

06

Влияние состава магнитоэлектрического композита на эффект „самосмещения“ в гибридных структурах

© Н.Н. Поддубная¹, Д.А. Филиппов², В.М. Лалетин¹¹ Институт технической акустики НАН Беларуси, Витебск, Беларусь² Политехнический институт Новгородского государственного университета им. Ярослава Мудрого, Великий Новгород, Россия

E-mail: poddubnaya.n@rambler.ru

Поступило в Редакцию 27 сентября 2023 г.

В окончательной редакции 14 ноября 2023 г.

Принято к публикации 14 ноября 2023 г.

Представлены результаты экспериментального исследования зависимости магнитоэлектрического отклика гибридных структур ферромагнетик/магнитоэлектрик/ферромагнетик от состава магнитоэлектрического композита при нулевом поле смещения. Рассмотрены структуры, полученные электролитическим осаждением слоев Ni и чередующихся слоев Ni/Co/Ni на магнитоэлектрический объемный композит на основе феррита никеля–цирконата-титаната свинца. Обнаружено, что в нулевом поле подмагничивания величина эффекта в структурах со слоем Ni значительно больше, чем в структурах Ni/Co/Ni. Сделан вывод, что эффект „самосмещения“ не связан со ступенчатым изменением намагниченности, а обусловлен остаточным магнитным моментом.

Ключевые слова: магнитострикция, пьезоэлектричество, композиционная структура, магнитоэлектрический эффект, эффект „самосмещения“.

DOI: 10.61011/PJTF.2024.04.57096.19743

Поиск магнитоэлектрических (МЭ) материалов, применимых для разработки прикладных устройств электроники на основе непосредственного преобразования магнитного поля в электрическое напряжение, является одной из практических задач физики конденсированного состояния. Наиболее перспективными для этого являются слоистые магнитострикционно-пьезоэлектрические структуры, в которых взаимосвязь магнитных и электрических свойств осуществляется посредством механического взаимодействия, что позволяет их использовать для создания устройств стрейнтроники [1], в которых управление магнитными свойствами вещества осуществляется под действием электрического поля. При создании устройств необходимо использовать материалы с максимальной эффективностью МЭ-преобразования, особенно в области низких частот, где величина МЭ-связи практически не зависит от частоты. С этой целью ранее были проведены исследования МЭ-материалов разной степени связности и формы, полученных по различным технологиям [2,3]. Одним из факторов, сдерживающих применение МЭ-эффекта, является то, что для его возникновения необходимо дополнительное поле подмагничивания H_{bias} . Это связано с тем, что величина эффекта пропорциональна произведению пьезоэлектрического коэффициента d на пьезомагнитный коэффициент $q = d\lambda/dH$, где λ — магнитострикция. В точке, где намагниченность равна нулю, магнитострикция имеет экстремум, поэтому $q = 0$. Поскольку магнитострикция является функцией намагниченности, чтобы получить $q \neq 0$, необходимо создать

намагниченность, для чего используется дополнительное поле подмагничивания. Однако в некоторых структурах наблюдается эффект „самосмещения“, т.е. МЭ-эффект возникает при нулевом поле подмагничивания [4–10]. В работах [4,7] представлена теория, согласно которой эффект „самосмещения“ связан с наличием скачка намагниченности, или, согласно принятой в этих работах терминологии, „градиента намагниченности“. Однако эффект „самосмещения“ возникает и при отсутствии скачка намагниченности [8,9]. В [10] предложена теория, согласно которой эффект „самосмещения“ связан с остаточной намагниченностью M_r . В настоящей работе для проверки данных теорий проведены экспериментальные исследования в гибридной структуре ферромагнитный металл (Ni)/магнитоэлектрический композит (PZT:NFO)/Ni и в структуре со ступенчатым изменением намагниченности, состоящей из чередующихся слоев Ni/Co/Ni/PZT:NFO/Ni/Co/Ni. Объемный МЭ-композит был изготовлен из порошка цирконата-титаната свинца ЦТС 23 (PZT) и феррита никеля $NiFe_{1.98}Co_{0.02}O_4$ (NFO) по обычной пьезокерамической технологии с массовым содержанием PZT в композите m_{PZT}/m_{ME} (m_{PZT} — масса PZT, m_{ME} — общая масса МЭ-композита), равным 50, 60, 70, 80, 90%. Изготовленные образцы имели диаметр 8.7–8.8 mm и толщину $t^{ME} = 0.4$ mm. На образцы наносили электроды методом химической металлизации никеля из хлоридного раствора, а затем поляризовали нормально к плоскости.

Для изготовления гибридных структур на объемный композит с двух сторон наносили слои из Ni, а также

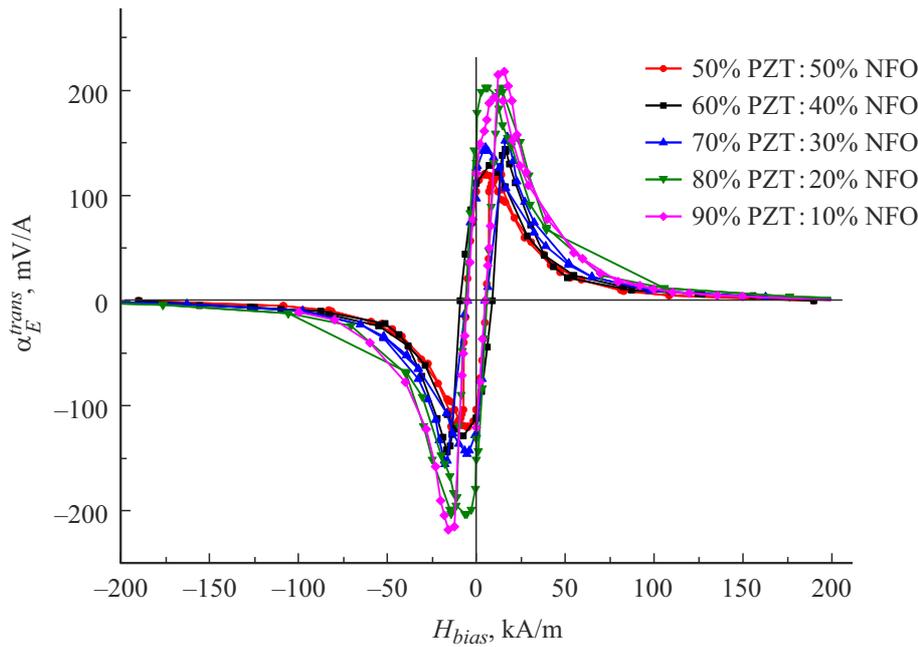


Рис. 1. Полевая зависимость MEVC для структуры Ni/PZT:NFO/Ni от состава композита PZT:NFO. Толщина слоя Ni равна 100 μm .

чередующиеся слои (Ni/Co/Ni). Слои были получены электрохимическим осаждением из растворов сульфата никеля и сульфата кобальта с использованием реверсивного тока плотностью 3.5 A/dm² при длительности импульсов, соответствующих полярности осаждения/растворения, 90/9 с. Измерения МЭ-эффекта проводились путем измерения напряжения U , возникающего на образце под действием переменного H_{ac} и постоянного H_{bias} магнитных полей. Поле H_{ac} создавалось катушками Гельмгольца и составляло 80 A/m при частоте 1 kHz. Значение МЭ-коэффициента по напряжению (MEVC) рассчитывалось по формуле

$$\alpha_E = \frac{U}{t^{ME} H_{ac}}$$

На рис. 1 и 2 представлены полевые зависимости для гибридной структуры Ni/PZT:NFO/Ni и для структуры Ni/Co/Ni/PZT:NFO/Ni/Co/Ni при поперечном эффекте, когда магнитные поля лежат в плоскости образца, а электрическое поле направлено перпендикулярно плоскости. Ориентация магнитных полей в плоскости образца позволила не учитывать эффекты размагничивания.

Как видно из рис. 1 и 2, величина MEVC в структуре Ni/PZT:NFO/Ni значительно больше, чем в структуре Ni/Co/Ni/PZT:NFO/Ni/Co/Ni, хотя толщина магнито-стрикционных слоев различается всего на 20%. Это объясняется тем, что Ni и МЭ-композит имеют отрицательную магнито-стрикцию, а Co — положительную. Проводя вычисления, аналогичные вычислениям из работы [11], для MEVC гибридной структуры, обусловленного планарными колебаниями, при поперечной

ориентации полей получим следующее выражение:

$$\alpha_E^{trans} = \frac{Y^{ME} d_{31}^{ME}}{\varepsilon_{33} \bar{Y} t} \times \frac{[Y^{ME} t^{ME} (q_{11}^{ME} + q_{12}^{ME}) + Y^{Ni} t^{Ni} (q_{11}^{Ni} + q_{12}^{Ni}) + Y^{Co} t^{Co} (q_{11}^{Co} + q_{12}^{Co})]}{[1 - 2k_p^2 (1 - Y^{ME} t^{ME} / \bar{Y} t)]} \quad (1)$$

