

05; 09

ВЫСОКОЧАСТОТНАЯ МАГНИТНАЯ ПРОНИЦАЕМОСТЬ КОМПОЗИТНЫХ МАТЕРИАЛОВ, СОДЕРЖАЩИХ КАРБОНИЛЬНОЕ ЖЕЛЕЗО

А. С. Антонов, Л. В. Панина, А. К. Сарычев

В диапазоне частот 0.2—18 ГГц измерены магнитные спектры смесей с железом и кобальтовым гексаферритом. В приближении эффективной среды рассчитана магнитная проницаемость рассматриваемых систем. Показано, что в высокочастотной области скин-эффект существенным образом влияет на форму линии магнитных спектров композитных материалов.

Введение

Для получения веществ с определенными электрическими и магнитными свойствами используются композитные материалы, состоящие из различных диэлектрических и проводящих частиц. Интенсивные исследования таких материалов позволили обнаружить ряд особенностей их электрофизических свойств. При определенных составах для композитных систем характерны высокие значения диэлектрической проницаемости ϵ [1], аномальные частотные зависимости $\epsilon(\omega)$ [2]. В ряде работ указывается на возможность аномального поведения магнитной проницаемости электродинамической природы, обусловленной возбуждением токов Фуко в проводящих частицах переменным магнитным полем (например, [3, 4]). Этот вывод был сделан в пренебрежении индуктивным взаимодействием токов, учет которого, как показано в [5], является принципиально важным. В результате мнимая часть магнитной проницаемости композитной системы, в состав которой не входят магнитоупорядоченные вещества, не превышает 0.5.

В настоящей работе исследованы магнитные свойства композитных систем, содержащих магнитные проводящие частицы. Особое внимание уделено изучению влияния электродинамических процессов на формирование частотной зависимости магнитной проницаемости системы. С этой целью измерены магнитные спектры смесей с железом в широком частотном диапазоне 0.2—18 ГГц и проведен расчет эффективной магнитной проницаемости двухкомпонентной системы с учетом скин-эффекта. Сопоставление полученных результатов позволило определить частотную зависимость магнитной проницаемости частиц железа, которая в высокочастотной области существенно отличается от экспериментальных. Это различие связано с проявлением скин-эффекта.

Экспериментальная методика

В качестве объектов исследования использовались материалы, содержащие карбонильное железо (с размером частиц 2—4 мкм) или смесь железа и гексаферрита $\text{Ba}_3\text{Co}_2\text{Fe}_{24}\text{O}_{41}$. Образцы приготавливались методом лакокрасочного напыления (применялся лак КО-08). Эта методика дает возможность последовательно наращивать слои, при этом легко достигается требуемая в эксперименте толщина образцов.

Основным методом измерений магнитной проницаемости $\mu = \mu' + i\mu''$ являлся метод стоячей волны [6], который позволяет определять и диэлектрическую проницаемость $\epsilon = \epsilon' + i\epsilon''$. Знание ϵ было необходимым для выбора оптимальной с точки зрения уменьшения погрешности толщины образца.

В двух режимах (образец устанавливается вблизи пучности электрического или магнитного поля) измерялись фаза и коэффициент стоячей волны (КСВН). С помощью этих величин определялись комплексные параметры ϵ и μ . Решение соответствующей электродинамической задачи неоднозначно. В тех случаях, когда выбор корней уравнений физически не очевиден, один из параметров ϵ или μ определялся резонаторным методом [7], являвшимся, таким образом, вспомогательным.

В диапазоне частот 0.2—10 ГГц измерения проводились в коаксиальных волноводах, в диапазоне 10—18 ГГц — в прямоугольных. Использовалось стандартное оборудование, включающее клистронные генераторы типа Г4, измерительные линии типа Р1 и селективный усилитель У2-8.

В числе исследуемых веществ были материалы с достаточно большими концентрациями проводящего компонента. Для таких систем характерны высокие значения диэлектрической проницаемости. Как известно, в этом случае одна из основных погрешностей связана с наличием зазоров между образцом и стенками волновода [6]. Для уменьшения указанной погрешности применялись специальные меры. Например, для коаксиального тракта была сконструирована измерительная ячейка. В ней зазоры устранялись за счет незначительных с точки зрения увеличения собственного КСВН изменений внешнего и внутреннего диаметров коаксиала.

