

## **ELETROCERÂMICA MULTIFERRÓICA: PRODUÇÃO E CARACTERIZAÇÃO POR DIFRAÇÃO DE RAIOS-X DA MATRIZ BiFeO<sub>3</sub>**

**Herbert de Oliveira Rodrigues, holiv10@gmail.com<sup>1</sup>**

**Guilherme Francisco de Morais Pires Júnior, gmorais@fisica.ufc.br<sup>1</sup>**

**Juscelino Chaves Sales, juscelinochaves@hotmail.com<sup>2</sup>**

**Emmanuelle de Oliveira Sancho, emmanuellesancho@hotmail.com<sup>1</sup>**

**Alisson da Conceição Ferreira, alisson\_acf@yahoo.com.br<sup>1</sup>**

**Antônio Sérgio Bezerra Sombra, sombra@fisica.ufc.br<sup>1</sup>**

<sup>1</sup>Universidade Federal do Ceará (UFC), Av. Mister Hull, s/n - Pici - CEP 60455-760, Fortaleza-CE, Brasil.

<sup>2</sup>Universidade Estadual Vale do Acaraú (UVA), Departamento de Engenharia, Fortaleza-CE, Brasil.

**Resumo:** O presente trabalho tem por objetivo apresentar e discutir os resultados de medidas de difratometria de raios-X realizadas para caracterizar eletrocerâmicas compostas do material BiFeO<sub>3</sub> (BFO) com aditivos óxido de bismuto (Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) e óxido de chumbo (PbO). A matriz BFO foi produzida pelo método padrão do estado sólido. Os aditivos foram empregados na concentração de 10% em massa. Os aglutinantes empregados para melhorar a densificação das amostras foram Álcool polivinílico (PVA) e tetraetil ortossilicato (TEOS). Os picos de difração para todos os padrões podem ser identificados para a fase majoritária por uma estrutura romboédrica do grupo espacial R3c, conforme indicado pelo refinamento de Rietveld que foi realizado. Houve formação de fases secundárias Bi<sub>2</sub>Fe<sub>4</sub>O<sub>9</sub> e Bi<sub>25</sub>FeO<sub>40</sub>. A densidade das cerâmicas foi determinada teórica e experimentalmente pelo método de Arquimedes. BiFeO<sub>3</sub> é uma perovskita do tipo ABO<sub>3</sub> e é também conhecido como magnetoelétrico multiferróico, por ser uma eletrocerâmica cujas propriedades ferromagnéticas ou antiferromagnéticas, podem ser controladas a partir da aplicação de um campo elétrico externo, ou suas propriedades ferroelétricas podem ser controladas a partir da aplicação de um campo magnético externo. Todas as amostras foram investigadas tendo em vista possíveis aplicações em circuitos eletrônicos, na forma de componentes para uso em dispositivos eletrônicos.

**Palavras-chave:** Difração de Raios-X, Eletrocerâmicas, Reação de Estado-Sólido.

### **1. INTRODUÇÃO**

Materiais para rádio-frequência (RF) e microondas têm sido amplamente usados em uma variedade de aplicações, desde dispositivos comerciais de telecomunicações até sistemas militares. O estudo das propriedades destes materiais e o desenvolvimento de novos materiais com características específicas têm sido objeto de pesquisas em física do estado sólido, engenharia e ciência dos materiais e engenharia elétrica ou eletrônica. Nos anos recentes, com o incremento da demanda por dispositivos de alta velocidade e circuitos de alta frequência, o conhecimento das propriedades destes materiais operando na faixa de RF e microondas tornam-se amplamente necessário. Desde meados do século XX tem havido grande interesse no estudo de materiais conhecidos como magnetoelétricos multiferróicos (Eerenstein,2006). O possível controle elétrico sobre o ferromagnetismo nesses materiais abre um imenso campo de pesquisas em física da matéria condensada, com impacto em sistemas de armazenamento de dados, spintrônica, e dispositivos magnéticos de alta frequência. Todavia, o número de materiais que exibem esta propriedade à temperatura ambiente é limitado e há uma forte dependência de condições específicas de síntese do material (Eerenstein,2006).

