

Д.А.Филиппов, А.А.Паневин

МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ В ФЕРРИТ-ПЬЕЗОЭЛЕКТРИЧЕСКИХ КОМПОЗИТАХ В ОБЛАСТИ ЭЛЕКТРОМЕХАНИЧЕСКОГО РЕЗОНАНСА

The theory of magnetoelectric effect in homogeneous and heterogeneous ferrite-piezoelectric composites is submitted. Using constitutive equations and equations of a medium motion, the expression for frequency dependence of the magnetoelectric voltage coefficient is obtained. It is shown that a magnitude of the magnetoelectric interaction increases significantly on the electromechanical resonance frequency. The results of calculations of the magnetoelectric voltage coefficient for a nickel-ferrite spinel – PZT and for a D-Terfenol-PZT composites are adduced.

1. Введение

Композиционные магнитоэлектрические материалы представляют собой механически взаимодействующие смеси магнитострикционной и пьезоэлектрической компонент. По технологии изготовления принято различать объемные и многослойные композиционные материалы. Объемные феррит-пьезоэлектрические композиты представляют собой внедрение одной фазы в объем другой, многослойные — поочередное чередование ферритовых и пьезоэлектрических слоев. Характерным геометрическим размером в объемных композиционных материалах является размер зерен, а в многослойных — толщина слоев. Если масштабы изменения внешних воздействий много больше характерных размеров композиционных материалов, то такие материалы можно рассматривать как гомогенные среды с некоторыми эффективными параметрами [1]. В противоположном случае процессы в магнитной и пьезоэлектрической фазах необходимо рассматривать отдельно с учетом граничных условий.

Магнитоэлектрический (МЭ) эффект в композиционных материалах относится к эффектам второго порядка. По отдельности его нет ни в ферритовой, ни в пьезоэлектрической фазах. Наличие МЭ эффекта в композитах обусловлено механическим взаимодействием ферритовой и пьезоэлектрической подсистем. В магнитном поле вследствие магнитострикции в ферритовой компоненте возникают механические напряжения, которые передаются в пьезоэлектрическую фазу и благодаря пьезоэффекту вызывают поляризацию. В области электромеханического резонанса величина МЭ эффекта резко возрастает [2-6]. В [5,6] представлена теория, основанная на методе эффективных параметров композиционного материала, и экспериментальные результаты для образцов в форме диска и пластинки для планарных мод колебаний. Эта теория применима тогда, когда материал можно считать однородной средой, т.е. толщина слоев в многослойных композитах или размер зерен в объемных много меньше длины акустической волны. В [4] приведены результаты измерения частотной зависимости МЭ коэффициента гибридных образцов, представляющих собой механическое соединение магнитострикционного композита на основе D-терфенола и пьезоэлектрического композиционного материала на основе цирконата титаната свинца. Размеры ферритовой и пьезоэлектрической пластинок — 6,8×6,2×0,7 мм и 9,1×6,2×0,7 мм соответственно. В этом случае композиционный материал уже нельзя считать однородной средой, и указанная выше теория неприменима. В [7] проведено численное моделирование МЭ эффекта в такой структуре. Результаты численного моделирования показали, что наблюдается увеличение МЭ коэффициента в области электромеханического резонанса. Однако как связаны частота резонанса и величина коэффициента с геометрическими размерами образца и параметрами материала, не выявлено. В данной работе получено выражение для МЭ коэффициента через параметры, характеризующие материал, и проанализирована его частотная зависимость. Рассмотрены образцы в форме полосок из гомогенного и гетерогенного композиционных материалов.

