

Влияние электрического поля на характеристики магнитоэлектрического взаимодействия в композитной структуре ферромагнетик–сегнетоэлектрик

© Л.Ю. Фетисов, Ю.К. Фетисов, К.Е. Каменцев

Московский государственный институт радиотехники, электроники и автоматики (Технический университет), Москва, Россия

E-mail: fetisov@mirea.ru

(Поступила в Редакцию 28 января 2009 г.
В окончательной редакции 1 апреля 2009 г.)

Исследованы характеристики магнитоэлектрического взаимодействия в планарной структуре цирконат-титанат свинца–никель при приложении к слою сегнетоэлектрика постоянного электрического поля. Обнаружены гистерезисная зависимость эффективности и частоты резонансного магнитоэлектрического взаимодействия от поля и обращение эффективности взаимодействия в нуль в области полей переполаризации, вызванные изменением диэлектрической проницаемости, пьезомодуля и потерь сегнетоэлектрика. Показано, что электрическое поле приводит к значительному изменению жесткости сегнетоэлектрического слоя.

Работа поддержана Министерством образования и науки РФ (проект 2.1.1/6650) и Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 08-02-12151-офи).

PACS: 75.80.+q, 77.84.Dy

1. Введение

Магнитоэлектрическое (МЭ) взаимодействие наблюдается в материалах, обладающих одновременно ферромагнитным и сегнетоэлектрическим упорядочением. К числу таких материалов относятся композиты в виде слоистых структур, содержащих чередующиеся ферромагнитные и сегнетоэлектрические слои. Эффект возникает в результате комбинации магнитострикции и пьезоэффекта из-за механической связи между слоями. В экспериментах МЭ-эффект проявляется в виде генерации переменного напряжения $u(f)$ на гранях структуры при воздействии на нее переменного магнитного поля $h(f)$ с частотой f .

Эффективность МЭ-взаимодействия характеризуется коэффициентом преобразования магнитного поля в электрическое поле $\alpha_E = (u/a)/h$, где a — толщина структуры. Величина коэффициента зависит от размеров структуры, магнитных, диэлектрических и механических свойств составляющих ее слоев и частоты магнитного поля. Теория предсказывает следующее выражение для МЭ-коэффициента структуры, намагниченной параллельно и поляризованной перпендикулярно плоскости [1]:

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

Здесь A и B — коэффициенты, зависящие от размеров и механических параметров слоев, $q = \partial\lambda/\partial H$ — пьезомагнитный коэффициент, $\lambda(H)$ — магнитострикция ферромагнитного слоя, d_{13} и ε — пьезоэлектрический модуль и диэлектрическая проницаемость сегнетоэлектрического слоя. Коэффициент $A(f)$ зависит от частоты f и описывает резонансное увеличение эффективности МЭ-

взаимодействия на частотах акустических резонансов структуры [2].

Показано [3], что коэффициент α_E зависит от напряженности и ориентации постоянного магнитного поля H , приложенного к структуре. Зависимость возникает вследствие изменения пьезомагнитного коэффициента $q(H)$ магнитного слоя. Для структур, содержащих магнитные слои из металлов Ni и Fe, ферритов, сплавов галфенол и терфенол, коэффициент $q(H)$ имеет максимум в полях $H \sim 10 \text{ Oe} - 1 \text{ kOe}$ и стремится к нулю в слабых полях и при насыщении ферромагнетика [4].

Коэффициент α_E , как следует из формулы (1), должен зависеть также и от постоянного электрического поля E , приложенного к структуре. Поле E может существенно изменять пьезомодуль и диэлектрическую проницаемость сегнетоэлектрика. Однако, насколько известно авторам, зависимости характеристик МЭ-взаимодействия в слоистых структурах от электрического поля E до настоящего времени не наблюдали.

В настоящей работе обнаружено и исследовано влияние электрического поля на эффективность и частотные характеристики МЭ-взаимодействия в двуслойной структуре никель–цирконат-титанат свинца. Проведено сравнение возможностей управления параметрами МЭ-взаимодействия с помощью постоянного электрического и магнитного полей.

