Теория магнитоэлектрического эффекта в гетерогенных структурах на основе ферромагнетик–пьезоэлектрик

© Д.А. Филиппов

Новгородский государственный университет им. Ярослава Мудрого,
173003 Великий Новгород, Россия

(Поступила в Редакцию 4 июня 2004 г.
В окончательной редакции 27 августа 2004 г.)

Представлена теория магнитоэлектрического эффекта в двухслойных структурах на основе ферромагнетик–пьезоэлектрик для образцов в виде пластинок. Получено выражение для магнитоэлектрического коэффициента по напряжению через параметры, характеризующие магнитную и пьезоэлектрическую фазы. Показано, что в области электромеханического резонанса наблюдается значительное усиление магнитоэлектрического коэффициента. Получено соотношение между толщиной ферромагнетика и пьезоэлектрика, при котором наблюдается максимальное значение магнитоэлектрического коэффициента. Приведены результаты расчета коэффициента для структур на основе пермендюр–ЦТС и сравнение полученных результатов с экспериментальными данными.

Работа выполнена при частичной поддержке гранта Министерства образования РФ (E02-3.4-278) и программы Университеты России (проект УР 01.01.007).

Композиционные магнитоэлектрические (МЭ) материалы представляют собой механически взимодействующие смеси магнитострикционной и пьезоэлектрической компонент. Наличие МЭ эффекта в композиционных материалах обусловлено механическим взаимодействием магнитной и пьезоэлектрической подсистем. В магнитном поле вследствие магнитострикции в магнетике возникают механические колебания, которые передаются в пьезоэлектрическую фазу и благодаря пьезоэффекту вызывают поляризацию. Поскольку в магнитострикционных пьезоэлектрических композитах МЭ эффект связан с механическим взаимодействием подсистем, в области электромеханического резонанса наблюдается значительное увеличение магнитоэлектрического коэффициента [1–6]. Если масштабы изменения внешних воздействий много больше характерных размеров композиционных материалов, такие материалы можно рассматривать как гомогенные среды с некоторыми эффективными параметрами [7]. В [3–5] представлены теория МЭ эффекта для феррит-пьезоэлектрических композитов, основанная на методе эффективных параметров материала, и экспериментальные результаты для образцов в форме диска и пластинки на основе никелевой феррошпинели — цирконата-титаната свинца (ЦТС). Использование в качестве магнитной фазы ферромагнетика с бóльшими константами магнитострикции, чем у феррита, позволяет повысить значение магнитоэлектрического коэффициента. В [6] приведены экспериментальные исследования структур пермендюр–ЦТС–пермендюр. В этом случае композиционный материал уже нельзя считать гомогенной средой, и указанная выше теория неприменима. В настоящей работе получено выражение для магнитоэлектрического коэффициента для случая гетерогенных композитов.

В качестве модели рассмотрим образец в форме пластинки из двухслойного композиционного материала, представляющего собой механическое соединение ферромагнетика (m) и пьезоэлектрика (p) (рис. 1). На внешних поверхностях пьезоэлектрика и ферромагнетика нанесены металлические контакты, толщину которых будем считать пренебрежимо малой. Пусть образец поляризован по нормали к плоскостям контактов (ось X_3). Постоянное (подмагничивающее) и переменное магнитные поля могут быть направлены как по нормали к плоскости контактов, так и в плоскости контактов вдоль оси X_1. В соответствии с этим будем различать продольный и поперечный МЭ эффекты.

Переменное магнитное поле вследствие магнитострикции вызывает колебания в ферромагнетике, которые распространяются как по толщине образца, так и в плоскости. Ограничимся рассмотрением только объемных колебаний, распространяющихся вдоль пластинки, так как они являются наиболее низкочастотными.

Будем считать, что толщина ${}^m h + {}^p h$ и ширина W пластинки много меньше ее длины L. Поскольку грани пластинки свободные, напряжения на ее поверхностях равны нулю. Поскольку пластинка тонкая и узкая, 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. Вследствие эквипотенциальности верхней и нижней граней пластинки отличной от нуля компонен-

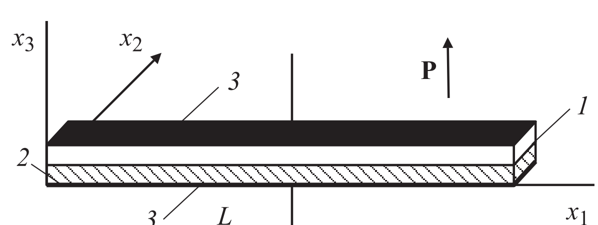

Рис. 1. Схематическое изображение структуры. Стрелка указывает направление поляризаций **P**. *1* — пьезоэлектрик, *2* — ферромагнетик, *3* — металлические контакты.

