

УДК 537.6

## УПРАВЛЕНИЕ ХАРАКТЕРИСТИКАМИ МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ЭФФЕКТА В КОМПОЗИТНЫХ РЕЗОНАТОРАХ С ПОМОЩЬЮ ВНЕШНИХ ВОЗДЕЙСТВИЙ

© 2019 г. Л. Ю. Фетисов\*

*Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования  
“МИРЭА – Российский технологический университет”, Москва, Россия*

\*E-mail: fetisovl@yandex.ru

Поступила в редакцию 07.09.2018 г.

После доработки 31.01.2019 г.

Принята к публикации 27.03.2019 г.

Продемонстрированы возможности управления характеристиками низкочастотного резонансного магнитоэлектрического эффекта в композитных структурах, содержащих механически связанные ферромагнитные и пьезоэлектрические слои, с помощью внешних воздействий. В планарных структурах со слоями из никеля и цирконата-титаната свинца величина эффекта изменяется на десятки процентов, а частота акустического резонанса перестраивается до десяти процентов под действием постоянного магнитного поля, постоянного электрического поля, при изменении температуры или путем создания в структуре механических напряжений.

DOI: 10.1134/S0367676519070160

### ВВЕДЕНИЕ

Магнитоэлектрический (МЭ) эффект наблюдается в материалах, обладающих одновременно ферромагнитным и сегнетоэлектрическим упорядочением, и проявляется в изменении электрической поляризации  $P$  образца во внешнем магнитном поле  $H$  (прямой эффект) или изменении намагниченности  $M$  образца во внешнем электрическом поле  $E$  (обратный эффект). Наибольший по величине МЭ эффект обнаружен в композитных структурах, содержащих чередующиеся ферромагнитные (ФМ) и пьезоэлектрические (ПЭ) слои (см. обзоры [1, 2]). Эффект в таких структурах возникает в результате комбинации магнитострикции ФМ слоя и пьезоэффекта в ПЭ слое из-за механической связи между ними [3]. Интерес к исследованиям МЭ эффектов в композитных структурах обусловлен перспективами их использования для создания высокочувствительных датчиков магнитных полей [4], автономных источников энергии [5], устройств обработки сигналов [6] и новых элементов магнитной памяти [7].

Прямой МЭ эффект в композитных структурах характеризуют коэффициентом преобразования магнитного поля в электрическое  $\alpha_E = (u/b)/h$ , где  $u$  – амплитуда напряжения, генерируемого под действием переменного поля,  $h, b$  – толщины ПЭ

слоев структуры. Величина коэффициента зависит от размеров, магнитных, диэлектрических, механических свойств слоев структуры, частоты возбуждающего поля и приблизительно описывается следующим выражением [8]:

$$\alpha_E = A \frac{qd_{13}}{\varepsilon - Bd_{13}^2}. \quad (1)$$

где  $A$  и  $B$  – коэффициенты, зависящие от размеров и механических параметров слоев,  $q = \partial\lambda/\partial H$  – пьезомагнитный коэффициент,  $\lambda(H)$  – магнитострикция ФМ слоя,  $d_{13}$  – пьезоэлектрический модуль и  $\varepsilon$  – диэлектрическая проницаемость ПЭ слоя. Коэффициент  $A(f)$  описывает также увеличение МЭ коэффициента в добротность  $Q \sim 10^2$  раз из-за резонансного возрастания деформаций при совпадении частоты возбуждающего поля  $f$  с частотами акустических резонансов структуры [9]. Для планарных композитных структур частоты изгибных  $f_1$  и планарных  $f_2$  акустических колебаний могут быть найдены по формулам [10]:

$$f_1 = \frac{k^2}{2\pi L^2} \sqrt{\frac{Y \cdot I}{\rho \cdot S}} \quad \text{и} \quad f_2 = \frac{1}{2L} \sqrt{\frac{Y}{\rho}}, \quad (2)$$

где  $Y = (Y_m a_m + Y_p a_p)/(a_m + a_p)$ ,  $\rho = (\rho_m a_m + \rho_p a_p)/(a_m + a_p)$  – эффективные модуль Юнга и плотность структуры,  $Y_m, Y_p$  и  $\rho_m, \rho_p$  – модули Юнга и плотности ФМ и ПЭ слоев,  $S = b(a_m + a_p)$