2. Образцы и методика измерений

В исследованиях использовали структуру, содержащую пластину цирконата-титаната свинца (PZT) и пластину никеля (вставка на рис. 1). Пластина PZT имела толщину $a_p = 0.5 \text{ mm}$, пластина Ni — толщину

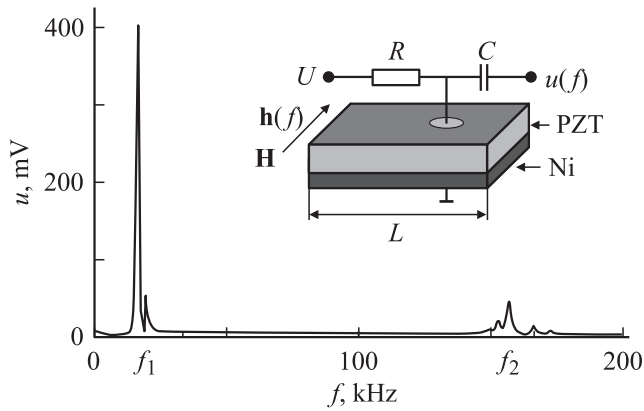


Рис. 1. Зависимость напряжения u , генерируемого структурой NI-PZT, от частоты f переменного поля h при $H = 250$ Ое. На вставке показаны геометрия структуры и схема измерений. $R = 0.5$ МΩ и $C = 300$ pF.

$a_m = 0.2$ mm. Размеры структуры в плоскости составляли: ширина $b = 5$ mm, длина $L = 11$ mm. На поверхности пластины PZT были нанесены электроды из Ag толщиной ~ 2 μm. Пластина PZT была предварительно поляризована перпендикулярно плоскости путем нагрева до 100°C , приложения к электродам постоянного напряжения 1 kV и последующего медленного охлаждения до комнатной температуры. Пластины были соединены с помощью проводящего эпоксидного клея. Структуру помещали между полюсами электромагнита в постоянное магнитное поле $H = 0-2$ kOe. С помощью модулирующих катушек создавали переменное магнитное поле $h(f) = h \cos(2\pi ft)$ с амплитудой $h = 2-8$ Ое и частотой $f = 10$ Hz–200 kHz. Поля H и h были направлены параллельно друг другу и по касательной к плоскости структуры. К электродам PZT-пластины прикладывали постоянное напряжение $U = 0-750$ V, что позволяло создавать в слое сегнетоэлектрика постоянное поле E величиной до 15 kV/cm. С помощью осциллографа с входным сопротивлением более 1 МΩ и схемы, изображенной на вставке к рис. 1, регистрировали амплитуду переменного напряжения u , генерируемого структурой вследствие МЭ-эффекта, при изменении частоты f модуляции поля и напряженностей постоянных полей E и H .

3. Частотная зависимость МЭ-напряжения

На рис. 1 показана частотная зависимость $u(f)$ напряжения, генерируемого МЭ-структурой в отсутствие электрического поля $E = 0$. Кривая измерена при поле $H = 250$ Ое, соответствующем максимуму пьезомагнитного коэффициента $q = 57 \cdot 10^{-6}$ Ое $^{-1}$ для слоя Ni [5]. Для рис. 1 амплитуда переменного поля h уменьшалась от 8 до 1.8 Ое с ростом f от 1 до 200 kHz из-за индуктивности катушек. Амплитуда МЭ-напряжения во всей

полосе частот не превышала $u = 6$ mV и возрастала до $u_1 = 400$ mV на частоте $f_1 = 17.0$ kHz и до $u_2 = 43$ mV на частоте $f_2 = 157$ kHz.

