظرف آسیاب اضافه شد و به مدت 4 ساعت تحت عملیات آسیاب سایشی با سرعت 250 rev/min دور بر دیگه قرار گرفت. بعد از خشک شدن دوغاب، پودر حاصل با مقدار 5 mm درصد وزنی چسب آلی پلی وینیل الکل به منظور بهبود استحکام خام نمونه‌ها به صورت یکنواخت مخلوط شد. از روش پرس تک محوره و فشار 200 MPa برای تهیه نمونه‌های دیسکی شکل با قطر 13 mm و ضخامت در حد 2 mm استفاده شد. نمونه‌های خام ابتدا تا دمای 700°C با سرعت حرارت دهی $3^\circ\text{C}/\text{min}$ حرارت و در این دما به مدت 2 ساعت برای خروج آرام چسب قرار گرفتند. در ادامه با سرعت حرارت دهی $5^\circ\text{C}/\text{min}$ تا دمای 1250°C حرارت و در این دما به مدت 4 ساعت نگه داشته شد. لازم به ذکر است این دما بر اساس چگالی اندازه گیری شده به عنوان دمای بهینه تلف جوشی انتخاب شد. چگالی نمونه‌ها با استفاده از روش ار شمیدس بر اساس استاندارد ASTM C-373 تعیین شد. با استفاده از دستگاه پراش اشعه X (XRD) مدل 300 Asenware AW-XDM 300 تشعشع $\text{Cu}-\text{ka}$ با طول موج $1/542 \text{ \AA}$ آنالیز فازی نمونه‌ها انجام گرفت. ثابت دی‌الکترویکی نمونه‌ها با استفاده از دستگاه LCR-meter مدل OCT1010 در دمای اتاق اندازه گیری شد. برای اندازه گیری خواص دی‌الکترویک در ابتدا سطح نمونه‌ها با چسب نقره الکترودگذاری شدند. برای بررسی ریز ساختار نمونه‌ها از دستگاه میکروسکوپ الکترونی روبشی (FE-SEM, model 450 FEG, FEI QUANTA) استفاده شد.

۳- نتایج و بحث

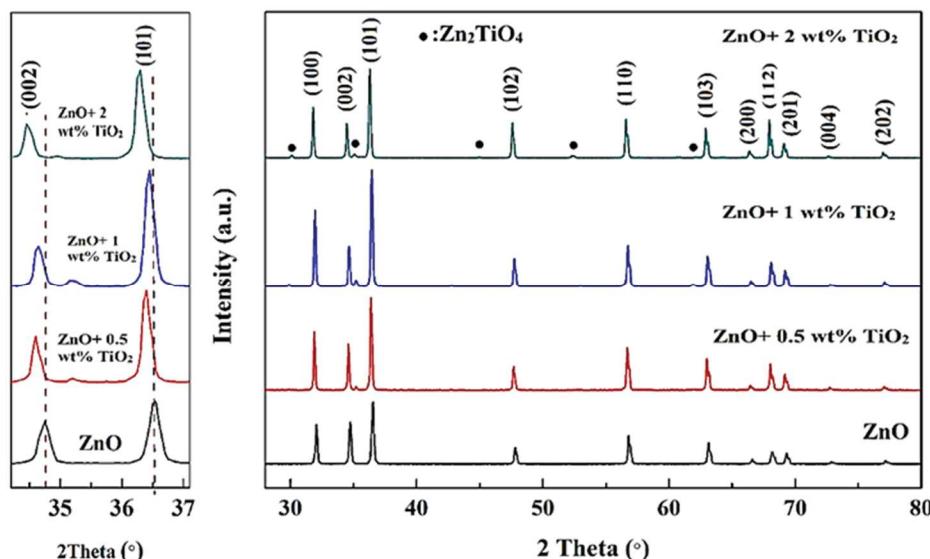
در جدول ۱ نتایج مربوط به چگالی ظاهری، درصد تخلخل باز و درصد چگالی نسبی برای نمونه‌ها مختلف آورده شده است. طبق

نتایج، چگالی نسبی همه نمونه‌ها بالاتر از ۹۸ درصد چگالی تثویری است که نشان دهنده چگالش مناسب نمونه‌ها خواهد بود. مقدار تخلخل باز نیز در تمامی نمونه‌ها کمتر از یک درصد به دست آمد.

