2018年6月

doi:10.3969/j.issn.1001-4616.2018.02.007

电容型磁阻抗效应的退磁因子影响研究

何文强1,樊通声1,王 巍1,2

(1.南京师范大学物理科学与技术学院,江苏南京 210023) (2.近代声学教育部重点实验室,南京大学,江苏南京 210093)

[摘要] 研究了室温下磁致伸缩材料的退磁因子对磁电复合振子磁阻抗效应的影响.设计了长方体和四方体两种磁致伸缩板与相同压电板构成磁电复合振子,在磁电复合振子谐振和反谐振频率下,研究了退磁因子对其磁阻抗、磁电容、磁电感的影响.在谐振频率下,磁电复合振子的阻抗、电容、电感随磁场的变化趋势基本相似,但磁致伸缩为长方体时,磁电复合振子的阻抗、电容、电感达到饱和所需磁场明显小于磁致伸缩为四方体的复合振子达到饱和所需磁场.在反谐振频率下,退磁因子对阻抗和电感随磁场变化的影响与谐振频率基本相同,但退磁因子对磁电容的影响行为明显不同,四方体的磁电复合振子电容在 H=1 600 Oe 和 H=1 700 Oe 之间出现震荡,磁电容高达 44 000 %,而长方体复合振子没有振荡现象.从磁学的观点,理论分析了退磁因子对磁电复合振子磁阻抗效应的影响,该研究为磁场传感器在低磁场探测方面提供了实验及理论基础.

[关键词] 退磁因子,磁电复合振子,磁阻抗,谐振频率,反谐振频率

「中图分类号]0441.6;0482.52+6 「文献标志码]A 「文章编号]1001-4616(2018)02-0033-06

Effect of Demagnetizing Factor on Capacitive Type Magnetoimpedance Effect

He Wengiang¹, Fan Tongsheng¹, Wang Wei^{1,2}

(1.School of Physics and Technology, Nanjing Normal University, Nanjing 210023, China) (2.Laboratory of Modern Acoustics of MOE, Nanjing University, Nanjing 210093, China)

Abstract: The influence of the magnetostriction materials demagnetization factor at room temperature on the magnetoim-pedance effect of magnetoelectric composite oscillator is presented. Rectangular TDF and square TDF combine with the same piezoelectric PZT designed to form a magnetic composite oscillator, respectively. We compare the influence of demagnetization factor on magnetoimpedance, magnetocapacitance and magnetoinductance at resonance and anti-resonance frequencies. It was found that the variation of impedance, capacitance and inductance are basically similar with a dc magnetic field at resonance frequency. However, when the magnetostriction plate is rectangular, the impedance, capacitance and inductance of the magnetoelectric composite vibrator reaching to saturation required less magnetic fields than that of magnetostriction plate which is square. In the anti-resonance frequency, the influence of the demagnetization factor on the impedance and inductance varying with the magnetic field is basically same as that of resonance frequency except for capacitance. When the magnetostriction plate is square, the magnetoelectric composite oscillator capacitance fluctuates with the magnetic field intensity between 1 600 Oe and 1 700 Oe at anti-resonance frequency, and the magnetocapacitance is up to 44 000 %. Considering magnetism, the effect of demagnetization factor on magnetoimpedance is analyzed theoretically. The study provides experimental and theoretical basis for magnetic field sensors in low magnetic detection.

 $\textbf{Key words:} \ demagnetization \ factor, magnetoelectric \ composite \ oscillator, magnetoimpedance, resonance \ frequency, anti-resonance \ frequency$

收稿日期:2018-02-10.

基金项目: 江苏省研究生科研与实践创新计划项目(KYCX17_1058).

通讯联系人:王巍,教授,研究方向:复合材料磁电效应. E-mail:wangwei1@ njnu.edu.cn

近 10 年来,随着磁电耦合效应研究的深入,磁电复合磁场传感器以高灵敏度、制备方法简单、成本低等特点受到人们的关注[1-2]. 磁电复合磁场传感器具有较大的磁电耦合,使其在地磁场探测方面比传统传感器有较大的优势. 磁电复合材料探测磁场原理是基于压电与磁性材料的复合具有多重铁性,在磁场作用下具有以应力为媒介的磁-力-电耦合的乘积效应. 将压电材料和磁性材料以某种方式复合(例如粘接),当磁场作用于复合材料时,由于磁致伸缩或磁力作用,压电材料会受到应力作用,其输出电压会随磁场发生改变,由此可用于磁异常探测.

目前,磁电复合材料磁电效应的研究主要集中在双磁场(即直流偏置和交流磁场)的作用下探讨如何提高磁电耦合系数^[3-4],例如董淑香等^[5]研究的磁电复合传感器,其磁探测可达到 10⁻¹¹ T. 但是,由于这种传感器是双磁场设计,因此在探测地磁场时需要一个相应的交流磁场,这增加了传感器电路设计的复杂性. Nan 等人设计了一种新型的磁电复合传感器^[6],研究单一直流磁场下磁电复合压电谐振子的磁电耦合行为,这为地磁场异常探测了提供新的思路. 研究表明,与压电谐振器相关的电学量如导纳(阻抗)^[6]、谐振频率^[7]、品质因子^[8]都会随着磁场变化而改变,这为磁场传感器的电路设计提供了良好的理论基础.

材料的阻抗随外磁场的变化称为磁阻抗(MZ)效应. 磁阻抗效应主要分为两种:电感型磁阻抗和电容型磁阻抗,其中由磁性材料的有效磁导率变化引起的磁阻抗效应称为电感型磁阻抗^[9-11]. 电感型磁阻抗主要是电感或电阻随磁场发生改变,当外加交变电流处于低频时,磁性材料的电感发生改变;当外加交变电流处于高频时(MHz),由于趋肤效应,电感型磁阻抗主要由于电阻发生改变^[12]. 由压电材料的有效介电常数变化引起的磁阻抗效应,称为电容型磁阻抗^[13-14]. 目前,人们对电感型磁阻抗进行了深入研究^[15-16],而电容型磁阻抗效应处于初步研究阶段. Castel 等人^[17-18]实验证实了 BaTiO3/Ni 纳米复合结构的有效介电常数随磁场的改变,但是在室温下,其电容型磁阻抗仅有 10%.

磁电复合磁场探测传感器,其中的磁致伸缩材料起到关键的作用,磁电耦合正是利用了在外加磁场的作用下,铁磁物质的长度或体积会发生微小改变这一特性.本文设计了两种磁电复合结构,由片状压电谐振子分别与四方体和长方体的磁致伸缩板复合,研究了磁致伸缩材料的退磁因子对电容型磁阻抗、磁电感、磁电容的影响,并从理论上分析了退磁因子与磁阻抗、磁电感、磁电容的关系.

1 实验

实验所用压电/磁致伸缩复合振子由商业化的压电材料 PZT-5 (PbZr $_{0.5}$ Ti $_{0.5}$ O $_3$) 和超磁致伸缩材料 TDF (Tb $_{0.3}$ Dy $_{0.7}$ Fe $_{1.92}$) 胶粘合成,结构如图 1 所示. 图 1(a) 为四方体形状的 TDF 与片状 PZT 复合成三明治结构的 样品 A,TDF 的尺寸为:8 mm×2 mm×8 mm (a mm×b mm×c mm). 图 1(b) 为长方体形状的 TDF 与片状 PZT 复合振子的样品 B,TDF 的尺寸为:8 mm×2 mm×13 mm (a mm×b mm×c mm). 磁场方向 H 与 TDF 磁化方向 M 一致,均沿样品的长度方向。PZT 沿厚度方向极化,尺寸为:15 mm×7 mm×3 mm(长×宽×厚).