Увеличение напряжения происходит из-за резонансного роста деформаций в структуре на частотах низшей моды изгибных колебаний f_1 и первой моды планарных колебаний f_2 , которые находятся по формулам [6]

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

$$Y = \frac{Y_m a_m + Y_p a_p}{a_m + a_p}, \quad \rho = \frac{\rho_m a_m + \rho_p a_p}{a_m + a_p}. \quad (3)$$

Здесь Y и ρ — эффективные модуль Юнга и плотность структуры, Y_m , Y_p и ρ_m , ρ_p — модули Юнга и плотности магнитного и сегнетоэлектрического слоев соответственно, $S = b(a_m + a_p)$ — площадь поперечного сечения структуры, $I = b(a_m + a_p)^3/12$ — момент инерции площади поперечного сечения структуры, $k = 4.73$ — коэффициент для низшей моды изгибных колебаний. Расчет частот по формулам (2), (3) с учетом реальных размеров и механических параметров слоев ($Y_m = 21.5 \cdot 10^{10}$ N/m 2 , $Y_p = 7.0 \cdot 10^{10}$ N/m 2 , $\rho_m = 8.9 \cdot 10^3$ kg/m 3 , $\rho_p = 7.7 \cdot 10^3$ kg/m 3) дает значения $f_1 = 22$ kHz и $f_2 = 169$ kHz, удовлетворительно совпадающие с экспериментом.

Измеренные добротности изгибных и планарных колебаний равны $Q_1 = 112$ и $Q_2 = 57$ соответственно. Оценка эффективности МЭ-преобразования дает $\alpha_E = 19$ mV/(Oe · cm) на частоте $f = 1$ kHz, $\alpha_{E1}(f_1) = 1.4$ V/(Oe · cm) и $\alpha_{E2}(f_2) = 0.54$ V/(Oe · cm). Приведенная на рис. 1 форма зависимости и измеренные значения эффективности МЭ-преобразования качественно совпадают с данными для двухслойной структуры Terfenol-PZT [7].

4. Зависимость МЭ-взаимодействия от электрического поля

На рис. 2 показаны измеренные зависимости амплитуды u_1 МЭ-напряжения и частоты f_1 изгибных колебаний структуры от поля E , приложенного к PZT-пластине, при $H = 250$ Ое. Стрелками указаны направления изменения E .

При циклическом изменении поля в узком диапазоне $|E| < 3$ kV/cm в зависимости $u_1(E)$ наблюдается гистерезис. Амплитуда u_1 и частота f_1 растут примерно линейно с увеличением E и уменьшаются при инверсии направления поля. В области $E \sim 0$ коэффициент перестройки амплитуды $du_1/dE \sim 20$ mV/(kV/cm), а коэффициент перестройки частоты $df_1/dE \sim 70$ Hz/(kV/cm).

На рис. 3 показаны зависимости амплитуды u_1 МЭ-напряжения и частоты f_1 изгибных колебаний при циклическом изменении поля в широком диапазоне $|E| < 15$ kV/cm. Вид зависимостей кардинально меняется. Амплитуда u_1 сначала нелинейно возрастает от 400