2. Магнитоэлектрический эффект в гомогенном композиционном материале

В качестве модели рассмотрим прямоугольный образец в виде полоски из гомогенного композита, длина которого L много больше его ширины W и толщины d . На верхней поверхности образца нанесены узкие металлические контакты, ширина которых много меньше длины образца (рис.1). Пусть образец поляризован вдоль длины, направление которой выберем в качестве оси Z . Постоянное подмагничивающее и переменное с частотой ω магнитные поля могут или совпадать с направлением поляризации (продольная ориентация полей), или быть направлены перпендикулярно ей, вдоль оси X (поперечная ориентация

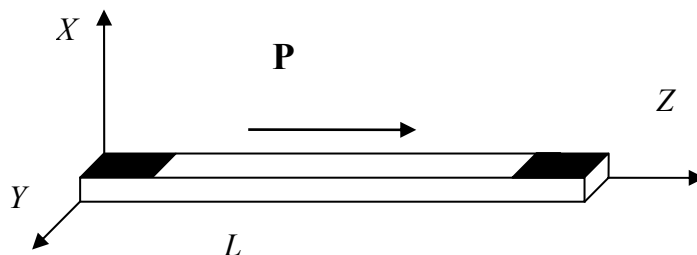


Рис.1. Схематичное изображение образца из гомогенного композита. Стрелка указывает направление поляризации

полей). Будем считать все поверхности образца свободными. В соответствии с этим нормальные составляющие компонент тензора напряжений будут равны нулю на поверхностях. Так как образец тонкий и узкий, то можно считать, что компоненты напряжений T_1 и T_2 равны нулю не только на поверхности, но и в объеме образца, и отличной от нуля компонентой тензора напряжений будет только T_3 . В соответствии с этим при продольной ориентации полей для интересующих нас компонент тензора деформаций S_i и индукции электрического поля D_i имеем уравнения

$$S_3 = s_{33}T_3 + d_{33}E_3 + q_{33}H_3, \quad (1)$$

$$D_3 = \epsilon_{33}E_3 + d_{33}T_3 + m_{33}H_3.$$

Здесь s_{ij} — эффективные модули податливости композита; d_{ij} и q_{ij} — эффективные пьезоэлектрический и пьезомагнитный модули; ϵ_{ij} и m_{ij} — эффективные диэлектрическая и магнитоэлектрическая восприимчивости; E_3 и H_3 — z -проекции векторов напряженности электрического и магнитного полей.

В дальнейшем будем рассматривать разомкнутый образец, т.е. $D_3 = 0$. В этом случае z -проекция вектора напряженности связана с механическими напряжениями и напряженностью магнитного поля соотношением

$$E_3 = -(d_{33}T_3 + m_{33}H_3)/\epsilon_{33}. \quad (2)$$

Выражая из (1) тензор механических напряжений с учетом (2) имеем

$$T_3 = (S_3 - q_{33}^*)/s_{33}^*, \quad (3)$$

где введены обозначения $q_{33}^* = q_{33} - m_{33}d_{33}/\epsilon_{33}$, $s_{33}^* = s_{33}(1 - K_p^2)$. Здесь $K_p^2 = d_{33}^2/(s_{33}\epsilon_{33})$ — квадрат коэффициента электромеханической связи. Подставляя выражение для T_3 в уравнение движения, получим уравнение для z -проекции смещения точек среды, решение которого с учетом того, что левая и правая поверхности образца свободные, имеет вид

$$u_z(z) = (q_{33}^* H_3/k)(\sin(kz) - \operatorname{tg}(\kappa)\cos(kz)), \quad (4)$$

где $k = (\rho s_{33}^*)^{1/2} \omega$, $\kappa = kd/2$.

Возникающую вследствие пьезоэффекта напряженность электрического поля найдем из уравнения (2). Подставляя (3) в (2) с учетом решения (4) получим выражение для $E_z(z)$ в виде

$$E_z(z) = -((d_{33}q_{33}^*/\epsilon_{33}s_{33}^*)(\cos(kz) + \operatorname{tg}(\kappa)\sin(kz)) + m_{33}/\epsilon_{33})H_3. \quad (5)$$

Разность потенциалов между электродами найдем, интегрируя выражение (5) по длине образца. На практике измеряют разность потенциалов V между электродами, находят среднее значение напряженности поля $E = V/d$ и приводят значение МЭ коэффициента как отношение $\alpha_E = (V/d)/H$. Выполнив интегрирование, после несложных преобразований получим:

$$\alpha_{E,L} = -((d_{33} q_{33}^* / \epsilon_{33} s_{33}^*) \operatorname{tg}(\kappa/\kappa + m_{33}/\epsilon_{33})). \quad (6)$$