В качестве источника электромагнитных волн используют, как правило, клистронные генераторы, обладающие высокой стабильностью частоты. Однако в некоторых случаях оказывается предпочтительным применение панорамного измерителя КСВН (типа Р2) с измерительной линией Р1. Преимущества панорамных измерений связаны в первую очередь с возможностью получения экспресс-информации о поглощающих свойствах образцов в частотном интервале. Кроме того, в процессе измерения появляется возможность контроля качества установки и настройки применяемых волноводных элементов (поршня, измерительной линии и т. д.).

Существенный недостаток панорамных измерителей, в которых используется диод Гана, заключается во временной нестабильности рабочей частоты f ($\Delta f \sim \sim 10^{-3} f$). Однако фазу волны можно определить с достаточной точностью, если производить измерения в режиме «качания» частоты. Резонансный характер частотной зависимости чувствительности зонда измерительной линии приводит к характерным особенностям формы сигнала. При этом легко установить критерий определения положения минимума стоячей волны резонансной частоты f . В этом случае ошибка в определении фазы составляет $\Delta f \approx 2 \cdot 10^{-3}$ рад.

В области низких частот ($f \leq 1.25$ ГГц) измерения проводились по методу короткого замыкания. Для этих частот образец толщиной до 1 мм является оптически тонким, поэтому оказалось достаточным измерить фазу и КСВН при установке образца вблизи пучности магнитного поля волны. Эти измерения проводились с помощью измерителя комплексных коэффициентов передачи Р4-37 с коаксиальным трактом 10/4.3 мм.

Магнитные спектры

Прежде всего приведем экспериментальные результаты относительно материалов, содержащих в качестве магнитной фазы железо. Частотные зависимости магнитной проницаемости $\mu(\omega)$ при различных концентрациях железа p представлены на рис. 1. Форма линий магнитных спектров практически не зависит от концентрации железа. Начальный участок спектра характеризуется резонансным поведением магнитной проницаемости с максимумом μ'' на частоте $f = 1.2$ ГГц и соответствующим резким спадом μ' . Особенностью приведенных магнитных спектров является постоянство значений μ'' и медленное изменение величин μ' в широком частотном диапазоне 4—12 ГГц.

Так как форма линий магнитных спектров не чувствительна к концентрации железа, то «управление» дисперсией магнитной проницаемости исследуемых композитных материалов возможно путем добавления другой магнитной фазы. С этой целью использовались смеси с ферритом $\text{Ba}_3\text{Co}_2\text{Fe}_{24}\text{O}_{41}$, ферромагнитный резонанс (ФМР) в котором наблюдается на частоте $f \approx 1$ ГГц. На рис. 2 представлены частотные зависимости магнитной проницаемости $\mu(\omega)$ композитов с раз-

