

05,06

Прямой магнитоэлектрический эффект в двухслойных композитных структурах $Tb_{0.12}Dy_{0.2}Fe_{0.68}-PbZr_{0.53}Ti_{0.47}O_3$ при изгибных и продольных колебаниях

© А.В. Калгин¹, С.А. Гриднев¹, З.Н. Грибе^{1,2}

¹ Воронежский государственный технический университет, Воронеж, Россия

² Университет Дияла, Дияла, Ирак

E-mail: kalgin_alexandr@mail.ru

(Поступила в Редакцию 14 октября 2013 г.)

В интервале частот 10–253 kHz при комнатной температуре изучен прямой магнитоэлектрический (МЭ) эффект в образцах двухслойных композитов, содержащих слои пьезоэлектрика $PbZr_{0.53}Ti_{0.47}O_3$ размером $8 \times 6 \times 0.3$ mm и слои из ферромагнетика $Tb_{0.12}Dy_{0.2}Fe_{0.68}$ и эпоксидного клея размером $6 \times 6 \times A$ mm ($A = 0.3, 0.6, 0.9, 1.2$ и 1.5). Обнаружено существенное увеличение величины МЭ-эффекта на резонансных частотах 13.2–61.1 kHz первой гармоники изгибных колебаний по длине образцов, на резонансных частотах 39.5–90.7 kHz первой гармоники изгибных колебаний по ширине образцов и на резонансных частотах 123.3–141.0 kHz первой гармоники продольных колебаний по длине образцов. Выявлено, что величины МЭ-эффекта больше на резонансных частотах изгибных колебаний, чем на резонансных частотах продольных колебаний образцов.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 13-02-00663).

1. Введение

Последнее десятилетие магнитоэлектрические (МЭ) композиты привлекают все большее внимание исследователей в связи с перспективами их применения в устройствах, в которых магнитное поле используется для управления электрическими параметрами (прямой МЭ-эффект), а внешнее электрическое поле используется для управления магнитными параметрами (обратный МЭ-эффект) [1]. Вполне естественно, что для практического применения представляют интерес композитные структуры с высокими МЭ-коэффициентами. Поскольку МЭ-эффект в композитах обусловлен связью магнитострикционной и пьезоэлектрической подсистем через упругие деформации, в области электромеханического резонанса величины МЭ-коэффициентов резко возрастают [2]. При возбуждении в образцах МЭ-композитов продольных мод колебаний резонансные частоты достигают больших значений и составляют сотни килогерц для образцов длиной порядка 10 mm. Такие величины резонансных частот могут оказаться непригодными при проектировании устройств на основе МЭ-композитов, работающих на более низких частотах. Для того чтобы уменьшить частоты электромеханического резонанса образцов заданных размеров или сохранить частоты при уменьшении размеров образцов композитов, способствуя миниатюризации электронных устройств, обычно используют изгибные моды колебаний [3]. При этом величины МЭ-коэффициентов образцов композитов при возбуждении в них продольных и изгибных колебаний могут различаться. Так, в работе [4] МЭ-коэффициент для образца двухслойного композита

$Tb_{0.30}Dy_{0.7}Fe_2-PbZr_{0.52}Ti_{0.48}O_3$ при резонансе на частоте первой гармоники продольных колебаний больше, чем на первой гармонике изгибных колебаний. В то же время в работе [5] для аналогичных композитов наблюдается противоположная картина: МЭ-коэффициент на первой гармонике изгибных колебаний больше, чем на первой гармонике продольных колебаний.

Поэтому целью настоящей работы является проведение сравнительного анализа прямого МЭ-эффекта в образцах двухслойных композитов $Tb_{0.12}Dy_{0.2}Fe_{0.68}-PbZr_{0.53}Ti_{0.47}O_3$ при возбуждении в них продольных и изгибных колебаний.