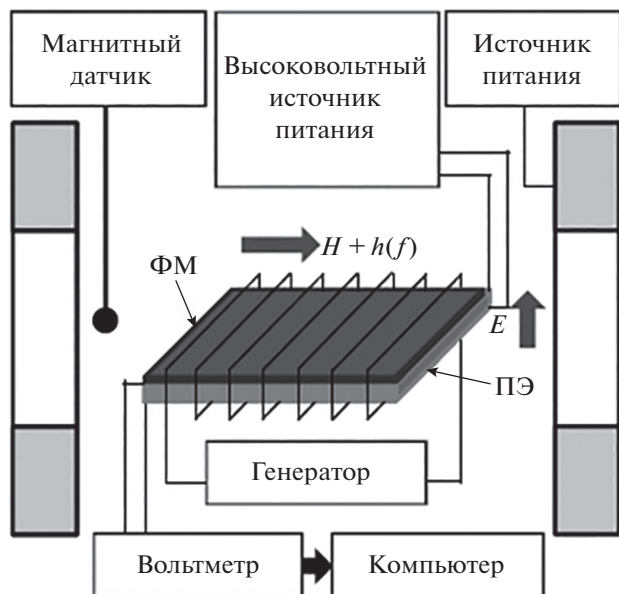


Рис. 1. Блок-схема установки для исследования характеристик МЭ эффекта.

и  $I = b(a_m + a_p)^3 / 12$  – площадь и момент инерции поперечного сечения структуры,  $k$  – коэффициент для соответствующей моды колебаний.

Из формул (1) и (2) следует, что величину коэффициента МЭ преобразования, и частоту акустического резонанса композитных структур можно изменять с помощью внешних воздействий, влияющих на характеристики слоев структуры. Далее будут продемонстрированы возможности управления характеристиками композитных МЭ резонаторов с помощью постоянного магнитного поля  $H$ , влияющего на ФМ слой, постоянного электрического поля  $E$ , приложенного к ПЭ слою, за счет изменения температуры  $T$  структуры и под влиянием механических деформаций  $N$  слоев структуры.

### МЕТОДИКИ ИЗМЕРЕНИЙ

Блок-схема установки для исследования прямого МЭ эффекта в композитных структурах динамическим методом изображена на рис. 1. Исследуемый образец помещали во внешнее постоянное однородное магнитное поле  $H = 0–1500$  Э, созданное катушками Гельмгольца и параллельное плоскости структуры. Возбуждающее переменное магнитное поле  $h \cos(2\pi ft)$  с амплитудой  $h = 1–10$  Э и частотой  $f = 0.01–200$  кГц, направленное вдоль  $H$ , создавали с помощью электромагнитной катушки. Регистрировали амплитуду напряжения  $u$ , генерируемого ПЭ слоем структуры вследствие МЭ эффекта, при изменении частоты возбуждающего поля  $f$  и напряженности магнитно-

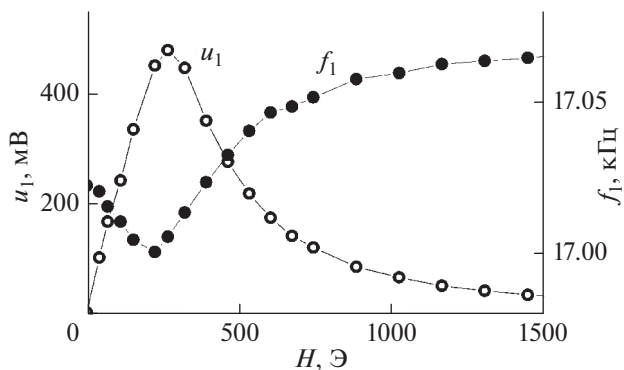


Рис. 2. Зависимости МЭ напряжения  $u_1$  и частоты  $f_1$  изгибных колебаний Ni-PZT структуры от напряженности магнитного поля  $H$ .

го поля  $H$ . Все приборы установки управлялись при помощи специальной программы, написанной в среде LabView. Для исследования влияния электрического поля  $E$  на характеристики МЭ эффекта к ПЭ слою структуры прикладывали постоянное напряжение  $U = 0–750$  В. Генерируемое структурой переменное напряжение снимали через разделительный конденсатор [11]. Для исследования температурных характеристик МЭ резонатор помещали в термоизолированную ячейку и охлаждали потоком газообразного азота с регулируемой температурой  $T = 200–370$  К. Растягивающие механические напряжения величиной  $N = 0–2.5$  МПа создавали, расположив структуру вертикально и подвесив к ее нижнему концу груз массой  $m = 1–100$  г.

### РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

Влияние постоянного магнитного поля на характеристики МЭ эффекта исследовали на структуре, схематически изображенной на вставке рис. 1. Структура содержала ФМ слой из Ni размерами  $11 \times 5 \times 0.2$  мм<sup>3</sup> и ПЭ слой из  $\text{Pb}_{0.52}\text{Zr}_{0.48}\text{TiO}_3$  (PZT) размерами  $11 \times 5 \times 0.5$  мм<sup>3</sup>. На поверхности PZT пластины были нанесены электроды из Ag толщиной  $\sim 2$  мкм. Слои были соединены с помощью эпоксидного клея. Амплитудно-частотная характеристика  $u(f)$  МЭ эффекта при  $H = 250$  Э и  $h = 8$  Э содержала два пика вблизи частоты  $f_1 = 17$  кГц с добротностью  $Q_1 = 112$  и вблизи частоты  $f_2 = 157$  кГц с добротностью  $Q_2 = 72$ , соответствующие возбуждению изгибных и планарных акустических колебаний [11].

Как следует из (1), коэффициент  $\alpha_E$  зависит от  $H$  вследствие зависимости от поля пьезомагнитного коэффициента  $q(H)$  ФМ слоя. На рис. 2 приведена полевая зависимость МЭ напряжения  $u_1(H)$  и резонансной частоты  $f_1(H)$ . Видно, что  $u_1$  вначале растет с увеличением  $H$ , достигает максимума при  $H_m = 250$  Э, соответствующем макси-

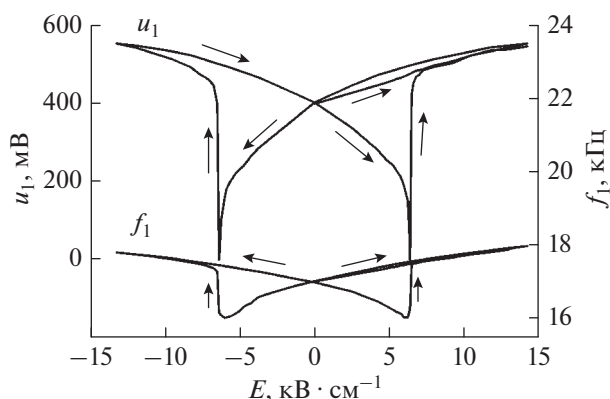


Рис. 3. Зависимости МЭ напряжения  $u_1$  и частоты  $f_1$  изгибных колебаний Ni-PZT структуры от электрического поля  $E$ .

мальному  $q$ , а затем монотонно уменьшается до нуля. К изменению  $u_1$  может приводить также полевая зависимость добротности резонатора, которая возникает из-за перестройки доменной структуры ФМ слоя. Резонансная частота  $f_1$  зависит от поля гораздо слабее и имеет минимум в том же поле  $H_m$ , что и  $u_1(H)$ . Максимальное изменение резонансной частоты составляет  $\Delta f_1 = 0.06$  кГц. Зависимость частоты от  $H$  возникает из-за полевой зависимости модуля Юнга  $Y_m$  ФМ слоя. Вызванный полем  $H$  максимальный сдвиг частоты  $\Delta f_1/f_1 \approx 0.35\%$  соответствует изменению модуля Юнга слоя Ni на  $\Delta Y/Y(0) \approx 0.7\%$ . Показано, что постоянное поле  $H$  позволяет сильно изменять эффективность МЭ преобразования  $\alpha_E$  и незначительно перестраивать частоту ФМ резонаторов со слоями из аморфного сплава [12], галфенола [13] и терфенола [14].

Влияние постоянного электрического поля на характеристики МЭ эффекта исследовали в такой же Ni-PZT структуре [15]. На рис. 3 приведены зависимости напряжения  $u_1$ , генерируемого структурой на частоте изгибного резонанса при возбуждающем поле  $h = 8$  Э, и частоты этого резонанса  $f_1$  от напряженности поля  $E$  в слое PZT. Видно, что  $u_1$  на начальном участке линейно возрастает от 400 мВ до 550 мВ при увеличении  $E$  до 15 кВ/см, затем падает до начального значения 400 мВ при  $E = 0$  и продолжает уменьшаться до нуля в поле  $E = -6.5$  кВ/см. Затем  $u_1$ , скачкообразно возрастает до  $\sim 450$  мВ и продолжает расти при дальнейшем уменьшении  $E$  до  $-15$  кВ/см. При последующем изменении  $E$  от  $-15$  кВ/см до  $+15$  кВ/см процесс повторяется и формируется гистерезисная зависимость  $u_1(E)$  типа “бабочка”. Зависимость  $f_1(E)$  также имеет вид “бабочка”. Максимальное изменение частоты колебаний структу-

ры, вызванное полем  $E$ , достигало  $\Delta f_1 \approx 2.0$  кГц, или  $\Delta f_1/f_1 \approx 12\%$ .