本文实验样品采用的工艺是在室温下,将压电陶瓷 PZT 和稀土合金 TDF 用环氧树脂胶粘和,固化 24 h 后,在 PZT 上下表面焊接电极,并引线连接阻抗分析仪测量. 多次重复实验,我们发现样品制作工艺对实验结果影响可以忽略,而实验结果主要来源于结构上的差异.

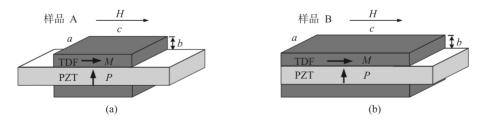


图 1 四方体和长方体的 TDF/PZT 磁电复合振子示意图

Fig. 1 Schematic diagram of TDF/PZT composite vibrator at square TDF and rectangle TDF, respectively

磁电测试系统如图 2 所示,系统由直流线性稳流电源、电磁铁、高斯计(Lake Shore,美国)和阻抗分析仪(HIOKI,日本)组成. 将测试样品放在电磁铁中间,磁场由电磁铁产生,沿着磁致伸缩方向,用阻抗分析仪测试样品电学参数随磁场的变化,电学参数包括阻抗 Z,电感 L,电容 C 随磁场的变化.

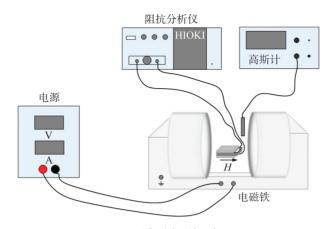


图 2 磁电测试系统示意图

Fig. 2 Schematic diagram of the magnetoelectric test system

2 实验结果与分析

由阻抗分析仪测出磁电复合振子在零磁场下的阻抗随频率变化曲线,如图 3 所示. 零磁场下,阻抗最小值所对应的为谐振频率,阻抗最大值对应的为反谐振频率. TDF为四方体的层状磁电复合振子(样品 A)谐振频率 f_r = 92.910 kHz,反谐振频率 f_a = 97.258 kHz; TDF 为长方体的层状磁电复合振子(样品 B)谐振频率 f_r = 82.876 kHz,反谐振频率 f_a = 87.057 kHz.

图 4 为谐振频率 f_r 及反谐振频率 f_a 下, TDF 分别为四方体和长方体的磁电复合振子的阻抗、电容和电感随磁场变化曲线. 由图 4(a)、(c)、(d)、(f) 可知, 样品 A (四方体)、B(长方体)磁电复合振子的阻抗 Z、电感 L 随磁场变

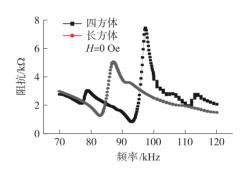
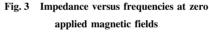


图 3 零磁场下阻抗频率测试曲线



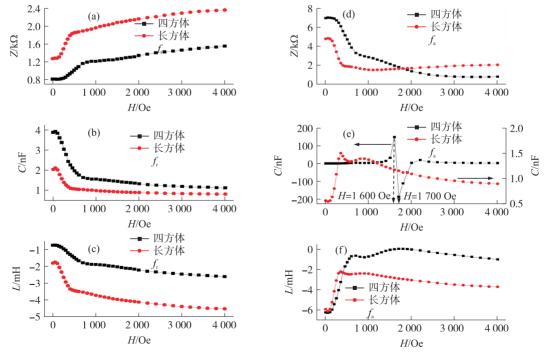


图 4 谐振频率 f_{Γ} 、反谐振频率 f_{a} 下,TDF 分别为四方体和长方体的磁电复合振子的阻抗、电容、电感随磁场变化

Fig. 4 Variation of impedance, capacitance, and inductance with the magnetic field at resonance and anti-resonance frequencies