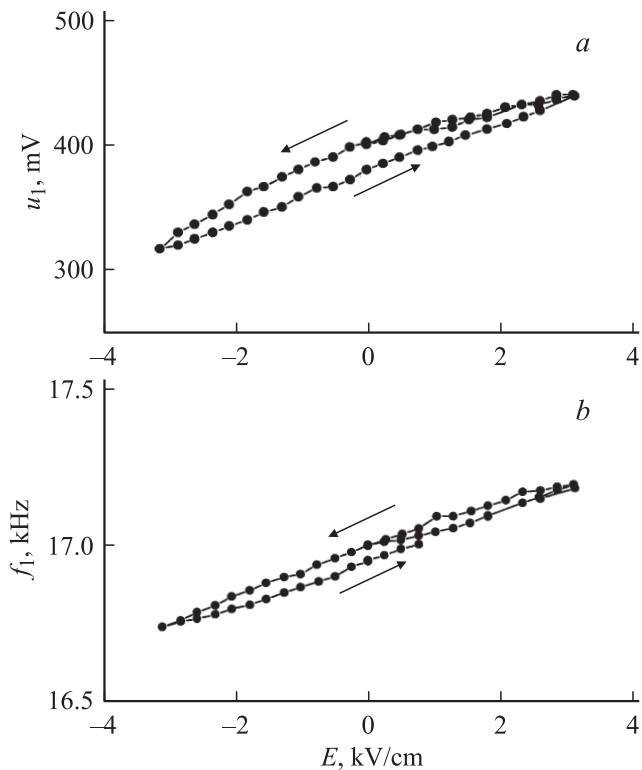


Рис. 2. Зависимости МЭ-напряжения u_1 (a) и частоты f_1 изгибных колебаний для структуры Ni-PZT (b) от поля E в узком диапазоне полей.

до 550 мВ при увеличении E от нуля до +15 кВ/см, затем u_1 падает до прежнего уровня 400 мВ при уменьшении E до нуля и продолжает уменьшаться после инверсии направления E . При пороговом поле $E_C = -6.5$ кВ/см амплитуда u_1 обращается в нуль, а затем скачком возрастает до величины ~ 450 мВ и продолжает нелинейно расти по мере увеличения $|E|$. Время установления амплитуды в ходе скачка составляло $\sim 10-100$ с в зависимости от превышения $|E|$ над порогом E_C . При последующем изменении E от -15 до +15 кВ/см процесс повторяется, и формируется гистерезисная зависимость $u_1(E)$ типа „бабочка“. Зависимость частоты колебаний f_1 от электрического поля при циклическом изменении E также имеет форму „бабочки“. Скачок частоты происходил при тех же полях $E_C = \pm 6.5$ кВ/см, что и скачок амплитуды напряжения. Максимальное изменение частоты изгибных колебаний структуры, вызванное электрическим полем E , достигало $\Delta f_1 = 2.0$ кГц, или $\sim 12\%$.

Аналогичные зависимости амплитуды МЭ-напряжения $u_2(E)$ имели место и на частоте f_2 планарных колебаний структуры Ni-PZT. При перестройке поля в диапазоне $|E| < 2$ кВ/см вблизи $E \sim 0$ коэффициент изменения амплитуды составлял $du_2/dE \sim 2$ мВ/(кВ/см), а коэффициент перестройки частоты равнялся $df_2/dE \sim 250$ Гц/(кВ/см). При перестройке поля в диапазоне $|E| < 15$ кВ/см вызванное полем E

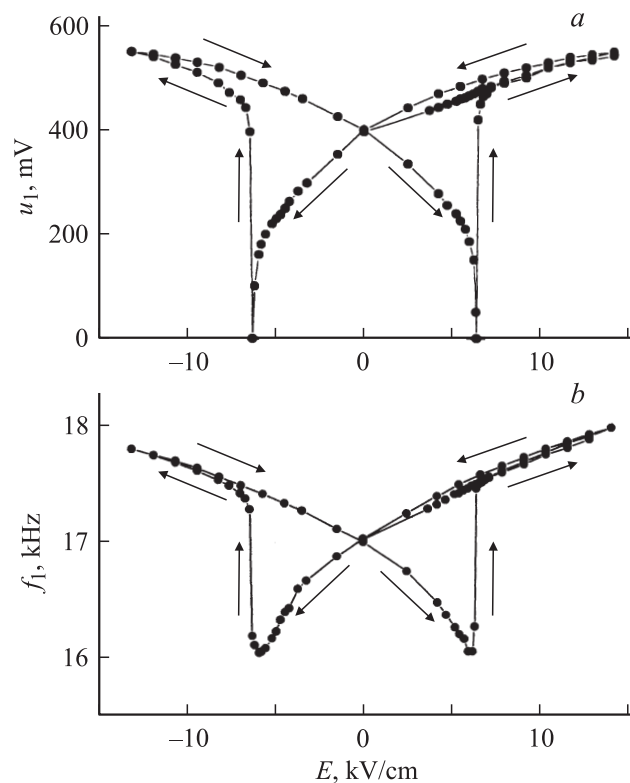


Рис. 3. Зависимости МЭ-напряжения u_1 (a) и частоты f_1 изгибных колебаний структуры Ni-PZT (b) от поля E в широком диапазоне полей.