O grande viés dos diversos estudos no presente é aprimorar e melhorar as propriedades magnetoelétricas pela obtenção de novos compostos quer por dopagem quer por substituição de íons, e.g. (Chu,2008). A escolha de um aglutinante orgânico é também importante em vista da possibilidade da formação de imperfeições que podem se localizar dentro dos poros, e vir a desenvolver estados de tensão na amostra, suficientes para degradar sua permeabilidade magnética (Moulson,2003).

Perovskitas do tipo ABO<sub>3</sub>, como mostrado na Fig. 1, têm atraído considerável interesse em pesquisas devido aos seus efeitos simultâneos de ferroeletricidade, ferromagnetismo ou antiferromagnetismo, e ferroelasticidade, propriedades que as qualificam como materiais multiferróicos (Chaodan,2006). Perovskitas

magneto-dielétricas são simultaneamente ferroelétricas e exibem ordenamento magnético. No caso dos materiais compostos de perovskitas do tipo  $ABO_3$ , é sabido que a origem da ferroeletricidade está relacionada com o deslocamento dos cátions A ou B dos sítios, com relação ao octaedro de oxigênio ao longo de uma direção específica de polarização (Santos,2008). Um dos raros sistemas multiferróicos de alta temperatura,  $\text{BiFeO}_3$  (BFO), ferroelétrico abaixo de 1103 K ( $T_C$ ) e antiferromagnético abaixo de 653 K ( $T_N$ ), desafortunadamente oferece somente um pequeno acoplamento magnetoelétrico linear (efeito ME) em campos magnéticos extremamente fortes ou em filmes finos (Kleemann,2008). A polarização elétrica é devido ao deslocamento relativo dos íons  $\text{Bi}^{+3}$ ,  $\text{Fe}^{+3}$  e  $\text{O}^{2-}$  ao longo do eixo  $[001]_{\text{hex}}$ . O ordenamento magnético é antiferromagnético tipo G (Bertaut,1960) está sujeito a uma modulação cicloidial de período igual a  $620\text{Å}$  (Sitter,1976).

As aplicações comerciais dessas cerâmicas ainda não tiveram pleno sucesso devido às restrições causadas pela formação de impurezas e porosidade, contudo, potencialmente é esperado que estes materiais sejam aplicados em memórias de acesso randômico a fim de substituir memórias magnéticas. Materiais ferroelétricos podem também ser usados na fabricação de capacitores para a indústria eletrônica devido às suas altas constantes dielétricas, o que é importante diante da tendência efetiva de maior miniaturização e grande funcionalidade de produtos eletrônicos. Outro forte campo de aplicação potencial é dispositivo de microondas como antenas para comunicação por satélites e sistemas de radar (Varadan,1999). A Fig. 1 mostra os esquemas de células unitárias perovskitas  $\text{BiFeO}_3$  do tipo romboédrica e tetragonal (Wang,2003).

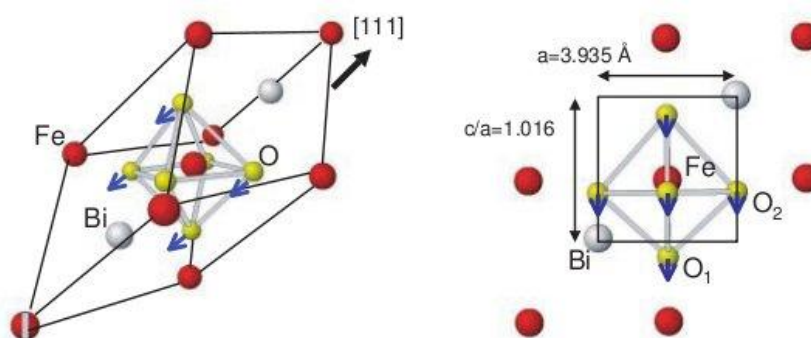


Figura 1. Esquemas de células unitárias perovskitas  $\text{BiFeO}_3$  do tipo romboédrica e tetragonal (Wang,2003).

