

纵向极化与磁化叠层复合材料磁电效应 理论及计算*

鲍丙豪^{1)†} 骆英²⁾

1) (江苏大学机械工程学院, 微纳科学技术研究中心, 镇江 212013)

2) (江苏大学理学院, 镇江 212013)

(2010年8月7日收到; 2010年9月21日收到修改稿)

基于纵向极化压电材料及纵向磁化磁致伸缩材料的压电和压磁方程与磁电元件运动方程, 给出磁电元件开路电压表达式; 鉴于压电材料高输出阻抗的特点, 考虑测试仪器的有限输入阻抗和传输信号引线电缆电容, 通过建立等效电路模型推出了非开路情况下磁电电压计算式, 取不同材料参数对磁电电压进行了数值计算. 研究表明, 材料参数、电路参数对输出电压均产生影响. 对磁伸材料两端面受非均匀偏置磁场产生外力的非自由边界磁电效应进行研究发现, 恒外力作用使压电元件产生不可检测的稳恒电压.

关键词: 纵向极化, 磁电效应, 磁电元件, 层叠材料

PACS: 75. 85. +t, 85. 80. Jm, 85. 70. Ec

1. 引言

磁场 H 引起介质材料极化强度 P 变化的效应被称为磁电 (ME) 效应^[1,2], 而施于材料的电场 E 引起材料磁化强度 M 变化的效应被称为逆磁电效应^[3]. 由于 ME 效应在磁^[4]、电类传感器^[5]、执行器、换能器、存储器、能量收集器件^[6] 等方面具有很大的应用价值, 因此在先进材料及新型器件研究领域备受关注.

在单相 Cr_2O_3 材料^[7], 多铁复合材料如采用烧结法制作的铁氧体/压电陶瓷 ($\text{CoFe}_2\text{O}_4/\text{BaTiO}_3$) 复合材料^[8] 及铁氧体锆钛酸铅 (PZT) 复合材料中均发现有 ME 效应, 但这些材料中呈现的 ME 效应很弱, 目前尚难以应用. 近年来, 在超磁伸材料 (Terfenol-D) 材料与压电材料构成的多相层叠材料中发现巨大的外磁场引起电场效应^[9], 这种 ME 效应虽与上述严格定义的 ME 效应不尽相同 (实际上这里的交变磁场作用于磁伸材料, 通过磁-机-电耦合在压电材料中形成交变电场), 但若将层叠材料磁电元件作为整体来看, 磁场引起电压的效应即为

ME 效应.

层状超磁伸材料 (Terfenol-D) 与层状压电材料层叠复合构成的磁电元件的 ME 效应开展了很多理论及实验研究, 其中对纵向磁化横向极化 (L-T) 模式的 ME 效应理论^[10,11] 及实验研究较多^[12], 对纵向磁化与纵向极化 (L-L) 模式 ME 效应也开展过实验研究^[13], 但理论研究很少, 目前仅有采用等效电路法建立 (L-L) 模式 ME 效应的理论^[14]. 实际上, 原有理论结果在解释以下实验事实时遇到了困难: 1) 实验结果表明在极低频激励磁场作用下, 检测到的输出电压是随频率变化的, 且频率越低输出电压越小; 2) 按原有理论, 在共振时输出电压为无穷大, 实际为有限值; 3) 在低频激励磁场作用下的理论值远大于实验值.

在原有理论的基础上, 我们采用纯理论的方法推出的 ME 效应理论, 可克服原有理论的不足, 可更好地解释实验结果. 本文考虑到纵向极化压电材料具有高阻抗、低电容的特性, 因此传输信号的电缆电容和测试仪器的电容及有限内阻都将对输出信号产生影响, 通过联立磁伸材料与压电材料本构方程及磁电元件的运动方程, 建立等效电路模型, 得

* 国家高技术研究发展计划项目 (批准号: 2009AA03Z107) 和江苏大学高级人才基金 (批准号: 03JDG-012) 资助的课题.

