

УДК 534.2; 537.63; 53.081.7

АКУСТИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА МАГНИТНЫХ ЭЛАСТОМЕРОВ И ВЛИЯНИЕ НА НИХ ВНЕШНЕГО МАГНИТНОГО ПОЛЯ

И. Е. Кузнецова¹, Б. Д. Зайцев², А.М. Шихабудинов², И. А. Бородина², Е. Ю. Крамаренко³,
В. В. Колесов¹, Г.В. Степанов⁴

¹Институт радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова РАН

²Саратовский филиал Института радиотехники и электроники им. В.А. Котельникова
РАН

³Московский государственный университет им.М.В. Ломоносова, Физический факультет

⁴Государственный научно исследовательский институт химии и технологии
элементоорганических соединений

Получена 10 сентября 2013 г.

Аннотация. В работе экспериментально определены скорость продольной акустической волны, плотность, продольные модуль упругости и коэффициент вязкости образцов нанокompозитного материала Fe-гель с различным процентным содержанием наночастиц железа. Также экспериментально исследовано влияние магнитного поля на скорость продольной акустической волны в этих образцах. Установлено что с ростом частоты возбуждаемой объемной акустической волны продольный модуль упругости увеличивается, а при увеличении напряженности магнитного поля до 10 кЭ наблюдается увеличение скорости продольной акустической волны до 1.75 %.

Ключевые слова: магнитные эластомеры, продольные объемные акустические волны, влияние внешних магнитных полей.

Abstract: The paper contains experimental results for the velocity of longitudinal acoustic wave, density, longitudinal elasticity modulus and viscosity coefficient of nanocomposite Fe-gel material with different percent content of iron nanoparticles. The effect of magnetic field on the velocity of longitudinal acoustic wave has been also

experimentally studied for the used samples. It has been stated that the longitudinal modulus of elasticity increases with growing frequency of excited bulk acoustic wave and the velocity of longitudinal acoustic wave shows an enhancement up to 1.75 percent with the increase of magnetic field intensity to 10 kOe.

Key words: magnetic elastomers, longitudinal bulk acoustic waves, influence of external magnetic fields.

1. Введение

В настоящее время большой интерес исследователей вызывают магнитоуправляемые эластомеры, которые способны изменять свои свойства под действием внешних магнитных полей [1-7]. Эти материалы представляют собой полимерные матрицы с внедренными в них нано и/или микрочастицами. Известны работы, в которых показано, что магнитоуправляемые эластомеры могут обратимо текстурироваться под действием приложенного магнитного поля и менять свою текстуру в зависимости от его направления [7]. Данные материалы обладают небольшим модулем Юнга (порядка нескольких десятков кПа), что свидетельствует об их низком акустическом импедансе. Этот факт делает возможным их применение для согласования пьезоэлектриков и низкоимпедансных сред (жидкости или газа). Кроме того, использование этих материалов в качестве слоев в структурах, содержащих пьезоэлектрики, позволит при помощи магнитного поля изменять скорость акустических волн в таких структурах, что может быть использовано при создании магнитоуправляемых устройств обработки сигналов. В связи с этим целью данной работы являлось исследование акустических характеристик магнитных эластомеров и анализ влияния на эти характеристики внешних магнитных полей.

2. Экспериментальное исследование акустических характеристик магнитоуправляемых эластомеров

Исследовались материалы, представлявшие из себя силиконовую матрицу с внедренными в нее микрочастицами (2-5 μm) карбонильного железа 20% массовой

концентрации. Материал изготавливался следующим образом. Для удаления с поверхности магнитного наполнителя следов влаги и придания ему гидрофобных свойств для обеспечения совместимости с полимерным связующим в роторном испарителе проводится модификация магнитного порошка. Затем модифицированный магнитный наполнитель и силиконовый каучук смешивают вручную в фарфоровом стакане. Далее проводится гомогенизация смеси при помощи валкового диспергатора (рис.1). В результате получается жидкая предкомпозиция, которую можно долго хранить. На следующем этапе для регулировки вязкости получаемого эластомера в предкомпозицию вводят катализатор в соотношении 10:1. Перед проведением полимеризации проводится дегазация смеси при помощи вакуума (1-2 мм.рт.ст). После этого полученную композицию выливают в предварительно обработанную антиадгезионным составом и прогретую до 50-60⁰С форму, которую затем нагревают в СВЧ печи до 120⁰С. Для синтеза структурированных образцов форму вначале помещают между полюсами магнита и затем всю систему помещают в СВЧ печь.

