

На правах рукописи

ФЕТИСОВ ЛЕОНИД ЮРЬЕВИЧ

**РЕЗОНАНСНЫЙ МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ  
ЭФФЕКТ В КОМПОЗИТНЫХ ПЛАНАРНЫХ  
СТРУКТУРАХ  
ФЕРРОМАГНЕТИК-СЕГНЕТОЭЛЕКТРИК**

01.04.11 – «Физика магнитных явлений»

АВТОРЕФЕРАТ  
диссертации на соискание ученой степени  
кандидата физико-математических наук

Москва 2012

Работа выполнена на кафедре магнетизма физического факультета Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова

**Научный руководитель:** доктор физико-математических наук,  
профессор Перов Николай Сергеевич

**Официальные оппоненты:** Звездин Анатолий Константинович, доктор  
физико-математических наук, главный  
научный сотрудник института общей физики  
имени А.М. Прохорова РАН

Никитин Сергей Александрович, доктор  
физико-математических наук, профессор  
кафедры общей физики и физики  
конденсированного состояния физического  
факультета МГУ имени М.В. Ломоносова

**Ведущая организация:** Институт металлургии и материаловедения  
им. А.А. Байкова РАН

Защита состоится «20» декабря 2012 г. в \_\_\_ ч. на заседании диссертационного совета Д 501.001.70 при Московском государственном университете имени М.В. Ломоносова по адресу: 119991 Москва ГСП-1, Ленинские горы, д.1, стр. 35, МГУ имени М.В. Ломоносова, ЦКП физического факультета, конференц-зал.

С авторефератом и диссертацией можно ознакомиться в научной библиотеке им. А.М. Горького МГУ имени М.В. Ломоносова (Ломоносовский проспект, д. 27, фундаментальная библиотека).

Автореферат разослан «  » ноября 2012 г.

Ученый секретарь  
диссертационного совета Д 501.001.70  
доктор физико-математических наук, профессор

Плотников Г.С.

## ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА РАБОТЫ

### Актуальность темы

В последние годы в научных лабораториях России и за рубежом интенсивно исследуют мультиферроики - твердые тела, обладающие одновременно как магнитным, так и электрическим упорядочением. В таких веществах обнаружены магнитоэлектрические (МЭ) эффекты, проявляющиеся в изменении электрической поляризации образца  $P$  под действием внешнего магнитного поля  $H$  (прямой эффект) или в изменении намагниченности образца  $M$  под действием электрического поля  $E$  (обратный эффект) [1]. Исследования МЭ эффектов в мультиферроиках важны для более глубокого понимания электромагнитных явлений в твердых телах и представляют интерес для создания нового поколения устройств твердотельной электроники, таких как высокочувствительные датчики магнитных полей, элементы хранения и обработки информации, автономные источники электрической энергии и т.д. [2, 3].

В большинстве природных мультиферроидных кристаллов ( $\text{Cr}_2\text{O}_3$  и других) МЭ эффекты малы по величине - коэффициент прямого МЭ взаимодействия не превышает  $\alpha_E = E/H \sim 10 \text{ мВ} \cdot \text{Э}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$  - и наблюдаются, как правило, при низких температурах или в больших магнитных полях, что ограничивает их применение. Гораздо больший по величине МЭ эффект обнаружен в искусственно созданных композитных структурах, содержащих ферромагнитные (ФМ) и сегнетоэлектрические (СЭ) слои. В композитных структурах эффект возникает в результате комбинации магнитострикции ФМ слоя и пьезоэффекта в СЭ слое вследствие механической связи между слоями [3]. Использование материалов с высокой магнитострикцией  $\lambda$  (никелевый феррит, металлы Ni и Co, редкоземельные сплавы) и большим пьезомодулем  $d$  (цирконат-титанат свинца – PZT, магниониобат-титанат свинца – PMN-PT и других) позволило достичь эффективности взаимодействия  $\alpha_E \sim 1-10 \text{ В/Э} \cdot \text{см}$  [3]. Эффективность МЭ взаимодействия в композитных структурах удалось увеличить еще на 1-2 порядка до  $\alpha_E \sim 10^2 \text{ В/Э} \cdot \text{см}$  в режиме резонансного возбуждения образца переменным магнитным полем, частота которого совпадает с частотой собственных акустических колебаний образца [4].

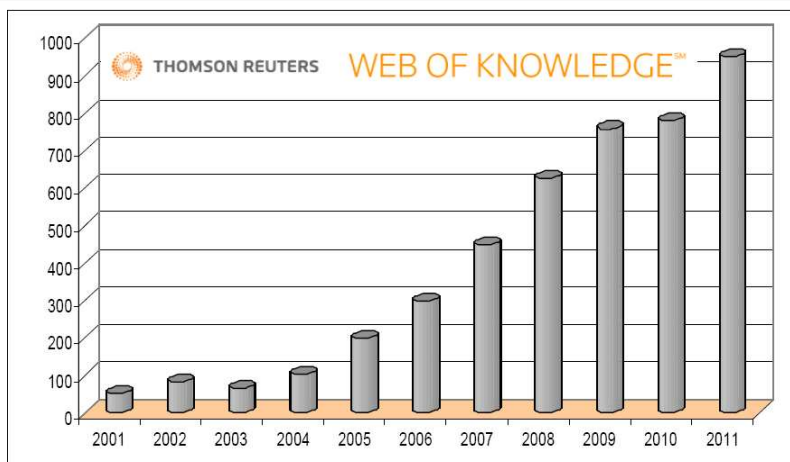
К моменту начала работ над диссертацией (2008 год) определились наиболее актуальные задачи и направления исследований, среди которых: повышение эффективности МЭ взаимодействий за счет использования в композитных структурах новых ФМ и СЭ материалов, детальное исследование полевых и частотных характеристик МЭ взаимодействий, в том числе в резонансных режимах, разработка новых методов управления характеристиками МЭ взаимодействий и поиск новых МЭ эффектов для применений в твердотельной электронике.

Эффективность МЭ взаимодействий в композитных структурах можно повысить за счет использования магнитных материалов с большим пьезомагнитным коэффициентом  $q = \delta\lambda/\delta H$  и высокой намагниченностью насыщения, обладающих при этом малой коэрцитивной силой. Материалы, используемые для изготовления СЭ слоев должны иметь высокий пьезомодуль  $d$ , малые диэлектрические потери  $tg\delta$  и наименьший сегнетоэлектрический гистерезис. Для повышения эффективности МЭ взаимодействий в резонансных режимах как ФМ, так и СЭ слою композитных структур должны обладать высокой акустической добротностью. Характеристиками МЭ взаимодействий в композитных структурах (эффективность взаимодействия, резонансная частота, потери) также можно управлять при помощи постоянного электрического поля, приложенного к сегнетоэлектрическому слою. Большинство работ было посвящено изучению линейных МЭ эффектов в переменных полях, когда отклик мультиферроидного образца регистрировали на частоте возбуждающего поля, и амплитуда отклика линейно зависела от величины поля. Вместе с тем, для ФМ материалов характерна нелинейная зависимость магнитострикции от магнитного поля  $\lambda(H)$ , а для ФЭ материалов - нелинейная зависимость пьезомодуля от электрического поля  $d(E)$ . Это открывает возможности наблюдения новых нелинейных МЭ эффектов в композитных мультиферроиках. Изучение нелинейных характеристик МЭ эффекта в композитных структурах представляет большой интерес и может привести к новым фундаментальным и практическим результатам.

Интерес к исследованию МЭ эффекта вызван не только научной новизной выбранного направления исследований, но также перспективами его практического использования в различных областях техники. Одним из основных применений является изготовление датчиков магнитных полей. Их основными достоинствами является высокая чувствительность при комнатной температуре, линейность по отношению к амплитуде измеряемого поля, а также отсутствие источника тока, необходимого, например, для работы датчиков Холла. Достигнутая на сегодняшний день максимальная чувствительность МЭ датчиков составляет  $10^{-12}$  Тл при комнатной температуре, что сравнимо с чувствительностью СКВИД-магнитометров. Другими перспективными направлениями являются: разработка автономных источников энергии, преобразующих энергию механических колебаний и переменных магнитных полей в электрическую энергию, создание новых устройств высокочастотной электроники, новых типов магнитной памяти и различных логических элементов.

Подтверждением актуальности исследований магнитоэлектрических эффектов в композитных мультиферроидных структурах является резкий рост числа публикаций по данной

тематике за последние несколько лет. Динамика публикационной активности в этой области, начиная с 2001, продемонстрирована на рисунке 1 [4].



*Рис. 1 Количество публикаций по тематике магнитоэлектрических материалов и мультиферроиков в текущем столетии (по данным ISI Web of Knowledge) [4].*

Таким образом, исследование МЭ свойств композитных слоистых структур является перспективным направлением и представляет большой интерес как с научной, так и практической точек зрения.

#### Цель работы

Целью настоящей работы является исследование как линейных, так и нелинейных МЭ резонансных эффектов в новых мультиферроидных слоистых композитных структурах на основе ферромагнитных и сегнетоэлектрических материалов, в том числе ранее не применяемых для изготовления таких структур.

#### Для достижения поставленной цели в работе были решены следующие задачи

1. Исследованы магнитные и МЭ характеристики композитных структур с магнитными слоями из никеля, галфенола, пермендюра и аморфного сплава на основе железа.
2. Исследованы МЭ характеристики композитных структур со слоями из пьезоэлектриков лангата и кварца.
3. Исследовано влияние постоянного электрического поля на характеристики МЭ эффекта в композитных слоистых структурах.
4. Исследованы нелинейные МЭ взаимодействия в мультиферроидных композитных структурах.

5. Исследован МЭ отклик мультиферроидной композитной структуры на импульсы магнитного поля большой амплитуды.

#### Научная новизна

1. Получены данные о величинах прямого и обратного магнитоэлектрических эффектов в композитных структурах с магнитными слоями из галфенола и пермендюра.
2. Впервые получены данные о величинах магнитоэлектрического эффекта в композитных структурах с пьезоэлектрическими материалами, такими как кварц и лангитат.
3. Впервые показана возможность изменения характеристик МЭ эффекта в композитных слоистых структурах с помощью постоянного электрического поля, приложенного к сегнетоэлектрику.
4. Обнаружены и объяснены нелинейные МЭ эффекты: возникновение электрического сигнала на акустической резонансной частоте образца, возбуждаемого переменным магнитным полем с частотой, вдвое меньшей резонансной, и формирование электрического сигнала на резонансной частоте образца под действием двух переменных магнитных полей с частотами, удовлетворяющими условиям синхронизма.
5. Впервые исследованы характеристики нелинейного МЭ взаимодействия при возбуждении мультиферроидной композитной структуры импульсами магнитного поля большой амплитуды.

#### Научная и практическая ценность

В результате выполнения работы получены данные о характеристиках МЭ взаимодействий в новых мультиферроидных композитных структурах на основе ряда магнитных и пьезоэлектрических материалов, которые ранее не применялись для создания таких структур. Экспериментально обнаружен, исследован и объяснен теоретически ряд новых нелинейных эффектов в мультиферроидных композитных материалах. Разработана импульсная методика, позволяющая оперативно измерять частотные и полевые характеристики МЭ взаимодействий в композитных структурах. Предложен новый способ создания высокочувствительных широкополосных датчиков переменных магнитных полей, использующий нелинейный резонансный МЭ эффект в мультиферроидных структурах. Показана возможность применения композитных мультиферроидных структур для создания датчиков импульсных магнитных полей.

### Основные положения, выносимые на защиту

1. Использование в композитных структурах аморфного магнитного сплава с большой магнитострикцией и малым полем насыщения приводит к существенному увеличению эффективности прямого МЭ взаимодействия.
2. Использование в композитных структурах слоев из пьезоэлектриков, обладающих большим отношением пьезомодуля к диэлектрической проницаемости и высокой механической добротностью, вместо слоев из сегнетоэлектриков, позволяет существенно увеличить эффективность прямого МЭ взаимодействия.
3. Характеристиками резонансного МЭ взаимодействия в композитных мультиферроидных структурах можно управлять с помощью постоянного электрического поля, которое изменяет диэлектрическую проницаемость, коэффициент потерь пьезоэлектрического слоя структуры и модуль Юнга.
4. При приложении к композитной магнитоэлектрической структуре одновременно переменных магнитного и электрического полей на частотах, близких к частоте механического резонанса, в ней наблюдается смешанный электрический сигнал.
5. В композитных структурах нелинейная зависимость магнитострикции магнитного слоя от поля приводит к нелинейным эффектам: возникновению электрического сигнала на акустической резонансной частоте образца при действии переменного магнитного поля с частотой, вдвое меньшей резонансной, и формированию электрического сигнала на резонансной частоте образца под действием двух переменных магнитных полей с частотами, удовлетворяющими условиям синхронизма.
6. Анализ нелинейного отклика композитной структуры на импульсы магнитного поля большой амплитуды позволяет определить частотные и полевые характеристики магнитоэлектрического взаимодействия.

### Достоверность научных положений, результатов и выводов

Результаты, представленные в диссертации, получены на основе экспериментов, проведенных на современном научном оборудовании. Достоверность полученных результатов обеспечивалась использованием комплекса взаимодополняющих экспериментальных методик и подтверждается их воспроизводимостью.

### Личный вклад соискателя

Соискатель изготовил часть исследованных в работе композитных мультиферроидных структур, провел измерения магнитных, диэлектрических и МЭ характеристик всех использованных структур, выполнил теоретические оценки и расчеты, участвовал в обсуждениях полученных данных, подготовке графических материалов и написании статей по результатам исследований, лично докладывал полученные результаты на российских и международных конференциях.

### Объем и структура работы

Диссертационная работа состоит из введения, обзора литературы, описания исследованных образцов, экспериментальных методик и методов обработки результатов измерений, 2-х глав с изложением результатов, их обсуждением, заключением и выводами, а также списка цитируемой литературы. Общий объем работы составляет 150 страниц, включая 100 рисунков и 5 таблиц. Список цитируемой литературы состоит из 151 наименований.

### Апробация работы

Основные результаты работы были представлены на российских и международных конференциях в виде устных и стендовых докладов (тезисы и труды опубликованы в соответствующих сборниках): международной научной конференции студентов, аспирантов и молодых ученых «Ломоносов» (Москва, 2009); «Moscow International Symposium on Magnetism» MISM (Москва, 2008, 2011); Международной школе-семинаре «Новое в магнетизме и магнитных материалах» НМММ-XXI (Москва, 2008); международном симпозиуме по магнетизму «Joint European Magnetic Symposia» (Дублин, 2008); международной конференции «9-th European Conference on Application of Polar Dielectrics»; международной конференции «Micro- and nanoelectronics -2007» (Звенигород, 2007); международной конференции «International Conference on Functional Materials» (Партенит, 2009); международном симпозиуме «Progress in Electromagnetic Research Symposium» (Москва, 2009); международном симпозиуме «12<sup>th</sup> International Meeting on Ferroelectricity and the 16<sup>th</sup> IEEE International Symposium on the Applications of Ferroelectrics» (Xi'an, 2009); международной конференции по магнетизму «International Conference on Magnetism» (Карлсруэ, 2009); 4-й Байкальской международной конференции «Магнитные материалы. Новые технологии» (Иркутск, 2010); международной научной конференции «Функциональная компонентная база микро-, опто- и наноэлектроники» (Кацивели, 2010); 19-й Всероссийской конференции по физике сегнетоэлектриков (Москва, 2011); международной конференции «9<sup>th</sup> European Conference on Magnetic Sensors and Actuators» (Прага,



2012); 22-й Международной конференции “Новое в Магнетизме и Магнитных Материалах” (Астрахань, 2012).

### Публикации

Материалы диссертационной работы опубликованы в 28 печатных работах, в том числе, в 13 статьях в реферируемых российских и зарубежных журналах, принадлежащих перечню ВАК, а также в 15 статьях в сборниках трудов и тезисов докладов всероссийских и международных конференций.

## **ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ**

### **Введение**

Во введении рассмотрена актуальность темы диссертационной работы, сформулирована цель и определены основные задачи исследования, отмечается новизна и практическая значимость работы, приводятся положения, выносимые на защиту, и сведения об апробации работы, кратко излагается структура и содержание работы.

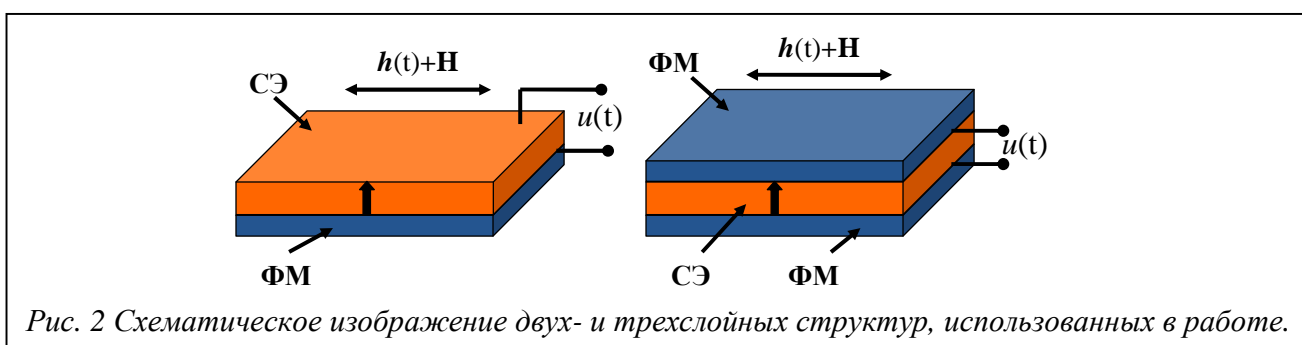
### **Глава 1. Обзор литературы**

В главе обобщаются известные опубликованные работы по исследованию МЭ эффекта в композитных структурах. Описываются виды и типы материалов, используемых для изготовления этих структур, и связь их характеристик с величиной магнитоэлектрического взаимодействия. Кратко изложена история развития исследований МЭ эффекта. Анализируются последние достижения. Рассматриваются известные подходы и модели для описания магнитоэлектрических взаимодействий в композитных слоистых структурах. Рассматриваются не только фундаментальные, но и прикладные вопросы. В частности, приведены примеры применения магнитоэлектрических композитных структур. В заключение формулируется цель работы.

### **Глава 2. Методика измерений и образцы**

Глава посвящена описанию материалов, из которых изготовлены слои композитных структур, образцов и методик, примененных для исследований в диссертационной работе. Для решения поставленных задач были использованы двух- и трехслойные композитные слоистые структуры (см. рисунок 2) с разными ферромагнитными (ФМ) и сегнетоэлектрическими (СЭ) материалами. В качестве магнитных материалов, из которых изготавливали структуры, были

использованы Ni, пермендюр состава  $\text{Fe}_{49}\text{Co}_{49}\text{V}_2$  (FeCo), галфенол состава  $\text{Fe}_{0.8}\text{Ga}_{0.2}$  (FeGa), аморфный магнитный сплав на основе железа  $\text{Fe}_{90.3}\text{Si}_{5.2}\text{C}_{1.5}\text{B}_3$  (FeSiCB). Магнитные материалы были получены из различных источников: ЦНИИ Чермет (Россия), НИИ Информатики МГТУ МИРЭА (Россия), Институт технической акустики (Белоруссия), фирм VacuumSchmelzGemeinschaft & Co (Германия) и Metglas Inc. (США). В качестве пьезоэлектрических материалов использовались керамика цирконата-титаната свинца  $\text{Pb}_{0.51}\text{Zr}_{0.49}\text{TiO}_3$  (ЦТС или PZT), керамика магниониобат и титанат свинца  $(1-x)\text{PbNb}_{2/3}\text{Mg}_{1/3}\text{O}_3 - x\text{PbTiO}_3$  (PMN-PT), кварц, лангатат  $\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$  (LGT). Сегнетоэлектрические материалы были получены от следующих производителей: ЗАО “Элпа” (РФ), American Piezo Inc. (США), CeramTec AG, Lauf (Германия). Монокристаллические пластины лангатата были предоставлены фирмой ОАО “Фомос-материалс” (РФ).

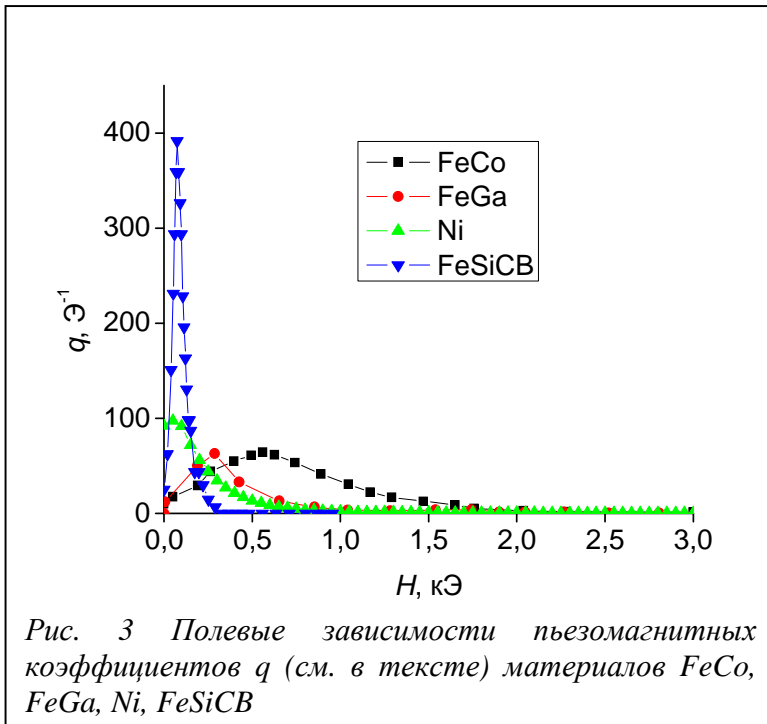


Петли гистерезиса были измерены с помощью вибрационного магнитометра фирмы Lake Shore, система 7407. Магнитострикция магнитных материалов определялась тензометрическим методом. МЭ эффект измеряли динамическим методом. Приведено описание установки измерения импульсного МЭ эффекта и рассматривается принцип её работы. Описана методика проведения импульсных измерений. Для измерения частотных зависимостей емкости и диэлектрической проницаемости структур был использован RLC измеритель фирмы Aktakom AM-3026. Пьезоэлектрический коэффициент был измерен с помощью прибора Piezo  $d_{33}$  Tester Model 8000.

### Глава 3. Магнитоэлектрический эффект в структурах с разными магнитными и пьезоэлектрическими материалами

В третьей главе анализируются результаты измерения магнитных и магнитострикционных свойств использованных материалов. Обсуждаются результаты исследования магнитоэлектрического эффекта в структурах с различными магнитными и пьезоэлектрическими материалами. Глава разбита на три параграфа.

В первом параграфе проведен анализ магнитных свойств материалов Ni, FeSiCB, FeGa, FeCo, используемых для изготовления исследуемых слоистых мультиферроидных структур.



Установлено, что максимальным значением намагниченности насыщения обладает сплав FeCo ~ 17.5 кГс, в то время как наименьшее значение - у никеля ~ 5.3 кГс. Были проведены измерения полевых зависимостей магнитострикции для этих материалов в двух направлениях приложения магнитного поля: в плоскости образца вдоль длинной стороны и в направлении, перпендикулярном плоскости образца. Насыщение магнитострикции аморфного сплава происходит в полях порядка 300-400 Э, никеля ~ 600 Э, а галфенол и пермендюр насыщаются в значительно больших полях ~ 2 кЭ. Проведено сравнение “пьезомагнитных коэффициентов”  $q$  материалов ( $q = \delta l / \delta H$ ), величина которых характеризует чувствительность деформации материала к магнитному полю (см. рисунок 3). Показано, что наибольшим коэффициентом  $q$  обладает лента аморфного магнитного сплава FeSiCB ( $q \sim 400 \text{ Э}^{-1}$ ). Для никеля, пермендюра и галфенола значения этого коэффициента равны  $100 \text{ Э}^{-1}$ ,  $60 \text{ Э}^{-1}$  и  $60 \text{ Э}^{-1}$ , соответственно. Другой важной характеристикой магнитных материалов является поле, в котором достигается магнитострикция насыщения. Наименьшее значение величины поля было получено для аморфного сплава  $H_s = 70 \text{ Э}$ , значение поля для никеля –  $H_s = 100 \text{ Э}$ . Как следует из результатов магнитных измерений, наилучшими характеристиками, с точки зрения достижения максимального МЭ эффекта, обладает аморфный магнитный сплав FeSiCB.

Во втором параграфе приведены результаты измерений прямого магнитоэлектрического эффекта для структур FeGa-PZT, FeSiCB-PZT и FeCo-PZT и обратного магнитоэлектрического эффекта в структурах FeCo-PZT и FeGa-PZT. Были измерены частотные и полевые зависимости магнитоэлектрического коэффициента. Для всех двухслойных структур характерно наличие максимумов на частотной зависимости, соответствующих резонансному возбуждению в структурах изгибных (на частоте  $f_1$ ) и продольных (на частоте  $f_2$ ) колебаний. В то же время частотная зависимость для трехслойной структуры с аморфным магнитным сплавом в качестве магнитострикционного слоя имела существенное отличие. На этой зависимости отсутствовали

Установлено, что максимальным значением намагниченности насыщения обладает сплав FeCo ~ 17.5 кГс, в то время как наименьшее значение - у никеля ~ 5.3 кГс. Были проведены измерения полевых зависимостей магнитострикции для этих материалов в двух направлениях приложения магнитного поля: в плоскости образца вдоль длинной стороны и в направлении, перпендикулярном плоскости образца. Насыщение магнитострикции аморфного сплава происходит в полях

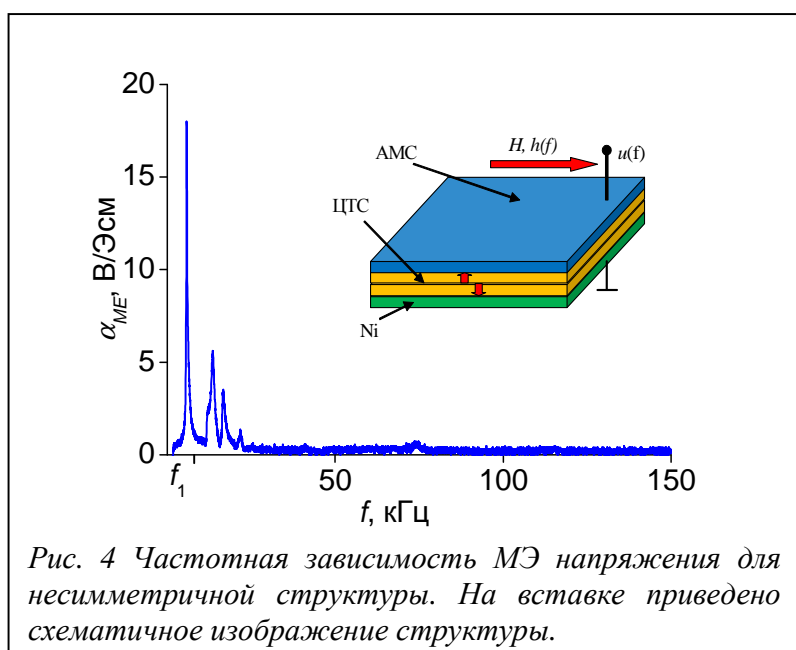
максимумы, соответствующие резонансному возбуждению изгибных колебаний, которые эффективно подавлялись из-за симметричности структуры. В таблице 1 приведено сравнение магнитоэлектрических коэффициентов всех двухслойных структур в случае резонанса изгибных (коэффициент  $\alpha_{E1}$ ) и планарных (коэффициент  $\alpha_{E2}$ ) колебаний.

Таблица 1. МЭ коэффициенты для различных структур на резонансных частотах

материал	FeGa	FeCo	FeSiCB
$\alpha_{E1}, \text{В} \cdot \text{Э}^{-1} \text{см}^{-1}$	8.7	8.4	11.9
$\alpha_{E2}, \text{В} \cdot \text{Э}^{-1} \text{см}^{-1}$	4.1	18	13.2

Как видно, наибольшие значения достигаются в структуре с аморфным магнитным сплавом. Кроме того, величина подмагничивающего поля имеет меньшее значение ( $H \sim 70 \text{ Э}$ ) в сравнении с другими структурами.

В следующем параграфе приводятся обсуждения измерений магнитоэлектрических характеристик в несимметричной структуре Ni/PZT(биморфная)/FeSiCB. Показано, что,



используя два разных материала с магнитоэлектрической насыщенностью, равной по величине и противоположной по знаку, можно существенно увеличить магнитоэлектрический коэффициент на частоте резонанса изгибных колебаний (см. рисунок. 4).

При приложении поля  $H$  лента аморфного магнитного сплава растягивается ( $\lambda_{11}^{AF} > 0$ ), а пластина Ni - сжимается ( $\lambda_{11}^{Ni} < 0$ ) в

направлении поля. Магнитные материалы специально выбраны таким образом, что для них величина магнитоэлектрической насыщенности примерно одинакова  $|\lambda_{11}| \approx 30 \cdot 10^{-6}$  и коэффициенты  $q_{11}$  ( $q_{11} = \partial \lambda_{11} / \partial H$ ) достигают максимума примерно в одном и том же поле  $H_m \sim 10^2 \text{ Э}$ . Это означает, что под действием магнитного поля  $H$  биморфная структура будет изгибаться слоем аморфного магнитного сплава наружу. Значение МЭ коэффициента для несимметричной структуры на порядок выше значения для структуры Ni-PZT с такими же размерами.

В третьем параграфе главы обсуждаются результаты исследования магнитоэлектрического эффекта в двухслойных и трехслойных композитных структурах, где вместо

сегнетоэлектрических материалов применяли пьезоэлектрические монокристаллы кварца и лангата. Из теоретических расчетов следует, что МЭ коэффициент зависит не только от величины пьезоэлектрического коэффициента, но также от значения диэлектрической проницаемости в виде соотношения  $d_{13}/\epsilon$ . У наиболее распространенных сегнетоэлектрических керамик PZT и PMN-PT, используемых при создании мультиферроидных структур, это соотношение равно 0.1 и 0.15, соответственно, так как наряду с большим пьезокоэффициентом значение диэлектрической проницаемости у этих материалов также велико. Способ улучшения МЭ характеристик структур, рассмотренный в этом разделе, заключается в использовании пьезоэлектрических материалов с намного меньшим пьезомодулем, диэлектрическая проницаемость которых также мала. К примеру, для монокристаллического лангата это соотношение равно 0.25.

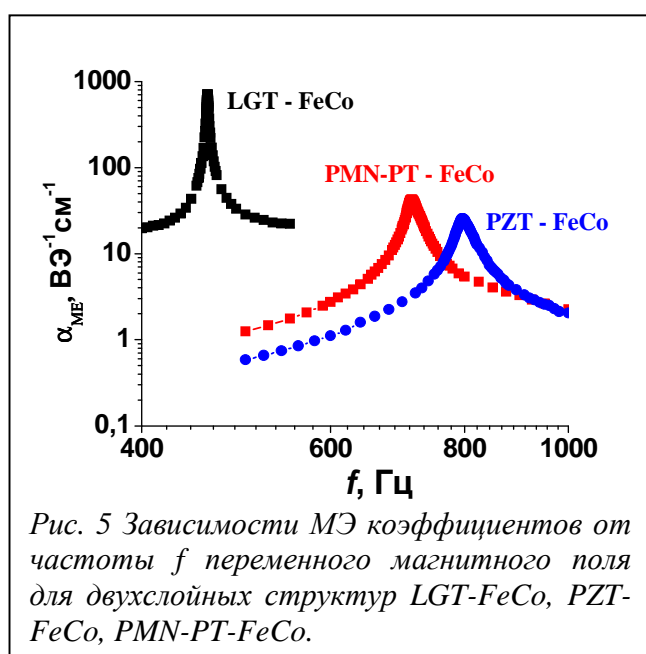


Рис. 5 Зависимости МЭ коэффициентов от частоты  $f$  переменного магнитного поля для двухслойных структур LGT-FeCo, PZT-FeCo, PMN-PT-FeCo.

Результаты измерений показали, что значения МЭ коэффициентов для двухслойных и трехслойных структур с лангатом намного превышают значения МЭ коэффициентов для аналогичных по размерам структур с PZT и PMN-PT. В качестве магнитных слоев во всех структурах использовали пластины FeCo. На рисунке 5 приведены частотные зависимости МЭ коэффициентов для двухслойных структур. Видно, что значение МЭ коэффициента для структуры с лангатом более, чем на порядок превосходит величины коэффициентов для остальных структур. Аналогичные результаты

получены и для трехслойных структур. Кроме того, в пьезоэлектриках отсутствуют гистерезис сегнетоэлектрических свойств и пьезоэлектрический эффект.

Таким образом, было установлено, что среди всех магнитных материалов наибольший МЭ эффект достигается при использовании аморфного магнитного сплава. Показано, что использование пьезоэлектрических материалов приводит к значительному увеличению эффективности МЭ взаимодействия в структурах.

#### Глава 4. Управление магнитоэлектрическим эффектом с помощью электрических и магнитных полей. Нелинейный магнитоэлектрический эффект

В четвертой главе обсуждаются результаты исследований по управлению МЭ эффектом с помощью приложенного к структуре электрического поля, а также исследования нелинейных характеристик МЭ эффекта. В главе 6 параграфов.

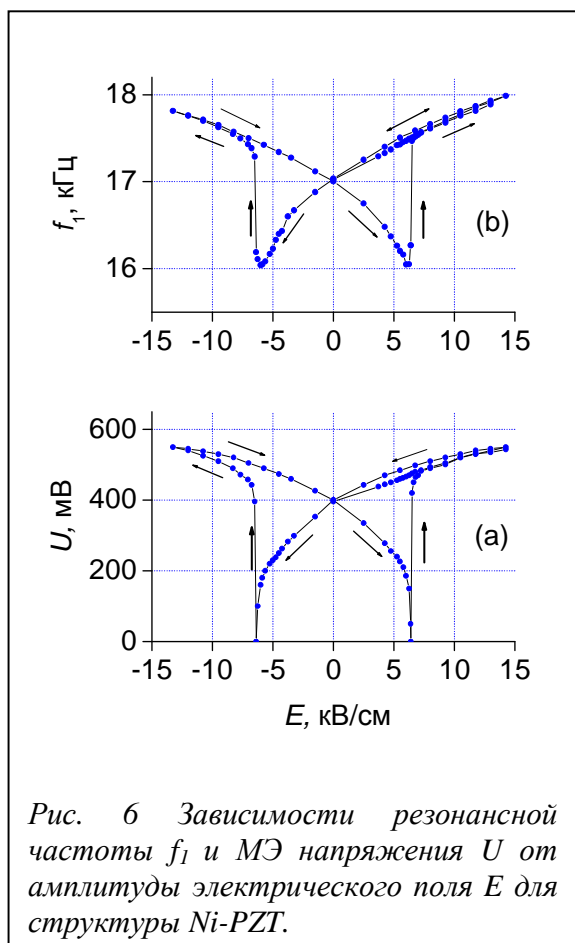


Рис. 6 Зависимости резонансной частоты  $f_1$  и МЭ напряжения  $U$  от амплитуды электрического поля  $E$  для структуры Ni-PZT.

В первом параграфе рассматривается влияние постоянного электрического поля на свойства структуры Ni-PZT. Из результатов измерений следует, что при приложении поля в диапазоне от - 3 кВ/см до 3 кВ/см, МЭ напряжение и резонансная частота изгибных колебаний структуры почти линейно зависят от амплитуды электрического поля. При дальнейшем увеличении приложенного поля (до 15 кВ/см) зависимость приобретает ярко выраженный нелинейный вид (см. рисунок 6).

Нелинейность зависимости магнитоэлектрического напряжения  $U$  объясняется зависимостью от напряженности электрического поля диэлектрической проницаемости  $\epsilon$  и пьезомодуля  $d_{13}$ . При полях  $E \sim 7$  кВ/см происходит изменение направление поляризации пьезоэлектрика. Нелинейная зависимость резонансной частоты структуры  $f_1$  связана с изменением модуля Юнга пьезоэлектрика под действием электрического поля.

Максимальное изменение модуля Юнга PZT достигало 25 %, что приводило к изменению

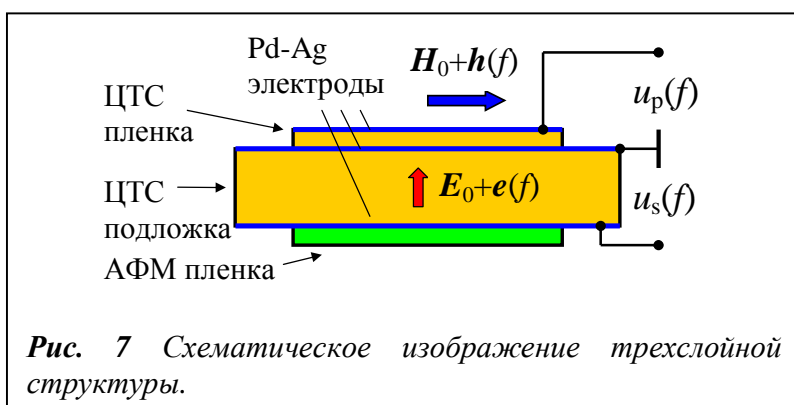
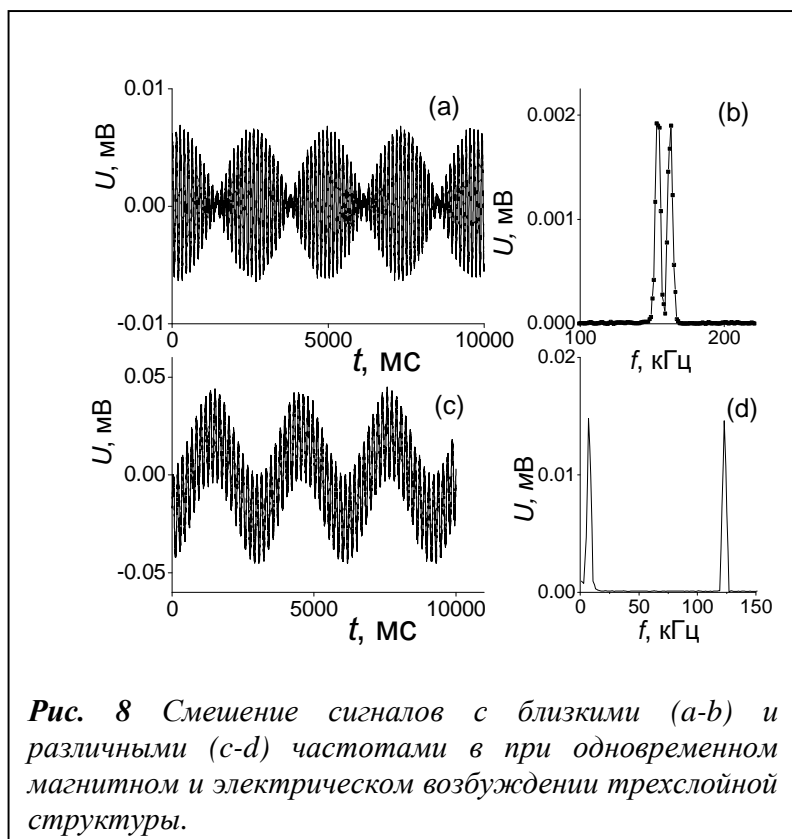


Рис. 7 Схематическое изображение трехслойной структуры.

резонансной частоты на 12 %. Для сравнения, изменение резонансной частоты структуры под действием постоянного магнитного поля составляло всего  $\sim 0.5$  %. Результаты демонстрируют высокую эффективность изменения МЭ характеристик структур с

помощью постоянного электрического поля.

В следующем параграфе приведены результаты исследования МЭ эффекта в трехслойной



**Рис. 8** Смещение сигналов с близкими (a-b) и различными (c-d) частотами в при одновременном магнитном и электрическом возбуждении трехслойной структуры.

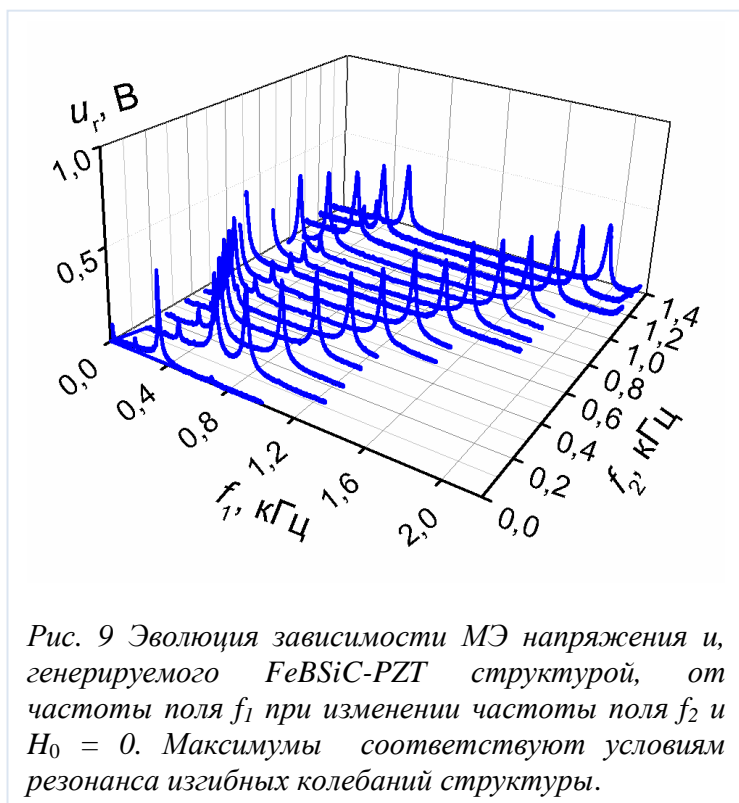
структуре - тонкая пленка PZT/подложка PZT/аморфный магнитный сплав (см. рисунок 7). Эта структура специально изготовлена для исследования смешения резонансных сигналов, вызванных одновременным возбуждением как переменным электрическим, так и переменным магнитным полями. В исследованиях проводилось сравнение МЭ характеристик при последовательном возбуждении структуры сначала магнитным полем, а затем отдельно электрическим полем. Напряжение, генерируемое структурой, снимали при помощи электродов либо с пленки, либо с подложки. При одновременном возбуждении структуры электрическим и магнитным полями наблюдалось резонансное смешение двух сигналов, генерируемых сегнетоэлектрической подложкой. Результаты этих измерений приведены на рисунке 8. На верхнем рисунке показаны результаты измерения в случае близких значений частот переменных электрического и магнитного полей. В этом случае наблюдается суммирование сигналов и возникновение биений. На нижнем рисунке показаны результаты измерений, когда частоты переменных электрического и магнитного полей совпадают с частотами резонанса изгибных и планарных колебаний соответственно, что приводит к модуляции одного сигнала другим.

Следующие параграфы посвящены обсуждению результатов исследований нелинейных характеристик МЭ эффекта. В первом параграфе описаны результаты изучения нелинейного “удвоения частоты” в структуре FeSiCB-PZT. Эффект заключается в наблюдении резонансного увеличения магнитоэлектрического напряжения на частоте изгибных колебаний в случае возбуждения структуры переменным магнитным полем с частотой вдвое меньше, чем частота изгибных колебаний. Причина заключается в том, что магнитострикция является четным

структуре - тонкая пленка PZT/подложка PZT/аморфный магнитный сплав (см. рисунок 7). Эта структура специально изготовлена для исследования смешения резонансных сигналов, вызванных одновременным возбуждением как переменным электрическим, так и переменным магнитным полями. В исследованиях проводилось сравнение МЭ характеристик при последовательном возбуждении структуры сначала магнитным полем, а затем отдельно электрическим полем. Напряжение,

эффектом по полю, то есть магнитный слой растягивается дважды за период переменного магнитного поля. Величина эффекта пропорциональна второй производной от магнитострикции по магнитному полю. Для структуры с аморфным сплавом максимальный эффект наблюдается в отсутствие постоянного поля приложенного к структуре.

Следующий параграф посвящен обсуждению результатов исследования нелинейного МЭ эффекта формирования электрического сигнала на резонансной частоте образца под действием двух переменных магнитных полей с частотами, удовлетворяющими условиям синхронизма. По



результатам измерений (см. рисунок 9) установлена эволюция зависимости МЭ напряжения, генерируемого структурой, от частоты  $f_1$  первого магнитного поля при заданных значениях частоты  $f_2$  второго магнитного поля. Приведено теоретическое описание этого эффекта. Показано, что амплитуда генерируемого сигнала на частоте акустического резонанса также пропорциональна второй производной от магнитострикции по полю. Полученные результаты представляют интерес, прежде всего, в области измерения магнитных полей, потому что использование этого эффекта позволяет решить проблему узкого

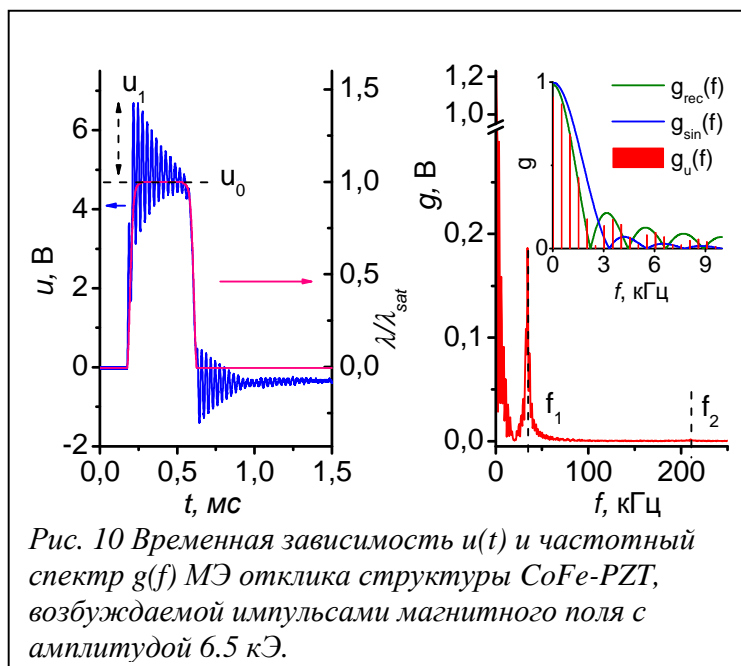
частотного диапазона, в котором достигается наибольшая чувствительность датчиков.

Последний параграф посвящен изучению отклика МЭ структуры на возбуждение импульсными магнитными полями с амплитудами, значительно превышающими величины полей, в которых достигается намагниченность насыщения. Структуры  $FeCo-PZT$  и  $FeCo-PZT-FeCo$  возбуждали при помощи импульсов магнитного поля с амплитудами до 38 кