

01;05;08

## **Резонансное усиление пьезоэлектрических, диэлектрических и магнитоэлектрических констант неоднородных мультиферроиков в переменном электрическом поле**

© Г.С. Радченко

Научно-исследовательский институт физики  
Южного федерального университета, Ростов-на-Дону  
E-mail: mailto:grig1980@mail.ru

Поступило в Редакцию 27 марта 2008 г.

Исследуется резонансный пьезоэлектрический эффект в многослойном керамическом композите. Получены выражения для эффективной диэлектрической проницаемости и пьезоэлектрического коэффициента для слоистого композита. Показано, что в области частот пьезоэлектрического резонанса эффективный отклик композита на внешнее воздействие может значительно усиливаться. Произведен учет пространственных колебаний электрического и магнитного поля при описании композита „ферромагнетик–пьезоэлектрик“. Изучаются трансверсальный пьезомодуль, магнитоэлектрическая восприимчивость и диэлектрическая проницаемость слоистых мультиферроиков.

PACS: 75.80+q, 77.65.-j

Гетерогенные мультиферроики, обладающие магнитоэлектрическим эффектом, представляют особый интерес для применений в современной технике [1–7]. Это связано с возможностью достижения в них резонансного усиления эффективных магнитоэлектрических констант [1–7]. Например, в работе [5] предлагается инновационная технология по созданию магнитной читающей головки на основе магнитоэлектрического эффекта. В обзоре [4] обсуждается применение магнитоэлектрического эффекта для различных технологических применений (сенсоров, преобразователей, линий задержки и т.д.).

Самостоятельный интерес представляет связанный с акустическими колебаниями пьезоэлектрический эффект. Он используется в преобразователях [8] и гетерогенных композитных структурах [9–11], которые

могут быть использованы в качестве последних. Такие материалы привлекают в последнее время повышенное внимание в связи с применением их в качестве ультразвуковых преобразователей [8], гидрофонов и т.д. Наиболее распространенным материалом для применения в преобразователях являются слоистые композитные системы [9–11]. Их несложно получить экспериментально, отклик таких систем легко модифицируется путем изменения содержания компонент. Это стимулирует работу над созданием теоретических моделей, способных адекватно прогнозировать электромеханические свойства гетерогенных образцов в области пьезорезонанса. Неразрывная связь пьезоэлектрического и магнитоэлектрического эффектов в композитных материалах стимулировала настоящее исследование.

В качестве модели рассмотрим слоистый пьезокомпозит. Он представляет собой тонкую пластинку длиной  $L$ , ширина и толщина компоненты много меньше ее длины [6]. Пластинка состоит из многих слоев двух разных пьезоэлектриков, изготовленных по керамической технологии. Слои размером не более  $10\text{--}50\ \mu\text{m}$ , что обеспечивает условие выполнения длинноволнового приближения. Образец поляризован по нормали к областям контактов (ось  $Z$ ).

Четыре уравнения для тензора деформаций (1.1) и для вектора электрической индукции (1.2) компонент имеют вид, записанный ниже:

$${}^{(1,2)}S_1(x) = {}^{(1,2)}s_{11} {}^{(1,2)}T_1(x) + {}^{(1,2)}d_{31} {}^{(1,2)}E_3(x), \quad (1.1)$$

$${}^{(1,2)}D_3(x) = {}^{(1,2)}d_{31} {}^{(1,2)}T_1(x) + {}^{(1,2)}\varepsilon_{33} {}^{(1,2)}E_3(x). \quad (1.2)$$

Здесь индексы в скобках означают номера компонент и уравнений,  ${}^{(1,2)}s_{11}$  — упругие податливости компонентов,  ${}^{(1,2)}d_{31}$  — трансверсальные пьезомодули компонентов,  ${}^{(1,2)}E_3(x)$  — электрические поля в компонентах,  ${}^{(1,2)}T_1(x)$  — механические напряжения,  ${}^{(1,2)}\varepsilon_{33}$  — диэлектрические проницаемости в  $z$ -направлении. Электрические поля в компонентах предполагаются зависимыми от координаты  $x$ .