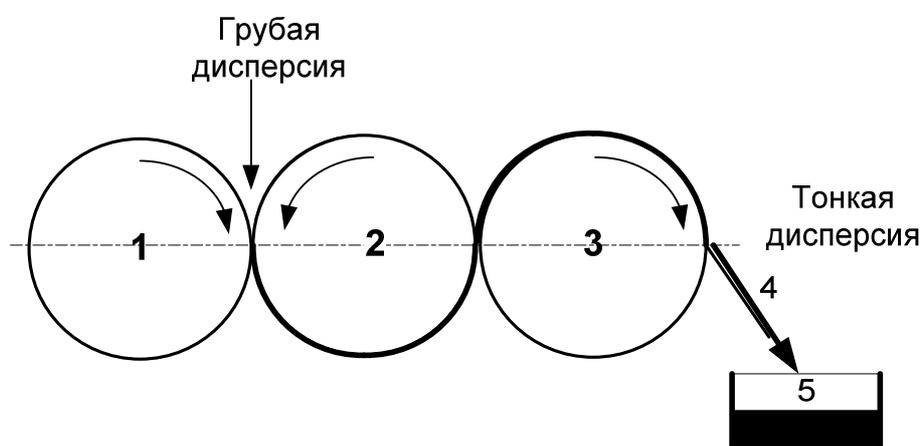


Рис.1. Лабораторный роторный диспергатор

Таким образом, в процессе изготовления получали два типа образцов: неструктурированные и структурированные магнитным полем. Для проведения измерений из полученных материалов были созданы образцы в виде круглых дисков диаметром 12 мм и толщиной 2-4 мм. На рис.2 представлена схема

эксперимента. Напряжение подавалось на излучающий пьезоэлектрический преобразователь 1, который возбуждал объемную акустическую волну (ОАВ) с продольной поляризацией. Эта волна проходила через измеряемый образец 2 и принималась пьезоэлектрическим преобразователем 3. Полное время задержки и полное затухание выходного сигнала определялось измерителем S-параметров Agilent E5071C. Исследования проводились при помощи двух пар пьезопреобразователей, одна из которых имела рабочую частоту ~ 1 МГц, а другая - ~ 0.66 МГц. Вначале измерялись полное время задержки и полное затухание сигнала при прохождении ОАВ от излучающего пьезопреобразователя к принимающему пьезопреобразователю без образца между ними. После этого между преобразователями помещался один, а затем два образца и измерения проводились снова. В результате измерялась скорость V_1 и V_2 , соответственно. Для обеспечения акустического контакта во всех случаях использовалось касторовое масло.

Измерение времени задержки τ во всех случаях осуществлялось с помощью измеренной частотной зависимости фазы выходного сигнала по формуле $\tau = \Delta\Phi / (360\Delta f)$. Здесь $\Delta\Phi$ – изменение фазы сигнала на интервале частот Δf . Эти значения позволили найти время задержки на каждом образце, исключая время задержки в преобразователях, и соответственно значение скорости по известной толщине образцов. Затем полученные значения скорости усреднялись (V_3). Эти данные представлены в таблице 1.

Измерялось также затухание акустической волны в указанных структурах на выбранной частоте по измеренной с помощью измерителя S-параметров Agilent E5071C частотной зависимости вносимых потерь. Затухание определялось как разница значений вносимых потерь в случае присутствия образца 1 и двух образцов 1 и 2, чтобы исключить влияние акустических контактов и учесть разницу в диаметрах преобразователей и образцов. По известной толщине образца 2 определялось удельное затухание (дБ/м). Измеренные данные представлены в

таблице 2. Были также определены значения плотности образцов, которые также представлены в таблице 2.

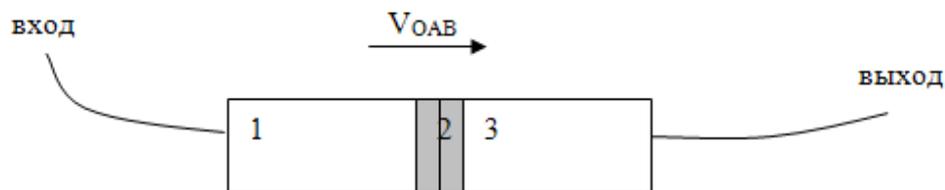


Рис.2 Схема эксперимента по измерению скорости и затухания ОАВ в магнитоуправляемых эластомерах. 1 – излучающий преобразователь, 2 – образцы, 3 – принимающий преобразователь.