جدول ۱- نتایج مربوط به چگالی ظاهری، درصد تخلخل باز و درصد چگالی نسبی نمونه‌ها.

% درصد تخلخل باز	درصد دانسیته ظاهری	(g/cm ³)	ترکیب
۰/۵۴	۹۸/۳	۵/۵۱۳	ZnO
۰/۴۳	۹۸/۶	۵/۵۳۲	ZnO+ 0.5 wt% TiO ₂
۰/۳۴	۹۸/۷	۵/۵۳۴	ZnO+ 1 wt% TiO ₂
۰/۴۰	۹۸/۸	۵/۵۴۵	ZnO+ 2 wt% TiO ₂

شکل ۱ الگوهای پراش اشعه ایکس مربوط به نمونه‌های تف جوشی شده حاوی درصد متفاوت ZnO-TiO₂ را نشان می‌دهد. پیک‌های اصلی تفرق شناسایی شده مربوط به ZnO ورتزایت با ساختار هگزاگونال و گروه فضایی P63mc مطابق با الگوی مرجع با کد JCPDS No 36-1451 هستند [۱]. طبق شکل ۱ در تمامی نمونه‌های حاوی افزودنی TiO₂ پیک‌های فرعی دیگری نیز مشاهده می‌شود. با افزایش مقدار TiO₂ شدت این پیک‌ها نیز کمی افزایش یافته است. با آنالیز مشخص شد این پیک‌ها مربوط به ترکیب Zn₂TiO₄ مطابق با الگوی مرجع با کد JCPDS No 00-019-1483 هستند. در شکل ۱ جابجایی مختصر پیک‌ها به سمت زوایای تفرق پایین تر در نمونه‌های حاوی مقدار کم TiO₂ مشاهده است که به شعاع یونی کمی بزرگتر (Ti⁴⁺) (Å) نسبت به شعاع یونی Zn²⁺ (۰/۷۶ Å) مربوط می‌شود [۲]. میزان جابجایی در نمونه حاوی ۲ درصد وزنی TiO₂ بیشتر است که می‌تواند به دلیل کرنش ناشی از مقدار فاز ثانویه بیشتر باشد

