

磁电双层膜层间耦合的弹性力学研究^{*}

曹鸿霞 张 宁[†]

(南京师范大学磁电子学实验室, 南京 210097)
(2007 年 9 月 22 日收到, 2007 年 10 月 17 日收到修改稿)

基于磁致伸缩相与压电相的本构方程, 应用弹性力学模型, 简要介绍了如何推导自由状态的磁电双层膜纵向、横向磁电 (ME) 电压系数. 并采用相应的材料参数计算了 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3\text{-Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ (LSMO-PZT), $\text{Tb}_{1-x}\text{Dy}_x\text{Fe}_{2-y}$ (TDF)-PZT 双层膜中的磁电电压系数, 具体分析了其与压电相的体积分数 v 、界面耦合参数 k 以及偏置磁场 H 之间的关系. 分析结果表明, 在某一体积分数 v_m 下, ME 电压系数达到最大值, 且最大值与 k 成近似线性关系. 由于 TDF 的超大磁致伸缩效应, TDF-PZT 双层膜的横向 ME 电压系数可达 $1.9 \text{ Vcm}^{-1} \text{ Oe}^{-1}$, 而 LSMO-PZT 的仅为 $165 \text{ mVcm}^{-1} \text{ Oe}^{-1}$ ($10e = 80 \text{ A/m}$). 将 LSMO-PZT 中横向 ME 电压系数随偏置磁场 H 变化的理论值与实验结果进行对照, 其界面耦合参数 k 为 0.2. 研究结果表明, 优异的磁致伸缩性能、合适的体积分数、良好的界面耦合是影响 ME 效应的关键因素.

关键词: 磁电效应, 双层膜, TDF, LSMO, PZT

PACC: 7580, 7760, 7550

1. 引 言

磁电效应是材料在磁场的作用下产生电极化, 或在电场中产生磁化的现象. 磁电效应材料因为兼有铁磁和铁电性能, 在传感器制备领域具有广阔的应用前景, 一直备受关注^[1]. 磁电效应发生于磁偶极子和电偶极子共存的材料中, 能产生磁电效应的材料可分为单相和复合材料. 磁电效应最早是在低温下反铁磁性单晶 Cr_2O_3 中观察到的^[2,3]. 随后发现其他单晶如 BiFeO_3 和 BaMnF_4 等也存在磁电效应. 单相材料的磁电性能很低, 且大多只能在低温下才能被明显观测到, 因此没有实际应用价值.

Van Suchtelen 首先引入具有乘积效应 (product properties) 的复合材料来实现磁电效应^[4]. 在铁磁-铁电 (或磁致伸缩-压电) 两相组成的复合材料中, 磁致伸缩相在磁场中发生弹性形变, 此形变通过界面耦合至压电相, 经由压电效应引起电介质的极化. 复合材料的磁电效应 (magnetolectric effect) 可表示为^[5]

$$\text{磁电} = \frac{\text{磁}}{\text{机械}} \times \frac{\text{机械}}{\text{电}}$$

由上式可知, 为获得优良的磁电效应, 必须选择单相效应强的磁致伸缩相和压电相. 对于铁磁相, 目前常选用 $\text{Ni}(\text{Co}, \text{Mn})\text{Fe}_2\text{O}_4$, $\text{Tb}_{1-x}\text{Dy}_x\text{Fe}_{2-y}$ (Terfenol-D) 等磁致伸缩较大的材料; 对于铁电相, 常选用 BaTiO_3 , PZT 等压电系数较高的材料. 至今已制备出多类 ME 复合材料, 其中既有块材, 如 $\text{Ni}(\text{Co}, \text{Mn})\text{Fe}_2\text{O}_4\text{-BaTiO}_3$ ^[6,7], TDF/PVDF-PZT/PVDF^[8], TDF/epoxy-PZT^[9]; 也有多层复合物, 如 Terfenol-D-PZT^[10-13], $\text{NiFe}_2\text{O}_4\text{-PZT}$ ^[14,15]等.

由于影响复合材料磁电转化的因素很多, 如各个单相组元的性能、铁电铁磁相的体积比、界面间的耦合状态, 所以需要建立一定的物理模型进行理论计算, 对磁电效应的变化规律进行研究. 目前主要分析方法有弹性力学方法、Green 函数方法、等效电路方法. Nan 的理论框架是在 Green 函数模型和微扰理论的基础上建立的, 主要是解释磁电感应的机理^[5]. Liu 等人用数字技术模拟材料内部的机械耦合, 侧重于磁电耦合输出的最大化^[16]. Dong 等人在弹性力学方法的基础上引入动力学方程, 得到层合材料等效电路, 从而可以分析材料的磁电响应特性^[17]. Harshe 及其合作者基于双层结构提出弹性力

^{*} 国家自然科学基金 (批准号: 10674071) 资助的课题.