Используя граничные условия  ${}^1D_3(x) = {}^2D_3(x)$  и  ${}^1S_1(x) = {}^2S_2(x)$  и проводя стандартные операции усреднения физических свойств, получаем выражение для вектора деформации  $u(x)$ <sup>1</sup> и волнового числа  $k(2)$ :

$$k = \omega \sqrt{\rho \frac{({}^2d_{31}^2 \nu {}^1s_{11} + {}^1d_{31}^2 (1 - \nu)^2 s_{11}) - \varepsilon {}^1s_{11} {}^2s_{11}}{d^2 - \varepsilon s}}}. \quad (2)$$

<sup>1</sup> Выражение для  $u(x)$  полностью характеризует продольную деформацию образца, громоздко и здесь не приводится.

Здесь  $\omega$  — круговая частота приложенного электрического поля,  $\nu$  — объемная концентрация первой компоненты,  $\varepsilon = \nu^2 \varepsilon_{33} + (1 - \nu) \varepsilon_{33}$ ,  $s = \nu^2 s_{11} + (1 - \nu) s_{11}$ ,  $\rho = \nu \rho + (1 - \nu) \rho$  ( $\rho$  — эффективная плотность композита) и  $d = \nu^2 d_{31} + (1 - \nu) d_{31}$ .

Константы  $A$  и  $B$  находим из граничных условий свободного образца [6]. Эффективная диэлектрическая проницаемость определяется из следующего выражения:

$$\varepsilon_{33}^* = \frac{\partial \left( \frac{1}{L} \int_{-\frac{L}{2}}^{\frac{L}{2}} (\nu^1 D_3(x) + (1 - \nu)^2 D_3(x)) dx \right)}{\partial E^*} = \frac{\partial D_3^*}{\partial E^*}.$$

Здесь  $E^*$  — приложенное электрическое поле,  $D^*$  — средняя (эффективная) электрическая индукция. Формулы для найденных эффективных констант могут быть записаны в виде (3).

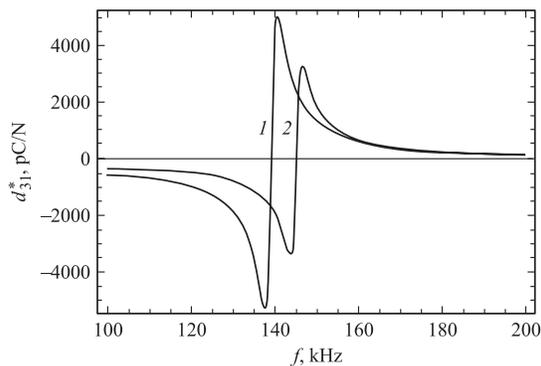
$$\varepsilon_{33}^* = \frac{\left( -d_1 d_2 + \frac{2({}^2 d_{31}(1 - \nu)d_1 + {}^1 d_{31}\nu d_2)^2}{kL({}^2 d_{31} + (1 - \nu){}^1 d_{31})^2 - \varepsilon s} \operatorname{tg} \left[ \frac{kL}{2} \right] \right)}{\nu^1 s_{11} d_2 + (1 - \nu)^2 s_{11} d_1},$$

$$d_{31}^* = \frac{2({}^2 d_{31}(1 - \nu)d_1 + {}^1 d_{31}\nu d_2) \operatorname{tg} \left[ \frac{kL}{2} \right]}{kL(d^2 - \varepsilon s)}. \quad (3)$$