Здесь Y^{ME} , Y^{Ni} , Y^{Co} , t^{ME} , t^{Ni} , t^{Co} — модули Юнга и толщины композита PZT:NFO и слоев Ni и Co соответственно, d_{31}^{ME} , q_{1i}^{ME} и ε_{33} — эффективные значения пьезомодулей и диэлектрической проницаемости композита, q_{1i}^{Ni} , q_{1i}^{Co} — значения пьезомагнитных модулей Ni и Co соответственно, k_p^2 — квадрат коэффициента электромеханической связи, $t = t^{ME} + t^{Ni} + t^{Co}$ — полная толщина гибридной структуры, $\bar{Y} = (Y^{ME} t^{ME} + Y^{Ni} t^{Ni} + Y^{Co} t^{Co}) / t$ — среднее значение модуля Юнга структуры. В структуре Ni/PZT:NFO/Ni ($t^{Co} = 0$) первые два члена, стоящие в квадратных скобках в числителе уравнения (1), имеют одинаковые знаки, в результате чего МЭ-эффект, возникающий в объемном МЭ-композите, усиливается за счет слоев Ni, что приводит к увеличению эффекта по сравнению с эффектом в чистом композите PZT:NFO. Для структуры Ni/Co/Ni/PZT:NFO/Ni/Co/Ni третий член в квадратных скобках числителя уравнения (1) имеет знак, противоположный знаку первых двух членов, что приводит к уменьшению эффекта относительно структуры Ni/PZT:NFO/Ni.

Из рис. 1 и 2 следует, что в обеих структурах наблюдается эффект „самосмещения“, т.е. MEVC отличен от нуля при $H_{bias} = 0$. На рис. 3 представлены зависимости максимального MEVC α_E^{max} и MEVC при нулевом поле

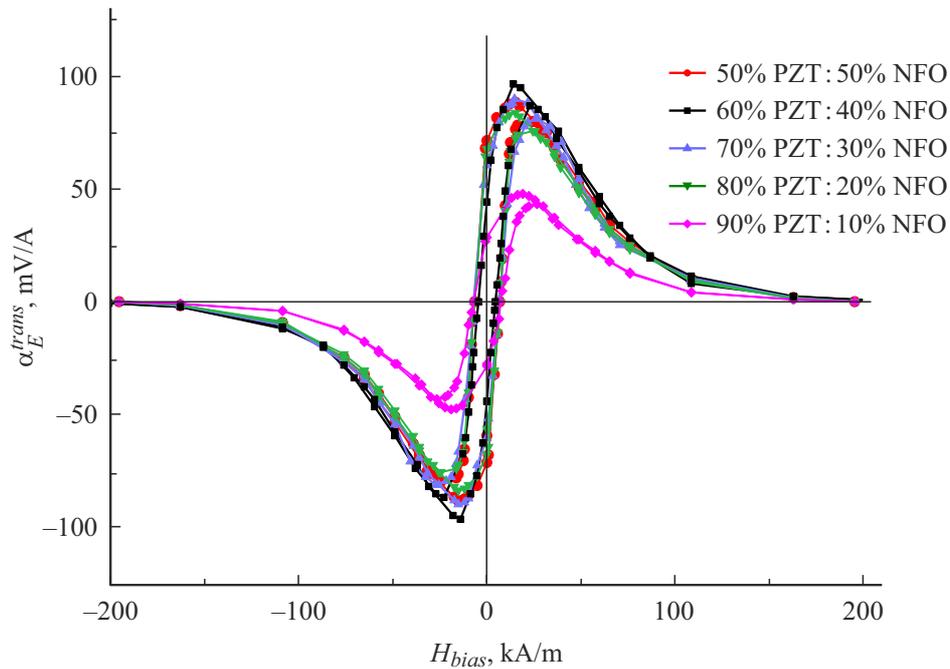


Рис. 2. Полевая зависимость MEVC структуры Ni/Co/Ni/PZT:NFO/Ni/Co/Ni от состава композита PZT:NFO. Толщина металлических покрытий: Ni — 20 μm , Co — 40 μm .

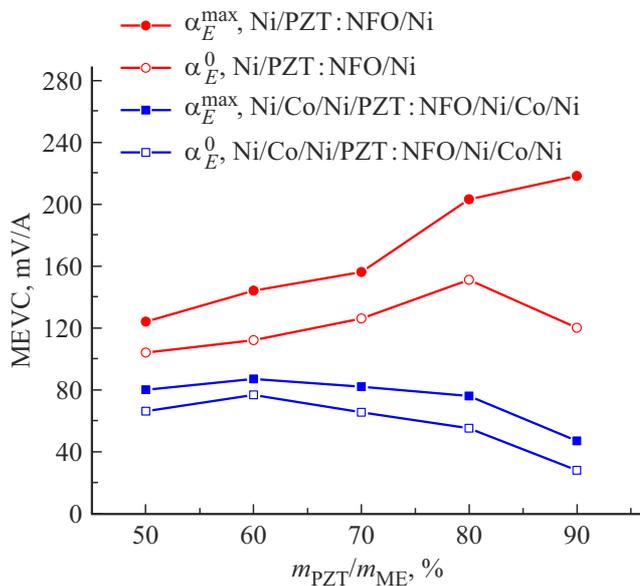


Рис. 3. Зависимость максимального значения MEVC α_E^{\max} и значения MEVC при нулевом поле подмагничивания α_E^0 от состава композита.