化趋势是基本一致的. 即谐振频率 f_r 下,阻抗和电感(电感是负值,其绝对值在增大)都随磁场H增加而增大,反谐振频率 f_a 下,阻抗和电感都随磁场H增加而减小. 这可以通过阻抗和磁导率的关系进行解释. 磁

电复合振子的本征阻抗可表示为 $Z = \sqrt{\frac{\mu_0 \mu_{\text{eff}}}{\varepsilon_0 \varepsilon_{\text{eff}}}}$,其中 μ_0 和 ε_0 分别是真空下的磁导率和介电常数, μ_{eff}

和 ε_{eff} 分别是磁电复合材料的有效相对磁导率和有效相对介电常数. 阻抗 Z 的平方与 ε_{eff} 成反比,我们知道平行板电容器的电容与 ε_{eff} 成正比,故当有效相对介电常数随磁场减小时,阻抗、电感都随磁场增大;有效相对介电常数随磁场增大时,阻抗、电感都随磁场减小.

由图 4(a)、(d)可以看出,样品 A 的阻抗随磁场变化较慢,谐振频率 f_r 下,外加磁场增加到 800 Oe 时,阻抗缓慢增至 1.19 k Ω ,我们把这段近似看作线性增加,斜率为 k=0.48 Ω/Oe^{-1} ,继续增大磁场,阻抗缓慢趋向饱和值;反谐振频率 f_a 下,外加磁场增加到 800 Oe 时,阻抗缓慢减至 3.08 k Ω ,看作线性变化,斜率为 k=-4.86 Ω/Oe^{-1} ,继续增大磁场,阻抗缓慢趋于饱和值. 而样品 B 的阻抗随磁场变化较快,谐振频率 f_a 下,外加磁场增加到 400 Oe 时,阻抗快速增至 1.79 k Ω ,斜率为 k=1.30 Ω/Oe^{-1} ,随后阻抗趋于饱和值;反谐振频率 f_a 下,外加磁场增加到 400 Oe 时,阻抗快速减至 1.79 k Ω ,斜率为 k=-7.0 Ω/Oe^{-1} ,之后阻抗渐渐趋于饱和值。我们发现无论谐振还是反谐振频率下,样品 A 的阻抗变化率都小于样品 B 的阻抗变化率(阻抗变化率为负值时,取绝对值),样品 A 即磁致伸缩为四方体的复合振子阻抗趋向饱和需要更大的磁场。这主要是由于磁致伸缩材料TDF 形状不同,也就是退磁因子的不同。从退磁因子 N 的角度出发,考虑理想情况,假设样品 TDF 均匀磁化和退磁化,利用薄片状退磁因子表达式 $N=\frac{2}{\pi}\left[\arctan\frac{1}{r}+\frac{r}{2}\ln r+\frac{1-r^2}{4r}\ln(1+r^2)\right]^{[21]}$,其中 $r=\frac{c}{a}$,。c 代表 TDF 磁化方向上的长度,a 代表 TDF 的宽度。四方体 TDF 样品参数为 a=8 mm,c=8 mm,退磁因子 N=0.5;对于长方体形状的 TDF,代入参数 a=8 mm,c=13 mm,长方体 TDF 退磁因子 N=0.39。四方体 TDF 退磁因子 N 大于长方体 TDF 退磁因子,研究表明退磁因子 N 越大,复合材料的磁电转换系数越小 $^{[22]}$,所以样品 A 的阻抗变化率都小于样品 B 的阻抗变化率。电感绝对值随磁场的变化与阻抗随磁场的变化一致,同理可解释谐振及反谐振频率下电感随磁场的变化。