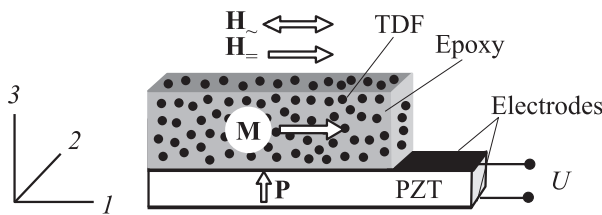
2. Методика измерений и образцы

Объектами исследований являлись слоистые МЭ-композиты благодаря сочетанию в них высоких МЭ-коэффициентов и простоты изготовления, которая не свойственна смесевым и стержневым МЭ-композитам. В качестве компонентов композитов использовались ферромагнетик $Tb_{0.12}Dy_{0.2}Fe_{0.68}$ (ТДФ) и пьезоэлектрик $PbZr_{0.53}Ti_{0.47}O_3$ (PZT), обладающие рекордно высокой магнитострикцией насыщения ($\lambda_s \sim 10^{-3}$) и большими пьезоэлектрическими коэффициентами (например, $d_{31} \sim 140$ pC/N) соответственно. Следовательно, в образцах композитов ТДФ–PZT можно ожидать больших МЭ-откликов.

Для получения образцов двухслойных композитов ТДФ–PZT создавалась статистическая смесь из тщательно перемешанного ферромагнитного порошка ТДФ со средним размером гранул $\sim 54 \mu m$ и массой 1.66 g

Таблица 1. Величины поперечного магнитоэлектрического коэффициента по напряжению и соответствующие им резонансные частоты для различных образцов композитов TDF–PZT

Образец композита	$\alpha_{31(1)}$, mV/(cm · Oe)	f_{r1} , kHz	$\alpha_{31(2)}$, mV/(cm · Oe)	f_{r2} , kHz	$\alpha_{31(3)}$, mV/(cm · Oe)	f_{r3} , kHz
0.3TDF–0.3PZT	16.0	13.2	10.0	39.5	5.9	141.0
0.6TDF–0.3PZT	18.0	15.5	14.0	51.1	8.6	139.7
0.9TDF–0.3PZT	23.3	15.7	14.0	64.2	6.7	125.6
1.2TDF–0.3PZT	20.0	19.8	12.0	87.8	7.3	216.4
1.5TDF–0.3PZT	12.0	61.1	9.3	90.7	7.0	123.3

**Рис. 1.** Схематическое изображение образца композита TDF–PZT и его ориентация в переменном и постоянном магнитных полях.

и эпоксидного клея массой 0.36 g, которая наносилась в виде ферромагнитных слоев нескольких размеров на предварительно поляризованные в промышленных условиях пьезокерамические пластины PZT. Ферромагнитные слои образцов композитов затвердевали в течение 24 h при комнатной температуре. Затем с помощью наждачной бумаги ферромагнитные слои были доведены до размеров $6 \times 6 \times A$ mm ($A = 0.3, 0.6, 0.9, 1.2$ и 1.5). Пластины PZT имели размер $8 \times 6 \times 0.3$ mm. Ферромагнитные слои намагничены по длине, а пьезоэлектрические слои поляризованы по толщине. Структура образца композита TDF–PZT представлена на рис. 1.

Консольное закрепление образцов обеспечивало наиболее низкие значения резонансных частот изгибных колебаний [6].

Экспериментальное исследование прямого МЭ-эффекта осуществлялось путем регистрации переменного напряжения, возникающего на обкладках пьезоэлектрического слоя образца композита TDF–PZT, при помещении образца в переменное и постоянное магнитные поля. Переменное магнитное поле напряженностью $H_{\sim} = 5$ Oe создавалось с помощью катушек Гельмгольца, а постоянное магнитное поле напряженностью $H_{=} = 720$ Oe — с использованием электромагнита. Напряженность 720 Oe соответствует напряженности постоянного магнитного поля, при которой коэффициент пьезомагнитной связи $q_{11} = d\lambda_{11}/dH_{=}$, пропорциональный величине МЭ-эффекта, принимает максимальное значение. Поскольку в композитах МЭ-эффект при перпендикулярной ориентации вектора намагниченности \mathbf{M} и вектора поляризации \mathbf{P} (поперечный МЭ-эффект) имеет большую величину, чем МЭ-эффект при параллельной ориентации векторов \mathbf{M} и \mathbf{P} (продольный

МЭ-эффект) [7,8], в настоящей работе изучался поперечный МЭ-эффект.