Neste trabalho, nosso objetivo maior é apresentar e discutir os resultados de medidas de difratometria de raios-X realizadas para caracterizar materiais cerâmicos compostos de  $\text{BiFeO}_3$  (BFO) dopado com óxido de bismuto ( $\text{Bi}_2\text{O}_3$ ) e óxido de chumbo ( $\text{PbO}$ ). O material BFO foi produzido pelo método padrão do estado sólido. Os aditivos foram empregados na concentração de 10% em massa.

As amostras foram investigadas com vistas à aplicação em circuitos eletrônicos operando na faixa de RF e microondas. Nesta região do espectro eletromagnético, a miniaturização dos componentes é desejável e, neste sentido, a aplicação destes materiais já vem sendo discutida em outros trabalhos (Santos 2008). Uma alternativa para tais materiais seria a produção de filtros miniaturizados, osciladores ou antenas ressonadoras dielétricas (DRA) (Moulson,2003).

## 2. METODOLOGIA

Uma série  $\text{BiFeO}_3$  (BFO) foi cuidadosamente fabricada através da reação de estado sólido. Os reagentes  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  (Aldrich, 99,9%) e  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  (Aldrich, 99,0%) foram estequiometricamente pesados. Cinco (5) tipos diferentes de amostras cerâmicas BFO, denotadas por BFO-0, BFO-BPVA, BFO-PPVA, BFO-BTEOS e BFO-PTEOS foram preparadas conforme podemos observar na Tab. 1. A primeira da série é considerada a amostra de referência, a partir da qual as demais serão comparadas. Dentro da série, observam-se dois grupos básicos de amostras, que se distinguem de acordo com o aglutinante adotado.

Tabela 1. Dopantes e aglutinantes usados na produção da série cerâmica, tempo de moagem, temperatura e tempo de calcinação.

Amostra	Dopante (10% em massa)	Aglutinante (5% em massa)	Tempo de moagem	Temperatura e tempo de sinterização
BFO-0	0	-	1h	810 °C - 3h
BFO-BPVA	$\text{Bi}_2\text{O}_3$	PVA	1h	810 °C - 3h
BFO-PPVA	$\text{PbO}$	PVA	1h	810 °C - 3h
BFO-BTEOS	$\text{Bi}_2\text{O}_3$	TEOS	1h	810 °C - 3h
BFO-PTEOS	$\text{PbO}$	TEOS	1h	810 °C - 3h

Previamente ao primeiro tratamento térmico, é realizada a moagem da mistura homogênea em pó em um moinho de bolas de alta energia usando um moinho planetário Fritsch Pulverisette 6. A velocidade angular escolhida para promover a rotação dos invólucros lacrados contendo as misturas de pós foi de 270 rpm. A moagem foi realizada em temperatura ambiente em invólucros cujo volume aproximado é de 221,69 cm<sup>3</sup>, usando 24 esferas de aço inoxidável (massa de cada unidade ~ 4g; e diâmetro ~ 10 mm). O tempo gasto nesta operação foi de 1 h. A moagem é realizada com o intuito de prover homogeneidade à mistura de pós. A composição é então calcinada em fornos com temperatura controlada a 750°C durante 3h, partindo da temperatura ambiente com uma taxa de 5°C/min. Após a etapa de calcinação, adicionamos os dopantes Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub> e PbO com 10% em massa, com o propósito de estudar as mudanças nas propriedades estruturais e dielétricas das amostras cerâmicas finais. Álcool Polivinílico (PVA) e Tetraetil Ortossilicato (TEOS) foram adicionados em um segundo estágio de moagem com cerca de 5% em massa como aglutinantes antes do processo de prensagem uniaxial de 160 MPa da mistura em pastilhas, cujo diâmetro é da ordem de 10 mm e espessura cerca de 2 mm. As pastilhas foram sinterizadas a 810°C por 1 h em ar, com um degrau intermediário a 200°C por 1h, a fim de eliminar umidade, resultando em quase completa densificação maior que 89% da densidade teórica. O método de Arquimedes foi empregado para determinar a densidade das amostras sinterizadas que são amostras sólidas. Quando um sólido é colocado em um picnômetro de vidro preenchido com um líquido de densidade conhecida, no presente caso, água destilada, o volume do líquido que transborda tem o mesmo volume do sólido. É preciso que o sólido seja insolúvel no líquido utilizado. A densidade do sólido é determinada a partir destas medidas de massa e volume encontradas.