由图 4(b) 可见,谐振频率 f_r 下,电容随磁场降低,样品 A 的电容总是大于样品 B 的电容,且样品 A 的电容随磁场变化更快. 当磁场处于 800 Oe 以内,样品 A 的电容快速减少,电容变化率为-2.84 pF/Oe,而样品 B 的电容随磁场缓慢减少,电容变化率为-2.33 pF/Oe. 我们知道磁电复合振子的电容 C 是压磁系数 q 的函数 P_r 的电容 P_r 与压磁系数 P_r 的函数 P_r 和 为有效压磁系数 P_r 的关系为 P_r 和 P_r 和 P_r 和 P_r 为有效压磁系数 P_r 为理论压磁系数 P_r 为退磁因子 P_r 为恒应力状态下的磁化率,故电容 P_r 与退磁因子 P_r 成正比. 磁场一定时,退磁因子 P_r 越大,磁电复合振子电容 P_r 越大,由前文计算可得,四方体形状 TDF 的退磁因子大于长方体 TDF 的退磁因子,所以样品 A 的电容总是大于样品 B 的电容,电容 P_r 随磁场非线性减小时,退磁因子 P_r 越大,电容 P_r 随磁场变化越明显.

值得注意的是反谐振频率 f_a 下,复合振子电容 C 的变化. 由图 4(e) 可知,在高磁场下,样品 A 的电容发生突变,在 H=1 600 Oe 时,电容从 148 nF 降到-186 nF. 显然磁电复合振子电容的振荡现象与外加电场频率 f、退磁因子 N 有关. 吴高建等人[27] 的研究表明,相比于谐振频率,反谐振频率 f_a 下磁电耦合强度更高,而磁电耦合强度的不同,可能导致压电体的不同介电反应,压电体的介电反应有两个相应的模型,即电偶极子谐振模型和德拜弛豫模型. 我们发现,两个样品的磁电容出现差异,适用于不同的压电振子谐振模型,磁电容非谐振情况下采用德拜弛豫模型,磁电容出现谐振时,采用电偶极子谐振模型. 这种电容随磁场的振荡现象可利用电偶极子谐振模型和磁电容理论做进一步的讨论.

定义磁阻抗 $\frac{\Delta Z}{Z} = \left| \frac{Z(H) - Z(H=0)}{Z(H=0)} \right| \times 100 \%$,其中 $Z(H) \setminus Z(H=0)$ 分别表示外加磁场为 H 和外加磁场 H=0 时阻抗值,根据实验数据计算画出磁阻抗随磁场变化曲线,如图 $S(a) \setminus (d)$ 所示. 由图可得,在谐振频率 $S(a) \in A$ 的磁阻抗最大值约为 $S(a) \in B$ 的磁阻抗在低磁场下变化更快,当磁场 $S(a) \in B$ 的磁阻抗渐渐趋向饱和值.

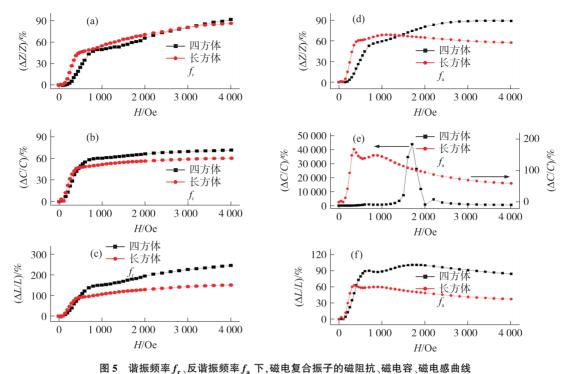


Fig. 5 Magnetoimpedance, magnetocapacitance, and magnetoinductance at resonance frequency and anti-resonance frequency