Как следует из (1), МЭ коэффициент может зависеть от  $E$  из-за полевой зависимости пьезомодуля  $d_{31}(E)$ , диэлектрической проницаемости  $\epsilon(E)$ , а также диэлектрических потерь  $\text{tg} \delta(E)$  ПЭ слоя структуры. В [16] показано, что поле  $E$  может изменять  $\epsilon$  в несколько раз. В нашем случае изменение  $\epsilon$  приводило к изменению МЭ напряжения в  $\sim 2.5$  раза при увеличении  $E$  от  $-5$  до  $+15$  кВ/см. В полях переполяризации  $E_C \approx \pm 7$  кВ/см дипольный момент ПЭ слоя  $P$  меняет направление, проходя через нуль. Пьезомодуль, величина которого  $d_{13} \sim P$ , в этой точке также обращается в нуль. Это приводит, в соответствии с формулой (1), к падению МЭ напряжения до нуля. Акустические потери PZT керамики в области переполяризации могут изменяться на  $\sim 30\%$  [17]. Увеличение потерь вызывает уменьшение добротности  $Q_1$  колебаний и дополнительное падение амплитуды  $u_1$  МЭ напряжения. Перестройка частоты  $f_1$  колебаний свидетельствует, согласно (2), об изменении эффективного модуля Юнга структуры. Поле  $E$  селективно меняет модуль Юнга  $Y_p$  ПЭ слоя. Вызванный полем  $E$  сдвиг частоты  $\Delta f_1 = 2.0$  кГц соответствует изменению модуля Юнга PZT керамики на  $\Delta Y_p/Y_p(0) \approx 25\%$ . Таким образом, в структурах с PZT слоями с помощью электрического поля  $E$  можно сильно изменять величину МЭ эффекта и на  $\sim 12\%$  перестраивать частоту МЭ резонатора. В структурах, содержащих ПЭ слои из монокристаллов лангата, кварца или GaAs, эффективность МЭ преобразования от электрического поля изменяется не более, чем на 20%, а частота резонанса перестраивается менее, чем на 1%.

Влияние температуры на характеристики МЭ эффекта исследовали на двухслойной Ni-PZT структуре диаметром  $D = 25$  мм. Структура была изготовлена методом электролитического осаждения Ni на керамический диск. Толщина слоя Ni составляла  $a_m = 30$  мкм, а слоя PZT керамики  $a_p = 0.2$  мм [18]. Частота основной изгибной моды акустических колебаний резонатора при комнатной температуре  $T = 290$  К равнялась  $f_1 = 2.45$  кГц. На рис. 4 приведены зависимости напряжения  $u_1$ , генерируемой структурой на резонансной частоте, и самой резонансной частоты  $f_1$  от температуры  $T$  в диапазоне 210–360 К.

Видно, что  $u_1$  монотонно падает от  $u \sim 0.6$  В при температуре 220 К до нуля при 350 К. Резонансная частота демонстрирует более сложную зависимость. Максимальное изменение частоты составило  $\Delta f \approx 380$  Гц или  $\approx 16\%$ , что значительно превосходит возможный сдвиг частоты из-за температурного расширения слоев. Вид температурной зависимости МЭ напряжения  $u(T)$  обусловлен температурными зависимостями диэлектри-

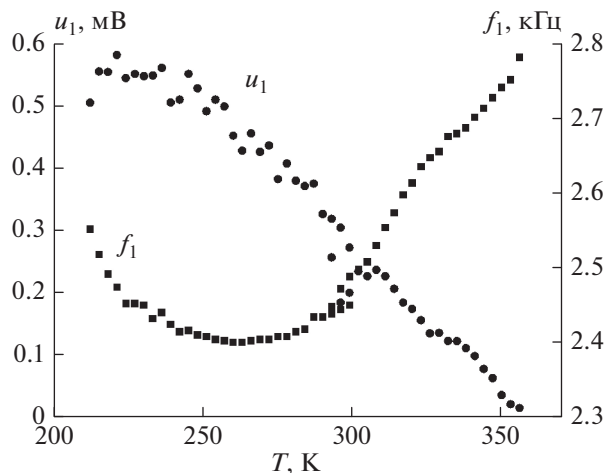


Рис. 4. Зависимость амплитуды МЭ напряжения  $u_1$  и частоты резонанса  $f_1$  для PZT-Ni диска от температуры  $T$ .