Для характеристики величины поперечного МЭ-эффекта использовался МЭ-коэффициент по напряжению, рассчитываемый по формуле

$$\alpha_{31} = \frac{U}{h_{PZT}H_{\sim}}, \quad (1)$$

где h_{PZT} — толщина пьезоэлектрического слоя образца композита TDF–PZT.

3. Результаты и обсуждение

Зависимость коэффициента α_{31} при комнатной температуре от частоты переменного магнитного поля f для образца двухслойного композита с ферромагнитным слоем толщиной 0.9 mm и пьезоэлектрическим слоем толщиной 0.3 mm (далее 0.9TDF–0.3PZT) показана на рис. 2.

Можно видеть, что коэффициент α_{31} в зависимости от f проходит через три пика (1–3), которые приходятся на частоты электромеханического резонанса f_{r1} , f_{r2} и f_{r3} образца композита 0.9TDF–0.3PZT при различных типах и/или гармониках колебаний. Аналогичные зависимости были получены для композитов 0.3TDF–0.3PZT, 0.6TDF–0.3PZT, 1.2TDF–0.3PZT и

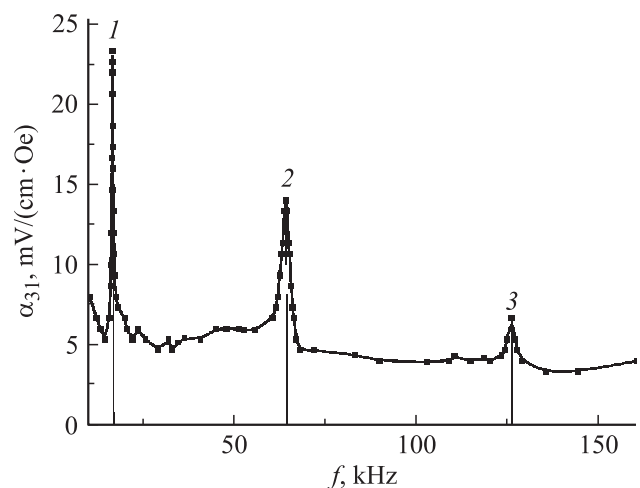
**Рис. 2.** Частотная зависимость α_{31} для образца композита 0.9TDF–0.3PZT.

Таблица 2. Параметры компонентов композитов TDF–PZT

Компоненты композитов TDF–PZT	$\rho \cdot 10^{-3}$, kg/m ³	$s_{11} \cdot 10^{12}$, m ² /N	$s_{33} \cdot 10^{12}$, m ² /N
TDF	4.0	78	–
PZT	7.1	–	15
Эпоксидный клей	1.2	0.000 33	–

1.5TDF–0.3PZT. Величины $\alpha_{31(1)}$, $\alpha_{31(2)}$ и $\alpha_{31(3)}$ и соответствующие им частоты f_{r1} , f_{r2} и f_{r3} для всех образцов композитов приведены в табл. 1.

Для того чтобы определить тип и гармонику колебаний, возбуждаемых в образцах композитов TDF–PZT на частотах f_{r1} , f_{r2} и f_{r3} , в работе был проведен расчет резонансных частот образцов композитов в случае изгибных и продольных колебаний. Резонансные частоты изгибных и продольных колебаний по длине образцов находились соответственно по формулам [4]

$$f_{\partial n}^{BL} = \frac{\pi h}{2\sqrt{12L^2}} \frac{1}{\sqrt{\langle \rho \rangle \langle s_{11} \rangle}} \left(n + \frac{1}{2} \right)^2, \quad (2)$$

$$f_{\partial n}^{LL} = \frac{n}{2L} \frac{1}{\sqrt{\langle \rho \rangle \langle s_{11} \rangle}}, \quad (3)$$

где h — толщина образца композита TDF–PZT, $n = 1, 2$ и 3 — число узлов по длине образца для первой, второй и третьей гармоник колебаний, L — длина образца (за длину образца бралась длина слоя PZT), $\langle \rho \rangle = \rho_E V_E + \rho_{TDF} V_{TDF} + \rho_{PZT} V_{PZT}$ — эффективная плотность композита TDF–PZT, ρ_E , ρ_{TDF} и ρ_{PZT} — плотности эпоксидного клея, ферромагнетика TDF и пьезоэлектрика PZT соответственно, $V_E = m_E / (m_{TDF} + m_E)$, $V_{TDF} = m_{TDF} / (m_{TDF} + m_E)$ и $V_{PZT} = h_{PZT} / (h_{TDF} + h_{PZT})$ — соответственно объемное содержание эпоксидного клея, ферромагнитного порошка TDF и пьезокерамики PZT в композите TDF–PZT, m_E — масса эпоксидного клея, m_{TDF} — масса ферромагнитного порошка TDF, h_{TDF} — толщина ферромагнитного слоя образца.