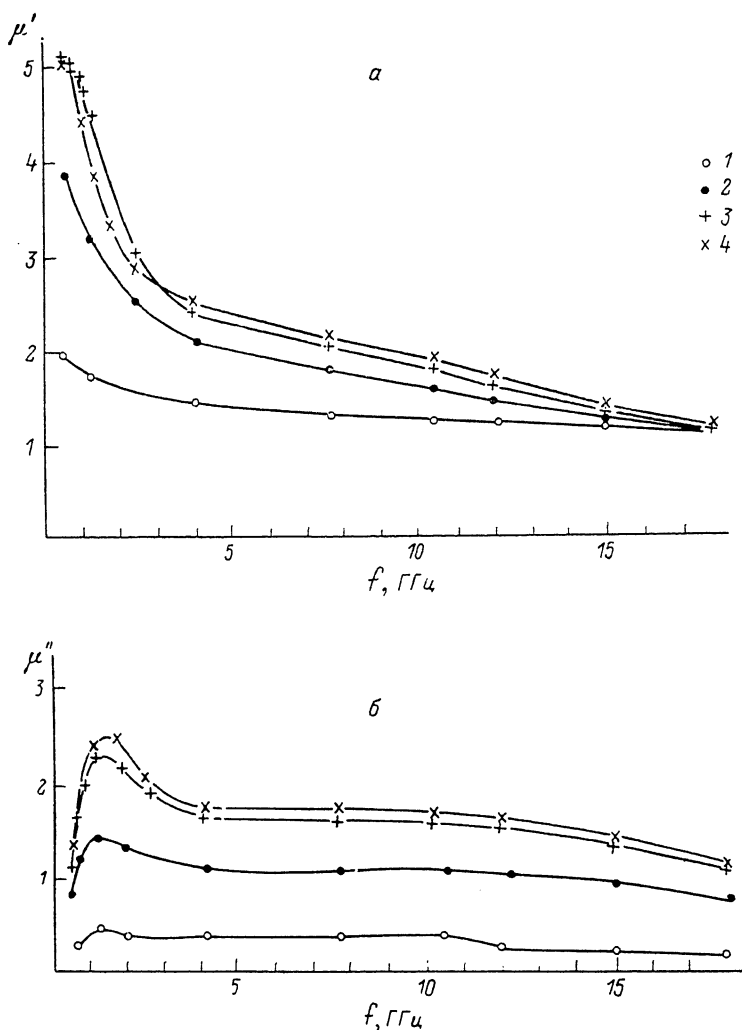


Рис. 1. Частотные зависимости магнитной проницаемости композитов $\mu'(\omega)$ (а), $\mu''(\omega)$ (б) при различных концентрациях железа p .

1 — 0.188, 2 — 0.38, 3 — 0.46, 4 — 0.51.

личным соотношением концентраций железа и феррита. В диапазоне частот 4—8 ГГц эти зависимости близки к линейным, причем линейный коэффициент частоты возрастает при увеличении доли ферритов в смеси.

Широкие линии магнитных спектров обусловлены в первую очередь сложной магнитной структурой частиц железа. При этом естественный ФМР характеризуется полосой частот от $\omega_1 = \gamma H_a$ до $\omega_2 = \gamma(H_a + 4\pi M_s)$ [8]. Для железа поле анизотропии $H_a \approx 500$ Э, намагниченность насыщения $M_s \approx 1.7 \cdot 10^3$ Гс, что дает для граничных частот следующие значения: $f_1 = \omega_1/2\pi = 1.6$ ГГц, $f_2 \approx 70$ ГГц. К этой области спектра примыкает область, обусловленная колебаниями доменных границ (на рис. 1, б положение максимума μ'' вблизи частоты f_1). Таким образом, магнитные резонансные процессы в железе обеспечивают дисперсию μ вплоть до частот ~ 70 ГГц.

На высокочастотные магнитные свойства исследуемых систем оказывают влияние также электродинамические процессы. Проводящие частицы приобретают переменный магнитный момент за счет возбуждения токов Фуко, что дает вклад в полную магнитную проницаемость системы. Электродинамические про-

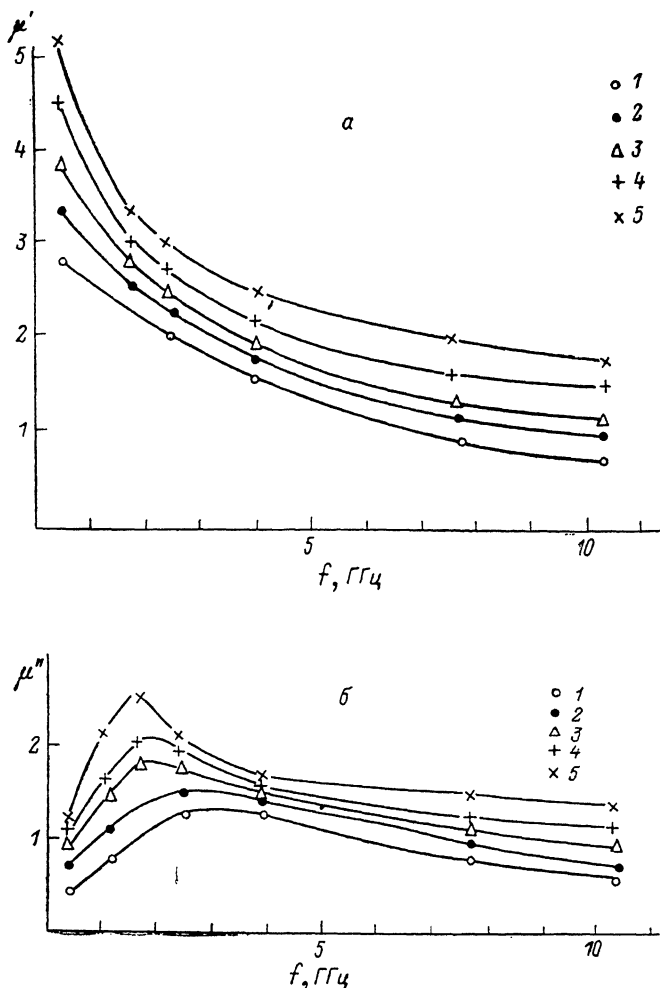


Рис. 2. Зависимости $\mu'(\omega)$ (а) и $\mu''(\omega)$ (б) смесей с ферритом при различных соотношениях концентраций железа p и феррита p_1 ($px + p_1(1-x) = 0.45$).

x : 1 — 0, 2 — 0.25, 3 — 0.5, 4 — 0.75, 5 — 1.