† E-mail: binghaobao@ujs.edu.cn

到了纵向极化磁电元件输出电压计算式. 本文还研究了非均匀偏置磁场对磁电电压影响问题. 建立包含非均匀磁场下的纵向极化的磁电元件的 ME 效应理论具有重要理论意义和实用价值, 它不仅对研究层叠磁电元件制作敏感器件及优化性能提供理论指导, 对压电材料用于能量收集器^[15]所需解决的实际问题亦可提供有益指导, 对分析纳米压电材料怎样才能发出真正可用电能的问题也具有实际意义^[16,17].

2. 纵向施加磁场和纵向施加电场极化模式 ME 效应理论

被银电极压电材料, 在油浴环境下经高电场极化后将其切割成所需尺寸, 纵向极化压电材料的被银电极在其两端面, 用环氧树脂胶在压电材料上下两表面粘贴片状磁致伸缩材料, 电压信号由压电材料两端面电极引出. 本文考虑的是沿纵向施加磁场和沿纵向电场极化(L-L)模式, 图1给出了L-L模式的磁电元件结构示意图及建立的坐标图.

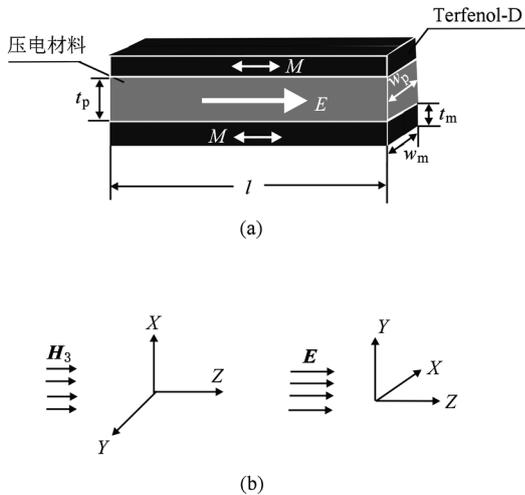


图1 纵向极化三明治结构磁电元件示意图(a)及建立的坐标(b)

建立磁电效应理论需以下两个压电材料本构方程和一个磁伸材料本构方程

$$E_3 = -g_{33p}T_3^p + \beta_{33}^T D_3, \quad (1)$$

$$S_3^p = S_{33}^D T_3^p + g_{33p} D_3, \quad (2)$$

$$S_3^m = S_{33}^H T_3^m + d_{33m} H_3, \quad (3)$$

其中, S_3^m 为磁伸材料在受沿纵向应力 T_3^m 及外磁场 H_3 作用下的应变, S_3^p 为压电材料沿纵向应变, S_{33}^D 为

恒电位移下压电材料柔性常数, S_{33}^H 为恒磁场下磁伸材料柔性常数, d_{33m} 为磁伸材料纵向压磁系数, g_{33p} 为沿纵向极化的压电材料压电常数, β_{33}^T 为介电常数的倒数.

将磁伸和压电材料作为整体, 任取一体积元, 由牛顿第二定律列出运动方程, 经化简得

$$\bar{\rho} \frac{\partial^2 \xi}{\partial t^2} = \frac{\partial T_3^p}{\partial z} n + (1-n) \frac{\partial T_3^m}{\partial z}, \quad (4)$$

其中, ξ 为 z 坐标处截面的位移, $n = \frac{S_p}{S}$, 磁电元件

总截面积 $S = S_p + 2S_m$, S_p, S_m 为对应压电材料和每块磁伸材料的截面积, 平均密度 $\bar{\rho} = \rho_p n + \rho_m (1-n)$, ρ_p, ρ_m 分别为压电材料与磁伸材料密度. 令波速

$$\bar{\nu} = \sqrt{\left[\frac{n}{S_{33}^D} + \frac{1-n}{S_{33}^H} \right] / \bar{\rho}}, \quad \text{则有}$$

$$\frac{\partial^2 \xi}{\partial t^2} = \bar{\nu}^2 \frac{\partial^2 \xi}{\partial z^2}, \quad (5)$$