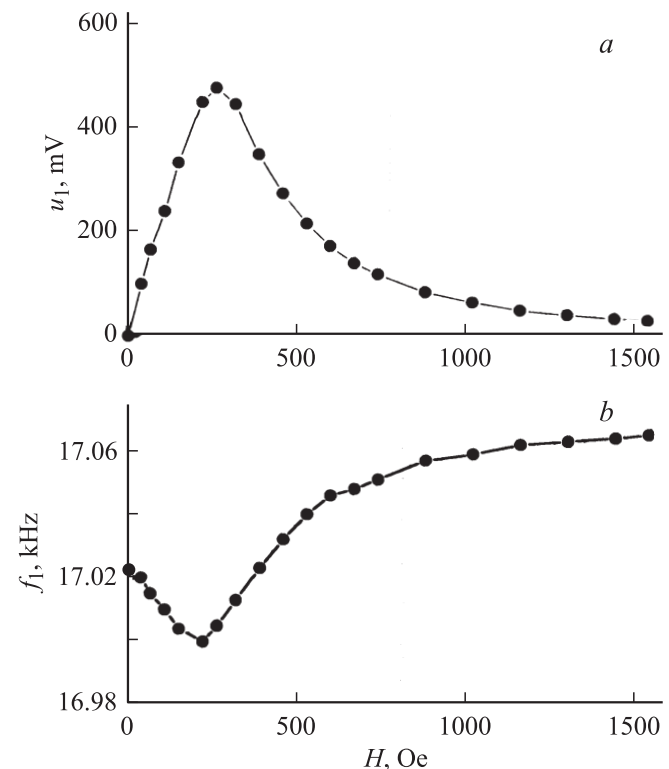


Рис. 4. Зависимости МЭ-напряжения u_1 (a) и частоты f_1 изгибных колебаний структуры Ni-PZT (b) от магнитного поля H .

изменение частоты колебаний достигало $\Delta f_2 \sim 6$ kHz, или $\sim 4\%$.

На рис. 4 для сравнения приведены измеренные зависимости амплитуды u_1 МЭ-напряжения и частоты f_1 изгибных колебаний структуры от постоянного магнитного поля H при $E = 0$. Видно, что u_1 сильно зависит от магнитного поля и достигает максимума в поле $H = 250$ Oe, соответствующем наибольшему пьезомагнитному коэффициенту, что наблюдали и ранее [4,5]. Однако магнитное поле слабо влияет на резонансную частоту структуры — изменение f_1 не превышает $\sim 0.35\%$. При этом минимум зависимости $f_1(H)$ расположен примерно в том же поле $H = 250$ Oe, что и максимум зависимости $u_1(H)$.

5. Интерпретация и обсуждение результатов

Объяснить влияние поля E на эффективность α_E МЭ-взаимодействия в структуре Ni-PZT можно, используя формулу (1) и приняв во внимание зависимость диэлектрической проницаемости ϵ и пьезомодуля d_{13} сегнетоэлектрического слоя от поля E .