В формулах (2) и (3) параметр $\langle s_{11} \rangle$ — эффективная упругая податливость композита TDF–PZT, рассчитываемая по формуле [9]

$$\langle s_{11} \rangle = \frac{s_{11}^{E/TDF} s_{33}^{PZT}}{V_{E/TDF} s_{33}^{PZT} + V_{PZT} s_{11}^{E/TDF}}, \quad (4)$$

где

$$\langle s_{11}^{E/TDF} \rangle \geq \frac{s_{11}^E s_{11}^{TDF}}{V_E s_{11}^{TDF} + V_{TDF} s_{11}^E}, \quad (5)$$

$s_{11}^{E/TDF}$ — эффективная упругая податливость ферромагнитного порошка с эпоксидным клеем, s_{11}^E — упругая податливость эпоксидного клея, s_{11}^{TDF} — упругая податливость ферромагнетика TDF, s_{11}^{PZT} — упругая податливость пьезоэлектрика PZT, $V_{E/TDF}$ — объемное содержание ферромагнитного порошка с эпоксидным клеем в композите TDF–PZT.

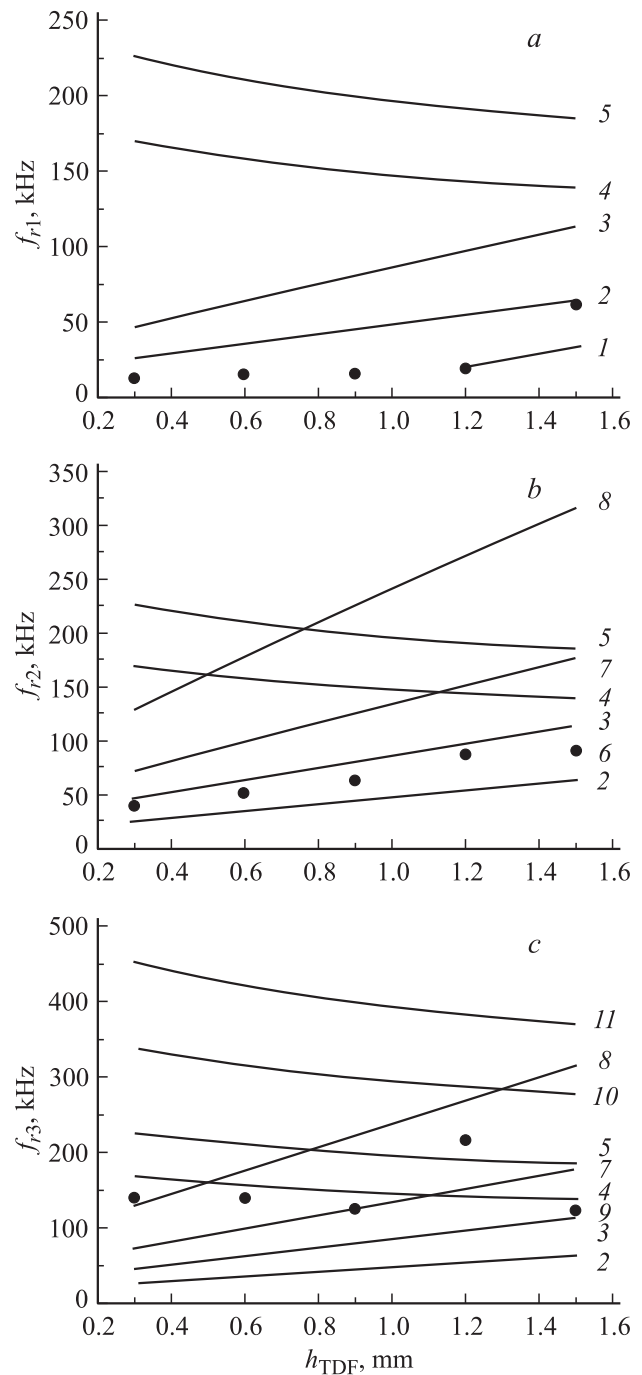


Рис. 3. Зависимости резонансных частот изгибных и продольных колебаний образцов композитов TDF–PZT от толщины ферромагнитного слоя. Точки — эксперимент, сплошные линии — расчет. 1, 6 и 9 — резонансные частоты, отвечающие соответственно пикам 1, 2 и 3 на зависимости $\alpha_{31}(f)$; 2 и 7 — резонансные частоты соответственно первой и второй гармоник изгибных колебаний по длине образца; 3 и 8 — резонансные частоты соответственно первой и второй гармоник изгибных колебаний по ширине образца; 4 и 10 — резонансные частоты соответственно первой и второй гармоник продольных колебаний по длине образца; 5 и 11 — резонансные частоты соответственно первой и второй гармоник продольных колебаний по ширине образца.

Отметим, что для определения резонансных частот изгибных и продольных колебаний по ширине образцов композитов TDF–PZT в формулах (2) и (3) длина образцов L заменялась на их ширину W .

С использованием формул (2) и (3), геометрических размеров и параметров компонентов композитов TDF–PZT, перечисленных в табл. 2, были построены зависимости резонансных частот изгибных и продольных колебаний образцов от толщины ферромагнитного слоя (рис. 3).