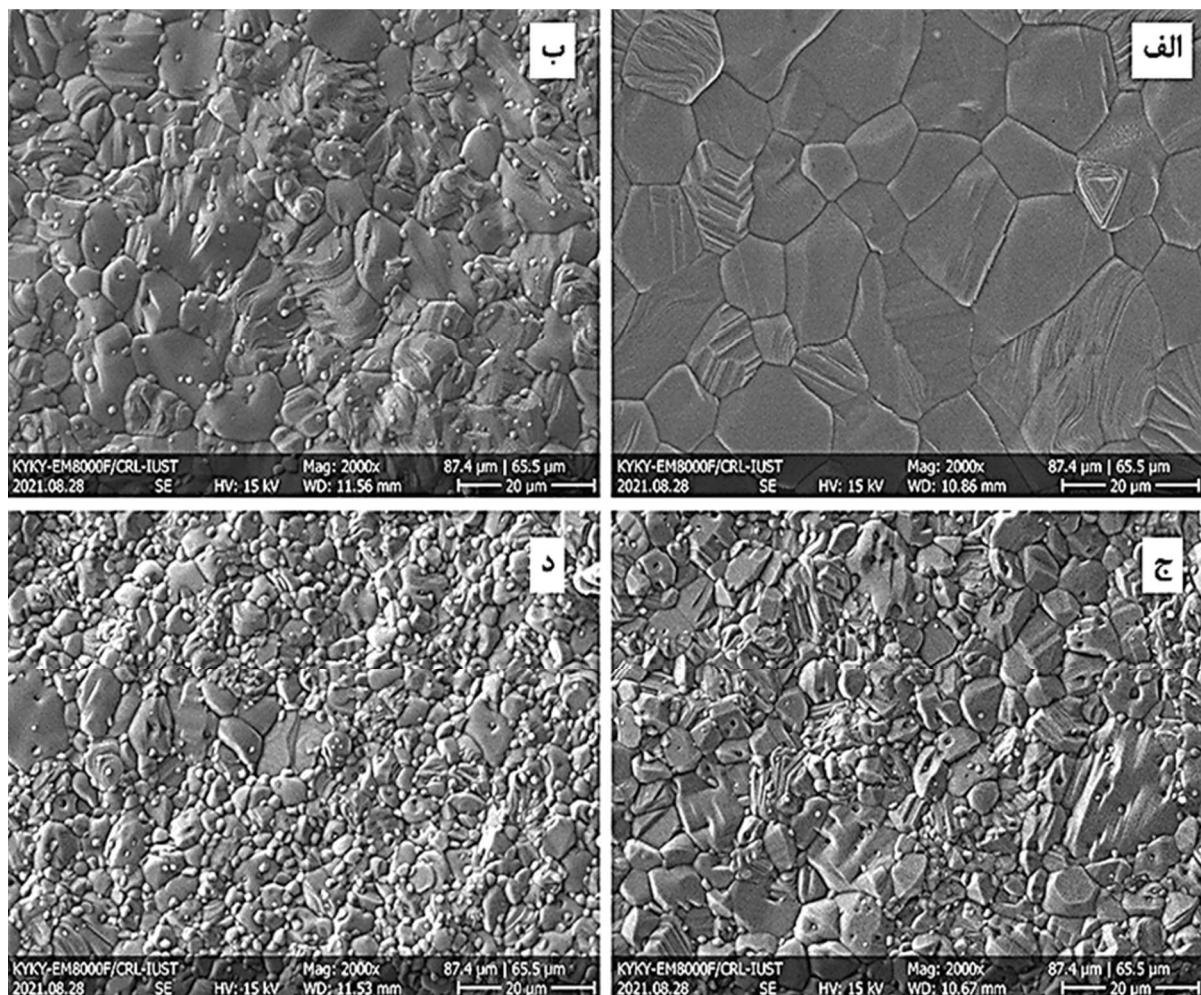


شکل ۱- الگوهای XRD مربوط به نمونه‌ها ZnO حاوی درصد متفاوت TiO₂.

تصاویر SEM مربوط به سطح شکست نمونه‌ها ZnO در صد متفاوت TiO₂ در شکل ۲ مشاهده می‌شود. طبق تصاویر، افزودنی TiO₂ منجر به تغییر چشمگیری در مورفولوژی دانه‌های ZnO می‌شود و هم چنین اندازه دانه‌های سرامیک اکسید روی در حضور افزودنی TiO₂ کاهش یافته است. اندازه دانه‌ها ریز ساختار سرامیک اکسید روی با افزایش مقدار افزودنی TiO₂ کاهش بیشتری می‌یابد. برخی از افزودنی‌ها می‌توانند از طریق کاهش قابلیت تحرک مرزهای دانه منجر به جلوگیری از رشد دانه و در نتیجه ایجاد ریزساختار ریز دانه شوند [۱۲، ۱۳]. با توجه به تصاویر SEM، افزودنی TiO₂ از رشد دانه سرامیک اکسید روی در مرحله تف جوشی جلوگیری کرده است. همان‌گونه که در آنالیز فازی اشاره شد، در نمونه‌های حاوی افزودنی TiO₂، فاز ثانویه Zn₂TiO₄ مشاهده شد که مقدار این فاز با افزایش مقدار افزودنی بیشتر می‌شود. معمولاً فازهای ثانویه تمايل به قرار گیری در مرزهای دانه