[†] 通讯联系人. E-mail: zhangning@njnu.edu.cn

学理论模型,并假设界面耦合是理想的.根据此模型计算了 CFO-PZT(或 BTO)的纵向 ME 电压系数在 $0.2\text{--}5\text{ Vcm}^{-1}\text{Oe}^{-1}$ 之间,其值与场的取向、边界条件及单相材料参数有关.并制备了相关样品进行测量^[18,19]. Bichurin, Petrov 和 Srinivasan 在弹性力学模型的基础上,将层合材料看作同一均匀介质,推导出 ME 电压系数的表达式,据此模型计算了一些磁电层合结构的 ME 电压系数的理论值,并和实验结果进行了对照^[20-24].

本文采用弹性力学模型,基于磁致伸缩相与压电相的本构方程,对自由状态的磁电双层膜的层间耦合进行了分析,简要介绍了如何推导纵向(longitudinal)、横向(transverse) ME 电压系数.对 $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3\text{-Pb}(\text{Zr,Ti})\text{O}_3(\text{LSMO-PZT})$, $\text{Tb}_{1-x}\text{Dy}_x\text{Fe}_{2-y}$ (TDF)-PZT 磁电双层膜的 ME 电压系数进行了理论计算,并讨论了其与一些相关参数之间的关系.

2. 理论推导

如图 1 所示,为磁致伸缩相和压电相组成的磁电耦合双层膜.坐标系的 1,2 轴位于层平面内,3 轴沿厚度方向.压电相的极化方向沿 3 轴.为测量双层膜的动态磁电效应,定义 ME 电压系数 $\alpha_E = \delta E / \delta H$,并有两种不同的磁场方向.横向 ME 电压系数 $\alpha_{E,31} = \delta E_3 / \delta H_1$ 对应于偏置磁场 H 与交变磁场 δH 互相平行且沿 1 轴,而沿厚度方向测量产生的交变

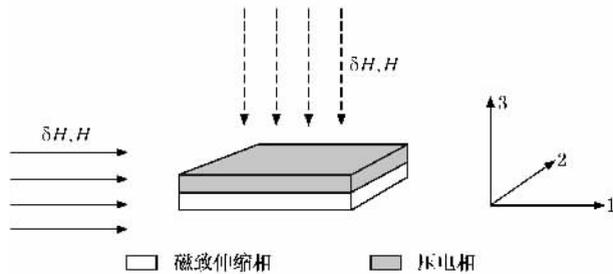


图 1 磁致伸缩-压电相双层膜结构示意图

电场 δE . 纵向 ME 电压系数 $\alpha_{E,33} = \delta E_3 / \delta H_3$ 对应于三个场互相平行且皆沿 3 轴.

在推导中,对于自由状态(无夹持)的双层膜,假设无弯曲变形且沿厚度方向应力不变.极化后的压电相对于极化轴具有 ∞m 对称性,其本构方程为

$$\begin{aligned} S_i &= s_{ij}T_j + d_{ki}E_k, \\ D_k &= d_{ki}T_i + \epsilon_{kn}E_n. \end{aligned} \quad (1)$$

磁致伸缩相具有立方($m3m$)对称性,其本构方程为

$$\begin{aligned} S_i &= s_{ij}T_j + q_{ki}H_k, \\ B_k &= q_{ki}T_i + \mu_{kn}H_n, \end{aligned} \quad (2)$$

式中 T, S 为二阶应力、应变张量, E, D, H 和 B 分别为电场强度、电位移、磁场强度和磁感应强度矢量, s, d, q, ϵ 和 μ 为单相的弹性柔度系数、压电系数、压磁系数、介电常数和磁导率,分别为四阶、三阶、三阶、二阶和二阶张量.

对于纵向 ME 效应,有 ${}^pE_1 = {}^pE_2 = 0$, 由(1)式有

$$\begin{aligned} {}^pS_1 &= {}^ps_{11}{}^pT_1 + {}^ps_{12}{}^pT_2 + {}^ps_{13}{}^pT_3 + {}^pd_{31}{}^pE_3, \\ {}^pS_2 &= {}^ps_{21}{}^pT_1 + {}^ps_{22}{}^pT_2 + {}^ps_{23}{}^pT_3 + {}^pd_{32}{}^pE_3, \\ {}^pD_3 &= {}^pd_{31}{}^pT_1 + {}^pd_{32}{}^pT_2 + {}^pd_{33}{}^pT_3 + {}^p\epsilon_{33}{}^pE_3. \end{aligned} \quad (3)$$

又因为 ${}^mH_1 = {}^mH_2 = 0$, 由(2)式得到

$$\begin{aligned} {}^mS_1 &= {}^ms_{11}{}^mT_1 + {}^ms_{12}{}^mT_2 + {}^ms_{13}{}^mT_3 + {}^mq_{31}{}^mH_3, \\ {}^mS_2 &= {}^ms_{21}{}^mT_1 + {}^ms_{22}{}^mT_2 + {}^ms_{23}{}^mT_3 + {}^mq_{32}{}^mH_3. \end{aligned} \quad (4)$$

由于晶体对称性,减少了系数张量的独立分量个数.其非零分量有如下的关系:

$$\begin{aligned} {}^ps_{11} &= {}^ps_{22}, {}^ps_{12} = {}^ps_{21}, {}^ms_{11} = {}^ms_{22}, \\ {}^ms_{12} &= {}^ms_{21}, {}^pd_{31} = {}^pd_{32}, {}^mq_{31} = {}^mq_{32}. \end{aligned} \quad (5)$$