ческой проницаемости  $\epsilon(T)$  и пьезомодуля  $d_{13}(T)$  ПЭ слоя, температурной зависимостью пьезомагнитного модуля  $q(T)$  ФМ слоя, а также температурной зависимостью добротности структуры  $Q(T)$ . Значительное температурное изменение частоты резонанса, как следует из (2), скорее всего, обусловлено двумя эффектами: изменением модулей Юнга слоев, либо возникновением статической деформации в структуре, обусловленной разницей в коэффициентах температурного расширения слоев [18]. Показано, что температура  $T$  позволяет сильно изменять эффективность МЭ преобразования  $\alpha_E$  и незначительно перестраивать частоту ФМ резонаторов типа магнитообаттитанат свинца–никель [19], магнитный сплав Vitrovac ( $\text{Fe}_{39}\text{Ni}_{39}\text{Mo}_4\text{Si}_6\text{B}_{12}$ ) – пьезополимер (PVDF) [20], аморфный сплав ( $\text{FeBSiC}$ ) – пьезокерамика (PZT) – аморфный сплав  $\text{FeBSiC}$  [21].

Влияние механических напряжений на характеристики МЭ эффекта исследовали на двухслойной структуре PZT-аморфный магнитный сплав (Metglas 2605S3A). Размеры ПЭ слоя составляли  $30 \times 4 \times 0.2 \text{ мм}^3$ , а размеры ФМ слоя  $30 \times 4 \times 0.02 \text{ мм}^3$ . Слои были соединены с помощью эпоксидного клея. Растягивающие механические напряжения  $N = 0\text{--}2.5 \text{ МПа}$  прикладывали вдоль длинной оси структуры. Измеряли зависимости МЭ напряжения  $u$  от постоянного поля  $H$  вне резонанса на частоте возбуждающего магнитного поля  $f = 5.8 \text{ кГц}$ . На рис. 5 приведены зависимости МЭ напряжения от поля  $u(H)$  для трех значений механических напряжений. Видно, что увеличение  $N$  приводит к падению  $u$  и смещению поля  $H_m$ , соответствующего максимуму напряжения, в область меньших полей. Как следует из (2), эффект может быть обусловлен только изменением вида

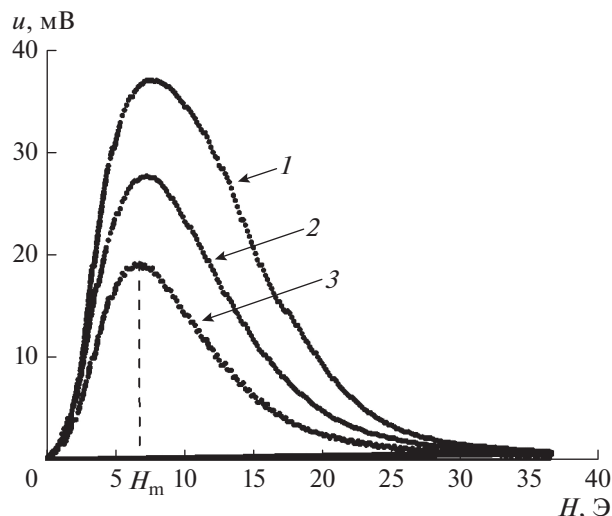


Рис. 5. Зависимости МЭ напряжения от поля  $H$  в структуре PZT-Metglas при механических напряжениях  $N$ : 1 – 0, 2 – 1, 3 – 2 МПа.