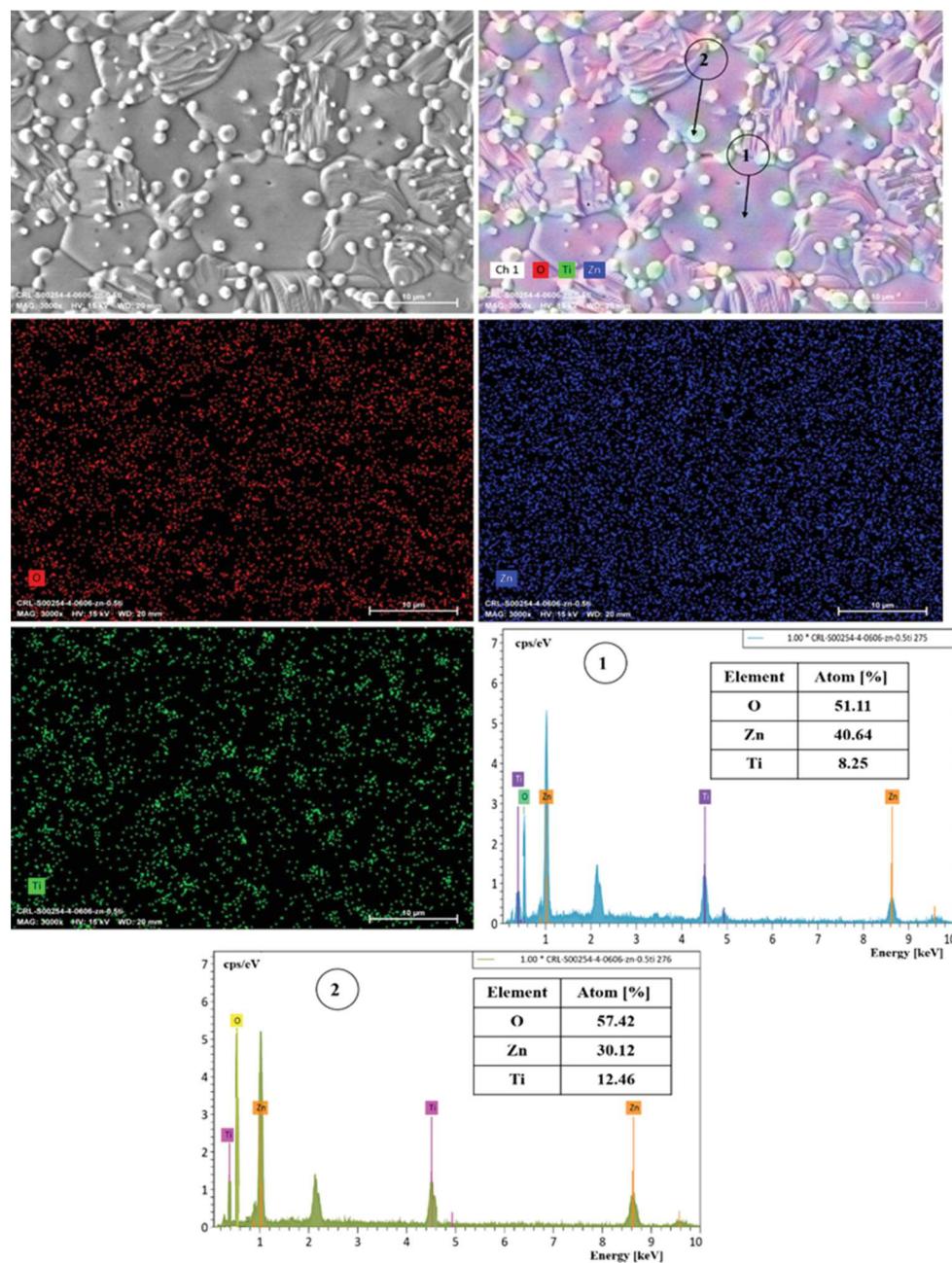


دارند و با قرار گیری در مرзهای دانه باعث کاهش حرکت مرзهای دانه و در نتیجه کاهش اندازه دانه خواهند شد. یک پارامتر مهم در خواص دیالکتریک اندازه دانه است. وقتی اندازه دانه ریز ساختار سرامیک دیالکتریک ریز باشد (از یک حد مشخص کمتر که در سرامیک‌های دیالکتریک مختلف با هم متفاوت است) می‌تواند باعث افت خواص دیالکتریک به ویژه ثابت دیالکتریک به دلیل دشوار شدن چرخش دوقطبی‌ها شود [۳، ۱].



شکل ۲ - تصاویر SEM سطح شکست (الف) اکسید روی، (ب) حاوی $0\text{ / }5$ درصد TiO_2 ،
ج) حاوی 1 درصد TiO_2 و (د) حاوی 2 درصد TiO_2

در شکل ۳ تصویر SEM از سطح و هم‌چنین آنالیز عنصری نمونه اکسید روی حاوی $5\text{ / }0$ درصد TiO_2 آورده شده است. در تصویر SEM از سطح این نمونه دانه‌های کروی شکل ریز قابل مشاهده است. این دانه‌های کروی بیشتر در مرزهای بین دانه‌ای به ویژه محل تقاطع چند دانه تجمع دارند. در آنالیز عنصری MAP توزیع عناصر Zn , O , Ti شناسایی شده است. توزیع افزودنی Al تقریباً به صورت یکنواخت است و مقدار آن در نقاط کروی بیشتر مشاهده می‌شود. آنالیز EDS از دو نقطه متفاوت در شکل ۳ نشان می‌دهد که از نظر درصد اتمی عناصر در نقاط کروی شکل با زمینه متفاوت است و می‌توان نتیجه گیری نمود این نقاط کروی شکل فاز ناخالصی هستند. فاز ناخالصی با تجمع در محل تقاطع دانه‌ها می‌توانند مانع رشد دانه‌های سرامیک اکسید روی در طی فرآیند تفجوشی شوند.