图 5(b)、(c)、(e)、(f)是磁电复合振子谐振频率 f_r 及反谐振频率 f_a 下的磁电容、磁电感随磁场的变化曲线. 磁电容和磁电感定义如下: $\Delta c/c = \left| \frac{c(H)-c(H=0)}{c(H=0)} \right| \times 100$ %, $\Delta L/L = \left| \frac{L(H)-L(H=0)}{L(H=0)} \right| \times 100$ %,其中c(H)、L(H)与c(H=0)、L(H=0)分别为外磁场为H和外磁场H=0时压电振子的电容和电感. 由图 S(e)可见,反谐振频率 f_a 下,低磁场时,样品B的磁电容快速增加,磁场为H=400 Oe,磁电容达到最大值,高达167%。而样品A的磁电容在H=1700 Oe 时发生突变,磁电容达到 44 000%。磁电感变化趋势与磁阻抗相似,当外加磁场H=400 Oe 时,样品B的磁电感在谐振频率 f_a 及反谐振频率 f_a 下快速趋向饱和值,分别达到B5%和B1%。无论谐振还是反谐振频率下,低磁场时,样品B1%的磁阻抗、磁电容、磁电感变化更快,快速趋于饱和值。

3 结论

本文通过两种磁电复合结构的磁阻抗效应,研究了退磁因子 N 对磁阻抗的影响. 退磁因子、谐振频率都是磁阻抗效应的影响因素. 在谐振频率及反谐振频率下,退磁因子与磁阻抗、磁电感的饱和磁场相关,退磁因子小,则磁阻抗、磁电感的饱和磁场小. 在反谐振频率下退磁因子不同,磁电容的变化明显不同,反谐振频率下,样品 A(磁致伸缩为四方体)的磁电容远大于样品 B(磁致伸缩为长方体)的磁电容. 理论分析表明,磁电复合振子磁阻抗变化的快慢主要是由于退磁因子的不同,长方体形状的 TDF 磁电复合振子更适用于低磁场探测的磁场传感器设计.

「参考文献]

- [1] DONG S X,ZHAI J Y, LI J F, et al. Magnetoelectric effect in Terfenol-D/Pb(Zr, TiO)₃/μ-metal laminate composites [J]. Applied physics letters, 2006, 89;122903(1-3).
- [2] ZHAI J Y, XING Z P, DONG S X, et al, Detection of pico-Tesla magnetic fields using magneto-electric sensors at room temperature [J]. Applied physics letters, 2006, 88:062510(1-3).
- [3] WU T L, HUANG J H. Closed-form solutions for the magnetoelectric coupling coefficients in fibrous composites with piezoelectric and piezomagnetic phases [J]. International journal of solids and structures, 2000, 37(21):2981-3009.