O perfil de difração de raios-X (DRX) das amostras foi obtido à temperatura ambiente, usando um difratômetro de raios-X modelo Rigaku D/max-B, composto de um gerador de raios-X, sistema de lentes, goniômetro e detector de raios-X. As amostras foram fixadas em um suporte de silício. Os padrões foram coletados usando radiação Cu-K $\alpha$  ( $\lambda = 0,15418$  nm), com o equipamento operando em 40 kV e 25 mA máxima na geometria de Bragg-Brentano com um passo de 0,02° sobre uma faixa angular de 20° - 80° ( $2\theta$ ). O método de Rietveld é bem sucedidamente aplicado para a determinação quantitativa de fases de espécies sinterizadas (Rietveld,1967). A análise do tamanho de cristalito  $L_c$  das amostras com maior concentração de dopante em torno de 10% em massa foi feito para a fase BFO, usando a equação de Scherrer (Azaroff,1968), como mostrado na Eq. (1),

$$L_c = \frac{k\lambda}{\beta \cos\theta}, \quad (1)$$

onde  $k$ , escolhido igual a 1, é o coeficiente de perfil para os pontos recíprocos da rede cristalina (reciprocal lattice point - r.l.p.),  $\beta$  é a largura total na metade do máximo do pico (full width at half maximum, FWHM), e  $\theta$  é o ângulo de Bragg. O parâmetro  $\beta$  foi corrigido usando-se a Eq. (2):

$$\beta = \sqrt{\beta_{\text{exp}}^2 - \beta_{\text{inst}}^2}. \quad (2)$$

$\beta_{\text{exp}}$  é a largura experimental medida e  $\beta_{\text{inst}}$  é a largura devida ao instrumento (largura instrumental). Aqui os picos de difração são considerados como uma distribuição gaussiana.  $\beta_{\text{inst}}$  foi obtido usando a equação de Caglioti (Caglioti,1958), conforme apresentado na Eq. (3):

$$\beta_{\text{inst}} = \sqrt{U \tan^2 \theta + V \tan \theta + W}, \quad (3)$$

onde  $U$ ,  $V$  e  $W$  foram obtidos a partir do Refinamento de Rietveld de uma amostra LaB<sub>6</sub> (SRM 660 – National Institute of Standard Technology).

### 3. RESULTADOS E DISCUSSÕES

A Fig. 2 mostra os padrões de difração de raios-X das amostras BFO-0, BFO-BPVA, BFO-PPVA, BFO-BTEOS e BFO-PTEOS, sinterizadas a 810°C/1h. Fases secundárias residuais (Bi<sub>2</sub>Fe<sub>4</sub>O<sub>9</sub> e Bi<sub>25</sub>FeO<sub>40</sub>) não foram removidas completamente dos pós e das espécies sinterizadas, como reportado previamente (Achenbach,1967) e a despeito das técnicas de purificação por lixiviação já encontradas na literatura (Kumar,2000). Os picos de difração para todos os padrões podem ser indexados para a fase majoritária por uma estrutura romboédrica do grupo espacial:  $R3c$ . Os picos de difração apresentados por quase todas as amostras foram identificados pelas fichas JCPDS números 86-1518, 72-1832 e 46-0416 (JCPDS,1986). Quando se compara à amostra BFO-0, nenhum deslocamento nas posições dos picos maiores foi observado. A partir disso, concluímos que a estrutura básica cristalina não foi afetada pela incorporação dos íons Bi<sup>+3</sup> e Pb<sup>+2</sup>. Os parâmetros de rede obtidos pelo método dos mínimos quadrados são: BFO-0 ( $a = 5.5696$  Å,  $c = 13.8636$  Å), BFO-BPVA ( $a = 5.5746$  Å,  $c = 13.8603$  Å), BFO-PPVA ( $a = 5.5786$  Å,  $c = 13.8527$  Å), BFO-BTEOS ( $a = 5.5719$  Å,  $c = 13.8658$  Å), BFO-PTEOS ( $a = 5.5762$  Å,  $c = 13.8589$  Å). A pequena mudança no valor da relação  $c/a$  com as incorporações de Bi e Pb, respectivamente,

mostra uma variação muitíssimo pequena na anisotropia cristalina no BFO. Os valores de tamanho de cristalito encontrados foram 64,28 nm, 89,29 nm, 57,01 nm, 67,69 nm e 72,79 nm, respectivamente para as amostras BFO-0, BFO-BPVA, BFO-PPVA, BFO-BTEOS e BFO-PTEOS. O maior tamanho de cristalito encontrado foi da amostra BFO com dopante  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  e com o uso do aglutinante PVA, enquanto que, com o uso de TEOS, o tamanho dos cristalitos foi sendo relativamente reduzido.

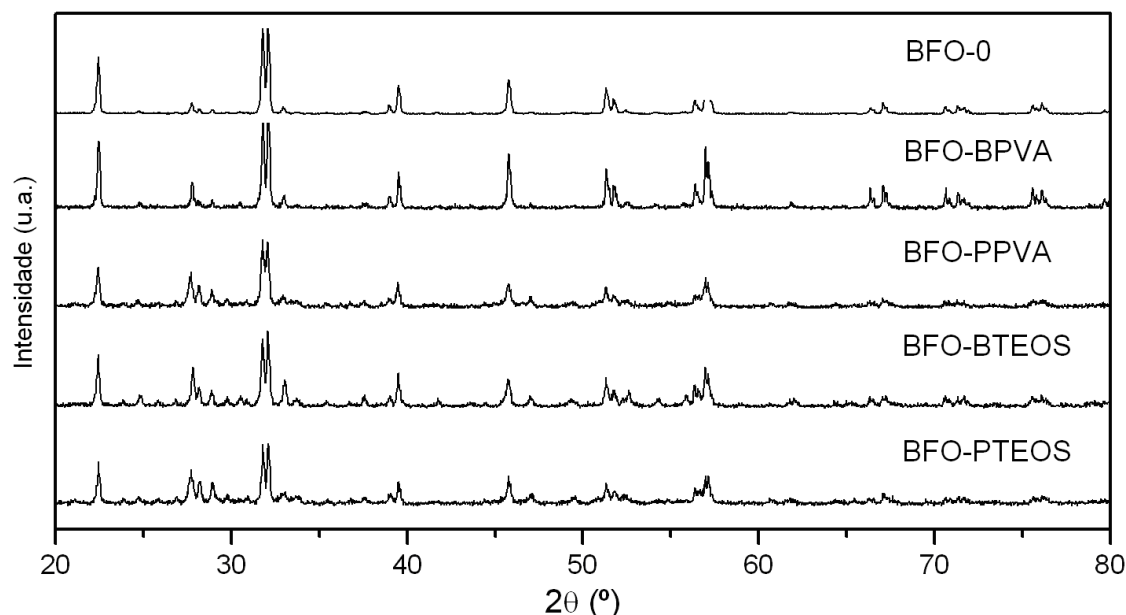


Figura 2. Padrão de difração de raios-X (DRX) das amostras sinterizadas a 810°C/1h.