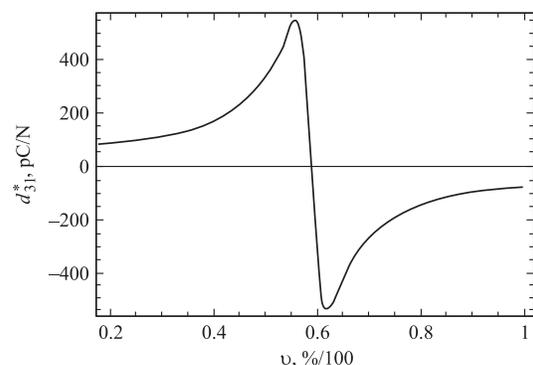
Здесь  $k$  определяется формулой (2) и  $d_1 = ({}^1 d_{31})^2 - {}^1 \varepsilon_{33} s_{11}$ ,  $d_2 = ({}^1 d_{31})^2 - {}^2 \varepsilon_{33} s_{11}$ .

Акустическое затухание учитывалось путем введения в рассмотрение комплексной круговой частоты  $\omega = 2\pi f + i\chi$ . Коэффициент затухания  $\chi$  предполагался равным 10000 rad/s, что характерно для рассматриваемых керамик.

На рис. 1 изображена частотная зависимость эффективного пьезомодуля композитной системы. На рис. 2 изображена концентрационная зависимость  $d_{31}^*$ . Видно, что два резонансных усиления эффективных пьезомодулей можно получить не только изменяя частоту приложенного поля, но и варьируя объемные концентрации компонент и параметры слоев. При некоторых частотах эффективная диэлектрическая проницаемость отрицательна. По результатам расчетов можно сделать вывод, что добавление в композит менее пьезоактивной компоненты повышает частоту резонанса, но пьезомодули по величине становятся меньше.



**Рис. 1.** Зависимости действительной части эффективного пьезомодуля  $d_{31}^*$  от частоты приложенного электрического поля для системы двух пьезокерамик: 1 — ПКР-73 (ПКР — пьезокерамика ростовская), 2 — PZT (цирконат–титанат свинца). Параметры модели: 1 —  $\nu_{\text{PZT}} = 0.2$ ; 2 —  $\nu_{\text{PZT}} = 0.95$ ;  ${}^1\varepsilon_{33}/\varepsilon_0 = 6000$ ;  ${}^2\varepsilon_{33}/\varepsilon_0 = 1750$ ;  ${}^1s_{11} = 17.9 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}$ ;  ${}^2s_{11} = 15.3 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}$ ;  ${}^1d_{31} = -380 \text{ pC/N}$ ;  ${}^2d_{31} = -175 \text{ pC/N}$ ;  $\varepsilon_0$  — диэлектрическая проницаемость вакуума. Длина образца  $L = 10 \text{ mm}$ ;  $\chi = 10\,000 \text{ rad/s}$ .



**Рис. 2.** Зависимость действительной части эффективного пьезомодуля  $d_{31}^*$  от концентрации PZT (в сотых долях процента объемного содержания компоненты PZT) для композитной системы двух пьезокерамик ПКР-73+PZT. Частота приложенного поля равна 1 МГц. Параметры модели:  ${}^1\varepsilon_{33}/\varepsilon_0 = 6000$ ;  ${}^2\varepsilon_{33}/\varepsilon_0 = 1750$ ;  ${}^1s_{11} = 17.9 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}$ ;  ${}^2s_{11} = 15.3 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}$ ;  ${}^1d_{31} = -380 \text{ pC/N}$ ;  ${}^2d_{31} = -175 \text{ pC/N}$ . Длина образца  $L = 10 \text{ mm}$ ;  $\chi = 10\,000 \text{ rad/s}$ .

Аналогично рассмотрим и композит „феррит–пьезоэлектрик“. В работах [1–6] не учитывалось влияние на уравнения движения электрического и магнитного полей. Электрическая и магнитная связь между компонентами принималась во внимание только на низких частотах, а при колебаниях не рассматривалась. Здесь при расчетах, в отличие, например, от [6], предполагалось, что электрические и магнитные поля вместе с механическими полями зависят от координаты  $x$  и входят в уравнение движения.