假设层间为理想耦合,并且在开路情况下,3 方向的电位移为零.则有如下力学、电学边界条件:

$$\begin{aligned} {}^mT_3 &= {}^pT_3 = 0, {}^mS_i = {}^pS_i, \\ {}^mT_i(1-v) + {}^pT_iv &= \alpha \quad (i = 1, 2), {}^pD_3 = 0 \end{aligned} \quad (6)$$

这里 $n(p)$ 分别指代磁致伸缩相与压电相. $v = {}^pv / ({}^pv + {}^mv)$ 表示压电相的体积分数, ${}^mv, {}^pv$ 分别表示 m 相和 p 相的体积. 利用(5)和(6)式,将(3)和(4)式化简可得到纵向 ME 电压系数

$$\alpha'_{E,33} = \frac{{}^pE_3}{{}^mH_3} = \frac{-\alpha(1-v){}^pd_{31}{}^mq_{31}}{({}^ms_{11} + {}^ms_{12}){}^p\epsilon_{33}v + ({}^ps_{11} + {}^ps_{12}){}^p\epsilon_{33}(1-v) - \alpha({}^pd_{31})^2(1-v)}. \quad (7)$$

对于横向 ME 效应,因为 ${}^mH_2 = {}^mH_3 = 0$, 故将(2)式展开为

$${}^mS_1 = {}^ms_{11}{}^mT_1 + {}^ms_{12}{}^mT_2 + {}^ms_{13}{}^mT_3 + {}^mq_{11}{}^mH_1,$$

$${}^mS_2 = {}^ms_{21}{}^mT_1 + {}^ms_{22}{}^mT_2 + {}^ms_{23}{}^mT_3 + {}^mq_{12}{}^mH_1. \quad (8)$$

系数张量同样有以下关系:

$${}^ps_{11} = {}^ps_{22}, {}^ps_{12} = {}^ps_{21}, {}^ms_{11} = {}^ms_{22},$$

$${}^m s_{12} = {}^m s_{21}, {}^p d_{31} = {}^p d_{32}. \quad (9) \quad \text{磁电系数}$$

利用(6)和(9)式,将(3)和(8)式化简可得到横向 ME

$$\alpha'_{E,31} = \frac{{}^p E_3}{{}^m H_1} = \frac{-(1-v)(\chi^m q_{11} + {}^m q_{12})d_{31}}{({}^m s_{11} + {}^m s_{12})\epsilon_{33}v + ({}^p s_{11} + {}^p s_{12})\epsilon_{33}(1-v) - \chi^p d_{31}(1-v)}. \quad (10)$$

在上面纵向 ME 系数的推导中,忽略了磁致伸缩相磁导率的影响,以及由于退磁场导致的 ME 效应的减弱.故将压电、压磁相复合在一起看作同一的均匀介质,得到以下磁、电、弹耦合方程:

$$\begin{aligned} S_i &= s_{ij}T_j + d_{ki}E_k + q_{ki}H_k, \\ D_k &= d_{ki}T_i + \epsilon_{kn}E_n + \alpha_{kn}H_n, \\ B_k &= q_{ki}T_i + \alpha_{kn}E_n + \mu_{kn}H_n, \end{aligned} \quad (11)$$

其中的系数转化为复合材料的有效系数, α_{im} 为磁电系数.考虑到真实界面的耦合是非理想的,引入界面耦合参数 $k = ({}^p S_i - {}^p S_{i0})({}^m S_i - {}^p S_{i0}) (i = 1, 2)^{[21]}$, ${}^p S_0$ 是层间无摩擦时的应变张量. $k = 1$ 表示理想耦合, $k = 0$ 表示无摩擦.从而得到纵向、横向 ME 电压系数^[20]

$$\alpha_{E,33} = \frac{E_3}{H_3} = \frac{-2\mu_0 kv(1-v)d_{31}{}^m q_{31}}{2k({}^p d_{31})^2(1-v) + {}^p \epsilon_{33}[({}^p s_{11} + {}^p s_{12})(\chi v - 1) - kv({}^m s_{11} + {}^m s_{12})]} \times \frac{[({}^p s_{11} + {}^p s_{12})(\chi v - 1) - kv({}^m s_{11} + {}^m s_{12})]}{[\mu_0(v-1) - {}^m \mu_{33}v + kv({}^m s_{11} + {}^m s_{12}) - ({}^p s_{11} + {}^p s_{12})(\chi v - 1)] + 2k({}^m q_{31})^2 v^2}, \quad (12)$$

$$\alpha_{E,31} = \frac{E_3}{H_1} = \frac{-kv(v-1)(\chi^m q_{11} + {}^m q_{12})d_{31}}{{}^p \epsilon_{33}({}^m s_{11} + {}^m s_{12})kv + {}^p \epsilon_{33}({}^p s_{11} + {}^p s_{12})(\chi(1-v) - \chi^p d_{31})k(1-v)}. \quad (13)$$

(12)及(13)式综合了体积和界面因素对磁电耦合的影响,因此,我们利用此两式计算两种磁电双层膜的 ME 电压系数,研究层间的磁电耦合.