Os dados do refinamento de Rietveld são mostrados na Tab. 2 onde são apresentados os parâmetros de qualidade do refinamento: Rp (%), Rwp (%), dDW que é a estatística de Durbin-Watson (Durbin,1950) e S a adequação do ajuste. Falando de um ponto de vista estritamente matemático, Rwp é o indicador estatístico de maior significado, no sentido de que seu numerador é o residual que é minimizado (Young,1995). Por esta mesma razão, é aquele que melhor reflete o progresso de um refinamento. Outro critério numérico útil é o valor S ou “adequação do ajuste” (*goodness of fit*). Um valor de S = 1,3 ou menos é usualmente considerado como satisfatório. O valor de dDW mostra a correlação serial do refinamento, onde um valor ideal gira em torno de 2. Como mostrado na Tabela 2, os resultados obtidos para dDW foram razoáveis. Por outro lado, os valores de Rwp (14,11% – 21,07%) e S (1,10 – 1,37) mostraram que o refinamento realizado para as amostras foi efetivo.

Tabela 2. Dados do refinamento de Rietveld para as amostras BFO obtidos a partir da difração de raios-X.

Amostra	Fases	Concentração em massa (%)	Concentração molar (%)	Rp (%)	Rwp (%)	S	d <sub>DW</sub>
BFO-0	$\text{BiFeO}_3$	89,34	96,78	10,38	14,11	1,37	0,49
	$\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$	0,93	2,84				
	$\text{Bi}_{25}\text{FeO}_{40}$	9,73	0,38				
BFO-BPVA	$\text{BiFeO}_3$	85,51	99,11	15,77	21,07	1,14	1,24
	$\text{Bi}_{25}\text{FeO}_{40}$	14,49	0,89				
BFO-PPVA	$\text{BiFeO}_3$	51,71	79,64	16,53	20,97	1,18	1,21
	$\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$	30,89	18,95				
	$\text{Bi}_{25}\text{FeO}_{40}$	17,40	1,42				
BFO-BTEOS	$\text{BiFeO}_3$	52,40	80,34	15,46	19,87	1,10	1,23
	$\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$	29,71	18,20				
	$\text{Bi}_{25}\text{FeO}_{40}$	17,89	1,47				
BFO-PTEOS	$\text{BiFeO}_3$	43,50	72,34	15,80	20,20	1,14	1,34
	$\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$	39,49	26,16				
	$\text{Bi}_{25}\text{FeO}_{40}$	17,01	1,49				

Pela determinação dos quantitativos das fases das amostras analisadas, conclui-se que a amostra BFO-BPVA apresentou melhor rendimento, formação de apenas uma fase secundária e também apresentou boa densificação (95,38%). A dopagem com  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  mais PVA foi efetiva para a eliminação de uma segunda fase secundária impura, a já mencionada fase  $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$ . A dopagem com  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  foi realizada por outros pesquisadores (Kalinin,2002) com resultados similares obtidos. Por outro lado, tanto as amostras dopadas com chumbo, como aquelas sinterizadas com o aglutinante TEOS apresentaram pior rendimento percentual em massa (51,71%, 52,40% e 43,50%, para BFO-PPVA, BFO-BTEOS e BFO-PTEOS, respectivamente). Suas densificações são, ainda por cima, piores que a da amostra BFO-BPVA (94,57%, 89,34% e 90,85%, para BFO-PPVA, BFO-BTEOS e BFO-PTEOS, respectivamente). O método de Arquimedes foi executado para determinar a densidade experimental das cerâmicas sinterizadas como mostra a Tab. 3 e para comparar suas densificações com os resultados teóricos obtidos por meio do programa para refinamento de Rietveld (Bleicher,2000).

**Tabela 3. Densidade experimental das amostras**

Amostra	Densidade ( $\text{g}/\text{cm}^3$ ) Método de Arquimedes
BFO-0	8,085
BFO-BPVA	8,096
BFO-PPVA	7,350
BFO-BTEOS	7,563
BFO-PTEOS	6,919