Как видно из выражения (6), при значении безразмерного параметра $\kappa = \pi/2 + \pi n$ имеется резонансное увеличение МЭ коэффициента. Его величина при продольной ориентации полей прямо пропорциональна произведению пьезоэлектрического d_{33} и пьезомагнитного q_{33} модулей и обратно пропорциональна диэлектрической проницаемости материала ϵ_{33} и модулю податливости s_{33}^* . Реально в таких структурах всегда присутствуют потери, связанные в первую очередь с потерями в контактах. Эти потери определяют ширину резонансной линии и ограничивают пиковое значение МЭ коэффициента. Их можно учесть через коэффициент затухания, представив либо k , либо ω комплексными величинами [8]. Воспользуемся этим способом, представив круговую частоту в виде $\omega = \omega' + i\chi$, где χ — параметр, характеризующий затухание.

При поперечной ориентации электрического и магнитного полей образец поляризован вдоль оси Z , а постоянное и переменное магнитные поля направлены перпендикулярно направлению поляризации, вдоль оси X . В этом случае в выражении для магнитоэлектрического коэффициента вместо q_{33}^* будет стоять q_{31}^* , вместо m_{33} — m_{31} . Изменится только величина коэффициента, частотная зависимость останется без изменений. На рис.2 приведена расчетная зависимость магнитоэлектрического коэффициента для многослойного компози-

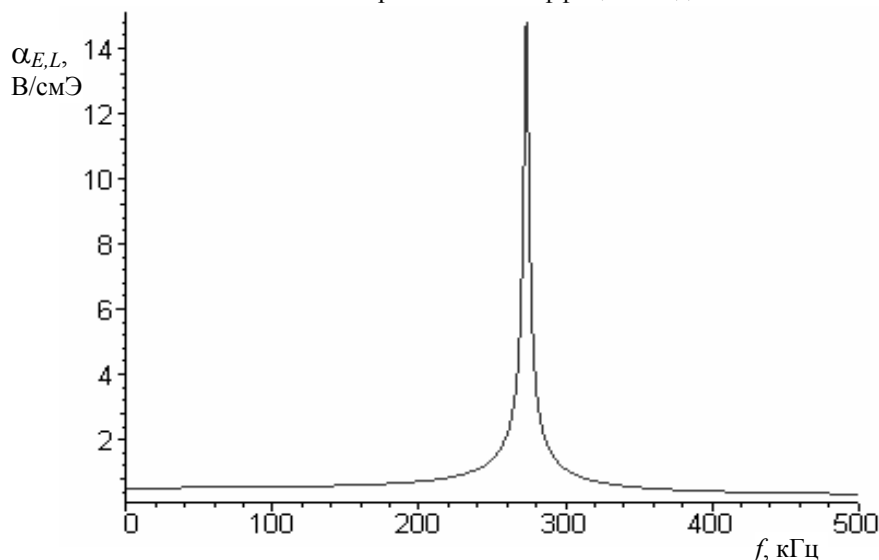


Рис.2. Частотная зависимость магнитоэлектрического коэффициента для однородной полоски из композиционного материала на основе феррит-никелевой шпинели — ЦТС

ционного материала, состоящего из 11 слоев никелевой феррошпинели по 13 микрон каждый и 10 слоев пьезокерамики ЦТС по 26 микрон каждый. Длина образца $L = 1$ см. При расчетах использовались следующие значения параметров: $s_{33} = 6,9 \cdot 10^{-12}$ м²/Н, $q_{33} = -86,7 \cdot 10^{-12}$ м/А, $d_{33} = 51,5 \cdot 10^{-12}$ м/В, $\epsilon_{33}/\epsilon_0 = 28$, $m_{33} = -97,2 \cdot 10^{-12}$ с/м, коэффициент затухания $\chi = 10000$ рад/с. Как следует из графика, на частоте 270 кГц наблюдается резонансное увеличение эффекта. Пиковое значение коэффициента достигает величины более 10 В/смЭ, что значительно превосходит низкочастотное значение коэффициента в известных до сих пор магнитоэлектрических материалах.