Таблица 1. Скорости продольной ОАВ в магнитоуправляемых эластомерах

Образец	f = 0.66 МГц			f = 1 МГц		
	V ₁ , м/с	V ₂ , м/с	V ₃ , м/с	V ₁ , м/с	V ₂ , м/с	V ₃ , м/с
неструктур	539	654	597	767	760	764
структурир	434	596	515	771	701	736

Таблица 2. Удельное затухание и плотность магнитоуправляемых эластомеров

Образец	f = 0.66 МГц		f = 1 МГц	
	α, дБ/м	ρ, кг/м ³	α, дБ/м.	ρ, кг/м ³
неструктур	1000	2270	3348	2270
структурир	1111	2529	2625	2529

Полученные данные позволили найти модуль упругости и коэффициент вязкости исследуемых материалов. Как известно [8], выражения для комплексного модуля упругости, скорости ОАВ и затухания ОАВ можно записать в следующем виде:

$$C_{11}^* = C_{11} + i\omega\eta_{11}, \quad (1)$$

$$V = \operatorname{Re}\left(\sqrt{C_{11}^* / \rho}\right) = \left(\left(\sqrt{C_{11}^2 + \omega^2 \eta_{11}^2} + C_{11}\right) / 2\rho\right)^{1/2}, \quad (2)$$

$$\alpha \left(\frac{\partial B}{m}\right) = -8.66 \omega^2 \eta_{11} \sqrt{\rho} / \left(\sqrt{2 C_{11}^3} \left(1 + \omega^2 \eta_{11}^2 / C_{11}^2\right)\right) \quad (3)$$

Здесь C_{11} - реальная часть продольной компоненты тензора модуля упругости, C_{11}^* - комплексный продольный модуль упругости, η_{11} - продольный коэффициент вязкости, V - скорость продольной ОАВ, ρ - плотность исследуемого материала, $\omega=2\pi f$ - круговая частота, f - рабочая частота, α - коэффициент затухания. Выражение (2) позволило определить коэффициент вязкости как функцию модуля упругости C_{11} и скорости V :

$$\eta_{11} = 2V \sqrt{V^2 \rho^2 - \rho C_{11}} / \omega. \quad (4)$$

Затем выражение (4) было подставлено в формулу (3), и затухание оказалось выраженным через скорость и реальную часть модуля упругости. Далее, подбирались такие значения реальной части модуля упругости, при которых теоретические значения затухания оказались равными экспериментально найденным. При этом использовались измеренные значения скорости. Найденные значения реальной части модуля упругости приведены в таблице 3. После этого, используя найденные значения реальных частей модулей упругости, скорости и экспериментальные значения затухания, по формуле (4) определялись коэффициенты вязкости, которые также приведены в таблице 3.

Таблица 3. Продольные модули упругости и коэффициенты вязкости магнитных эластомеров.

Образец	f = 0.66 МГц		f = 1 МГц	
	C_{11} , МПа	η_{11} , Па×с	C_{11} , МПа	η_{11} , Па×с
неструктур	800	6	1300	14
структурир	670	5	1360	15

3. Влияние внешнего магнитного поля на скорость продольной акустической волны в магнитоуправляемых эластомерах.

Для проведения экспериментального исследования влияния внешнего магнитного поля на скорость продольной ОАВ в магнитоуправляемых эластомерах использовались вышеуказанные образцы. На рис.3 представлена схема экспериментальной установки. Пьезоэлектрические преобразователи 1 с рабочей частотой ~ 0.66 МГц и исследуемым образцом 2 между ними размещались между полюсами магнита 3 так, чтобы направление силовых линий магнитного поля было параллельно направлению распространения продольной ОАВ.