той вектора напряженности электрического поля будет только E_3. Уравнения для тензора деформаций ${}^mS_i$ в магнетике, для тензора деформаций ${}^pS_i$ и индукции электрического поля D_i в пьезоэлектрике при поперечной ориентации полей имеют вид

$$ {}^mS_1 = {}^ms_{11}{}^mT_1 + {}^mq_{11}H_1, \tag{1} $$

$$ {}^pS_1 = {}^ps_{11}{}^pT_1 + {}^pd_{31}E_3, \tag{2} $$

$$ D_3 = {}^p\varepsilon_{33}E_3 + {}^pd_{31}{}^pT_1, \tag{3} $$

где ${}^ms_{11}$, ${}^ps_{11}$ — компоненты тензора податливости магнетика и пьезоэлектрика соответственно; ${}^p\varepsilon_{33}$ — компонента тензора диэлектрической проницаемости пьезоэлектрика; ${}^pd_{31}$, ${}^mq_{11}$ — пьезоэлектрический и пьезомагнитный коэффициенты. При продольной ориентации электрического и магнитного полей в (1) вместо ${}^mq_{11}H_1$ будет ${}^mq_{31}H_3$.

Выражая из (1) компоненты напряжений через компоненты деформаций и подставляя их в уравнение движения среды, получим дифференциальное уравнение для x — проекции вектора смещения среды магнетика ${}^mu_x$, решение которого запишем в виде

$$ {}^mu_x(x) = A_1\cos({}^mkx) + B_1\sin({}^mkx), \tag{4} $$

где ${}^mk = \omega({}^m\rho{}^ms_{11})^{1/2}$, ${}^m\rho$ — плотность ферромагнетика.

Колебания среды магнетика вследствие махнической связи вызывают колебания пьезоэлектрика, которые можно представить в виде суперпозиции колебаний, обусловленных связью с магнетиком, и собственных колебаний пьезоэлектрика, вызванных индуцированным электрическим полем. Поскольку контакт между слоями неидеальный, для смещений среды пьезоэлектрика ${}^pu_x(x)$ можно записать

$$ {}^pu_x(x) = \beta{}^mu_x(x) + (1-\beta){}^pu_x^{(0)}(x), \tag{5} $$

где $\beta \in (0, 1)$ — коэффициент связи между фазами, ${}^pu_x^{(0)}(x)$ — смещения пьезоэлектрика в отсутствие связи с ферромагнетиком. Решая уравнение движения среды не связанной с ферромагнетиком пьезоэлектрической пластинки, для смещений ${}^pu_x^{(0)}(x)$ получим выражение

$$ {}^pu_x^{(0)}(x) = \frac{{}^pd_{31}E_3}{{}^pk\cos({}^p\kappa)}\sin({}^pkx), \tag{6} $$

где ${}^pk = \omega({}^p\rho\,{}^ps_{11})^{1/2}$, ${}^p\rho$ — плотность пьезоэлектрика; ${}^p\kappa = {}^pkL$ — безразмерный параметр.

Постоянные интегрирования A_1 и B_1 находятся из граничных условий. Поскольку левая и правая грани образца свободные, результирующая сила, действующая на них, равна нулю. Следовательно, на левой и правой границах имеют место соотношения

$$ {}^mh\,{}^mT_1(-L/2) + {}^ph\,{}^pT_1(-L/2) = 0, \tag{7} $$

$$ {}^mh\,{}^mT_1(L/2) + {}^ph\,{}^pT_1(L/2) = 0. \tag{8} $$

С учетом (5) и граничных условий (7), (8) для смещений ${}^pu_x(x)$ в пьезоэлектрике получим выражение

$$ {}^pu_x(x) = \frac{\beta}{(\gamma+\beta)}\frac{\sin({}^mkx)}{{}^mk\cos({}^m\kappa)}(\gamma\,{}^mq_{11}H_1 - \beta\,{}^pd_{31}E_3) + (1-\beta)\frac{{}^pd_{31}E_3}{{}^pk\cos({}^p\kappa)}\sin({}^pkx), \tag{9} $$

где ${}^m\kappa = {}^mkL/2$, $\gamma = ({}^ps_{11}/{}^ms_{11})({}^mh/{}^ph)$ — безразмерные параметры.