3. Магнитоэлектрический эффект в гетерогенном композиционном материале

В качестве модели рассмотрим образец из гибридного композиционного материала, склеенного из тонкой магнитоэлектрической пластинки длиной L_1 и пьезоэлектрической пластинки длиной L_2 (рис.3). Образцы такой конструкции использовались в эксперименте [4]. Толщину соединительного клея будем считать пренебрежимо малой. На нижней и верхней поверхности пьезоэлектрической пластинки нанесены тонкие металлические контакты.

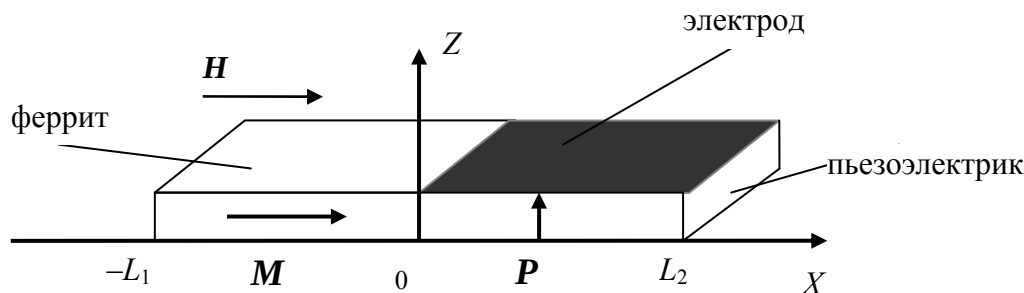


Рис.3. Схематичное изображение образца из гетерогенного композиционного материала

Пусть образец поляризован по нормали к плоскостям контактов (ось Z). Магнитные поля, постоянное подмагничивающее и переменное с частотой ω , направлены перпендикулярно к направлению поляризации, вдоль оси X (поперечная ориентация полей).

Как и раньше, будем считать, что толщина и ширина пластинки много меньше ее длины. Поскольку грани пластинки свободны, а пластинка тонкая и узкая, то можно считать, что компоненты напряжений T_2 и T_3 равны нулю не только на поверхностях, но и во всем объеме, и отличной от нуля компонентой тензора напряжений будет только T_1 . Верхняя и нижняя грани пьезоэлектрической пластинки представляют собой эквипотенциальные поверхности, следовательно, отличной от нуля компонентой вектора напряженности электрического поля будет только E_z . Уравнения для тензора деформаций ${}^m S_i$ в магнитоэлектрической пластинке, для тензора деформаций ${}^p S_i$ и индукции электрического поля D_i в пьезоэлектрике имеют вид

$${}^m S_1 = {}^m s_{11} {}^m T_1 + {}^m q_{11} H_1, \quad (7)$$

$${}^p S_1 = {}^p s_{11} {}^p T_1 + {}^p d_{31} E_3, \quad (8)$$

$$D_3 = {}^p \epsilon_{33} E_3 + {}^p d_{31} {}^p T_1, \quad (9)$$

где ${}^m s_{11}$, ${}^p s_{11}$ — компоненты тензора податливости магнетика и пьезоэлектрика соответственно; ${}^p \epsilon_{33}$ — компонента тензора диэлектрической проницаемости пьезоэлектрика; ${}^p d_{31}$, ${}^m q_{11}$ — пьезоэлектрический и пьезомагнитный коэффициенты.