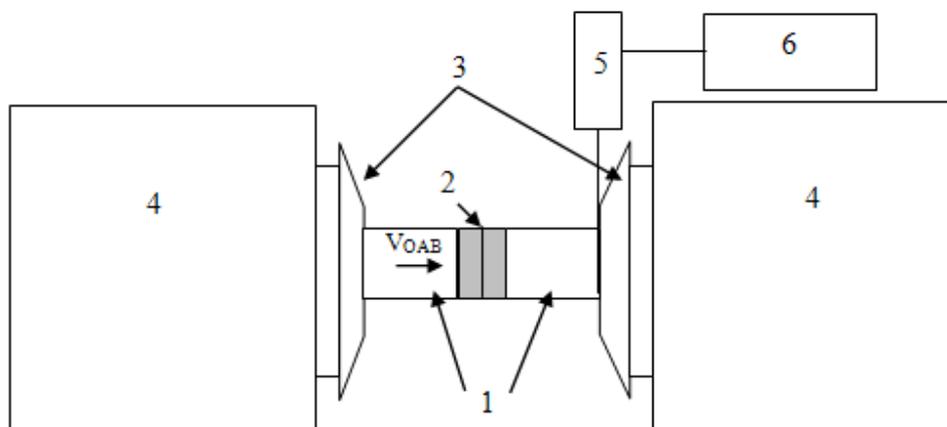


Рис. 3. Установка для исследования влияния магнитного поля на скорость ОАВ в магнитоупругих эластомерах. 1-катушки магнита, 2- полюса магнита, 3 - пьезопреобразователи, 4 - исследуемые образцы, 5 - зонд для измерения магнитного поля.

На катушки магнита 4 подавалось постоянное напряжение, путем изменения которого менялась напряженность магнитного поля между полюсами магнита. Измерение величины магнитного поля осуществлялось с помощью специального зонда 5, подключенного к измерителю напряженности магнитного поля 6.

В ходе эксперимента напряженность магнитного поля менялась в диапазоне от 0 до 10 кЭ с шагом 0.5 кЭ. В процессе эксперимента измерялась зависимость изменения фазы выходного сигнала на выбранной частоте от напряженности

магнитного поля. Эксперименты проводились при различной ориентации магнитного поля.

На рис. 4, 5 представлены полученные зависимости изменения фазы выходного сигнала от напряженности магнитного поля для неструктурированного и структурированного образцов, соответственно.

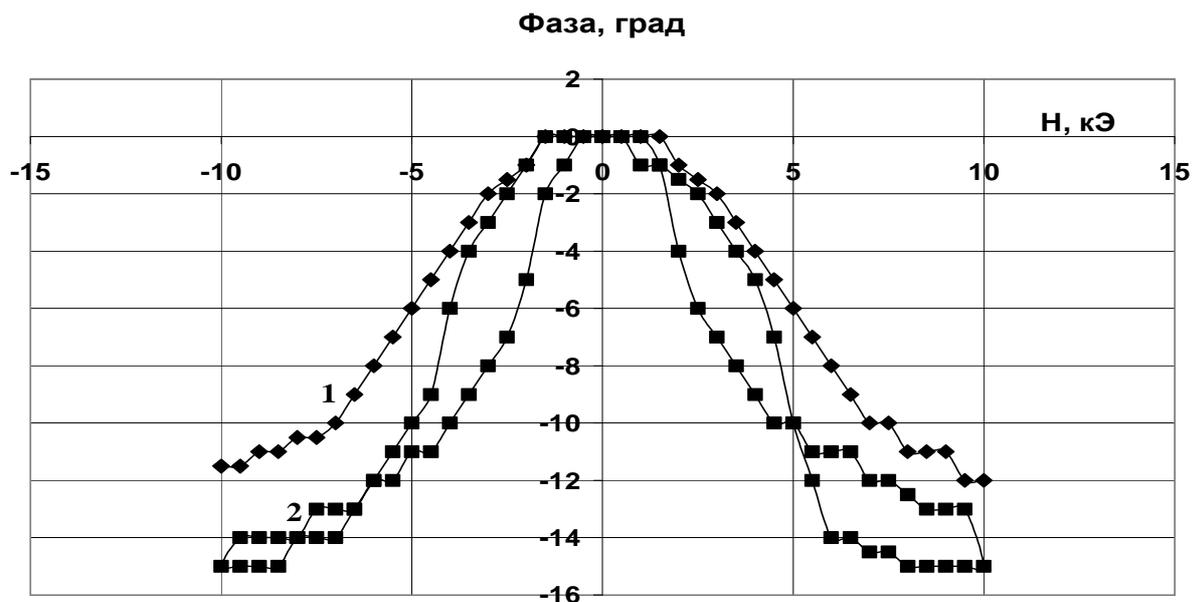


Рисунок 4. Зависимость фазы выходного сигнала от напряженности магнитного поля для неструктурированного образца (кривая 1 - первое измерение со снятием показаний по фазе только при увеличении напряженности магнитного поля, кривая 2- повторное измерение со снятием показаний по фазе, как при увеличении напряженности магнитного поля, так и при уменьшении и шагом 0.5 кЭ).