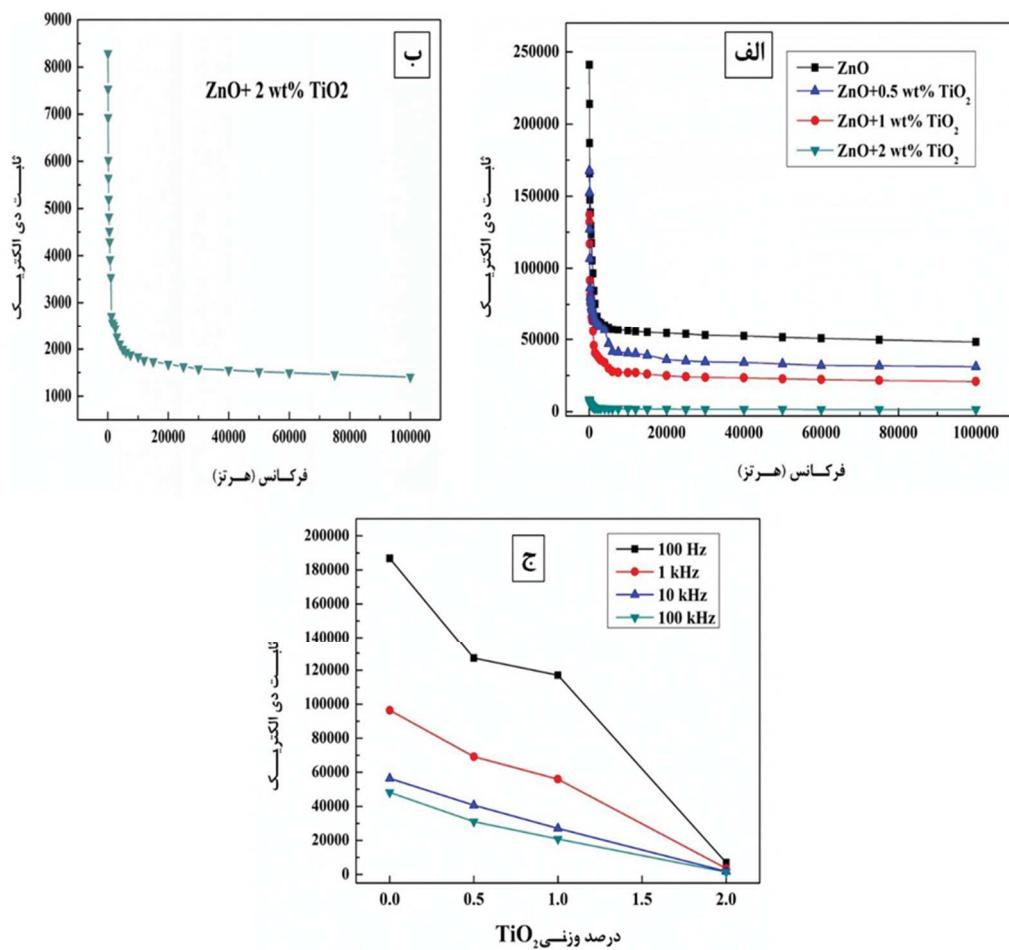


شکل ۳- تصویر SEM از سطح و هم چنین آنالیز عنصری نمونه اکسید روی حاوی $\text{TiO}_2/5$ درصد.