Решение дифференциального уравнения для x -проекции вектора смещения среды магнетика ${}^m u_x$ и пьезоэлектрика ${}^p u_x$ запишем в виде

$${}^m u_x(x) = A_1 \cos({}^m kx) + B_1 \sin({}^m kx),$$

$${}^p u_x(x) = A_2 \cos({}^p kx) + B_2 \sin({}^p kx),$$

где ${}^m k = \omega({}^m \rho {}^m s_{11})^{1/2}$, ${}^p k = \omega({}^p \rho {}^p s_{11})^{1/2}$, ${}^m \rho$, ${}^p \rho$ — плотности магнетика и пьезоэлектрика соответственно; постоянные A_1 , A_2 , B_1 и B_2 находятся из граничных условий. Полагая контакт между фазами идеальным, а левую грань магнетика и правую грань пьезоэлектрика — свободными, имеем следующие граничные условия:

$${}^m u_x(0) = {}^p u_x(0), \quad {}^m T_1(0) = {}^p T_1(0), \quad {}^m T_1(-L_1) = 0, \quad {}^p T_1(L_2) = 0.$$

Возникающую вследствие деформаций напряженность электрического поля в пьезоэлектрике найдем из уравнения (9) с использованием условия разомкнутой цепи:

$$\int_0^W dy \int_0^{L_2} D_3(x) dx = 0, \quad (10)$$

где W — ширина образца. Выражая из (8) компоненты тензора напряжений через тензоры деформаций, с учетом решения для $^p u_x$, и подставляя получившееся сначала в (9), а затем — в (10), получим уравнение для E_z . Используя определение МЭ коэффициента как $E_3 = \alpha_{E,T} H_1$, имеем:

$$\alpha_{E,T} = \frac{d_{31} q_{11}}{^p \epsilon_{33} ^m s_{11} \Delta_a} \cdot \frac{\operatorname{tg}(\kappa_2 / 2)}{\kappa_2} \cdot \frac{1}{1 - \cos(\kappa_1)}, \quad (11)$$

где $\Delta_a = (1 - K_{31}^2 (1 + \frac{\operatorname{tg}(\kappa_2 / 2)}{\kappa_2})) (1 + \gamma \frac{\operatorname{tg}(\kappa_1)}{\operatorname{tg}(\kappa_2)}) + (1 + \gamma \frac{\operatorname{tg}(\kappa_1)}{\sin(\kappa_2)}) \frac{\operatorname{tg}(\kappa_2 / 2)}{\kappa_2}$ (здесь введены сле-

дующие обозначения $\kappa_1 = ^m k L_1$, $\kappa_2 = ^p k L_2$, $\gamma = (^m \rho ^p s_{11} / ^p \rho ^m s_{11})^{1/2}$, $K_{31}^2 = d_{31}^2 / (^p \epsilon_{33} ^p s_{11})$ — квадрат коэффициента электромеханической связи пьезоэлектрика при планарных колебаниях).

Из выражения (11) следует, что при частотах, когда $\Delta_a = 0$, наблюдается резонансное увеличение МЭ коэффициента. Эти частоты определяются геометрией и параметрами образца в целом и не совпадают с резонансными частотами магнетика и пьезоэлектрика в отдельности.

Для количественной оценки величины эффекта воспользуемся параметрами композиционного материала, приведенными в [7]. Выражая обычным способом модули податливости через модули упругости, мы получим следующие значения параметров: магнетик — $^m s_{11} = 0,454 \cdot 10^{-10}$ м²/Н, $q_{11} = 19,7 \cdot 10^{-10}$ м/А, $^m \rho = 9200$ кг/м³, $L_1 = 7$ мм; пьезоэлектрик — $^p s_{11} = 0,178 \cdot 10^{-10}$ м²/Н, $d_{31} = -1,82 \cdot 10^{-10}$ м/В, $^p \rho = 7700$ кг/м³, $^p \epsilon_{33} = 1800$, $L_2 = 9,1$ мм. Параметр χ , характеризующий затухание, определим из условия, чтобы полуширина резонансной линии, рассчитанной теоретически, совпадала с полушириной экспериментальной кривой. Тогда $\chi = 10000$ рад/с. Теоретическая частотная зависимость МЭ коэффициента, рассчитанная по формуле (11), приведена на рис.4.