平行磁致伸缩系数 λ_{11} 要比垂直系数 $\lambda_{12}(\lambda_{13})$ 大到几倍,LSMO 也是如此.在磁场 1.5 kOe 附近, λ 基本达到饱和.

3. 结果与讨论

3.1. La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃-Pb(Zr,Ti)O₃(LSMO-PZT) 双层膜

锰钙钛矿 La_{1-x}M_xMnO₃ (M = Ca, Sr, Ba 等)由于双交换作用具有铁磁性及金属导电性.此外,由于其结构及热力学性质与同样具有钙钛矿结构的 PZT 相适配,使得其可以作为磁电复合材料中的磁致伸缩相^[25].

磁致伸缩系数 λ 是反映 ME 耦合特性的重要磁性参数.由前面的推导可知,ME 耦合的强弱直接正比于压磁系数 $q = \delta\lambda/\delta H$, H 为偏置磁场强度.图 2 显示了双层膜中的 LSMO 样品的磁致伸缩系数 λ 随偏置磁场 H 的变化.这些数据是由标准张力计(应变片)获得的.根据磁场相对于主轴方向的变化分别将磁致伸缩系数记为 $\lambda_{11}, \lambda_{12}, \lambda_{13}$.大部分材料的

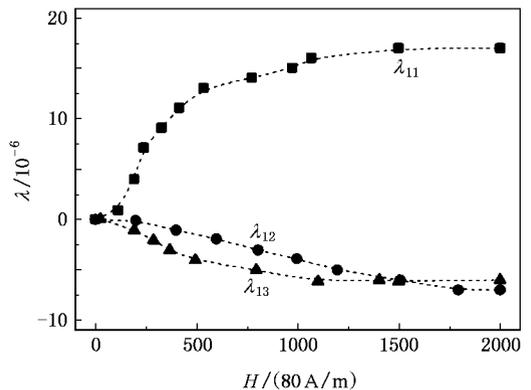


图 2 La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃ 的磁致伸缩系数 λ 随偏置磁场 H 的变化曲线

图 3 是 LSMO-PZT 双层膜在一系列 k 值下的横向、纵向 ME 电压系数的峰值 $\alpha_{E,peak}$, 与压电相的体积分数 v 的关系.采用的材料参数如下^[21]:

$$\begin{aligned} \text{LSMO } {}^m s_{11} &= 15 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}, \\ {}^m s_{12} &= -5 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N}, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mu_{33}^m / \mu_0 &= 3 ; \\ \text{PZT } p_{31} &= 15.3 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N} , \\ p_{32} &= -5 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{N} , \\ p_{33} &= 1750 \epsilon_0 , \\ d_{31} &= -175 \times 10^{-12} \text{ m/V} . \end{aligned}$$

压磁系数 q 可由图 2 中的 λ 随 H 变化的曲线获得.

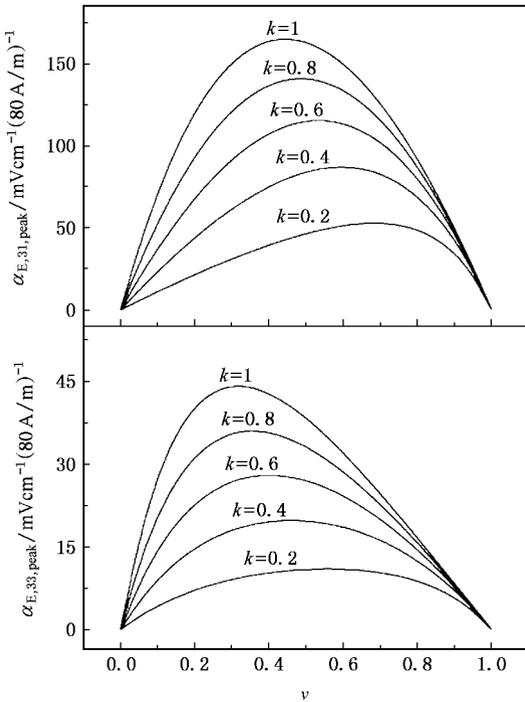


图 3 LSMO-PZT 双层膜在一系列 k 取值下的 ME 电压系数的峰值与压电相的体积分数 v 的关系

由图 3 可见,对于横向磁电效应,当 $v = 0$ 或 $v = 1$,即仅有磁致伸缩相或压电相是没有磁电耦合的.随着 v 的增加 $\alpha_{E,31,peak}$ 逐渐增大,在 v_m 下达到最大值, v_m 指的是在某一 k 值下,ME 电压系数峰值的最大值所对应的体积分数.随着 v 的进一步增加,磁电耦合又逐渐减弱至零.在不同的耦合参数 k 下, $\alpha_{E,31,peak}$ 随 v 的变化情况是一致的.随 k 值的降低,磁电耦合的强度不断减弱,即 $\alpha_{E,31,peak}$ 的最大值逐渐减小,而对应的 v_m 向着 PZT 含量高的一侧偏移.对于纵向磁电效应, $\alpha_{E,33,peak}$ 与 v, k 的关系具有与横向相似的特征.比较图 3 中的横向、纵向 ME 系数,我们发现,在 LSMO-PZT 双层膜中,横向耦合远大于纵向耦合, $\alpha_{E,31,peak}$ 是 $\alpha_{E,33,peak}$ 的 3—5 倍,正如其他许多磁电双层膜.