将磁伸材料置于纵向磁场 $H_3 = H_p \sin \omega t$ 中得

$$\frac{\partial^2 \xi}{\partial z^2} + k^2 \xi = 0, \quad (6)$$

其中, 波数 $k = \frac{\omega}{\bar{\nu}}$. 由方程(6)得解

$$\xi = \frac{\xi_1 \sin k(l-z) + \xi_2 \sin kz}{\sin kl}, \quad (7)$$

其中, ξ_1, ξ_2 分别为 $z=0$ 和 $z=l$ 处截面(即端面)位移. 磁电元件任一截面受力^[18]

$$\begin{aligned} F &= T_3^p S_p + 2T_3^m S_m \\ &= \left(\frac{S_p}{S_{33}^D} + \frac{2S_m}{S_{33}^H} \right) \frac{\partial \xi}{\partial z} - \frac{g_{33p} D_3}{S_{11}^E} S_p \\ &\quad - \frac{2S_m d_{33m} H_3}{S_{33}^H}. \end{aligned} \quad (8)$$

设作用于磁电元件两端面的外力分别为 F_1 和

F_2 , 由 $D_3 = \frac{E_3 S_{33}^D + g_{33p} S_p^p}{\beta_{33}^T S_{33}^D}$ 和 (8) 式得

$$\begin{aligned} -F_1 &= \left(-2\bar{\rho}\bar{\nu}\omega S + \frac{2\eta^2 \omega l}{\nu C_0} \right) \left(\frac{\xi_1 - \xi_2}{\sin kl} - \xi_1 \tan \frac{kl}{2} \right) \\ &\quad - \eta V - m H_3, \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} -F_2 &= \left(-2\bar{\rho}\bar{\nu}\omega S + \frac{2\eta^2 \omega l}{\nu C_0} \right) \left(\frac{\xi_1 - \xi_2}{\sin kl} + \xi_2 \tan \frac{kl}{2} \right) \\ &\quad - \eta V - m H_3, \end{aligned} \quad (10)$$

其中, $\eta = \frac{g_{33p} w_p t_p}{l S_{33}^D \beta_{33}^T} = \frac{d_{33p}^p S_p}{l S_{33}^D}$, $m = \frac{2d_{33m} S_m}{S_{33}^H}$, $C_0 = \frac{S_p}{\beta_{33}^T l}$,

$$\text{而 } \bar{\beta}_{33} = \left(\frac{1}{\epsilon_{33}^T} + \frac{g_{33p}^2}{S_{33}^D} \right).$$

鉴于先前的研究都假设磁电元件两端不受外力作用,这一条件实际上要求磁电元件处于均匀偏置磁场中,若不满足此条件(通常存在磁场梯度),则两端必然受磁力作用,实际中要获得均匀磁场是极其困难的,因此本文研究处于非均匀磁场中磁电元件,梯度场磁力对磁电电压有何影响.经推算,压电材料端面电极引线开路时, $I = 0$ 得磁电元件开路输出电压

$$V_o = V_{\text{oac}} + V_{\text{odc}} = \frac{2\eta m H_3}{\left(C_0 \bar{\rho} \nu \omega S - \frac{\eta^2 \omega l}{\nu}\right) \left| \text{ctan}\left(\frac{\omega l}{2\nu}\right) \right| + 2\eta^2 \frac{(F_1 + F_2)}{\eta}} \quad (11)$$

由(11)式可知,端面受力作用后,磁电元件输出电压包含两部分,其中一项为与所加交变磁场同频的交变电压 V_{oac} ,另一项为与励磁电流频率无关的直流电压 V_{odc} ,由于压电材料具有极高的内阻,压电材料的直流电压无法用有限内阻(相对压电材料的内阻而言)的示波器测出,由(16)式理论结果也可知该直流电压在示波器上得到的测试结果为零.

因此下面仅考虑 V_{oac} ,由本构方程及 $S_3^p = \frac{\partial \xi}{\partial z}$ 和 $E_3 = \frac{V}{l}$ 得两电极端面上电荷

$$Q = \int_0^{l_p} \int_0^{w_p} D_3 dx dz = -\eta(\xi_1 - \xi_2) + C_0 V. \quad (12)$$

由(12)式可得低频开路输出电压

$$V_{\text{opl}} = \frac{l \eta m H_3}{C_0 \bar{\rho} \nu^2 S}. \quad (13)$$

当 $f = f_c = \frac{\bar{\nu}}{2l}$ 时,得开路共振时的峰值电压

$$V_{\text{op}} = \frac{m H_p}{\eta}. \quad (14)$$

取表1所示材料的典型参数计算得低频下磁电元件开路输出电压磁灵敏度为 $4\pi \cdot 10^{-3} \text{V} \cdot \text{m} \cdot \text{A}^{-1}$,该结果与同尺寸经横向极化的压电材料磁灵敏度大得多,这一理论结果也远大于实验结果,见文献[14]中采用纵向极化PZT的实验结果(见文献[14]的图4和图5)及文献[19]中采用纵向极化PMN-PT单晶压电材料的实验结果(见文献[19]的图2和图4),理论值与实验值相去甚远,说明以上开路理论存在问题.