شکل ۴ الف تغییرات ثابت دیالکتریک نمونه های حاوی در صد متفاوت TiO_2 اندازه گیری شده در محدوده فرکانس ۵۰ هرتز تا ۱ کیلو هرتز در دمای اتاق را نشان می دهد. شکل ۴ ب نمودار تغییرات ثابت دیالکتریک با فرکانس مربوط به نمونه ها حاوی ۲ درصد TiO_2 واضح تر نشان می دهد. هم چنین تغییرات ثابت دیالکتریک اکسید روی بر حسب مقدار TiO_2 در چند فرکانس متفاوت در شکل ۴ ج آورده شده است. تشکیل دوقطبی ها در مواد دیالکتریک از طریق مکانیسم های قطبش صورت می گیرد. چهار مکانیسم ایجاد دوقطبی ها شامل الکترونی، یونی، مولکولی و بار فضایی هستند. تعداد مکانیسم های فعال بستگی به فرکانس میدان اعمالی دارد. در فرکانس های بالا، برخی از دوقطبی ها نمی توانند جهت قطب های خود را هماهنگ با میدان اعمالی تعویض کنند، بنابراین غیر فعال می شوند. اندازه دوقطبی ها در قطبش بار فضایی نسبت به مکانیسم های دیگر بزرگتر است و تنها در فرکانس های پایین فعال هستند. پس در فرکانس های بالا، به دلیل غیر فعال شدن قطبش بار فضایی، مقدار ثابت دیالکتریک

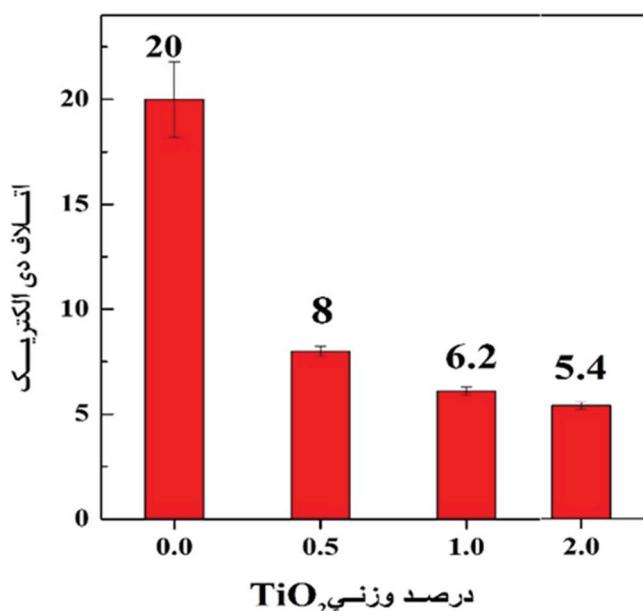


کاهش می‌یابد [۱۳]. طبق نتایج به دست آمده، افزودنی TiO_2 منجر به افت ثابت دیالکتریک اکسید روی می‌شود و این کاهش به شدت وابسته به مقدار TiO_2 است که با افزایش مقدار TiO_2 از ۵٪ به ۱ درصد کاهش شدیدی در ثابت دیالکتریک مشاهده می‌شود. میزان کاهش به فرکانس اندازه گیری ثابت دیالکتریک نیز وابسته است. به عنوان مثال، در فرکانس ۱۰۰ هرتز با افزودن ۲ درصد وزنی TiO_2 ، ثابت دیالکتریک اکسید روی از مقدار ۱۸۶۸۲۰ به ۶۹۳۰ کاهش می‌یابد (حدود ۲۵ برابر کاهش) و در فرکانس ۱۰۰ کیلوهرتز ثابت دیالکتریک اکسید روی از مقدار ۴۸۲۰۰ به ۱۴۰۰ کاهش یافت (حدود ۳۳ برابر کاهش). کاهش در مقدار ثابت دیالکتریک اکسید روی در حضور افزودنی TiO_2 می‌تواند به اندازه دانه کوچکتر و وجود فازهای ناخالصی ذسبت داده شود. در اثر جایگزینی یون‌های Ti^{4+} به جای Zn^{2+} در شبکه اکسید روی برای حفظ خنثایی الکتریکی در شبکه بلوری امکان دو معادله ۱ و ۲ وجود دارد. در معادله ۱ تعداد کاتیون‌ها برابر شده است و دو یون Ti^{4+} جایگزین دو یون Zn^{2+} در ساختار بلوری می‌شود و در این حالت برای حفظ خنثایی الکتریکی یک اکسیژن به صورت بین نشین در شبکه قرار می‌گیرد. در معادله ۲ تعداد آنیون‌ها برابر شده است و در این حالت برای حفظ خنثایی الکتریکی یک جای خالی کاتیون روی در شبکه ایجاد می‌شود. از نظر انرژی آزاد، احتمال ایجاد جای خالی کاتیون روی و واکنش ۲ به دلیل کوچکتر بودن اندازه جای خالی کاتیون و ایجاد کرنش و تنش کمتر در شبکه بلوری می‌تواند بیشتر باشد. حضور عیب جای خالی کاتیون روی می‌تواند بر مکانیزم‌های پلاریزا سیون به ویژه در عملکرد لایه مرزهای دانه تاثیر منفی داشته باشد و منجر به افت ثابت دیالکتریک شود [۳].