На рис. 5, *a* приведена зависимость ϵ слоя PZT от E , измеренная на частоте 1 kHz. Стрелки на рисунке указывают направления изменения поля. Видно, что при увеличении E от нуля до 12 kV/cm проницаемость сначала нелинейно растет от 1850 до ~ 2200 , затем резко падает при $E_C \approx 6$ kV/cm до значения ~ 1100 и после этого не изменяется. При уменьшении E от максимального значения до нуля и смене направления поля ϵ монотонно увеличивается до значения ~ 2200 по другой кривой. При поле $E_C \approx -6$ kV/cm вновь наблюдается резкое падение ϵ . Зависимость $\epsilon(E)$ на рис. 5, *a* типична для сегнетоэлектриков и демонстрирует переполяризацию слоя во внешнем электрическом поле [8]. Поля переполяризации на рис. 5, *a* $E_C \approx \pm 6$ kV/cm совпадают с полями резкого изменения амплитуды u_1 МЭ-напряжения и частоты f_1 колебаний на рис. 3. Обусловленное полем изменение проницаемости в соответствии с уравнением (1) приводит к изменению МЭ-напряжения в ~ 2.5 раза при изменении E от -5 до $+15$ kV/cm, что хорошо видно из рис. 3, *a*.

В полях переполяризации E_C дипольный момент сегнетоэлектрического слоя P меняет направление, проходя через нуль. Пьезомодуль сегнетоэлектрического слоя, величина которого $d_{13} \sim P$, в этой точке также обращается в нуль. Это приводит в соответствии с формулой (1) к падению амплитуды МЭ-напряжения до нуля, что видно из рис. 3, *a*. Фаза переменного МЭ-напряжения в области полей $E \sim E_C$ изменялась на π , что подтверждает инверсию направления P сегнетоэлектрика.

Наконец, отметим, что диэлектрические и акустические потери PZT-слоя также зависят от электрического

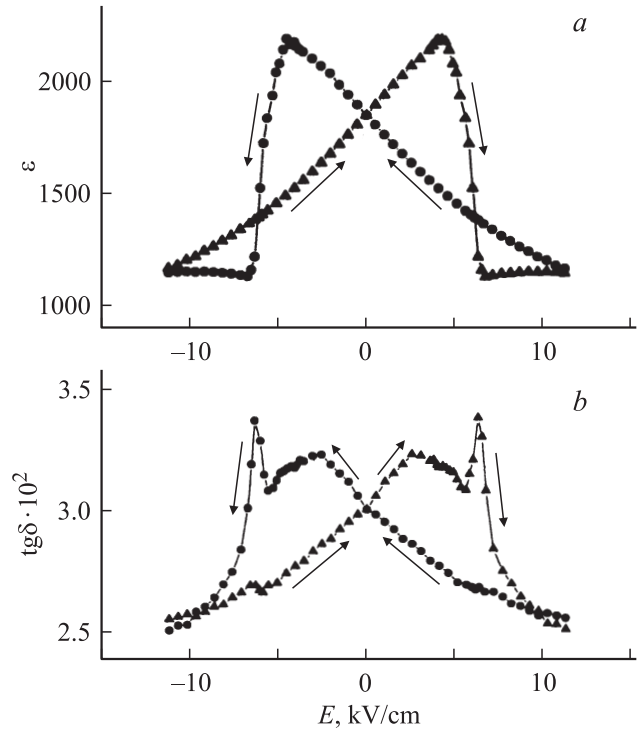


Рис. 5. Зависимости диэлектрической проницаемости ϵ (*a*) и коэффициента диэлектрических потерь $\text{tg} \delta$ слоя PZT (*b*) от электрического поля E .

поля. Как видно из рис. 5, *b*, коэффициент диэлектрических потерь гистерезисным образом изменяется в диапазоне $\text{tg} \delta = (2.5-3.5) \cdot 10^{-2}$ и имеет локальный максимум при $E \sim E_C$. Акустические потери PZT-керамики в области полей переполяризации могут изменяться на $\sim 30\%$ [9]. Увеличение потерь приводит к уменьшению добротности Q_1 изгибных колебаний структуры и соответствующему падению амплитуды u_1 генерируемого МЭ-напряжения. Однако выделить количественно вклад потерь в уменьшение u_1 при $E \sim E_C$ не представляется возможным из-за более сильного эффекта обращения в нуль пьезомодуля d_{13} .

