

异型磁体/铁电复合材料中的电致变磁导 及电致变阻抗效应^{*}

高剑森¹⁾ 张 宁^{2)†}

1) 宿迁学院基础教学部, 宿迁 223800)

2) 南京师范大学物理科学与技术学院, 南京 210097)

(2009 年 1 月 4 日收到, 2009 年 4 月 28 日收到修改稿)

利用应力变磁导与电致伸缩效应的乘积效应, 设计和制备了一种新型的异型磁体/铁电复合材料, 并研究了该材料的电磁耦合特性. 在 5 kV/cm 的恒定电场下, 观察到接近 40% 的电致变磁导(电感)及相应的电致变阻抗效应存在于一个较宽的频域(50—1 × 10⁵ Hz)上. 该电致变磁导(电感)及电致变阻抗显示了铁磁弛豫和铁电弛豫的联合效应. 研究认为, 该异型复合材料所显示的所有电磁耦合行为均可归因于电场诱导的材料中磁体内部应力场的变化.

关键词: 电磁耦合, 异型复合材料, 应力变磁导, 电致伸缩

PACC: 7580, 7760, 7550B

1. 引 言

磁电或电磁耦合材料由于在传感器或换能器制备领域具有广泛的应用而历来备受重视^[1]. 由于铁磁性和铁电性同时存在于磁电或电磁材料中并相互耦合, 使得有可能实现磁致极化有序或电致磁有序. 鉴于类似 Cr₂O₃ 及 Y(Ho)MnO₃ 等单相物质中磁电(电磁)耦合非常之弱, 且显示磁电(电磁)效应的温度通常又较低, 因此这类物质并不适于实际应用^[2-6].

理论及实验均证明, 借助压电效应与磁致伸缩效应的乘积效应, 铁磁/铁电交替层状复合材料可以表现出优越的磁电效应. 这类材料近年来已有广泛研究^[7-14]. 但同类材料的电磁效应研究却较少见诸报道^[15-17]. 然而探索一种无线圈的可由电场控制的电磁效应材料不仅在理论上而且在实际应用中都有其必要. 层状结构材料中的电磁效应被证明源于电致伸缩与应力压磁效应的乘积效应. 对于磁体, 特别是高磁导磁体, 其磁导率 μ 比其磁致伸缩系数 λ 对外加磁场 H 或应力 σ 的响应通常更为灵敏^[18, 19]. 换言之, 其压(或应力)磁导效应 $\partial\mu/\partial\sigma$ 要远大于其

压磁效应 $\partial\lambda/\partial H$ ^[10]. 因此高磁导磁体更适合用于制备电磁复合材料.

另一方面, 利用梯度铁电体制备磁电材料的工作近年来广受关注^[13, 14]. 因为梯度铁电体可以更有效的将界面应力梯度转化为铁电体表面电场的变化. 根据这一思路, 我们设计并制备了利用梯度磁体构成的电磁复合材料. 异型结构的磁体可以被认为是某种梯度磁体. 实验证明, 具有封闭磁路的异型磁体有比开放磁路磁体高得多的应力变磁导效应. 封闭磁路磁体可以首先将外加应力转变为自身内部的应力梯度或应力场, 再将该应力场的变化转化为磁导率的变化.

本文报道一个由高磁导磁环与条状电致伸缩材料组成的异型复合材料的电磁耦合行为以及相关的电致变电感及电致变阻抗效应.

2. 器件描述

磁环由初始磁导率为 5000—15000 的锰锌铁氧体构成. 锰锌铁氧体属亚铁磁材料, 以下简称为磁体. 磁环的内径为 7 mm, 外径为 12 mm, 厚为 2.2 mm. 采用 PbZr_{1-x}Ti_xO₃ (PZT) 为电致伸缩材料.