#### 4. CONCLUSÕES

O presente estudo do material cerâmico  $\text{BiFeO}_3$  preparado pelo método padrão do estado sólido, com adição de  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  e  $\text{PbO}$ , revelou que os picos de difração para todos os padrões podem ser indexados para a fase majoritária por uma estrutura romboédrica do grupo espacial:  $R3c$ . As amostras dopadas com  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  e sinterizadas com PVA apresentaram melhor rendimento quantitativo da fase  $\text{BiFeO}_3$ , contrariamente às amostras dopadas com  $\text{PbO}$  ou com aglutinante TEOS. A amostra dopada com  $\text{Bi}_2\text{O}_3$  mais PVA formou apenas uma fase secundária e apresentou boa densificação com 95,38%. Para a avaliação em aplicações de rádio-frequência e microondas faz-se necessário ampliar futuramente o escopo do conhecimento sobre a estrutura, o comportamento mecânico e o comportamento dielétrico destas amostras. Com a complementação de novas medidas dielétricas e magnéticas será possível estabelecer novos parâmetros de qualidade das amostras, com o propósito de possíveis aplicações em dispositivos eletrônicos como capacitores cerâmicos ou mesmo antenas ressonadoras dielétricas em circuitos de rádio-frequência ou microondas.

#### 5. AGRADECIMENTOS

Ao LOCEM - Laboratório de Telecomunicações e Ciência e Engenharia de Materiais e ao Laboratório de Raios-X, Departamento de Física da UFC.

#### 6. REFERÊNCIAS

- Achenbach, G.D., James, W.J and Gerson,R., 1967, Journal of the American Ceramic Society, 50, 437.
- Azaroff, L.V., 1968, "Elements of X-ray Crystallography". McGraw-Hill, New York.
- Bleicher,L., Sasaki,J.M and Santos,C.O.P., 2000,"Development of a graphical interface for the Rietveld refinement program DBWS". Journal of Applied Crystallography , 33 , 1189.
- Bertaut, E.F., Rado, G.T and Suhl,H ., 1960, "Magnetism III" .Academic Press, New York, p.149.
- Caglioti,G., Paoletti, A and Ricci,F.P.,1958, Nuclear Instrumtruments and Methods, 35, 223.
- Chaodan, Z., Jun,Y., Duanmin,Z., Bin,Y., Wu Yunyi,W., Longhai,W., Yunbo,W and Wenli,Z.,2006, 'Processing and ferroelectric properties of Ti-doped  $\text{BiFeO}_3$  ceramics". Solid State Communications 138 , 76–81.
- Chu, Y.H., Martin,L.W., Holcomb,B.M.,Gajek,M., Han,S.J., He,Q.,Balke,N.,Yang,C.H., Lee,D.,Hu,W.,Zhan,Q., Yang,P.L., Rodríguez,A.F., Scholl,A., Shan X. Wang,S.X and Ramesh,R.,2008,"Electric-field control of local ferromagnetism using a magnetoelectric multiferroic". Nature Materials, v.7, p.478-482.
- Durbin,J and Watson,G.S.,1950, "Biometrika", 37, 409–428 .
- Eerenstein, W., Mathur, N.D. and Scott, J.F., 2006, "Multiferroic and magnetoelectric materials". Nature, 442, p.759-765.
- JCPDS., 1986, Joint Committee on Powder Diffraction Standard , International Center for Diffraction Data, (JCPDS 86-1518)