شکل ۴- (الف) تغییرات ثابت دیالکتریک نمونه‌ها با فرکانس، (ب) تغییرات ثابت دیالکتریک با فرکانس برای نمونه حاوی ۲ درصد وزنی TiO_2 و (ج) تغییرات ثابت دیالکتریک ZnO بر حسب مقدار TiO_2 در چند فرکانس متفاوت.

در شکل ۵ تغییرات اتلاف دیالکتریک ZnO بر حسب مقدار افزودنی TiO_2 اندازه گیری شده در فرکانس ۱۰۰ کیلوهرتز آورده شده است. اکسید روی به دلیل نیمه رسانا بودن، مقدار اتلاف دیالکتریک بسیار بالایی دارد به گونه ای که در فرکانس های پایین مقدار اتلاف دیالکتریک حدود ۱۰۰ برابر اکسید روی گزارش شده است [۱۴]. همان گونه که در شکل های ۵ مشاهده می شود افزودنی TiO_2 منجر به کاهش چشمگیری در مقدار اتلاف دیالکتریک اکسید روی می شود. طبق نتایج دیگر محققان به طور معمول وقتی سرامیک دیالکتریک مقدار ثابت دیالکتریک بالاتری دارد، اتلاف دیالکتریک آن نیز بالا خواهد بود [۱۴، ۱۰، ۸]. همان گونه که نتایج ثابت دیالکتریک نشان داد در حضور افزودنی ها مقدار ثابت دیالکتریک اکسید روی کاهش شدیدی یافته است و در این نمونه ها با ثابت دیالکتریک کمتر انتظار اتلاف دیالکتریک کمتر نسبت به اکسید روی نیز وجود دارد.



شکل ۵- تغییرات اتلاف دیالکتریک ZnO بر حسب مقدار افزودنی TiO_2 .

۴- نتیجه گیری

در این تحقیق به بررسی تأثیر افزودنی TiO_2 (در مقادیر ۰/۵، ۱ و ۲ درصد وزنی) بر خواص مختلف سرامیک اکسید روی پرداخته شد. نتایج این مطالعه نشان داد افزودنی TiO_2 حتی در مقدار کم ۰/۵ درصد وزنی باعث ایجاد فاز ثانویه و ناخالصی در سرامیک اکسید روی خواهد شد. هم چنین ریز ساختار سرامیک اکسید روی در حضور افزودنی TiO_2 تغییر چشمگیری پیدا کرد و اندازه دانه ها کاهش یافت. بنابراین افزودنی TiO_2 مانع رشد دانه ها سرامیک اکسید روی شده بود. با افزایش مقدار افزودنی TiO_2 ، مقدار ثابت دیالکتریک اکسید روی کاهش می یابد. این کاهش در ثابت دیالکتریک در حضور افزودنی TiO_2 را می توان به اندازه دانه کوچکتر و دشوار شدن چرخش دوقطبی ها نسبت داد.

مراجع

- [1] H. V. S. Pessoni, P. Banerjee, A. Franco, "Colossal dielectric permittivity in Co-doped ZnO ceramics prepared by a pressure-less sintering method", *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2018, 20 [45] 28712–28719.
- [2] D. Huang, L. Zhifu, L. Yongxiang, L. Yun, "Colossal permittivity and dielectric relaxation of (Li, In) Co-doped ZnO ceramics", *Journal of Alloys and Compounds*, 2017, 698, 200-206.
- [3] R.L.D.S.e Silva, P. Banerjee, A.F. Júnior, "Functional properties of donor-and acceptor-co-doped high dielectric constant zinc oxide ceramics", *Physical Chemistry Chemical Physics*, 2019, 21 [18] 9456-9464.
- [4] Y.J. Lin, J.S. Huang, H.C. Chang, C.Y. Chuang, M.H. Lin, "Effects of the addition of graphene on the defect-related photoluminescent and electrical properties of n-type ZnO thin films," *Journal of Luminescence*, 2021, 118599.
- [5] A.M. Eyvaraghi, E. Mohammadi, N. Manavizadeh, E. Nadimi, L. Ma'mani, F.A. Broumand, M.A. Zeidabadi,