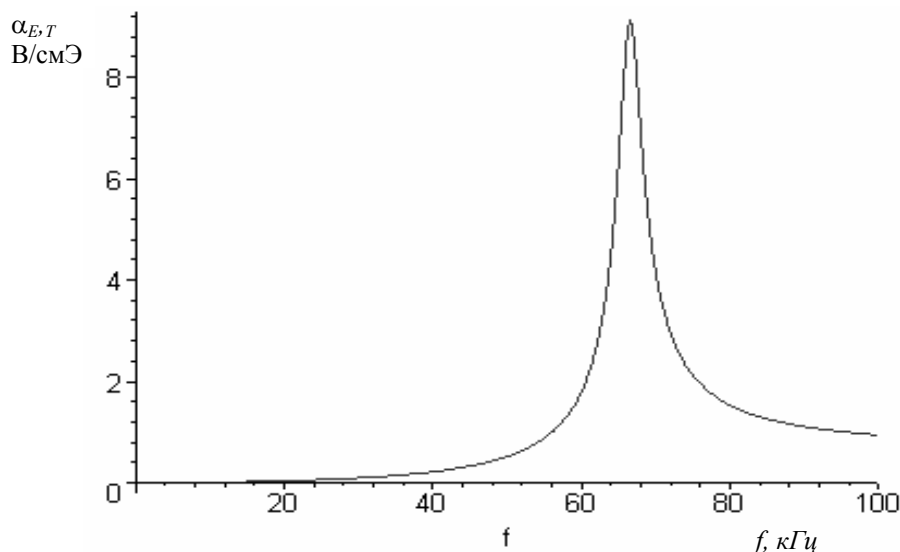


Рис.4. Частотная зависимость магнитоэлектрического коэффициента для гетерогенного композиционного материала

Имеет место очень хорошее не только качественное, но и количественное согласование теории и экспериментальных результатов, представленных в [4]. На частоте около 65 кГц наблюдается резонансное увеличение эффекта, причем величина МЭ коэффициента достигает значения почти 10 В/смЭ, что на три порядка превышает его значение на частоте 10 кГц. На кратных частотах также появляются гармоники второго, третьего и т.д. поряд-

ков. Если бы увеличение эффекта было связано с резонансом в пьезоэлектрике, то это происходило бы на частоте 190 кГц, а если в магнетике, то — на частоте 130 кГц. Следовательно, предсказываемое теорией и наблюдаемое в эксперименте резонансное увеличение МЭ эффекта связано с электромеханическим резонансом образца в целом.

4. Заключение

В композиционных феррит-пьезоэлектрических материалах вследствие механического взаимодействия подсистем возникает магнитоэлектрический эффект. В области электромеханического резонанса величина эффекта на несколько порядков превосходит его низкочастотное значение, что позволяет надеяться на практическое использование этого эффекта. Частота резонанса определяется в первую очередь геометрическими размерами образца, модулями податливости и плотностью материала. Величина эффекта пропорциональна пьезоэлектрическому и пьезомагнитному модулям и обратно пропорциональна модулю упругости и диэлектрической проницаемости материала.

-
1. Bichurin M.I., Petrov V.M., Srinivasan G. // J. Appl. Phys. 2002. V.92. P.7681.
 2. Бичурин М.И., Филиппов Д.А., Петров В.М., Srinivasan G. // Физика электронных материалов: Материалы Междунар. конф. 1-4 октября 2002 г. Калуга, 2002. С. 309.
 3. Filippov D.A., Bichurin M.I., Petrov V.M., Srinivasan G. // Bull. American Phys. Soc. 2003. V.48. P.214.
 4. Wan J.G., Liu J.-M., Chand H.L.W., Choy C.L., Wang G.H., Nan C.W. // J. Appl. Phys. 2003. V.93. P.9916.
 5. Bichurin M.I., Filippov D.A., Petrov V.M. et al. // Phys. Rev. B. 2003. V.68. P.132408.
 6. Филиппов Д.А., Бичурин М.И., Петров В.М. и др. // ПЖТФ. 2004. Т.30. №1. С.15.
 7. Liu Y.X., Wan J.G., Liu J.-M., Nan C.W. // J. Appl. Phys. 2003. V.94. P.5111.
 8. Труэлл Р., Эльбаум Ч., Чик Б. Ультразвуковые методы в физике твердого тела. М.: Мир, 1972. 307 с.