实际上,(14)式给出的为压电元件开路输出电压.纵向极化压电材料内阻很高(其电容很小),若直接接入数字存储示波器或数字锁相放大器进行测试,仪器测出的电压已不是开路电压,即此时 $I = 0$ 的开路条件不能满足.忽略压电元件的漏电流,采用图2所示电压源等效电路,考虑传输信号电缆电容 C_c 及仪器输入内阻 R_i 和输入电容 C_i 得到磁电元件输出电压峰值为

$$V_p = 2\eta m H_p \sqrt{\frac{1 + (\omega R_i Y)^2}{4(X + \eta^2)^2 + (\omega R_i)^2 (2Y(X + \eta^2) - C_0 X)^2}}, \quad (15)$$

其中, $X = \left(C_0 \bar{\rho} \nu \omega S - \frac{\eta^2 \omega l}{\nu}\right) \left| \text{ctan}\left(\frac{\omega l}{2\nu}\right) \right|$, $Y = (C_0 + C_c + C_i)$.

表1 数值计算所用材料的典型参数

材料	$d_{33m}/\text{nm} \cdot \text{A}^{-1}$	$g_{33p}/\text{V} \cdot \text{m} \cdot \text{N}^{-1}$	$S_{33}^H, S_{33}^D/10^{-12} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{N}^{-1}$	$\rho_m, \rho_p/\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$	$\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$
Terfenol-D	10.8	—	40	9.2×10^3	—
PZT5A	—	2.48×10^{-2}	9.46	7.5×10^3	1700

共振频率 $f_c = \frac{\bar{\nu}}{2l}$,若(11)式 V_{oac} 项分母中无 η^2 ,共振时 $V_{\text{oac}} \rightarrow \infty$;从(15)式亦可看出,根号内分母若无 η^2 ,共振时 $V_p \rightarrow \infty$,从这点上说,本文建立的理论比现有关于纵向极化压电材料的磁电效应理论更为合理.仪器测得的不同频率正弦电压信号幅值的磁场灵敏度为

$$\frac{dV_{\text{outp}}}{dH_p} = \frac{\omega C_0 R_i V_p}{\sqrt{1 + (\omega R_i Y)^2}}. \quad (16)$$

3. 数值计算

若无特别标注说明,模拟计算所用材料几何参

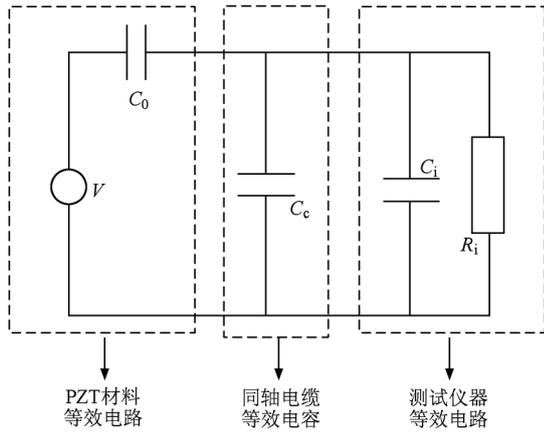


图2 压电元件及测试系统等效电路

数为 $l_m = l_p = 10 \text{ mm}$, $t_m = 1 \text{ mm}$, $w_m = w_p = 6 \text{ mm}$, $t_p = 1 \text{ mm}$; 计算时传输电压信号电缆及数字存储示波器等效电路参数 $C_c = 45 \text{ pF}$, $C_i = 13 \text{ pF}$, $R_i = 10^6 \Omega$. (11) 式第一项给出了磁电元件在开路下的输出电压与材料参数、几何参数及外加交变磁场的关系.