- "Experimental and density functional theory computational studies on highly sensitive ethanol gas sensor based on Au-decorated ZnO nanoparticles," *Thin Solid Films*, 2021, 139014.
- [6] S. Boulahlib, K. Dib, M. Özacar, Y. Bessekhouad, "Optical, dielectric, and transport properties of Ag-doped ZnO prepared by Aloe Vera assisted method," *Optical Materials*, 2021, 113, 110889.
- [7] O. Gürbüz, M. Okutan, "Structural, electrical, and dielectric properties of Cr doped ZnO thin films: Role of Cr concentration," *Applied Surface Science*, 2016, 387, 1211-1218.
- [8] J. J. Tian, H. Tian, Y.H. Xu, Y.J. Feng, H.L. He, "Nonlinear electrical properties and dielectric properties of ZnO ceramics doped with - K₂CO₃", *Journal of Materials Science: Materials in Electronics*, 2019, 30 [14] 13768-13773.
- [9] D. Huang, W.L. Li, Z.F. Liu, Y.Z. Li, C. Ton-that, "Electron-pinned defect dipoles in (Li, Al) co-doped ZnO ceramics with colossal dielectric permittivity", *Journal of Materials Chemistry A*, 2020, 8[9] 4764-4774.
- [10] N. Bhakta, A. Bandyopadhyay, A. Bajorek, P.K. Chakrabarti, "Microstructural analysis, dielectric properties and room temperature magnetic ordering of Pr-doped ZnO nanoparticles", *Applied Physics A*, 2019, 125 [12] 1-12.
- [11] Jr.A. Franco, H. V. S. Pessoni, "Enhanced dielectric constant of Co-doped ZnO nanoparticulate powders," *Physica B: Physics of Condensed Matter*, 2015, 476, 12–18.
- [12] M. N. Rahaman, *Ceramic Processing and Sintering*, New York: Marcel Dekker, 1995.
- [13] M. Barsoum, M.W. Barsoum, *Fundamentals of Ceramics*, CRC press, 2002.
- [14] M. Mazhdi, M.J. Tafreshi, "Gadolinium doping affecting on structural, magnetic and dielectric properties of ZnO nanoparticles," *Applied Physics A*, 2020, 126 [4] 1-8.



Investigation of Titanium Oxide Additive on the Microstructure and Dielectric Properties of Zinc Oxide

Ismail Sadeghi Deh Chenari, Hajar Ahmadimoghadam*

Department of Materials Engineering, Faculty of Engineering, Shahrekord University,
Shahrekord, Iran

* hajar.ahmadi@sku.ac.ir

Abstract: Zinc oxide (ZnO) is widely used in various fields such as electronic devices, converters, varistors, catalysts, photoelectric devices, and piezoelectric application due to its unique properties. In the present study, the effect of titanium oxide (TiO_2) additive on the properties of ZnO ceramic was studied. 0.5, 1 and 2 wt% of TiO_2 were added to ZnO and various properties of ZnO ceramic including density, phase behavior, dielectric properties and microstructure were investigated. The obtained samples had a high relative density and about 98% of the theoretical density. The results of X-ray diffraction (XRD) showed that TiO_2 additive leads to the formation of a secondary phase of Zn_2TiO_4 in ZnO ceramic and with increasing the amount of TiO_2 , the amount of impurity phase increases and the peaks move to lower angles. TiO_2 additive considerably reduced the dielectric constant and the dielectric loss of ZnO ceramic. With addition of 2 wt% TiO_2 , the dielectric constant of ZnO was decreased from 48200 to 1400 and the dielectric loss of ZnO was decreased from 20 to 5.4, measured at 100 kHz. The results of microstructure study showed that TiO_2 additive will have a significant effect on the microstructure of ZnO ceramic, so that with increasing the amount of TiO_2 additive, grain growth decreases. The reduction in the constant dielectric of ZnO ceramic can be attributed to the smaller grain size, the existence of the impurity phase and the defect of the cation vacancy in the presence of TiO_2 additive.

Keywords: Zinc oxide, Titanium oxide, Density, Phase behavior, Dielectric constant, Microstructure.