цессы становятся эффективными, когда величина скин-слоя δ сравнивается с размерами проводящих частиц. Для железа $\delta_0 = \delta \sqrt{\mu} \approx 5$ мкм при $f = 1$ ГГц, так что в гигагерцовой области существенно влияние скин-эффекта на частотную зависимость $\mu(\omega)$. Как показывают расчеты, дисперсия магнитной проницаемости за счет резонансных процессов может компенсироваться эффектами выталкивания поля из проводящих частиц. Это обстоятельство является причиной постоянства значений μ'' в широком интервале полосы частот ФМР.

Расчет эффективной магнитной проницаемости композитных материалов с учетом скин-эффекта

Одним из наиболее разработанных методов расчета электрофизических параметров неупорядоченных систем является приближение эффективной среды [9, 10]. Традиционное построение этого метода основывается на введении среднего поля, по отношению к которому композитная система является одно-

родной и может характеризоваться эффективными магнитной μ_{eff} и диэлектрической ϵ_{eff} проницаемостями

$$\langle \mathbf{B} \rangle = \mu_{\text{eff}} \langle \mathbf{H} \rangle, \quad \langle \mathbf{D} \rangle = \epsilon_{\text{eff}} \langle \mathbf{E} \rangle,$$

где символ $\langle \dots \rangle$ означает усреднение по объему V , большому по сравнению с масштабом неоднородностей $l: V \gg l^3$. При этом считается, что каждая частица композита погружена в среду с эффективными параметрами μ_{eff} , ϵ_{eff} и испытывает воздействие полей $\langle \mathbf{H} \rangle$, $\langle \mathbf{E} \rangle$. В рассматриваемом подходе проницаемости μ_{eff} , ϵ_{eff} определяются независимо. В дальнейшем нас будет интересовать определение только параметра μ_{eff} . Вычисление же значения ϵ_{eff} может быть проведено аналогичным образом.

Уравнение для определения параметра μ_{eff} получается в результате усреднения либо напряженности магнитного поля \mathbf{H} , либо индукции \mathbf{B}

$$\langle \mathbf{H} \rangle = \sum_i p_i \mathbf{H}_i(\mu_i, \mu_{\text{eff}}, \langle \mathbf{H} \rangle), \quad (1)$$

$$\langle \mathbf{B} \rangle = \sum_i p_i \mathbf{B}_i(\mu_i, \mu_{\text{eff}}, \langle \mathbf{B} \rangle), \quad (2)$$

где μ_i — локальная магнитная проницаемость.

Естественно, что значение μ_{eff} не должно зависеть от типа усреднения. Это справедливо, если электромагнитное поле на масштабе усреднения можно считать потенциальным, т. е. $l \ll \lambda_0 / \sqrt{\epsilon_i \mu_i}$. Это условие заведомо нарушается в случае сильного скин-эффекта в проводящих частицах $\delta \ll a$, и уравнения (1), (2) дают различные результаты. Таким образом, общепринятый алгоритм расчета эффективных электромагнитных параметров композитных материалов при наличии скинирования не применим.

При учете скин-эффекта нельзя считать, что на отдельную частицу в эффективной среде действует поле $\langle \mathbf{H} \rangle$. Дело в том, что в эффективную магнитную проницаемость дают вклад магнитные моменты \mathbf{M}_j проводящих частиц, обусловленные токами Фуко. Чтобы не учитывать это дважды, необходимо перенормировать поле $\langle \mathbf{H} \rangle$

$$\tilde{\mathbf{H}} = \langle \mathbf{H} \rangle - 4\pi \langle \mathbf{M}_j \rangle, \quad \langle \mathbf{B} \rangle = \langle \mu \mathbf{H} \rangle = \mu_{\text{eff}} \tilde{\mathbf{H}}.$$

При такой модификации метода эффективной среды параметр μ_{eff} определяется однозначным образом.