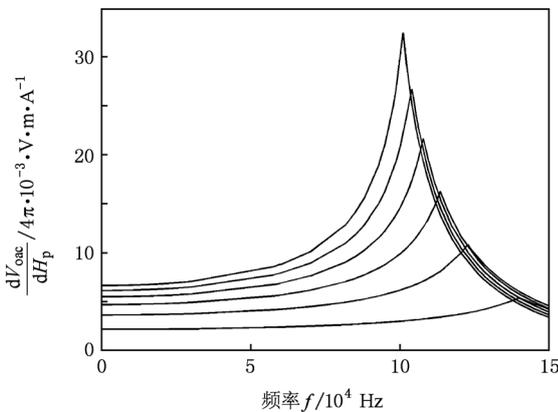


图3 磁伸材料厚度对开路磁电效应的影响

图3 显示磁伸材料厚度对磁电效应的影响, $t_m = 3, 2.5, 2, 1.5, 1, 0.5 \text{ mm}$ (从左至右6个峰对应厚度), t_m 越小共振频率越大, 而输出电压磁灵敏度越小, 图3 给出的低频磁灵敏度达数伏特每奥斯特 ($1 \text{ V/Oe} = 4\pi \cdot 10^{-3} \text{ V} \cdot \text{m} \cdot \text{A}^{-1}$), 这一结果非常令人振奋, 试想用如此大的电压磁灵敏度元件发电该多诱人, 但遗憾的是实际上用电器件上却未能检测到有如此大的输出电压磁灵敏度, 它能提供给用电器件的功率其实很弱, 原因是实际用电器件内阻都很低.

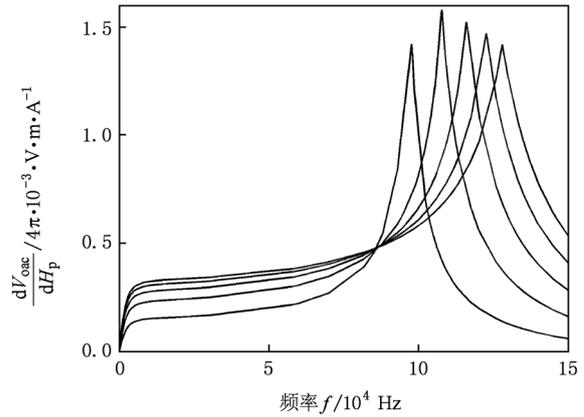


图4 压电材料厚度与磁电效应的关系

图4 给出对应不同厚度压电材料, 理论上算出的磁电元件输出电压磁灵敏度 dV_{outp}/dH_p 与频率的关系, 从左至右5个峰值对应压电材料厚度 t_p 分别为 $0.5, 1, 1.5, 2, 2.5 \text{ mm}$, $t_m = 2 \text{ mm}$, 由计算结果可见, 考虑电缆电容及测试仪器输入阻抗的影响, 压电材料厚度会改变共振频率, 且会改变输出电压磁灵敏度, 厚度越小共振频率越低. 图5 是采用与图3 相同的参数, 考虑了传输信号的电缆电容、测试仪器输入阻抗对测试结果的影响后理论结果, 将图5 与图3 比较, 可知电缆电容及仪器参数对输出电压磁灵敏度影响很大, 图5 给出的磁灵敏度远小于图3 的结果, 这与实际检测的结果更相符^[14], 为与文献[14]实验结果进行比较可将以上示波器参数改为锁相放大器典型参数 ($R_i = 10^8 \Omega$, $C_i = 25 \text{ pF}$) 进行计算.