^{*} 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

条状 PZT 的尺寸为 $1.5 \text{ mm} \times 7 \text{ mm} \times 2.2 \text{ mm}$. 将条状 PZT 以滑动配合方式装配进磁环内并用胶水固定, 以免引起磁环与 PZT 之间的预置应力. 值得提及的是, 固定是否牢固将会引起不同的结果. 因为不仅要考虑到 PZT 的“伸”, 亦要考虑到其“缩”. 在固定不牢固的情况下, 伸缩很可能是不对称的. 在磁环上绕一个 10—20 圈的探测线圈, 如图 1 所示. 通过测量探测线圈的电感可获知磁导率的变化. 由于本研究中采用交流电桥测量电感及阻抗, 因此在测量的同时交流电桥也将附加给探测线圈以及铁磁环一个交流场.

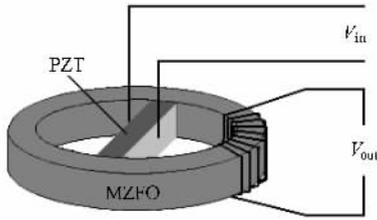


图 1 异型高磁导磁体/铁电复合磁电效应材料结构草图

3. 复合材料电致变磁导的理论估计

电致变磁导系数可定义为

$$\alpha_\mu = \partial\mu/\partial E, \quad (1)$$

于是磁导率的变化可表示为 $\Delta\mu = \alpha_\mu \Delta E$. 考虑到这里的电致变磁导是电致伸缩 $\partial\sigma/\partial E$ 和应力变磁导 $\partial\mu/\partial\sigma$ 的乘积效应, 则电致变磁导系数又可表示为 $\alpha_\mu = (\partial\mu/\partial\sigma) (\partial\sigma/\partial E)$, 其中 σ 是指条状压电体中的应力, 而 σ_1 是指磁环中的应力. 由于磁环中的应力大小和方向逐点不同, 因此一般情况下有 $\sigma_1 \neq \sigma$, 但根据作用力等于反作用力, 可以近似地假设各点的应力大小相互成正比. 于是, 对磁环中的某一点, 则可以有 $\sigma_1 = \gamma\sigma$, 其中 γ 为比例系数. 于是有

$$\alpha_\mu = (\partial\mu/\partial\sigma) (\partial\sigma/\partial E) \gamma. \quad (2)$$

而垂直于铁电体表面电场的电致伸缩可写为 $\partial\sigma/\partial E = \epsilon_0 \epsilon_r / d_{31}$, 其中 ϵ_0 和 ϵ_r 分别为真空介电常数和相对介电常数, d_{31} 为压电系数. 于是有

$$\alpha_\mu = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r}{\gamma d_{31}} \frac{\partial\mu}{\partial\sigma}. \quad (3)$$

对于初始磁导率远大于 1 的磁体, 其在应力作用下的可逆磁化或退磁过程中的磁导率可表示为

$$\mu_i = \frac{2\mu_0 M_s l}{3\pi^2 \delta \lambda_s \gamma \sigma}, \quad (4)$$

其中 μ_0 为真空磁导率, M_s 为饱和磁化强度, l 及 δ 分别为磁体内部畴壁宽度和厚度, λ_s 为饱和磁致伸缩系数, 内应力 σ 可受到外加应力的影响. 由方程 (4) 可得应力变磁导为

$$\frac{\partial\mu_i}{\partial\sigma} = -\frac{2\mu_0 M_s l}{3\pi^2 \delta \lambda_s \gamma \sigma^2}. \quad (5)$$

另外, 考虑到由于磁弛豫将引起磁导率的频散, 则交流场中的有效磁导率应为

$$\mu_{\text{eff}} = \sqrt{\frac{\mu_i^2 + (\omega/\omega_c)^2}{1 + (\omega/\omega_c)^2}}, \quad (6)$$

其中 ω_c 为弛豫频率. 因此在交流场中的应力变磁导 $\partial\mu/\partial\sigma$ 应代之以 $\partial\mu_{\text{eff}}/\partial\sigma$. 综合 (1)–(6) 式, 可得

$$\alpha_\mu = -\frac{\epsilon_0 \epsilon_r \mu_i^2}{d_{31} \gamma \sigma \sqrt{[1 + (\omega/\omega_c)^2]} [\mu_i^2 + (\omega/\omega_c)^2]}. \quad (7)$$