Перестойка частоты f_1 изгибных колебаний структуры свидетельствует об изменении эффективного модуля Юнга слоев под действием электрического и магнитных полей. Электрическое поле E селективно меняет модуль Юнга Y_p сегнетоэлектрического слоя, а магнитное поле H — модуль Y_m ферромагнитного слоя, причем вклад каждого эффекта, как следует из (3), пропорционален толщине соответствующего слоя.

Вызванный полем E максимальный сдвиг частоты $\Delta f_1 = 2.0$ kHz (рис. 3, *a*), как показывают оценки с использованием формул (2), (3), соответствует изменению модуля Юнга PZT-слоя на $(Y_{\max} - Y_{\min})/Y(0) \approx 25\%$. Вызванный полем H максимальный сдвиг частоты $\Delta f_1 = 0.06$ kHz (рис. 4) соответствует изменению модуля Юнга слоя никеля на $(Y_{\max} - Y_{\min})/Y(0) \approx 0.7\%$. Отсюда следует, что электрическое поле E более чем

на порядок сильнее влияет на жесткость PZT, чем магнитное поле на жесткость Ni. Приведенные оценки согласуются с данными о влиянии поля E на скорость распространения акустических волн в PZT-керамике [9].

6. Заключение

В работе обнаружено изменение амплитуды МЭ-напряжения и частоты акустических резонансов планарной структуры ферромагнетик–сегнетоэлектрик (Ni–PZT) под действием электрического поля E . Эффекты обусловлены зависимостью диэлектрической проницаемости ϵ , пьезомодуля d_{13} и потерь PZT-слоя от электрического поля. Амплитуда МЭ-напряжения на частоте изгибных колебаний структуры возрастает в ~ 1.4 раза при приложении поля $E \sim 15 \text{ kV/cm}$ и падает до нуля вблизи поля переполяризации сегнетоэлектрика. Жесткость композитной структуры изменяется при воздействии электрического поля на сегнетоэлектрический слой и магнитного поля на ферромагнитный слой. Поле E приводит к значительному (до 25%) изменению модуля Юнга слоя PZT, в то время как поле H изменяет модуль Юнга слоя никеля не более чем на 0.7%. Эффекты могут быть использованы для управления чувствительностью и частотными характеристиками датчиков магнитных полей, коэффициентами преобразования трансформаторов и генераторов напряжения, использующих МЭ-взаимодействие в композитных структурах.

Авторы благодарят Д.В. Чашина за помощь в подготовке образцов и А.А. Буша за полезные обсуждения.

Список литературы

- [1] G. Harshe, J.P. Dougherty, R.E. Newman. *Int. J. Appl. Electromagn. Mater.* **3**, 145 (1993).
- [2] Д.А. Филиппов, М.И. Бичурин, В.М. Петров, В.М. Лалетин, G. Srinivasan. *ФТТ* **46**, 1621 (2004).
- [3] M.I. Bichurin, D.A. Fillipov, V.M. Petrov, U. Laletin, G. Srinivasan. *Phys. Rev. B* **68**, 132 408 (2003).
- [4] C.-W. Nan, M.I. Bichurin, S. Dong, D. Viehland, G. Srinivasan. *J. Appl. Phys.* **103**, 031 101 (2008).
- [5] D.V. Chashin, Y.K. Fetisov, K.E. Kamentsev, G. Srinivasan. *Appl. Phys. Lett.* **92**, 041 811 (2008).
- [6] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. *Теория упругости*. Наука, М. (1987). 246 с.
- [7] J.G. Wan, Z.Y. Li, Y. Wang, M. Zeng, G.H. Wang, J.-M. Liu. *Appl. Phys. Lett.* **86**, 202 504 (2005).
- [8] Б. Яффе, У. Кук, Г. Яффе. *Пьезоэлектрическая керамика*. Мир, М. (1974). 288 с.
- [9] V. Ryzhenko, L. Burianova, P. Hana. *J. Electroceram.* **20**, 35 (2008).