Перейдем к определению высокочастотной магнитной проницаемости двухкомпонентной неупорядоченной смеси, содержащей проводящие и диэлектрические частицы с магнитными проницаемостями μ_M и μ_g соответственно. Уравнение эффективной среды для такой системы может быть записано в виде

$$\langle \mathbf{B} \rangle = p \mathbf{B}_M + (1 - p) \mathbf{B}_g, \\ \mathbf{B}_M = \frac{1}{v} \int \mathbf{B}_M(\mathbf{r}) d\mathbf{v}. \quad (3)$$

Здесь p — концентрация проводящего компонента; $\mathbf{B}_M(\mathbf{r})$, \mathbf{B}_g — индукции магнитного поля в проводящей и диэлектрической частицах соответственно; v — объем проводящей частицы.

Поле в диэлектрической частице предполагается однородным. Для шаровых вclusions для \mathbf{B}_g и $\mathbf{B}_M(\mathbf{r})$ справедливы выражения [11]

$$\mathbf{B}_g = \langle \mathbf{B} \rangle \frac{3\mu_g}{2\mu_{\text{eff}} + \mu_g}, \quad (4)$$

$$\mathbf{B}_M(\mathbf{r}) = \beta [F_1(kr) \langle \mathbf{B} \rangle - (F_1(kr) - F_2(kr)) (\mathbf{n} \langle \mathbf{B} \rangle)],$$

$$k = (1 + i)/\delta, \quad \delta = \delta_0 \sqrt{\mu_M}, \quad \delta_0 = c/\sqrt{2\pi\sigma\omega},$$

$$\beta = 3 \left(\frac{a}{r} \right)^3 \mu_M / (2\mu_{\text{eff}} F_1(ka) + \mu_M F_2(ka)). \quad (5)$$

Здесь n — нормаль к поверхности частицы, a — характерный размер проводящих частиц.

Усреднив выражение (5) по объему проводящей частицы v , получим для индукции B_M формулу, аналогичную (4), с заменой параметра μ_g на величину $\tilde{\mu} = \mu_M F$, $F = F_1(ka)/F_2(ka)$, которая может рассматриваться как «кажущаяся» проницаемость частицы. Используя значения B_M , B_g , из уравнения (3) определим параметр μ_{eff}

$$\mu_{\text{eff}} = \frac{1}{4} \left\{ \mu_g (2 - 3p) - \tilde{\mu} (1 - 3p) + \sqrt{[\mu_g (2 - 3p) - \tilde{\mu} (1 - 3p)]^2 + 8\mu_M \mu_g} \right\}_*$$

При $p \ll 1$ параметр μ_{eff} определяется выражением

$$\mu_{\text{eff}} = \mu_g \left(1 - \frac{3p(\mu_g - \tilde{\mu})}{2\mu_g + \tilde{\mu}} \right),$$

которое в этом приближении совпадает с формулой, полученной в работе [12] для магнитной проницаемости диэлектрической среды с вкрапленными проводящими частицами.

В пределе малых $x = ka$ ($\delta \gg a$) осуществляется переход к «статическому» случаю

$$F(x) = 1 + x^2/10 + \dots, \quad \tilde{\mu} \approx \mu_M,$$

когда поле полностью проникает внутрь проводящей частицы. В обратном пределе $x \rightarrow \infty$ ($a \gg \delta$)

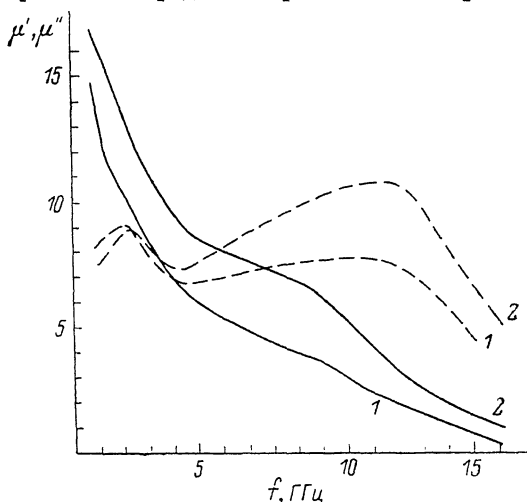


Рис. 3. Частотные зависимости магнитной проницаемости частиц железа, полученные из численного решения уравнения (6).

Зависимости μ' (ω) и μ'' (ω) обозначены соответственно сплошными и пунктирными линиями.

$$F(x) = 2i/x + \dots, \quad \tilde{\mu} \sim 1/x,$$

$$\mu_{\text{eff}} = \mu_g \left(1 - \frac{3}{2} p \right) + \frac{9p(1-p)\tilde{\mu}}{2-3p}, \quad p < 1/3,$$

что соответствует выталкиванию поля из системы.