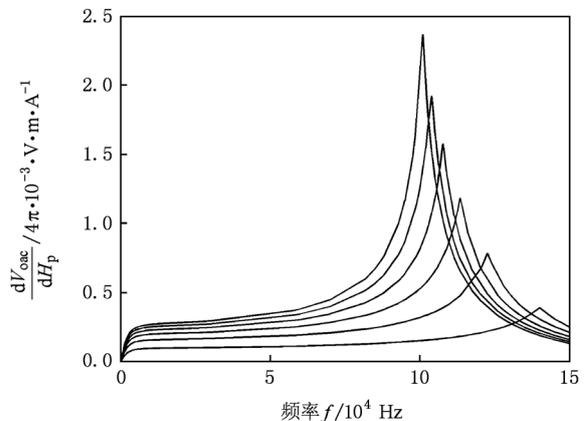


图5 磁伸材料厚度对非开路磁电效应的影响

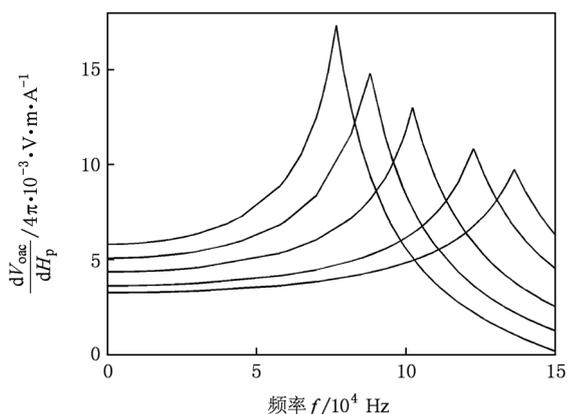


图6 不同长度磁电元件开路磁电电压磁灵敏度频谱

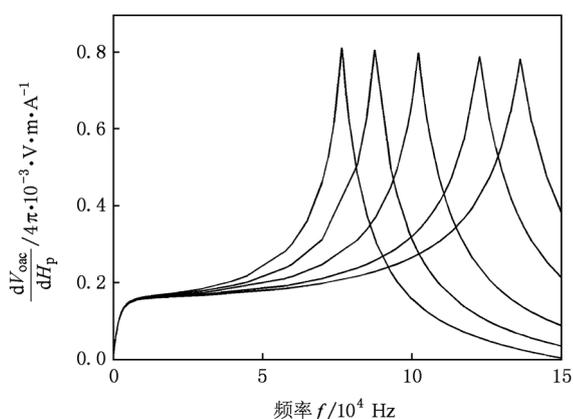


图7 磁电元件长度与非开路电压磁灵敏度与频率关系

图6与图7反映磁电元件长度对ME效应的影响,从左至右峰值对应的磁电元件长度为16,14,12,10,9 mm,图6对应开路情况,可见长度既影响共振频率,也影响磁灵敏度,从图6知共振时磁灵敏度与长度成反比,图7给出结果表明,此时长度仅改变共振频率,对共振磁灵敏度几乎不产生影响。

4. 结 论

用纯理论的方法建立了开路情况下纵向极化及纵向磁化的磁伸/压电层叠复合材料构成的磁电元件磁电电压计算公式,它可解决原有开路理论存在的问题.综合考虑了导线电容及测试仪器的输入电容及内阻,得到了与实验结果更相符的非开路磁电效应理论,用该理论可解释为何在实验中未能观察到开路理论得出的数伏每奥斯特的电压磁灵敏度.由理论公式对不同参数压电材料与磁伸材料的磁电电压磁灵敏度进行了大量计算,得到了具有重要指导意义的可揭示磁电效应规律的理论结果.我们还发现,非均匀偏置磁场仅产生恒电压,它对交变磁场产生的交流电压不产生影响.建立该理论过程中未考虑胶层^[20]、涡流损耗^[21]、泊松效应、磁伸材料磁弹性内耗偏置磁场依赖性^[22]等对ME效应的影响,有待进一步完善。