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

$$ \int_0^W dy \int_{-L/2}^{L/2} D_3(x)dx = 0. \tag{10} $$

Подставляя полученные выражения в (10) и вычисляя интеграл для напряженности электрического поля в пьезоэлектрике E_3, получим уравнение

$$ E_3 = -\frac{\gamma\beta}{(\gamma+\beta)}\frac{{}^pd_{31}{}^mq_{11}}{{}^p\varepsilon_{33}{}^ps_{11}\Delta_a}\frac{\mathrm{tg}({}^m\kappa)}{{}^m\kappa}H_1. \tag{11} $$

Здесь введено обозначение

$$ \Delta_a = 1 - \left(1-(1-\beta)\frac{\mathrm{tg}({}^p\kappa)}{{}^p\kappa} - \frac{\beta^2}{(\gamma+\beta)}\frac{\mathrm{tg}({}^m\kappa)}{{}^m\kappa}\right)K_{31}^2, \tag{12} $$

где $K_{31}^2 = {}^pd_{31}^2/({}^p\varepsilon_{33}{}^ps_{11})$ — квадрат коэффициента электромеханической связи пьезоэлектрика при планарных колебаниях.

Магнитоэлектрический коэффициент по напряжению для двухслойной структуры определим из соотношения

$$ \alpha_E = E_{\mathrm{av}}/H, \tag{13} $$

где $E_{\mathrm{av}} = U/({}^mh + {}^ph)$ — среднее значение напряженности электрического поля в образце, U — возникающая разность потенциалов между электродами. Полагая, что все падение электрического напряжения происходит в пьезоэлектрике, для магнитоэлектрического коэффициента по напряжению при поперечной ориентации электрического и магнитного полей получим следующее выражение:

$$ \alpha_{E,T} = -\frac{\gamma\beta}{(\gamma+\beta)}\frac{{}^pd_{31}{}^mq_{11}}{{}^p\varepsilon_{33}{}^ps_{11}\Delta_a}\frac{\mathrm{tg}({}^m\kappa)}{{}^m\kappa}\frac{{}^ph}{({}^mh+{}^ph)}. \tag{14} $$

При продольной ориентации электрического и магнитного полей (вдоль оси X_3) в выражении для магнитоэлектрического коэффициента вместо ${}^mq_{11}$ будет стоять ${}^mq_{31}$. Поскольку вследствие влияния размагничивающих полей величина ${}^mq_{31}$, как правило, меньше ${}^mq_{11}$, то и величина эффекта при продольной ориентации, как правило, на порядок меньше, чем при поперечной.

Из выражения (14) для магнитоэлектрического коэффициента следует, что при частотах, когда $\Delta_a = 0$ наблюдается резонансное увеличение магнитоэлектрического

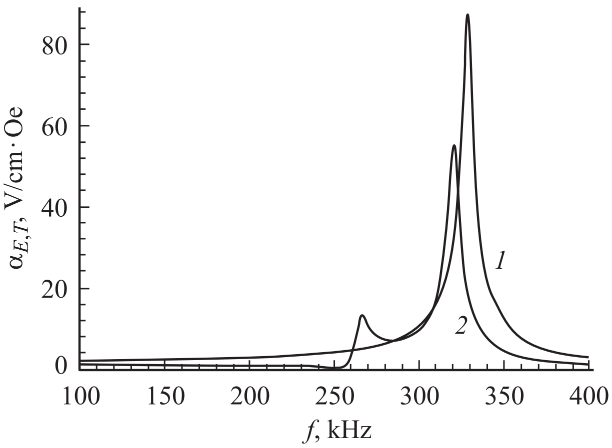

Рис. 2. Частотная зависимость магнитоэлектрического коэффициента по напряжению для структуры на основе пермендюра и цирконата-титаната свинца. *1* — $\beta = 1$, *2* — 0.4.

коэффициента. Потери, имеющие место в структуре, можно учесть через коэффициент затухания, представив круговую частоту в виде [8] $\omega = \omega' + i\chi$, где χ — параметр, характеризующий затухание. На рис. 2 представлены рассчитанные по формуле (15) частотные зависимости магнитоэлектрического коэффициента для структуры на основе пермендюр–ЦТС при различных значениях коэффициента связи β. При расчетах использованы следующие параметры: ${}^m s_{11} = 5.5 \cdot 10^{-12}\,\mathrm{m^2/N}$, ${}^m q_{11} = 63.75 \cdot 10^{-10}\,\mathrm{m/A}$, ${}^m h = 0.36\,\mathrm{mm}$, ${}^p s_{11} = 15 \cdot 10^{-12}\,\mathrm{m^2/N}$, ${}^p d_{31} = -175 \cdot 10^{-12}\,\mathrm{m/V}$, ${}^p\varepsilon_{33}/\varepsilon_0 = 1750$, ${}^p h = 0.36\,\mathrm{mm}$, коэффициент затухания $\chi = 20000\,\mathrm{rad/s}$, длина образца $L = 7.5\,\mathrm{mm}$, коэффициент связи фаз $\beta = 1$ и 0.4.