Таким образом, в области $\delta \leq a$ на поведение эффективной магнитной проницаемости существенным образом влияют электродинамические процессы, приводящие к тому, что роль магнитной проницаемости проводящей частицы играет параметр $\tilde{\mu}$, довольно сложным образом зависящий от частоты

$$\tilde{\mu}(\omega) = \mu_M(\omega) F(\mu_M(\omega), \omega).$$

Введенная эффективная магнитная проницаемость характеризует свойства рассматриваемых веществ «в целом», поэтому именно она соответствует экспериментально определяемым параметрам.

Исследуем случай $\mu_g = 1$ (экспериментальные данные рис. 1). По известным значениям μ_{eff} магнитная проницаемость μ_M находится из решения трансцендентного уравнения

$$\tilde{\mu} = \frac{2\mu_{\text{eff}}^2 + (3p-2)\mu_{\text{eff}}}{(3p-1)\mu_{\text{eff}} + 1}. \quad (6)$$

Значения «кажущейся» магнитной проницаемости частиц железа, определяемые соотношением (6) при различных концентрациях (и соответственно μ_{eff}), различаются незначительно, что подтверждает правомерность используемых приближений. Определение истинной магнитной проницаемости железа по ве-

личине μ существенно зависит от размеров частиц железа. Поскольку всегда имеется некоторое распределение частиц по размерам, то результат сопоставления экспериментальных и расчетных данных можно оценивать только качественно.

На рис. 3 приведены частотные зависимости $\mu_{Fe}(\omega)$ магнитной проницаемости железа при $a=1$ (кривые 1) и 1.5 мкм (кривые 2) ($\sigma_{Fe}=10^{17}$ с⁻¹, 1.5 мкм соответствует среднему размеру). По сравнению со спектром смеси зависимости $\mu_{Fe}(\omega)$ характеризуются дополнительной областью резонансного типа с максимумом μ_{Fe}'' на частоте $f \approx 11$ ГГц. Таким образом, в данном случае влияние скин-эффекта «маскирует» резонансное поведение магнитной проницаемости железа.

В заключение отметим, что использование металлических ферромагнетиков в составе композитного материала представляется перспективным для создания искусственных диэлектриков с высокими значениями магнитной проницаемости в высокочастотном диапазоне. Интегральные характеристики магнитной проницаемости пропорциональны намагниченности насыщения M_s , величина которой для многих переходных и редкоземельных металлов более чем на порядок выше значения M_s ферритов. При этом размеры проводящих частиц не должны существенно превышать величину скин-слоя.

Авторы выражают благодарность А. Н. Лагарькову и Б. П. Перегуду за плодотворное обсуждение работы.

Литература

- [1] Efros A. L., Shklovskii B. I. // Phys. Stat. Sol. (b). 1976. Vol. 76. N 2. P. 475—485.
- [2] Виноградов А. П., Каримов А. К., Кутавин А. Т. и др. // ДАН СССР. 1984. Т. 275. № 3. С. 590—594.
- [3] Stephen M. J. // Phys. Lett. 1981. Vol. 87A. N 1, 2. P. 67—68.
- [4] Shin W. Y., Ebner C., Stroud D. // Phys. Rev. B. 1984. Vol. 30. N 1. P. 134—144.
- [5] Лагарьков А. Н., Панина Л. В., Сарычев А. К. // ЖЭТФ. 1987. Т. 93. Вып. 1. С. 215—221.
- [6] Матер. конф. по точным электрическим измерениям. М.: ИЛ, 1959. 422 с.
- [7] Бранд А. А. Исследования диэлектриков на сверхвысоких частотах. М., 1963. 404 с.
- [8] Гуревич А. Г. Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках. М.: Наука, 1973. 591 с.
- [9] Дубров В. Е., Левинштейн М. Е., Шур М. С. // ЖЭТФ. 1976. Т. 70. Вып. 5. С. 2014—2024.
- [10] Saryshev A. K., Vinogradov A. P. // Phys. Stat. Sol. (b). 1983. Vol. 117. P. K113—K120.
- [11] Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М. Электродинамика сплошных сред. М.: Наука, 1982. 620 с.
- [12] Левин Л. Современная теория волноводов. М.: ИЛ, 1954. 301 с.

Институт высоких температур
АН СССР
Москва

Поступило в Редакцию
9 января 1988 г.