смещения α_E^0 от отношения массы PZT m_{PZT} к общей массе МЭ-композита m_{ME} .

Как следует из рис. 3, для структуры Ni/PZT:NFO/Ni поведение α_E^0 в зависимости от состава композита в целом совпадает с поведением α_E^{\max} . Принципиальное отличие заключается в том, что максимум приходится не на состав $m_{\text{PZT}}/m_{\text{ME}} = 90\%$, а на состав $m_{\text{PZT}}/m_{\text{ME}} = 80\%$.

Это объясняется тем, что увеличение $m_{\text{PZT}}/m_{\text{ME}}$ в составе композита до 90% приводит к значительному уменьшению остаточной намагниченности M_r , что ведет к значительному уменьшению пьезомагнитного коэффициента.

Следует отметить, что для состава $m_{\text{PZT}}/m_{\text{ME}} = 80\%$ отношение $\alpha_E^0/\alpha_E^{\max} = 74\%$, что позволяет использовать эту структуру в устройствах без поля подмагничивания. Ожидаемого увеличения эффекта в структуре со ступенчатым изменением намагниченности не наблюдалось. Таким образом, можно сделать вывод, что эффект „самосмещения“ не связан со ступенчатым изменением намагниченности, а обусловлен наличием остаточной намагниченности.

Финансирование работы

Работа выполнена при поддержке Белорусского фундаментального фонда научных исследований в рамках гранта Ф20МЦ-006. В Новгородском государственном университете им. Ярослава Мудрого исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда № 22-19-00763 (<https://rscf.ru/project/22-19-00763/>).

Конфликт интересов

Авторы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

Список литературы

- [1] А.А. Бухараев, А.К. Звездин, А.П. Пятаков, Ю.К. Фетисов, УФН, **188** (12), 1288 (2018). DOI: 10.3367/UFNr.2018.01.038279 [А.А. Bukharaev, A.K. Zvezdin, A.P. Pyatakov, Yu.K. Fetisov, Phys. Usp., **61** (12), 1175 (2018). DOI: 10.3367/UFNe.2018.01.038279].
- [2] J. Yu, L. Bai, R. Gao, Process. Appl. Ceram., **14** (4), 336 (2020). DOI: 10.2298/PAC2004336Y
- [3] C.-W. Nan, M.I. Bichurin, S. Dong, D. Viehland, G. Srinivasan, J. Appl. Phys., **103** (3), 031101 (2008). DOI: 10.1063/1.2836410
- [4] U. Laletin, G. Sreenivasulu, V.M. Petrov, T. Garg, A.R. Kulkarni, N. Venkataramani, G. Srinivasan, Phys. Rev. B, **85** (10), 104404 (2012). DOI: 10.1103/PhysRevB.85.104404
- [5] Y. Zhou, D. Maurya, Y. Yan, G. Srinivasan, E. Quandt, S. Priya, Energy Harvest. Syst., **3** (1), 1 (2016). DOI: 10.1515/ehs-2015-0003
- [6] S. Liu, S. Liao, K. Wei, L. Deng, L. Zhao, H. Zou, Battery Energy, **2** (5), 20230005 (2023). DOI: 10.1002/bte2.20230005
- [7] M.I. Bichurin, O.V. Sokolov, V.S. Leontiev, R.V. Petrov, A.S. Tatarenko, G.A. Semenov, S.N. Ivanov, A.V. Turutin, I.V. Kubasov, A.M. Kislyuk, Phys. Status Solidi B., **257** (3), 1900398 (2020). DOI: 10.1002/pssb.201900398
- [8] Z. Ou, C. Lu, A. Yang, H. Zhou, Z. Cao, R. Zhu, H. Gao, Sensors Actuators A, **290**, 8 (2019). DOI: 10.1016/j.sna.2019.03.008
- [9] J. Zhang, D. Chen, K. Li, D.A. Filippov, B. Ge, Q. Zhang, X. Hang, L. Cao, G. Srinivasan, AIP Adv., **9** (3), 035137 (2019). DOI: 10.1063/1.5078716
- [10] Y. Liu, J. Zhang, P. Zhou, C. Dong, X. Liang, W. Zhang, T. Zhang, N.X. Sun, D. Filippov, G. Srinivasan, J. Appl. Phys., **126** (11), 114102 (2019). DOI: 10.1063/1.5112024
- [11] D. Filippov, Y. Liu, P. Zhou, B. Ge, J. Liu, J. Zhang, T. Zhang, G. Srinivasan, J. Compos. Sci., **5** (11), 287 (2021). DOI: 10.3390/jcs5110287