

01;05

## **Теория магнитоэлектрического эффекта в гибридных феррит-пьезоэлектрических композиционных материалах**

© Д.А. Филиппов

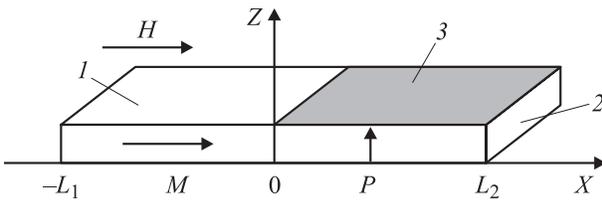
Новгородский государственный университет, Великий Новгород

E-mail: fdma@novsu.ac.ru

*Поступило в Редакцию 3 ноября 2003 г.*

Представлена теория магнитоэлектрического эффекта в гибридных композиционных материалах на основе феррит-пьезоэлектриков. Используя материальные уравнения и уравнения движения, получено выражение для частотной зависимости магнитоэлектрического коэффициента через параметры, характеризующие ферритовую и пьезоэлектрическую фазы. Показано, что на частоте электромеханического резонанса всего образца наблюдается резкое увеличение магнитоэлектрического коэффициента. Результаты расчета для композита на основе *D*-терфенола — цирконата титаната свинца удовлетворительно согласуются с экспериментальными значениями.

Многослойные композиционные магнитоэлектрические материалы представляют собой чередующиеся слои магнитоэлектрической и пьезоэлектрической компонент. Толщина слоев в таких материалах, как правило, много меньше характерных масштабов изменения внешних воздействий, поэтому с макроскопической точки зрения такие материалы можно характеризовать некоторыми эффективными параметрами [1]. Наличие магнитоэлектрического эффекта (МЭ) в композиционных материалах обусловлено механическим взаимодействием ферритовой и пьезоэлектрической подсистем. В магнитном поле вследствие магнитоэлектрических 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. Эта теория применима тогда, когда материал можно считать однородной средой, т. е. толщина слоев



**Рис. 1.** Схематическое изображение гибридной структуры. Стрелки на рисунке указывают направления поляризации, намагниченности и переменного магнитного поля соответственно. 1 — магнетик, 2 — пьезоэлектрик, 3 — электрод.

в многослойных или размер зерен в объемных композитах много меньше длины звуковой волны. В [4] приведены результаты измерения частотной зависимости магнитоэлектрического коэффициента гибридных образцов, представляющих собой механическое соединение магнитострикционного композита на основе *D*-терфенола и пьезоэлектрического композиционного материала на основе цирконата титаната свинца (рис. 1). Размеры ферритовой пластинки и пьезоэлектрической были  $6.8 \text{ (length)} \times 6.2 \times 0.7 \text{ mm}$  и  $9.1 \text{ (length)} \times 6.2 \times 0.7 \text{ mm}$  соответственно. В этом случае композиционный материал уже нельзя считать однородной средой, и указанная выше теория неприменима. В [6] проведено численное моделирование МЭ эффекта в такой структуре. Результаты численного моделирования показали, что наблюдается увеличение МЭ коэффициента в области электромеханического резонанса. Однако как связана частота резонанса и величина коэффициента с геометрическими размерами образца и параметрами материала, в этой работе не представлено. В данной работе получено выражение для магнитоэлектрического коэффициента через параметры, характеризующие магнитострикционную и пьезоэлектрическую фазы гибридных композиционных материалов, и проанализирована его частотная зависимость.

В качестве модели рассмотрим образец из гибридного композиционного материала, склеенного из тонкой магнитострикционной пластинки длиной  $L_1$  и пьезоэлектрической пластинки длиной  $L_2$  (рис. 1). Толщину соединительного клея будем считать пренебрежимо малой. На нижней и верхней поверхности пьезоэлектрической пластинки нанесены тонкие металлические контакты. Пусть образец поляризован по нормали к плоскостям контактов (ось  $Z$ ). Магнитные поля, постоянное подмагничивающее и переменное с частотой  $\omega$ , направлены перпендикулярно

к направлению поляризации, вдоль  $X$  (поперечная ориентация полей). Переменное магнитное поле вследствие магнитострикции вызывает колебания в феррите, которые распространяются как по толщине образца, так и в плоскости. В дальнейшем будем интересоваться только объемными колебаниями, распространяющимися вдоль пластинки, так как они являются наиболее низкочастотными. Механические колебания ферритовой среды, достигая границы раздела, передаются в пьезоэлектрическую фазу, где, вследствие пьезоэффекта, происходит индуцирование электрического поля.