[1] Eerenstein W, Mathur N D, Scott J F 2006 *Nature* **442** 759
 [2] Duan C G 2009 *Prog. Phys.* **29** 215 (in Chinese) [段纯刚 2009 物理学进展 **29** 215]
 [3] Land L D, Lifshitz E M, Pitaevskii L P 1999 *Electrodynamics of Continuous Media* (2nd Ed.) (Beijing: World Publishing Corporation)
 [4] Huong Giang D T, Duc N H 2009 *Sens. Actuat. A* **149** 229
 [5] Bian L X, Wen Y M, Li P, Gao Q L, Zhen M 2009 *Sens. Actuat. A* **150** 207
 [6] Li P, Wen Y M, Liu P G, Li X S, Jia C B 2010 *Sens. Actuat. A* **157** 100
 [7] Krotov S S, Kadomtseva A M, Popov Y F, Zvezdin A K, Vorob'ev G P, Belov D V 2001 *J. Magn. Magn. Mater.* **226** 963
 [8] Bichurin M I, Petrov V M, Srinivasan G 2009 *J. Magn. Magn. Mater.* **321** 846
 [9] Nan C, Bichurin M I, Dong S X, Viehland D, Srinivasan G 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 031101
 [10] Bao B H, Ren N F, Luo Y 2011 *Acta Phys. Sin.* **60** 037503 (in Chinese) [鲍丙豪、任乃飞、骆英 2011 物理学报 **60** 037503]
 [11] Dong S H, Zhai J Y 2008 *Chin. Sci. Bull.* **53** 2113
 [12] Yang C H, Wen Y M, Li P, Bian L X 2008 *Acta Phys. Sin.* **57** 7292 (in Chinese) [阳昌海、文玉梅、李平、卞雷祥 2008 物理学报 **57** 7292]
 [13] Dong S X, Zhai J Y, Bai F M, Li J F, Viehland D 2005 *Appl. Phys. Lett.* **87** 062502
 [14] Dong S X, Li J F, Viehland D 2003 *IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Contrl.* **50** 1253
 [15] Wang Z L 2009 *Adv. Mater.* **21** 1311
 [16] Xu S, Qin Y, Xu C, Wang Z L 2010 *Nature Nanotechnol.* **46** 1
 [17] Lu M P, Song J H, Lu M Y, Chen M T, Gao Y F, Chen L J, Wang Z L 2009 *Nano Lett.* **9** 1223
 [18] Luan G D, Zhang J D, Wang R Q 2005 *Piezoelectric Transducer and Transducer Array* (Revised Ed.) (Beijing: Peking University Press) p119 (in Chinese) [栾桂冬、张金铎、王仁乾

- 2005 压电换能器和换能器阵(修订版)(北京:北京大学出版社)第 119 页] *Sin.* **56** 3539 (in Chinese) [扬帆、文玉梅、李平、郑敏、卞雷祥 2007 物理学报 **56** 3539]
- [19] Dong S X, Li J F, Viehland D 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 5305 [22] Bian L X, Wen Y M, Li P 2010 *Acta Phys. Sin.* **59** 883 (in Chinese) [卞雷祥、文玉梅、李平 2010 物理学报 **59** 883]
- [20] Dong S X, Li J F, Viehland D 2006 *J. Mater. Sci.* **41** 97
- [21] Yang F, Wen Y M, Li P, Zheng M, Bian L X 2007 *Acta Phys.*

Theory and calculation of magnetoelectric effect in longitudinally polarized and magnetized laminate materials *

Bao Bing-Hao^{1)†} Luo Ying²⁾

1) (*Micro-Nano Science and Technology Research Center, School of Mechanical Engineering, Jiangsu University, Zhenjiang 212013, China*)

2) (*Faculty of Science, Jiangsu University, Zhenjiang 212013, China*)

(Received 7 August 2010; revised manuscript received 21 September 2010)

Abstract

Based on constituent equations of longitudinally polarized piezoelectric materials and magnetized magnetostrictive materials, and equation of motion of the magnetoelectric element, the expression to calculate the open circuit voltage of the piezoelectric material is presented. In view of the characteristics of high impedance for the piezoelectric materials, and considering the capacitance of the lead cable to transfer signal, as well as the capacitance and the internal resistance of the measuring instrument, a formula to calculate the actual magnetoelectric voltage is derived by using an equivalent circuit. Taking different materials parameters, we calculate the effect of parameter variation on magnetoelectric voltage. The results show that the influence of material parameters, cable capacitance and the input capacitance and resistance of the measuring instrument on the output voltage must be taken into account. Non-uniformly biased field will yield forces on the two ends of the magnetostrictive materials and the research result shows that the constant force produced by gradient bias magnetic field will generate stabilized voltage, which is unable to be measured by the oscilloscope.

Keywords: longitudinal polarized, magnetoelectric effect, magnetoelectric element, laminate materials

PACS: 75. 85. + t, 85. 80. Jm, 85. 70. Ec

* Project supported by the National High Technology and Development Program of China (Grant No. 2009AA03Z107) and the Science Research Funds for Talents of Jiangsu University of China (Grant No. 03JDC-012).

† E-mail: binghaobao@ujs.edu.cn