Анализ показал, что фаза выходного сигнала, а, следовательно, и величина скорости ОАВ в исследуемых образцах зависит от напряженности внешнего магнитного поля. Однако, неструктурированные образцы менее чувствительны к магнитному полю, чем структурированные.

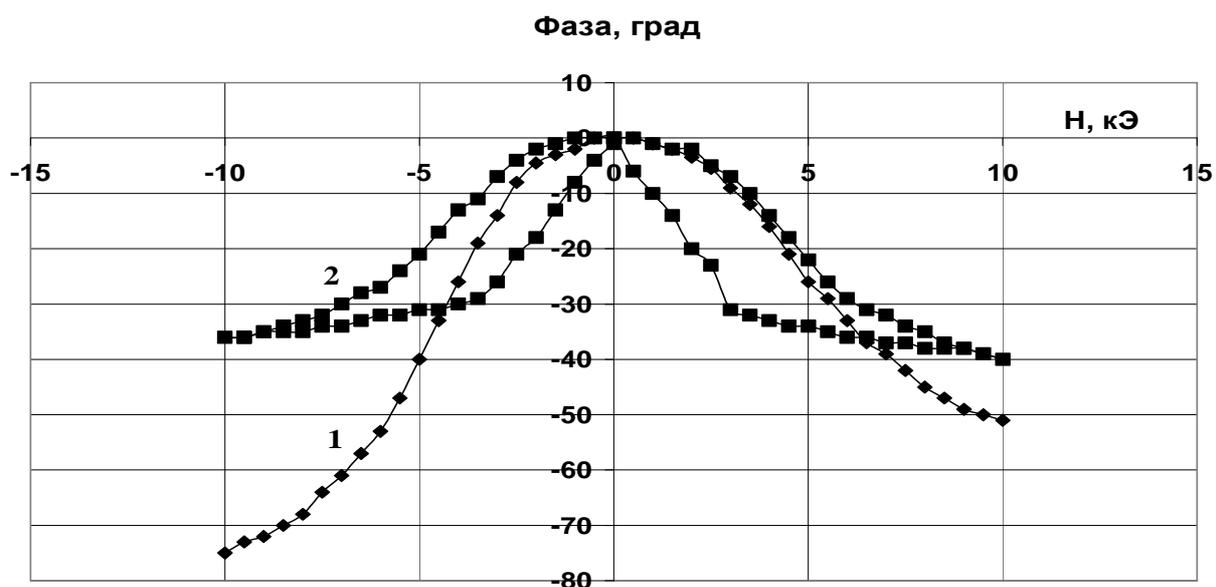


Рисунок 5. Зависимость фазы выходного сигнала от напряженности магнитного поля для структурированного образца (кривая 1 - первое измерение со снятием показаний по фазе только при увеличении напряженности магнитного поля, кривая 2- повторное измерение со снятием показаний по фазе, как при увеличении напряженности магнитного поля, так и при уменьшении и шагом 0.5 кЭ).

Анализ полученных результатов показал, что с ростом напряженности магнитного поля фаза сигнала всегда уменьшается, т.е. скорость ОАВ увеличивается. Видно также, что все образцы проявляют гистерезис. Предполагается, что изменение скорости акустической волны при изменении магнитного поля связано, в основном, с эффектом магнитострикции.

Используя измеренные значения изменения фазы и толщины образцов, а также определенные ранее значения скорости ОАВ V_3 , используя формулу (5) была определена скорость продольной ОАВ в вышеуказанных образцах магнитоуправляемых эластомерах при магнитном поле с напряженностью 10 кЭ

$$V_M = V_3(1 + \Delta\Phi_1 / \Phi_0), \quad (5)$$

где $\Delta\Phi_1 = \Phi_1 - \Phi_0$; Φ_0 , Φ_1 , V_3 и V_M - набеги фазы сигнала и скорости продольной ОАВ в исследуемом образце при нулевой и максимальной напряженностях магнитного поля, соответственно.