Видно, что резонансная частота f_{r1} соответствует первой гармонике изгибных колебаний по длине образцов (рис. 3, *a*), резонансная частота f_{r2} — первой гармонике изгибных колебаний по ширине образцов (рис. 3, *b*), а резонансная частота f_{r3} — первой гармонике продольных колебаний по длине образцов (рис. 3, *c*). Частоты изгибной моды колебаний f_{r1} и f_{r2} с ростом толщины ферромагнитного слоя образцов возрастают, а частота продольной моды колебаний f_{r3} уменьшается. Возрастание частот f_{r1} и f_{r2} обусловлено конкуренцией двух факторов: увеличением толщины образца h и произведения эффективной плотности $\langle \rho \rangle$ на эффективную податливость композита $\langle s_{11} \rangle$ (см. (2)), а уменьшение частоты f_{r3} — увеличением $\langle \rho \rangle \langle s_{11} \rangle$ (см. (3)).

Таким образом, на основе данных табл. 1 и рис. 3 можно заключить, что МЭ-отклики в образцах композитов TDF–PZT при изгибных колебаниях на резонансных частотах больше, чем при продольных колебаниях на резонансных частотах. Более низкие резонансные частоты изгибных колебаний в комбинации с большими МЭ-откликами делают изгибные моды колебаний предпочтительными с точки зрения практических приложений композитов TDF–PZT в устройствах, использующих МЭ-эффект.

Список литературы

- [1] А.П. Пятаков, А.К. Звездин. УФН **182**, 593 (2012).
- [2] М.И. Бичурин, В.М. Петров, С.В. Аверкин, А.В. Филиппов. ФТТ **52** 1975 (2010).
- [3] Д.В. Чащин, К.Е. Каменцев, Ю.К. Фетисов. РЭ **53**, 1521 (2008).
- [4] J.G. Wan, Z.Y. Li, Y. Wang, M. Zeng, G.H. Wang, J.-M. Liu. Appl. Phys. Lett. **86**, 202 504 (2005).
- [5] Zh. Shi, J. Ma, C.-W. Nan. J. Electroceram, **21**, 390 (2008).
- [6] S.P. Timoshenko, D.H. Young. Vibration problems in engineering. Van Nostrand Co., N.Y. (1955). 610 p.
- [7] G. Srinivasan, E.T. Rasmussen, J. Gallegos, R. Srinivasan. Phys. Rev. B **64** 214 408 (2001).
- [8] S.A. Gridnev, A.V. Kalgin, A.A. Amirov, I.K. Kamilov. Ferroelectrics **397** 142 (2010).
- [9] X.W. Dong, Y.J. Wu, J.G. Wan, T. Wei, Z.H. Zhang, S. Chen, H. Yu, J.-M. Liu. J. Phys. D **41**, 035 003 (2008).