В дальнейшем будем считать, что толщина и ширина пластинки много меньше ее длины. Поскольку грани пластинки свободные, то напряжения на ее поверхностях равны нулю. Так как 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  $T_1$ . Кроме того, так как верхняя и нижняя грани пьезоэлектрической пластинки представляют собой эквипотенциальные поверхности, то отличной от нуля компонентой вектора напряженности электрического поля будет только  $E_z$ . Интересующие нас уравнения для тензора деформаций  ${}^m S_i$  в магнитострикционной пластинке и для тензора деформаций  ${}^p S_i$  и индукции электрического поля  $D_i$  в пьезоэлектрике имеют вид

$${}^m S_1 = {}^m s_{11} {}^m T_1 + q_{11} H_1, \quad (1)$$

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

$$D_3 = {}^p \epsilon_{33} E_3 + d_{31} {}^p T_1, \quad (3)$$

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

Выражая компоненты напряжений через компоненты деформаций и подставляя в уравнение движения среды, получим дифференциальное уравнение для  $x$ -проекции вектора смещения среды магнетика  ${}^m u_x$  и пьезоэлектрика  ${}^p u_x$ , решения которых запишем в виде

$$\begin{aligned} {}^m u_x(x) &= A_1 \cos({}^m kx) + B_1 \sin({}^m kx), \\ {}^p u_x(x) &= A_2 \cos({}^p kx) + B_2 \sin({}^p kx), \end{aligned} \quad (4)$$

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:

$${}^m u_x(0) = {}^p u_x(0), \quad {}^m T_1(0) = {}^p T_1(0), \quad {}^m T_1(-L_1) = 0, \quad {}^p T_1(L_2) = 0. \quad (5)$$

Возникающую вследствие деформаций напряженность электрического поля в пьезоэлектрике найдем из уравнения (3) с использованием условия разомкнутой цепи, а именно

$$\int_0^W dy \int_0^{L_2} D_3(x) dx = 0, \quad (6)$$

где  $W$  — ширина образца.

Выражая из (2) компоненты тензора напряжений через тензоры деформаций, с учетом решения для  ${}^p u_x$ , и подставляя сначала в (3), а затем получившееся выражение в (6), получим уравнение для  $E_z$ . Используя определение магнитоэлектрического коэффициента как  $E_3 = \alpha_E H_1$ , получим для него следующее выражение:

$$\alpha_E = \frac{d_{31} q_{11}}{{}^p \epsilon_{33} {}^m s_{11} \Delta_a} \cdot \frac{\operatorname{tg}(\kappa_2/2)}{\kappa_2} \cdot \frac{1}{1 - \cos(\kappa_1)}, \quad (7)$$

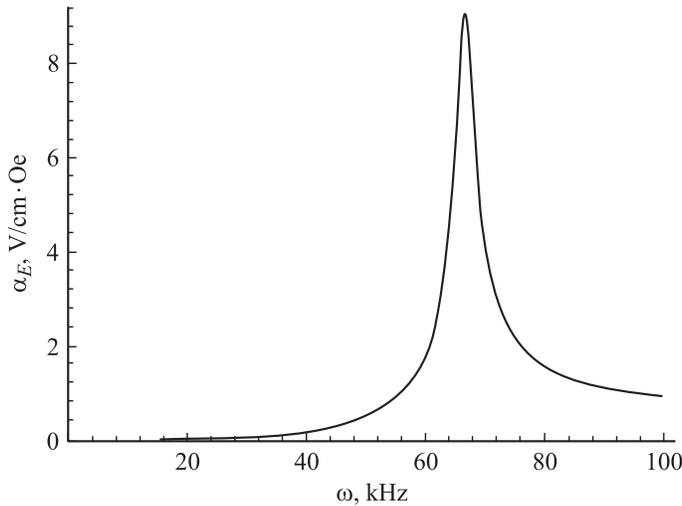
где

$$\Delta_a = (1 - K_{31}^2) \left(1 + \frac{\operatorname{tg}(\kappa_2/2)}{\kappa_2}\right) \left(1 + \gamma \frac{\operatorname{tg}(\kappa_1)}{\operatorname{tg}(\kappa_2)}\right) + \left(1 + \gamma \frac{\operatorname{tg}(\kappa_1)}{\sin(\kappa_2)}\right) \frac{\operatorname{tg}(\kappa_2/2)}{\kappa_2}. \quad (8)$$

Здесь введены 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 (7) для магнитоэлектрического коэффициента следует, что при частотах, когда  $\Delta_a = 0$ , наблюдается резонансное увеличение магнитоэлектрического коэффициента. Эти частоты определяются геометрией и параметрами образца в целом и не совпадают с резонансными частотами магнетика и пьезоэлектрика в отдельности.