考虑到电感 $L = N^2 v \mu_0 \mu_{\text{eff}}$, 则电致变电感 $\Delta L/L_0$ 在数值上等于电致变磁导 $\Delta\mu/\mu_0$. 这里 N 和 v 分别为探测线圈单位长度的匝数和线圈所包围的体积, L_0 及 μ_0 为零场下的电感和磁导率. 电感的变化而可表示为

$$\Delta L = N^2 v \mu_0 \alpha_\mu \Delta V / t, \quad (8)$$

其中 t 为铁电体的厚度, $\Delta V = t \Delta E$ 为铁电体上所加的电压. 由于压电系数 d_{31} 通常为负值, 所以电致变磁导系数为正, 以至电感的变化应该随电压的增加而增加, 并且随频率的增加而下降.

除了电感之外, 线圈总含有一定的电阻及分布电容^[20]. 通常, 在一个线圈的等效电路中, 电感和电容是并联的, 而后与其电阻串联^[21]. 由此可得器件的阻抗随电场的改变

$$\Delta Z = \frac{N^2 v \mu_0 \alpha_\mu \omega R_p^3 (1 - \omega^2 C_p L)}{[\omega^2 L^2 - R_p^2 (1 - \omega^2 C_p L)^2]^{1/2}} \Delta V, \quad (9)$$

其中 R_p 为线圈的直流电阻, C_p 为线圈在静电场中的分布电容, $\omega = f/2\pi$, f 是线圈上所加电流之频率. 由方程 (9) 可知, 一个铁电/铁磁复合材料器件的电致变阻抗与电致变电感同相.

4. 实验结果及讨论

图 2(a) 给出了本文所述异型复合电磁材料在零电场和恒定电场下的电感和相应的电致变电感 $\Delta L/L_0 = (L - L_0)/L_0$ 随信号频率 ω 的变化, 其中 L 及 L_0 分别为有场和零场下的电感. 由图 2 可见, 在

正或负的恒定电场下,该异型复合材料在一个相当宽的频率范围内(30—100000 Hz)显示出约 40% 的正的或负的电致变电感效应.从图 2 还可以看出,在 -1000 V 电场下,电致变电感的绝对值要略小于 +1000 V 电场下的对应值.前者可归结为 PZT 在正(或负)电场下分别表现为“伸(或“缩””,而后者可能源于 PZT 的剩余极化.另外,正如方程(8)所预计,电感随信号频率的上升而下降,电致变电感的绝对值亦随频率的上升而下降,但电致变电感与电场的变化同相.换言之,当所加电场为正时,电致变电感亦为正,反之则为负.

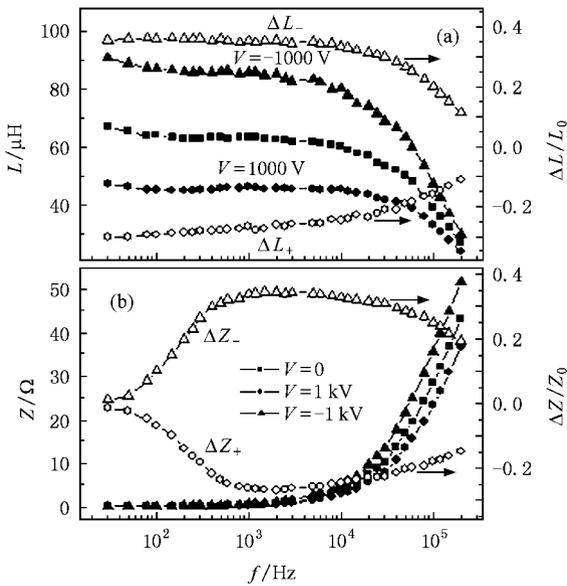


图 2 异型复合电磁材料在 1 kV, 0 V 及 -1 kV 的外加电场下的电感(a)和阻抗(b)以及相应的电致变电感(a)和电致变阻抗(b)随外加信号频率的变化.其中下标“+”和“-”分别表示 $\Delta V = +1000\text{ V}$ 和 $\Delta V = -1000\text{ V}$