图 4 进一步分析了 LSMO-PZT 中 ME 电压系数峰值的最大值 $\alpha_{E,amax}$ 及 v_m 随 k 值的变化情况,可见,随着 k 的增加, $\alpha_{E,amax}$ 呈近线性增长,而对应的 v_m 逐渐降低.在同样的耦合系数 k 下, $\alpha_{E,31,amax}$ 对应的 v_m 略大于 $\alpha_{E,33,amax}$.

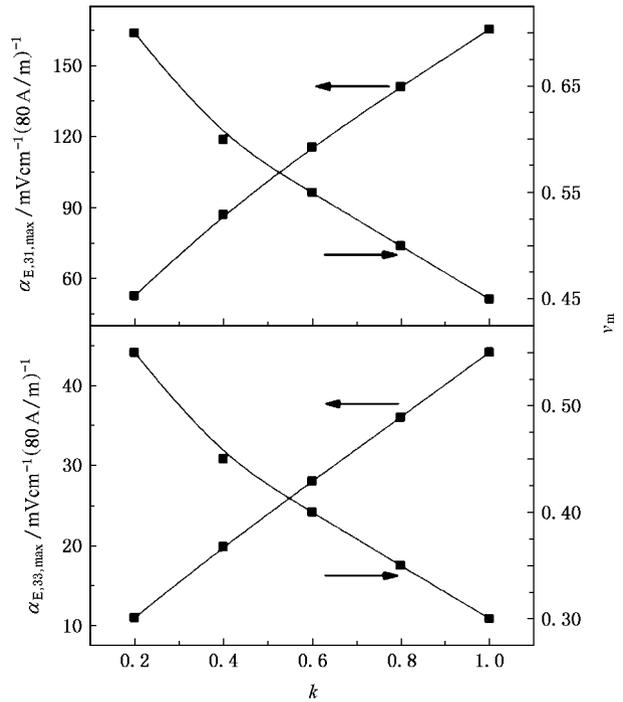


图 4 LSMO-PZT 双层膜中 ME 电压系数峰值的最大值 $\alpha_{E,amax}$ 和相应的 v_m 随 k 值的变化

图 5 是 LSMO-PZT 双层膜在不同 k 值下 $\alpha_{E,31}, \alpha_{E,33}$ 随偏置磁场 H 的变化曲线,取 $v = 0.5$,对应于相等体积的压电相与磁致伸缩相.由图可见,随着 H 的增加, $\alpha_{E,31}$ 迅速增大并在 200 Oe 处达到最大值,随着 H 的进一步增加, $\alpha_{E,31}$ 很快下降,逐渐减小到零. $\alpha_{E,33}$ 随 H 的变化表现出与 $\alpha_{E,31}$ 相似的特性,但是 $\alpha_{E,33}$ 的峰值出现在更高的磁场下,而且峰值远小于 $\alpha_{E,31}$.将文献 [26] 中的实验数据与图 5 中的理论曲线进行比较,发现与 $k = 0.2$ 的理论值在峰值和变化上都非常符合^[26].

由上面的分析可知,磁电双层膜的横向耦合远大于纵向耦合,因此在下面的研究中,我们仅讨论横向磁电耦合.

3.2. Tb_{1-x}Dy_xFe_{2-y}(TDF)-PZT 双层膜

稀土三元系合金 Tb_{1-x}Dy_xFe_{2-y}(TDF)是近年来发展出的超大磁致伸缩材料,由于其具有较高的铁

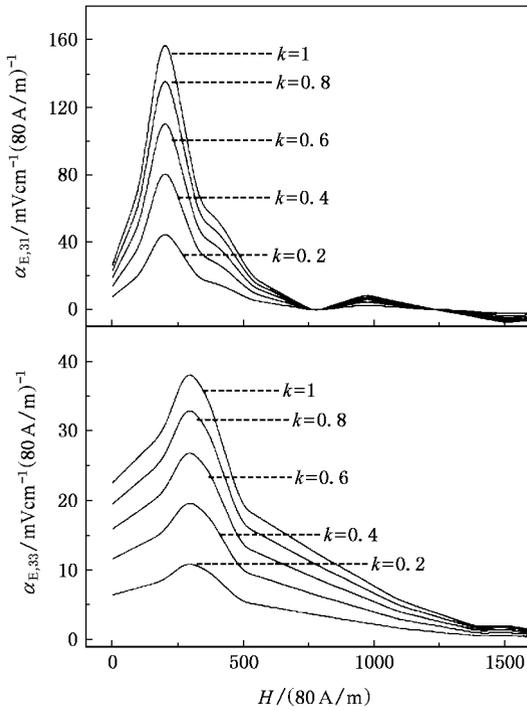


图 5 不同 k 值下 LSMO-PZT 双层膜中 ME 电压系数 α_E 随偏置磁场 H 的变化曲线 ($v = 0.5$)