полевой зависимости пьезомагнитного коэффициента  $q(H)$  из-за дополнительного поля анизотропии  $H_a$ , создаваемого механическим напряжением.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, показаны возможности управления характеристиками резонансного МЭ эффекта в структурах ферромагнетик–пьезоэлектрик с помощью внешних воздействий, избирательно влияющих на характеристики слоев. Зависимость пьезомагнитного коэффициента и жесткости ФМ слоя от внешнего магнитного поля  $H$  и зависимость пьезомодуля, диэлектрической проницаемости и жесткости ПЭ слоя от электрического поля  $E$  приводят к значительному изменению МЭ коэффициента и перестройке в небольших пределах частоты акустического резонанса структуры. К аналогичным эффектам приводят температурные зависимости пьезомодуля и диэлектрической проницаемости ПЭ слоя, пьезомагнитного коэффициента ФМ слоя и различие в коэффициентах температурного расширения слоев. Эффективностью МЭ преобразования можно также управлять с помощью механических напряжений, создаваемых внешней силой.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки РФ, проект № 8.1183.2017 ПЧ, а также Российского Фонда Фундаментальных Исследований, проект № 18-502-12037.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Nan C.-W., Bichurin M.I., Dong S. et al. // J. Appl. Phys. 2008. V. 103. Art. № 031101.

2. *Srinivasan G.* // *Annu. Rev. Mater. Res.* 2010. V. 40. № 153.
3. *Van Suchtelen J.* // *Philips Res. Rep.* 1972. V. 27. № 28.
4. *Серов В.Н., Фетисов Л.Ю., Фетисов Ю.К., Шестаков Е.И.* // *Росс. технол. журнал.* 2016. Т. 5. № 5. С. 24.
5. *Bayrashev A., Robbins W.P., Ziaie B.* // *Sens. Actuators. A.* 2004. V. 114. № 244.
6. *Srinivasan G., Fetisov Y.K.* // *Ferroelectrics.* 2006. V. 342. № 65.
7. *Palneedi H., Annappureddy V., Priya S., Ryu J.* // *Actuators.* 2016. V. 5. № 1. P. 9.
8. *Harshe G., Dougherty J.P., Newman R.E.* // *Int. J. Appl. Electromagn. Mater.* 1993. V. 3. № 145.
9. *Филиппов Д.А., Бичурин М.И., Петров В.М. и др.* // *ФТТ.* 2004. Т. 46. № 9. С. 1621; *Filippov D.A., Bichurin M.I., Petrov V.M. et al.* // *Phys. Sol. St.* 2004. V. 46. № 9. P. 1674.
10. *Тимошенко С.П.* Колебания в инженерном деле. М.: Физматлит. 1959. 439 с.
11. *Фетисов Л.Ю., Фетисов Ю.К., Каменцев К.Е.* // *ФТТ.* 2009. Т. 51. № 11. С. 2175; *Fetisov L.Y., Fetisov Y.K., Kamentsev K.E.* // *Phys. Sol. St.* 2009. V. 51. № 11. P. 2308.
12. *Фетисов Л.Ю., Чашин Д.В., Перов Н.С., Фетисов Ю.К.* // *ЖТФ.* 2011. Т. 81. № 4. С. 56; *Fetisov L.Y., Perov N.S., Fetisov Y.K., Chashin D.V.* // *Tech. Phys. Russ. J. Appl. Phys.* 2011. V. 56. № 4. P. 485.
13. *Fetisov L.Y., Kamentsev K.E., Srinivasan G. et al.* // *J. Appl. Phys.* 2009. V. 105. Art. № 123918.
14. *Yao Y.P., Hou Y., Dong S.N., Li X. G.* // *J. Appl. Phys.* 2011. V. 110. Art. № 014508.
15. *Fetisov Y.K., Fetisov L.Y., Srinivasan G.* // *Appl. Phys. Lett.* 2009. V. 94. Art. № 132507.
16. *Яффе Б., Кук У., Яффе Г.* Пьезоэлектрическая керамика. М.: Мир, 1974. 288 с.
17. *Ryzhenko V., Burianova L., Hana P.* // *J. Electroceram.* 2008. V. 20. P. 35.
18. *Burdin D.A., Chashin D.V., Ekonomov N.A. et al.* // *Appl. Phys. Lett.* 2012. V. 112. Art. № 242902.
19. *Бурдин Д.А., Фетисов Ю.К., Чашин Д.В., Экономов Н.А.* // *Письма в ЖТФ.* 2012. Т. 38. № 14. С. 41.
20. *Gutierrez J., Lasheras A., Barandiaran J.M. et al.* // *Key Engin. Mater.* 2011. V. 495. P. 351.
21. *Ye J.X., Ma J.N., Hu J.M. et al.* // *J. Appl. Phys.* 2014. V. 116. Art. № 074103.