根据方程(9)的预计,器件的阻抗及相应的电致变阻抗 $\Delta Z/Z_0 = (Z - Z_0)/Z_0$ 亦随信号频率变化而变化,并同样可存在于很宽的频率范围内($50 - 2 \times 10^5\text{ Hz}$),如图 2(b)所示,其中 Z_0 为零场下的阻抗.另外,电致变阻抗亦受到 PZT 剩余极化的影响,同样数值的负场所引起的变阻抗要略小于正向电场引起的变阻抗.图 2(a)还显示,电致变阻抗在 2 kHz 频率附近经历一舒缓的峰值.这可归因于器件的分布电容随频率的增加而减小,因为趋肤深度随频率的增加而下降.因此容抗的变化与感抗反相,根据前面提到的等效电路,器件的阻抗必然出现一个峰值.

图 3 给出了异型复合材料器件电感和阻抗随电场的变化关系.由于受到 PZT 极化弛豫和铁氧体磁弛豫的影响,我们观察到一系列叶型曲线.它们既不同于电滞回线亦不同于磁滞回线,而是这两种回线的合成.另外,这里我们再次观察到电致变电感与电致变阻抗不仅同相,而且在变化率上也基本一致.

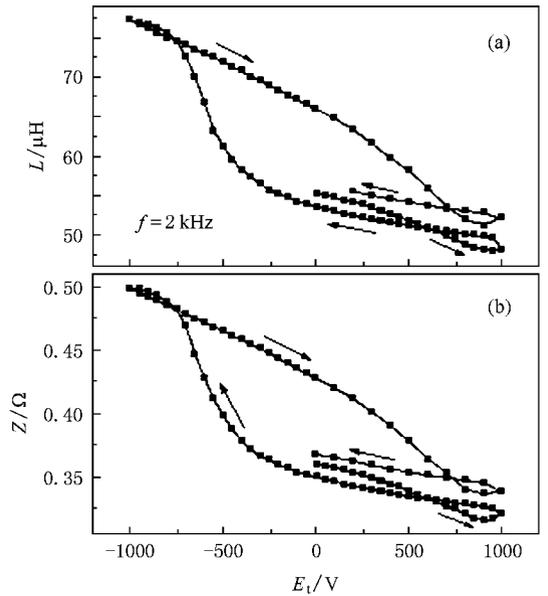


图 3 异型复合电磁材料在 2 kHz 的信号频率下电感(a)和阻抗(b)随外加(静)电场的变化

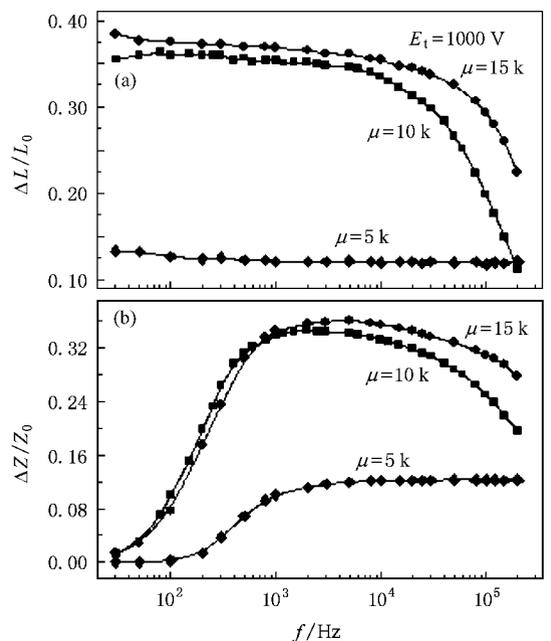


图 4 不同磁导率磁环所构成的异型复合电磁材料在 1 kV 外加电场下的电致变电感(a)及电致变阻抗(b)随信号频率的变化

通过图 4 可以观察不同磁导率磁体构成的异型器件的电致变磁导的不同之处. 由图 4 可见, 电致变电感与电致变阻抗只在一定范围内随磁导率的增加而增加. 但是, 当磁导率低于 5000 时, 这些场致效应将变得很小, 而当磁导率大于 10000 以后, 再增加磁导率上述场致效应基本不再增加. 目前还不清楚出现这一现象的原因. 由于电致变磁导源于磁体内部在应力下畴结构的改变, 因此这需要结合所用磁体并从微磁学角度加以研究.