Величина магнитоэлектрического коэффициента прямо пропорциональна произведению пьезоэлектрического  $d_{31}$  и пьезомагнитного  $q_{11}$  модулей и обратно пропорциональна диэлектрической проницаемости материала пьезоэлектрика  ${}^p \epsilon_{33}$  и модулю податливости магнетика  ${}^m s_{11}$ . Реально в таких структурах всегда присутствуют потери, связанные, в первую очередь, с потерями в контактах. Эти потери определяют



**Рис. 2.** Частотная зависимость магнитоэлектрического коэффициента. Коэффициент затухания  $\chi = 10\,000\text{ s}^{-1}$ .

ширину резонансной линии и ограничивают пиковое значение магнитоэлектрического коэффициента. Их можно учесть через коэффициент затухания, представив либо  $k$ , либо  $\omega$  комплексными величинами [7]. Мы воспользуемся вторым способом, представив круговую частоту в виде  $\omega = \omega' + i\chi$ , где  $\chi$  — параметр, характеризующий затухание. Его величину определим экспериментально из ширины резонансной линии.

Для количественной оценки величины эффекта воспользуемся параметрами композиционного материала, приведенными в [4]. Выражая обычным способом модули податливости через модули упругости, мы получим следующие значения параметров: магнетик —  ${}^m s_{11} = 0.454 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{N}$ ,  $q_{11} = 19.7 \cdot 10^{-10} \text{ m/A}$ ,  ${}^m \rho = 9200 \text{ kg/m}^3$ ,  $L_1 = 7 \text{ mm}$ ; пьезоэлектрик —  ${}^p s_{11} = 0.178 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{N}$ ,  $d_{31} = -1.82 \times 10^{-10} \text{ m/V}$ ,  ${}^p \rho = 7700 \text{ kg/m}^3$ ,  ${}^p \epsilon_{33} = 1800$ ,  $L_2 = 9.1 \text{ mm}$ . Теоретическая частотная зависимость магнитоэлектрического коэффициента, рассчитанная по формуле (7), приведена на рис. 2. Наблюдается очень хорошее не только качественное, но и количественное согласование представленной теории и экспериментальных результатов [4]. На частоте около 65 kHz наблюдается резонансное увеличение эффекта,

причем величина магнитоэлектрического коэффициента достигает значения почти  $10 \text{ V/cm} \cdot \text{Oe}$ , что на три порядка превышает его значение на частоте  $10 \text{ kHz}$ . На кратных частотах также появляются гармоники второго, третьего порядков и т.д. Если бы увеличение эффекта было связано с резонансом в пьезоэлектрике, то это было бы на частоте  $190 \text{ kHz}$ , а если в магнетике — то на частоте  $130 \text{ kHz}$ . Следовательно, предсказываемое теорией и наблюдаемое на эксперименте резонансное увеличение МЭ эффекта связано с электромеханическим резонансом образца в целом.

Таким образом, в гибридном композиционном материале на основе магнитострикционного феррита и пьезоэлектрика наблюдается резонансное увеличение эффекта. Частота резонанса определяется геометрическими размерами и параметрами как феррита, так и пьезоэлектрика. Пиковое значение магнитоэлектрического коэффициента на несколько порядков превышает его низкочастотное значение.

Автор выражает благодарность М.И. Бичурину и G. Srinivasan за полезные обсуждения результатов работы.

Работа выполнена при частичной поддержке гранта Министерства образования РФ (Е02–3.4–278) и программы Университеты России (проект УР 01.01.007).

## Список литературы

- [1] *Bichurin M.I., Petrov V.M., Srinivasan G.* // J. Appl. Phys. 2002. V. 92. P. 7681–7683.
- [2] *Бичурин М.И., Филиппов Д.А., Петров В.М., Srinivasan G.* // Физика электронных материалов. Материалы международной конференции. 1–4 октября 2002 г. Калуга, Россия. 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.N., Nan C.W.* // J. Appl. Phys. 2003. V. 93. P. 9916–9919.
- [5] *Bichurin M.I., Filippov D.A., Petrov V.M. et al.* // Phys. Rev. B. 2003. V. 68. P. 132408-1–132408-4.
- [6] *Филиппов Д.А., Бичурин М.И., Петров В.М. и др.* // ПЖТФ. 2004. Т. 30. С. 15–20.
- [7] *Труэлл Р., Эльбаум Ч., Чик Б.* Ультразвуковые методы в физике твердого тела // Пер. с англ. под ред. И.Г. Михайлова и В.В. Леманова. М.: Мир, 1972. 307 с.