磁-顺磁转变居里点和超大的磁致伸缩效应,已成为磁电效应器件中磁致伸缩相的一个理想的选择。

图 6 是 $Tb_{1-x}Dy_xFe_{2-y}$ 的磁致伸缩系数 λ 随偏置磁场 H 的变化曲线。测量方法见上文。由图可见,与 LSMO 相比较,TDF 的确表现出超大的磁致伸缩,在 3000 Oe 处磁致伸缩系数可达 $\lambda_{11} \approx 1500 \times 10^{-6}$ 。

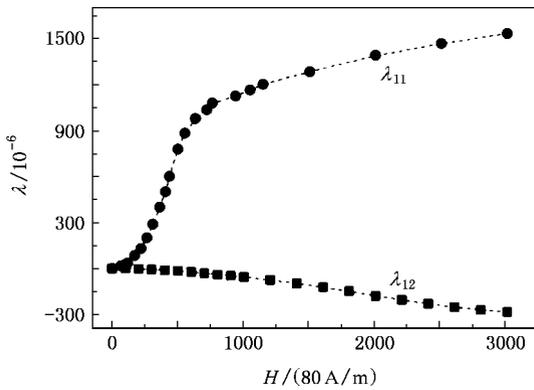


图 6 $Tb_{1-x}Dy_xFe_{2-y}$ 的磁致伸缩系数 λ 随偏置磁场 H 的变化曲线

图 7 (a) 是 TDF-PZT 双层膜在一系列 k 值下的横向 ME 电压系数的峰值 $\alpha_{E,31,peak}$ 与压电相的体积分数 v 的关系。采用的材料参数如下^[27]：

$$TDF \quad {}^m s_{11} = 12.5 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{N},$$

$${}^m s_{12} = -1.7 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{N}.$$

压磁系数 q 由图 6 中 λ 随 H 变化的曲线获得。图 7 (b) 分析了横向 ME 电压系数峰值的最大值 $\alpha_{E,31,max}$ 及 v_m 随 k 值的变化情况。图 7 中的横向曲线与 LSMO-PZT 双层膜的横向曲线具有相似的特征。但是在相同的 k 值下,由于 TDF 的超大磁致伸缩,TDF-PZT 双层膜的 $\alpha_{E,31,max}$ 远大于 LSMO-PZT。

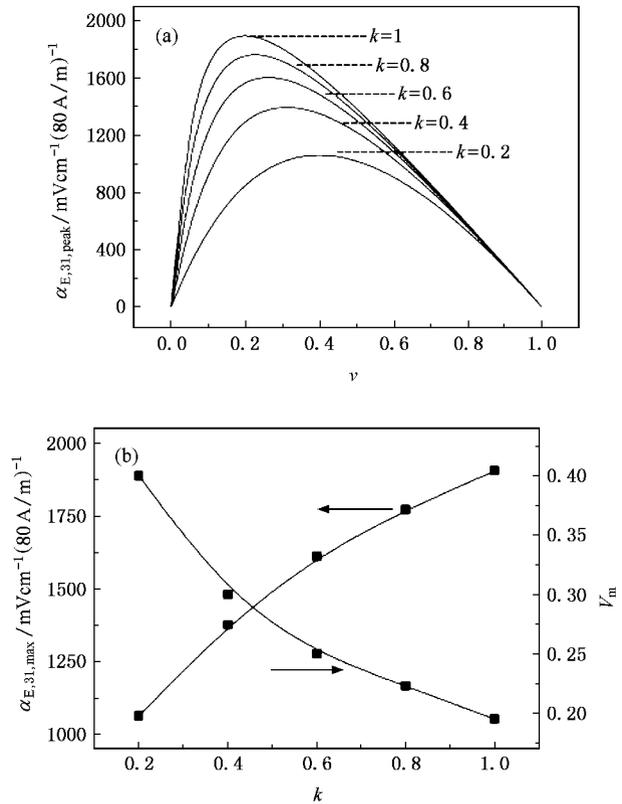


图 7 (a) 不同 k 值下 TDF-PZT 双层膜的横向 ME 电压系数的峰值与压电相体积分数 v 的关系;(b) TDF-PZT 双层膜中横向 ME 电压系数峰值的最大值 $\alpha_{E,31,max}$ 和相应的 v_m 随 k 值的变化

图 8 是 TDF-PZT 双层膜在不同 k 值下 $\alpha_{E,31}$ 与偏置磁场 H 的关系曲线。因为由图 7 可见, $\alpha_{E,31,max}$ 出现的体积分数较小,所以在计算中取 $v = 0.4$ 。由图 8 可知,随着 H 的增加, $\alpha_{E,31}$ 迅速增大,在 400 Oe 处达到最大值,随着 H 的进一步增加, $\alpha_{E,31}$ 迅速下降,逐渐减小到零。