- Kalinin, S.V., Suchomel, M.R., Davies, P.K; and Bonnell, D.A., 2002, "Potential and Impedance Imaging of Polycrystalline BiFeO<sub>3</sub> Ceramics". *Journal of the American Ceramic Society*. 85 3011–17 .
- Kleemann, Borisov, P. I., Luk'yanchuk, A and D. Mezzane . "Smart Materials for Energy, Communications and Security". Springer, 2008.
- Kumar, M. M., Palkar, V.R., Srinivas, K and Suryanarayana, S.V., 2000, *Applied Physics Letters*. 76 , 2764-2766.
- Moulson, A.J and Herbert, J. M., 2003, "Electroceramics: Materials, Properties, Applications". 2<sup>nd</sup>. Edition. John Wiley & Sons.
- Rietveld, H.M., 1967, "A Profile Refinement Method for Nuclear and Magnetic Structures". *Acta Crystallogr.* 22 151.
- Santos, M. R. P. ; Freire, F. N. A. ; Sohn, R. S. T. M. ; Almeida, J. S. ; Sancho, E. O. ; Costa, A. D. S. B. ; Medeiros, A. M. L and Sombra, A. S. B., 2008, "Electrical Properties of the Electroceramic Composite in the Microwave Frequency Range: Pb(Fe<sub>0.5</sub>Nb<sub>0.5</sub>)O<sub>3</sub>(PFN) -Cr<sub>0.75</sub>Fe<sub>1.25</sub>O<sub>3</sub> (CRFO)". *Physica Scripta*, v. 78, p. 65704-65709.
- Sitter, J.; Dauwe, C.; De Grave, E and Govaert, A., 1976, "On the Mössbauer parameters in BiFeO<sub>3</sub>". *Solid State Commun.* 18 645-646.
- Varadan, V. K. Jose, K. A and Varadan, V. V., 1999, *Smart Materials and Structures*, 8 (2), 238–242.
- Young, R., 1995, "The Rietveld Method". *International Union of Crystallography Monographs on Crystal*, vol. 5, Oxford University Press/IUCr.
- Wang, J., Neaton, J. B., Zheng, H., Nagarajan, V., Ogale, S. B., Liu, B., Viehland, D., Vaithyanathan, V., Schlom, D. G., Waghmare, U. V., Spaldin, N. A., Rabe, K. M., Wuttig, M and Ramesh, R., 2003, "Epitaxial BiFeO<sub>3</sub> Multiferroic Thin Film Heterostructures" *Science*, 299, 1719.



## **MULTIFERROIC ELECTROCERAMICS: PRODUCTION AND CHARACTERIZATION OF $\text{BiFeO}_3$ MATRIX BY X-RAY DIFFRACTION**

Herbert de Oliveira Rodrigues, holiv10@gmail.com<sup>1</sup>  
Guilherme Francisco de Morais Pires Júnior, gmorais@fisica.ufc.br<sup>1</sup>  
Juscelino Chaves Sales, juscelinochaves@hotmail.com<sup>2</sup>  
Emmanuelle de Oliveira Sancho, emmanuellesancho@hotmail.com<sup>1</sup>  
Alisson da Conceição Ferreira, alisson\_acf@yahoo.com.br<sup>1</sup>  
Antônio Sérgio Bezerra Sombra, sombra@fisica.ufc.br<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Universidade Federal do Ceará (UFC), Av. Mister Hull, s/n - Pici - CEP 60455-760, Fortaleza-CE, Brasil.

<sup>2</sup>Universidade Estadual Vale do Acaraú (UVA), Departamento de Engenharia, Fortaleza-CE, Brasil.

**Abstract.** *This paper aims to present and discuss the results of measurements of X-ray diffraction performed to characterize electroceramics composite material  $\text{BiFeO}_3$  (BFO) with additives bismuth oxide ( $\text{Bi}_2\text{O}_3$ ) and lead oxide (PbO). BFO matrix was produced by the solid-state reaction standard method. The additives were used at a concentration of 10% by weight. The binders used to improve the densification of the samples were polyvinyl alcohol (PVA) and tetraethyl orthosilicate (TEOS). The diffraction peaks for all patterns can be identified for the major phase with a rhombohedral structure of space group  $R3c$ , as indicated by the Rietveld refinement was performed. There was formation of secondary phases  $\text{Bi}_2\text{Fe}_4\text{O}_9$  and  $\text{Bi}_{25}\text{FeO}_{40}$ . The density of ceramics was determined theoretically and experimentally by the method of Archimedes.  $\text{BiFeO}_3$  is a perovskite-type  $\text{ABO}_3$  and is also known as magnetoelectric multiferroic, whose ferromagnetic or antiferromagnetic properties can be controlled from the application of an external electric field, or ferroelectric properties can be controlled from the application of an external magnetic field. All samples were investigated in view of possible applications in electronic circuits, in the form of components for use in electronic devices.*

**Keywords:** , X-Ray Diffraction ,Electroceramics, Solid-State Reaction.