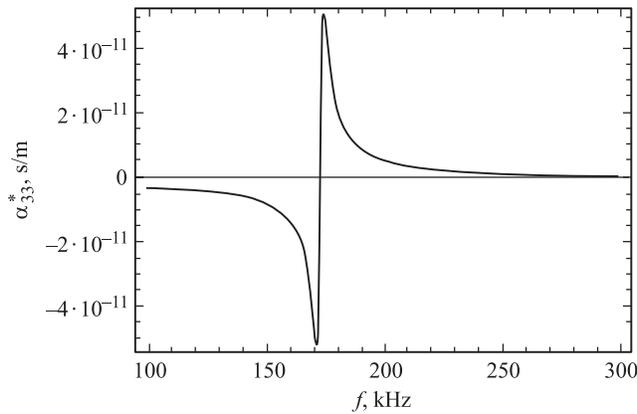
Все исходные уравнения для модели запишутся в виде (4), представленном ниже:

$$\begin{aligned} D_3^m(x) &= \varepsilon_{33}^m E_3^m(x), & D_3^p(x) &= d_{31}^p T_1^p(x) + \varepsilon_{33}^p E_3^p(x), \\ S_1^m(x) &= s_{11}^m T_1^m(x) + q_{31}^m H_3^m(x), & S_1^p(x) &= s_{11}^p T_1^p(x) + d_{31}^p E_3^p(x), \\ B_3^m(x) &= q_{31}^m T_1^m(x) + \mu_{33}^m H_3^m(x), & B_3^p(x) &= \mu_{33}^p H_3^p(x), \\ \nu E_3^p(x) + (1 - \nu) E_3^m(x) &= E^*, & \nu H_3^p(x) + (1 - \nu) H_3^m(x) &= 0. \end{aligned} \quad (4)$$

Здесь  $D_3^m$  и  $D_3^p$  — вектора электрической индукции для магнетика и пьезоэлектрика соответственно,  $H_3^m$  и  $H_3^p$  — вектора магнитного поля,  $S_1^m$  и  $S_1^p$  — компоненты тензоров деформаций,  $B_3^m$  и  $B_3^p$  — компоненты вектора магнитной индукции,  $\nu$  — концентрация пьезоэлектрической фазы,  $E_3^m$  и  $E_3^p$  — компоненты вектора электрического поля,  $s_{11}^{(m,p)}$  — упругие податливости компонент,  $d_{31}^p$  — трансверсальный пьезомодуль пьезофазы,  $\varepsilon_{33}^{(m,p)}$  — диэлектрические проницаемости в  $z$ -направлении,  $q_{31}^m$  — пьезомагнитный коэффициент магнетика,  $\mu_{33}^{(m,p)}$  — магнитная проницаемость компонент. Далее находим формулы (5) для эффективных констант и волнового вектора:

$$\begin{aligned} d_{31}^* &= \frac{(2d_{31}^p \varepsilon_{33}^m \nu (q_{31}^m)^2 - \mu s_{11}^m) \operatorname{tg}\left(\frac{k_m L}{2}\right)}{k_m L ((d_{31}^p)^2 (1 - \nu)^2 \mu + \varepsilon (\nu (q_{31}^m)^2 - \mu s_{11}^m)) - (1 - \nu) \nu s_{11}^p}, \\ \alpha_{33}^* &= -\frac{2d_{31}^p \varepsilon_{33}^m \nu (1 - \nu) \mu_{33}^p q_{31}^m \operatorname{tg}\left(\frac{k_m L}{2}\right)}{k_m L ((d_{31}^p)^2 (1 - \nu)^2 \mu + \varepsilon (\nu (q_{31}^m)^2 - \mu s_{11}^m)) - (1 - \nu) \mu s_{11}^p}, \\ k_m &= \omega \sqrt{\frac{\nu \rho^p + (1 - \nu) \rho^m}{s_{11}^p \varepsilon - (1 - \nu) (d_{31}^p)^2 + \frac{\nu \mu}{s_{11}^m \mu - \nu (q_{31}^m)^2}}}. \end{aligned} \quad (5)$$