在上述两种磁电双层膜中,ME 电压系数 α_E 随偏置磁场 H 的变化情况可从 λ 随 H 的变化中得到解释。由 (12) 和 (13) 式可知,ME 电压系数与压磁系数 $q = \delta\lambda/\delta H$ 成正比。在横向、纵向 ME 效应中,随着偏置磁场 H 的增加,当磁致伸缩达到接近饱和,引起压磁系数 $q \approx 0$,使 ME 效应在较高磁场下大幅

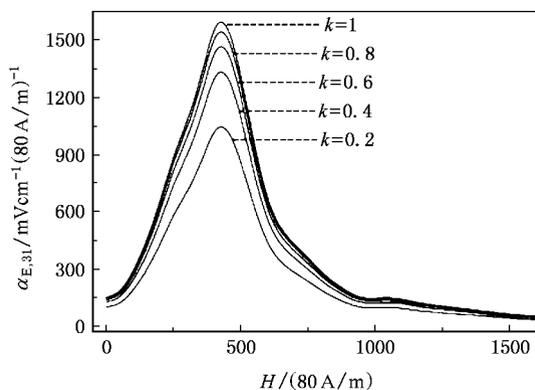


图 8 不同 k 值下 TDF-PZT 双层膜中横向 ME 电压系数 $\alpha_{E,31}$ 随偏置磁场 H 的变化曲线 ($v = 0.4$)

$$v_m = \frac{2k \left({}^p d_{31} \right)^2 - {}^p \epsilon_{33} \left({}^p s_{11} + {}^p s_{12} \right) + \sqrt{k {}^p \epsilon_{33} \left({}^m s_{11} + {}^m s_{12} \right) \left[{}^p \epsilon_{33} \left({}^p s_{11} + {}^p s_{12} \right) - 2k \left({}^p d_{31} \right)^2 \right]}}{{}^p \epsilon_{33} \left[\left({}^m s_{11} + {}^m s_{12} \right) k - \left({}^p s_{11} + {}^p s_{12} \right) \right] + 2k \left({}^p d_{31} \right)^2}. \quad (14)$$

$\alpha_{E,31}$ 的最大值出现于不同的偏置磁场下,分别为 400 2000e. 这是由于 TDF,LSMO 具有不同的磁致伸缩性能,在此磁场下达到压磁系数的最大值. 将 LSMO-PZT 的实验结果与理论值进行比较,得到耦合参数 k 为 0.2,说明 LSMO-PZT 的界面耦合状态不尽理想,这与文献的结论是一致的^[23].

4. 结 论

综上所述,在弹性力学模型下,通过对 LSMO-PZT,TDF-PZT 两种磁电双层膜层间耦合的分析,可以得出以下结论:

1. TDF-PZT 双层膜中具有很强的 ME 效应,横向 ME 电压系数远大于 LSMO-PZT 双层膜.

减小. 又因为平行压磁系数远大于垂直压磁系数,使横向 $\alpha_{E,31}$ 远大于纵向 $\alpha_{E,33}$. 又由上两式可知,随界面耦合参数 k 的减小,ME 系数也呈现逐渐减小的变化趋势.

比较两种双层膜的磁电耦合可见,虽然采用同样的压电材料 PZT,而不同的磁致伸缩相造成 ME 耦合的差异. 由于 TDF 的超大磁致伸缩效应,TDF-PZT 的磁电耦合远大于 LSMO-PZT 双层膜. 在 $k = 1$ 理想界面耦合下,TDF-PZT 的 $\alpha_{E,31,max}$ 达到 $1.9 \text{ Vcm}^{-1} \text{ Oe}^{-1}$,而 LSMO-PZT 的仅为 $165 \text{ mVcm}^{-1} \text{ Oe}^{-1}$. 又因为材料参数 ${}^m s_{11}$, ${}^m s_{12}$ 的不同,在 $k = 1$ 时,其最大值对应的体积分数 v_m 不同,分别为 0.20,0.45.

推导出 v_m 的表达式如下:令 $\frac{\delta \alpha_{E,31}}{\delta v} = 0$,得到

2. 横向、纵向 ME 电压系数随着压电相体积分数 v 的增加,由零逐渐变大,在 v_m 下达到最大值,再逐渐减小到零,具有相同的变化趋势.

3. 随着界面耦合参数 k 的增加,ME 电压系数逐渐增大,其最大值与 k 成近似线性关系,而其对应的 v_m 不断下降.

4. 将 LSMO-PZT 双层膜的 ME 电压系数与偏置磁场的关系曲线与实验对照,发现实验结果与 $k = 0.2$ 的理论值在峰值和变化上都非常符合. 通过对两种磁电双层膜的分析表明:优异的磁致伸缩性能、合适的体积比、良好的界面耦合是获得强 ME 效应的关键因素,此项研究对于设计与制造高性能的磁电器件具有一定的指导意义.