5. 结 论

综上所述, 具有封闭磁路且磁导率接近 10000 的异型磁体可望显示一个明显的电致变磁导效应, 并且适用于构成高灵敏度的电磁复合材料. 这样的电磁复合材料可工作于极宽的频率范围内. 受电致变磁导效应的影响, 所构成的器件将显示电致变电感和电致变阻抗, 并且与电致变磁导效应具有同样大小的数值.

- [1] Srinivasan G , Rasmussen E T , Gallegos J , Srinivasan R , Bokhan Y I , Laletin V M 2001 *Phys. Rev. B* **64** 214408
- [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] Lottermoser T , Lonkai T , Amann U , Hohlwein D , Ihringer J , Fiebig M 2004 *Nature* **430** 541
- [5] Lorenz B , Litvinchuk A P , Gospodinov M M , Chu C W 2004 *Phys. Rev. Lett.* **92** 087204
- [6] Filippetti A , Hill N A 2002 *Phys. Rev. B* **65** 195120
- [7] Bichurin M I , Petrov V M , Srinivasan G 2002 *J. Appl. Phys.* **92** 7681
- [8] Mori K , Wuttig M 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 100
- [9] Srinivasan G , de Vreugd C P , Flattery C S , Laletsin V M , Paddubnaya N 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 2550
- [10] Srinivasan G , Rasmussen E T , Gallegos J , Srinivasan R , Bokhan Y I , Laletin V M 2001 *Phys. Rev. B* **64** 214408
- [11] Eerenstein W , Mathur N D , Scott J F 2006 *Nature* **442** 759
- [12] Zhang N , Fan J F , Rong X F , Cao H X , Wei J J 2007 *J. Appl. Phys.* **101** 063907
- [13] Cole M W , Ngo E , Hirsch S , Okatan M B , Alpay S P 2008 *Appl. Phys. Lett.* **92** 072906
- [14] Zhong S , Ban Z G , Alpay S P , Mantese J V 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 142913
- [15] Ueno T , Higuchi T 2006 *Sens. Actuat. A* **129** 251
- [16] Ueno T , Higuchi T 2005 *IEEE Trans. Magn.* **41** 3670
- [17] Wan J G , Liu J M , Wang G H , Nan C W 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 182502
- [18] Rong X F , Zhang N , Ke W L 2008 *Eur. Phys. J.* **41** 49
- [19] Zhang N , Fang X , Wang Z L 2008 *J. Appl. Phys.* **104** 014504
- [20] Jiang Z , Excell P S , Hejazi Z M 1997 *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.* **45** 135
- [21] Romero-Talamás C A , Bellan P M , Hsu S C 2004 *Rev. Sci. Instrum.* **75** 2664

Electric field-controlled permeability and impedance in a heterotypic composite of ferroelectrics/magnet with high permeability^{*}

Gao Jian-Sen¹⁾ Zhang Ning^{2)†}

¹⁾ Basic Teaching Department, Suqian College, Suqian 223800, China)

²⁾ School of Physical Science and Technology, Nanjing Normal University, Nanjing 210097, China)

(Received 4 January 2009 ; revised manuscript received 28 April 2009)

Abstract

Using the product effect of electrostrain and piezopermeability, a novel and heterotypic composite of magnet/ferroelectrics has been developed and its electromagnetic coupling has been investigated. Under a constant electric field of 5 kV/cm, about 40% electric-field-induced changes of inductance and impedance have been observed over a wide range of frequency for the composites. The electric-field dependent inductance and impedance show a joint behavior of ferromagnetic and ferroelectric relaxation. Analysis shows that all the behaviors observed can be ascribed to the electric field-controlled variation of the internal stress in the composite.

Keywords : electromagnetic coupling, heterotypic composite, stress-permeability, electrostrain

PACC : 7580, 7760, 7550B

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10674071).

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