- [4] KUMARIM, DIESTRA D G B, KATIYAR R, et al. Observation of strong magnetoelectric coupling and ferromagnetism at room temperature in Fe substituted ferroelectric BaZr_{0.05}Ti_{0.95}O₃ thin films[J]. Journal of applied physics, 2017, 121(3):034101.
- [5] DONG S X, LI J F, VIEHLAND D. Voltage gain effect in a ring-type magnetoelectric laminate [J]. Applied physics letters, 2004,84(21):4188-4190.
- [6] NAN T X, HUI Y, RINALDI M, et al. Self-biased 215 MHz magnetoelectric NEMS resonator for ultra-sensitive DC magnetic field detection [J]. Scientific reports, 2013, 3:1985-1990.
- [7] WANG W, YE J J, WU J, et al. Size effects in strip-ring piezoelectric/magnetostrictive structures observed in magnetically tuned resonance frequency [J]. Sensors and actuators A:physical, 2014, 214:219-224.
- [8] POLZIKOVA N, ALEKSEEV S, KOTELYANSKII I, et al. Magnetic field tunable acoustic resonator with ferromagnetic-ferroe-lectric layered structure [J]. Journal of applied physics, 2013, 113;17C704(1-3).
- [9] FANG X,ZHANG N, WANG Z L. Converse magnetoelectric effects on heterotype electrostrain piezopermeability composites [J]. Applied physics letters, 2008, 93(10); 102503(1-3).
- [10] LOU J, REED D, LIU M, et al. Electrostatically tunable magnetoelectric inductors with large inductance tunability [J]. Applied physics letters, 2009, 94(11):112508(1-3).
- [11] USOV N A, GUDOSHNIKOV S A. Giant magneto-impedance effect in amorphous ferromagnetic wire with a weak helical anisotropy: theory and experiment [J]. Journal of applied physics, 2013, 113(24):243902(1-10).
- [12] MANDAL K, MANDAL S P, VAZQUEZ M, et al, Giant magnetoimpedance effect in a positive magnetostrictive glass-coated amorphous microwire [J]. Physical review B, 2002, 65:064402(1-6).
- [13] MAGLIONEM, ZHU W, WANG Z H. Evidence of a strong magnetic effect on the impedance of integrated piezoelectric resonators [J]. Applied physics letters, 2005, 87(9):092904(1-3).
- [14] RAMACHANDRAN B, SUDARSHAN N, RAO M S R. Magnetoimpedance and magnetodielectric properties of single phase 45PMN-20PFW-35PT ceramics [J]. Journal of Applied Physics, 2010, 107(9):09C503(1-3).
- [15] JIA Y, ZHENG C, WU Z, et al. Enhanced magneto-impedance in Fe73.5Cu1Nb3Si13.5B9 ribbons from laminating with magnetostrictive terfenol-D alloy plate [J]. Applied physics letters, 2012, 101(25):251914(1-4).
- [16] KOTAGIRI G, RAMARAO S D, MARKANDEYULU G. Magnetoimpedance studies on laser and microwave annealed Fe 66 Ni 7 si 7 B 20 ribbons [J]. Journal of magnetism and magnetic materials, 2015, 382;43-48.
- [17] CASTEL V, BROSSEAUC, YOUSSEF J B. Magnetoelectric effect in BaTiO₃/Ni particulate nanocomposites at microwave frequencies [J]. Journal of applied physics, 2009, 106(6):064312(1-15).
- [18] BROSSEAU C, CASTEL V, POTEL M. Controlled extrinsic magnetoelectric coupling in BaTiO₃/Ni nanocomposites: effect of compaction pressure on interfacial anisotropy[J]. Journal of applied physics, 2010, 108(2):024306(1-8).
- [19] ERWAN S, PATRICK Q, GÉRARD T, et al. Correlation between magnetic properties of layered ferromagnetic/dielectric material and tunable microwave device applications [J]. J Appl Phys, 2002, 91:5449-5455.
- [20] BIAN L X, WEN Y M, LI P. Analysis of magneto-mechano-electronic coupling factors in magnetostrictive/piezoelectric laminated composite[J]. Acta Phys Sin, 2009, 58(6):4205-4213.
- [21] BROWN W F. Magnetostatic principles in ferromagnetism[M]. Amsterdam: North-Holland Publishing Company, 1962.
- [22] 潘德安,陆俊,白洋,等. 形状退磁因子对层状磁电复合材料的影响[J]. 科学通报,2008,53(10):1167-1171.
- [23] WANG W, WANG Z F, LUO X B, et al. Capacitive type magnetoimpedance effect in piezoelectric-magnetostrictive composite resonator [J]. Applied physics letters, 2015, 107:172904(1-5).
- [24] 王巍,罗小彬,杨丽洁,等. 层状磁电复合材料谐振频率下的巨磁电容效应[J]. 物理学报,2011,60(10):107702(1-7).
- [25] WANG W, YE J J, WU J, et al. Single dc magnetic field tunable electromechanical resonance in Terfenol-D/PZT/Terfenol-D trilayer composites [J]. Journal of magnetism and magnetic materials, 2014, 366:40-43.
- [26] CLARK A E, FOGLE M W. A new method of magnetostrictivity and magnetostriction measurement [J]. IEEE Trans Magn, 1989, 25;3611-3613.
- [27] WU G J, NAN T X, ZHANG N, et al. Inequivalence of direct and converse magnetoelectric coupling at electromechanical resonance [J]. Applied physics letters, 2013, 103;182905(1-5).

「责任编辑:顾晓天〕