- [1] Busch-Vishniac I J 1998 *Phys. Today* **51** 28
- [2] Folen V J, Rado G T, Stalder E W 1961 *Phys. Rev. Lett.* **6** 607
- [3] Rado G T, Folen V J 1961 *Phys. Rev. Lett.* **7** 310
- [4] Suchtelen J Van 1972 *Phillips Res. Rep.* **27** 28
- [5] Nan C W 1994 *Phys. Rev. B* **50** 6082
- [6] Boomgaard J van den, Born R A J 1978 *J. Mater. Sci.* **13** 1538
- [7] Boomgaard J van den, Run A M J G Van, Suchtelen J Van 1976 *Ferroelectrics* **10** 295
- [8] Shi Z, Nan C W 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 2766 (in Chinese) [施展、南策文 2004 物理学报 **53** 2766]

- [9] Zhou J P, Shi Z, Liu G, He H C, Nan C W 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 3766 (in Chinese) [周剑平、施展、刘刚、何泓材、南策文 2006 物理学报 **55** 3766]
- [10] Ryu J, Carazo A V, Uchino K, Kim H E 2001 *Jpn. J. Appl. Phys.* **40** 4948
- [11] Ryu J, Priya S, Carazo A V, Uchino K, Kim H E 2001 *J. Am. Ceram. Soc.* **84** 2905
- [12] Wan H, Xie L Q, Wu X Z, Liu X C 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3872 (in Chinese) [万红、谢立强、吴学忠、刘希从 2005 物理学报 **54** 3872]

- [13] Yang F , Wen Y M , Li P , Zheng M , Bian L X 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 3539 (in Chinese) [杨帆、王玉梅、李平、郑敏、卞雷祥 2007 物理学报 **56** 3539]
- [14] Srinivasan G , Rasmussen E T , Gallegos J , Srinivasan R 2001 *Phys. Rev. B* **64** 214408
- [15] Zhang R , Wang M , Zhang N , Srinivasan G 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2548 (in Chinese) [张茹、王森、张宁、Srinivasan G 2006 物理学报 **55** 2548]
- [16] Liu Y X , Wan J G , Liu J M , Nan C W 2003 *J. Appl. Phys.* **94** 5111
- [17] Dong S X , Li J F , Viehland D 2003 *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control* **50** 1253
- [18] Harshe G , Dougherty J P , Newnham R E 1993 *Int. J. Appl. Electromagn. Mater.* **4** 145
- [19] Avellaneda M , Harshe G 1994 *J. Intell. Mater. Sys. Struct.* **5** 501
- [20] Bichurin M I , Petrov V M , Srinivasan G 2002 *J. Appl. Phys.* **92** 7681
- [21] Bichurin M I , Petrov V M , Srinivasan G 2003 *Phys. Rev. B* **68** 54402
- [22] Bichurin M I , Petrov V M , Srinivasan G 2002 *Ferroelectrics* **280** 165
- [23] Srinivasan G , Rasmussen E T , Levin B J , Hayes R 2002 *Phys. Rev. B* **65** 134402
- [24] Srinivasan G , Rasmussen E T , Hayes R 2003 *Phys. Rev. B* **67** 14418
- [25] Ramirez A P 1997 *J. Phys. : Condens. Matter* **9** 8173
- [26] Zhang N , Yin X M , Wang M , Schneider T , Srinivasan G 2006 *Chin. Phys. Lett.* **23** 463
- [27] Bayrashev A , Robbins W P , Ziaie B 2004 *Sensors and Actuators A* **114** 244

Elastomechanical study of interface coupling in magnetoelectric bilayers *

Cao Hong-Xia Zhang Ning[†]

(*Magnetoelctronic Lab , Nanjing Normal University , Nanjing 210097 , China*)

(Received 22 September 2007 ; revised manuscript received 17 October 2007)

Abstract

A theoretical model is introduced to derive the ME voltage coefficients of bilayer in free state according to the constitutive equations of magnetostrictive and piezoelectric phases. Using this model , the ME voltage coefficients of $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LSMO)-PZT and $\text{Tb}_{1-x}\text{Dy}_x\text{Fe}_{2-y}$ (TDF)-PZT bilayers have been calculated and analyzed using the corresponding material parameters of individual phases. The results show that the ME voltage coefficient increases to a maximum at a given volume fraction of piezoelectric phase. With increasing interface coupling parameter k , an approximately linear increase of the maximum ME voltage coefficient have been observed. The maximum ME voltage coefficient for TDF-PZT bilayer reaches $1.9 \text{ Vcm}^{-1} \text{Oe}^{-1}$, while for LSMO-PZT bilayer , the maximum value is only $165 \text{ mVcm}^{-1} \text{Oe}^{-1}$. The theoretical results of ME voltage coefficients versus bias magnetic field for LSMO-PZT bilayer have been found to agree well with the measured data when $k = 0.2$. Analysis shows that large magnetostriction , appropriate volume fraction and adequate interface coupling are key factors for obtaining excellent ME performance.

Keywords : magnetoelectric effect , bilayer , TDF , LSMO , PZT

PACC : 7580 , 7760 , 7550

* Project supported by the National Natural Science Foundations of China (Grant No 10674071).

[†] Corresponding author. E-mail : zhangning@njnu.edu.cn