Как видно из рисунка, в случае жесткой связи ферромагнетика и пьезоэлектрика ($\beta = 1$) на частоте около 330 kHz для данных размеров образца наблюдается резонансное увеличение магнитоэлектрического коэффициента. Это увеличение коэффициента связано с резонансом в ферромагнетике. В случае, когда коэффициент связи меньше единицы, на частотной зависимости появляется дополнительный резонанс. В случае жесткой связи магнитное поле возбуждает механические колебания в ферромагнетике, и колебания пьезоэлектрика повторяют их. В случае, когда коэффициент связи меньше единицы, наряду с колебаниями среды пьезоэлектрика с параметром ${}^m k$ появляются колебания с параметром ${}^p k$, что и приводит к возникновению дополнительного пика на частотной зависимости магнитоэлектрического коэффициента по напряжению.

В области низких частот магнитоэлектрический коэффициент практически не зависит от частоты и его значение определяется выражением

$$\alpha_{E,T}^{\mathrm{low}} = -\frac{\gamma\beta}{(\gamma+\beta)} \frac{{}^p d_{31}\,{}^m q_{11}}{{}^p\varepsilon_{33}\,{}^p s_{11}\left(1 - K_{31}^2\gamma\beta/(\gamma+\beta)\right)} \times \frac{{}^p h}{({}^m h + {}^p h)}. \quad (15)$$

Из (14) следует, что величина магнитоэлектрического коэффициента зависит как от параметров магнетика и пьезоэлектрика, так и от процентного состава композита и коэффициента связи фаз. При малых значениях коэффициента связи β величина магнитоэлектрического коэффициента прямо пропорциональна ему, при стремлении β к единице зависимость становится более слабой. Как следует из (14) и (15), максимальное значение магнитоэлектрического коэффициента достигается при соотношении между толщинами слоев ферромагнетика и пьезоэлектрика, равном

$${}^m h/{}^p h = (\beta\,{}^m s_{11}/{}^p s_{11})^{1/2}. \quad (16)$$

В эксперименте [6] максимальное значение магнитоэлектрического коэффициента наблюдалось при значении толщины пьезоэлектрика ${}^p h = 0.6\,\mathrm{mm}$ при толщине магнетика ${}^m h = 0.36\,\mathrm{mm}$. Подставляя значения податливости для пермендюра и ЦТС, получаем согласие экспериментальных результатов с теорией при значении коэффициента связи $\beta \approx 1$.

Таким образом, механическое взаимодействие между магнитострикционной и пьезоэлектрической подсистемами в композиционных материалах на основе ферромагнетик–пьезоэлектрик приводит к возникновению магнитоэлектрического эффекта. Максимальное значение магнитоэлектрического коэффициента наблюдается при определенном соотношении между толщиной магнетика и пьезоэлектрика, значение которого зависит от коэффициента связи фаз и отношения модулей податливости ферромагнетика и пьезоэлектрика.

Список литературы

[1] М.И. Бичурин, Д.А. Филиппов, В.М. Петров, G. Srinivasan. Физика электронных материалов. Мат. Междунар. конф. Калуга, Россия (2002). С. 309.

[2] D.A. Filippov, M.I. Bichurin, V.M. Petrov, G. Srinivasan. Bull. American Phys. Soc. **48**, 214 (2003).

[3] M.I. Bichurin, D.A. Filippov, V.M. Petrov, V.M. Laletsin, N. Paddubnaya, G. Srinivasan. Phys. Rev. B **68**, 132 408 (2003).

[4] Д.А. Филиппов, М.И. Бичурин, В.М. Петров, В.М. Лалетин, Н.Н. Поддубная, G. Srinivasan. ПЖТФ **30**, *1*, 15 (2004).

[5] Д.А. Филиппов, М.И. Бичурин, В.М. Петров, В.М. Лалетин, G. Srinivasan. ФТТ **46**, *9*, 1621 (2004).

[6] V. Laletsin, N. Padubnaya, G. Srinivasan, C.P. DeVreugd. Appl. Phys. A **78**, 33 (2004).

[7] M.I. Bichurin, V.M. Petrov, G. Srinivasan. J. Appl. Phys. **92**, *12*, 7681 (2002).

[8] Р. Труэлл, Ч. Эльбаум, Б. Чик. Ультразвуковые методы в физике твердого тела / Пер. с англ. под ред. И.Г. Михайлова и В.В. Леманова. Мир, М. (1972). 307 с.