Здесь  $d_p = (d_{31}^p)^2 - \varepsilon_{33}^p s_{11}^p$ ,  $\varepsilon = \nu \varepsilon_{33}^p + (1 - \nu) \varepsilon_{33}^m$ ,  $s = \nu s_{11}^p + (1 - \nu) s_{11}^m$ ,  $\mu = \nu \mu_{33}^p + (1 - \nu) \mu_{33}^m$ .



**Рис. 3.** Зависимость действительной части эффективной магнитоэлектрической восприимчивости  $\alpha_{33}^*$  от частоты приложенного электрического поля системы пьезоэлектрик–ферромагнетик: 1 — ПКР-73, 2 — NFO (никелевая феррошпинель). Параметры модели:  $\nu_m = 0.355$ ,  $\epsilon_{33}^p/\epsilon_0 = 6000$ ,  $\epsilon_{33}^m/\epsilon_0 = 10$ ,  $s_{11}^p = 17.9 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}$ ,  $s_{11}^m = 6.5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}$ ,  $d_{31}^p = -380 \text{ pC/N}$ ,  $q_{31}^m = 125 \text{ m/A}$ ,  $\mu_{33}^m/\mu_0 = 3$ . Длина образца  $L = 10 \text{ mm}$ ;  $\chi = 10\,000 \text{ rad/s}$ .

Частотная зависимость магнитоэлектрической восприимчивости показана на рис. 3.

Результаты расчетов для мультиферроиков показывают согласие с теорией [6] и экспериментом [6] на низких частотах. На высоких частотах, в области первого пьезорезонанса, наблюдаются небольшие (1–2%) количественные различия из-за учета в настоящей теории влияния электрического и магнитного зондирующих полей. С ростом частоты внешнего воздействия зондирующие поля начинают сильно осциллировать с координатой, что приводит к сильному различию с результатами [4,6] в области второго и более высоких резонансов.

Автор благодарен профессору В.П. Сахненко за постоянный интерес к работе.

Работа выполнена при поддержке гранта Южного федерального университета № 05/6-180.

## Список литературы

- [1] *Bichurin M.I., Filippov D.A., Petrov V.M.* et al. // *Phys. Rev. B.* 2003. V. 68. P. 132408.
- [2] *Bichurin M.I., Petrov V.M., Kiliba Y.V.* // *Phys. Rev. B.* 2002. V. 66. P. 134404.
- [3] *Bichurin M.I., Petrov V.M., Ryabkov O.V.* et al. // *Phys. Rev. B.* 2005. V. 72. P. 060408.
- [4] *Nan C.-W., Bichurin M.I., Dong S.* et al. // *J. of Appl. Phys.* 2008. V. 103. P. 031101.
- [5] *Vopsaroiu M., Blackburn J., Cain M.* // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2007. V. 40. P. 5027.
- [6] *Филиппов Д.А., Бичурин М.И., Петров В.М.* и др. // *Письма в ЖТФ.* 2004. Т. 30. С. 15.
- [7] *Zhai J., Jefang L., Bichurin M.I.* et al. // *J. of Appl. Phys.* 2007. V. 101. P. 014102.
- [8] *Островский И.В., Надточий А.Б., Коротченко О.А.* и др. // *ЖТФ.* 2003. Т. 73. С. 97.
- [9] *Monsivais G., Otero J.A., Calas H.* // *Phys. Rev. B.* 2005. V. 71. P. 064101.
- [10] *Monsivais G., Rodrigues-Ramos R., Esquivel-Sirvent R.* et al. // *Phys. Rev. B.* 2003. V. 68. P. 174109.
- [11] *Blackburn J.F., Cain M.* // *J. Phys. D: Appl. Phys.* 2007. V. 40. P. 227.