В таблице 4 приведены значения скорости продольной ОАВ в исследуемых образцах магнитоуправляемых эластомерах при нулевой напряженности поля и при напряженности поля 10 кЭ. В ходе эксперимента предполагалось, что толщины исследуемых образцов не меняются при воздействии магнитного поля. Из таблицы 4 видно, что при увеличении напряженности магнитного поля до 10 кЭ. максимальное увеличение скорости продольной акустической волны составляет 1.75% для структурированного образца.

Таблица 4. Изменение фазы сигнала и скорость ОАВ при значении магнитного поля 10 кЭ и относительное изменение скорости ОАВ на частоте 0.66 МГц.

Образец	Φ_0 , град.	$\Delta\Phi_1$, град.	V_3 , м/с	V_M , м/с	$\Delta V/V$, %
неструктур	2031	-15	597	601	0.7
структурир	2075	-38	515	524	1.75

4. Выводы

В результате проведенных экспериментов было обнаружено, что с ростом частоты модуль упругости исследуемых магнитоуправляемых эластомеров увеличивается. Было также обнаружено, что с ростом напряженности магнитного поля скорость продольной ОАВ увеличивается. Максимальное увеличение составило ~ 1.75% для структурированных образцов при величине магнитного поля 10кЭ. Анализ показал также, что для структурированных образцов степень изменения скорости ОАВ при воздействии внешнего магнитного поля выше, чем для неструктурированных образцов. Был сделан вывод, что изменение скорости

ОАВ при изменении магнитного поля связано, в основном, с эффектом магнитострикции.

Работа поддержана Министерством образования и науки РФ (Соглашение 8400).

Литература

1. Zrinyi M. et al. Deformation of ferrogels induced by nonuniform magnetic fields. // J. Chem. Phys. 1996. V.104. P.8750.
2. G.V. Stepanov, S.S. Abramchuk, D.A. Grishin, L.V. Nikitin, E.Yu. Kramarenko, A.R. Khokhlov. Effect of a Homogeneous Magnetic Field on the Viscoelastic Behavior of Magnetic Elastomers. Polymer, 2007, v. 48, pp. 488-495.
3. S.S. Abramchuk, D.A. Grishin, E.Yu. Kramarenko, G.V. Stepanov, A.R. Khokhlov Effect of Homogeneous Magnetic Field on the Mechanical Behavior of Soft Magnetic Elastomers under Compression. Polymer Science, Ser. A, 2006, v. 48, no 2, pp. 138-145.
4. A.M. Lotonov, N.D. Gavrilova, E.Yu. Kramarenko, E.I. Alexeeva, P.Y. Popov, G.V. Stepanov Effect of Iron Particles on Dielectric Properties of Polydimethylsiloxane near Crystallization and Glass Transition Temperatures. Polymer Science, Ser. B, 2006, v. 48, no. 9-10, pp. 267-270.
5. S. Abramchuk, E. Kramarenko, G. Stepanov, L.V. Nikitin, G. Filipcsei, A.R. Khokhlov, M. Zrinyi. Novel Highly Elastic Magnetic Materials for Dampers and Seals I.: Preparation and characterization of the elastic materials. Polym. Adv. Technol. 2007; vol. 18 (11): pp. 883-890.
6. S. Abramchuk, E. Kramarenko, D. Grishin, G. Stepanov, L.V. Nikitin, G. Filipcsei, M. Zrinyi. Novel Highly Elastic Magnetic Materials for Dampers and Seals II.: Material Behaviour in a Magnetic Field. Polym. Adv. Technol. 2007; vol. 18 (7), pp. 513-518.

7. G.V.Stepanov, E.I.Alekseeva, A.I.Gorbunov, L.V.Nikitin Silicone Magnetoelastic Composite, In: Organosilicon Chemistry VI – From Molecules to materials, (Eds.: N. Auner, J.Weis) Wiley-VCH, Weinheim, 2005, V.2, P779-784.
8. E. Dieulesaint., D. Royer, *Elastic waves in solids*, J. Wiley & Sons, New York, 1974.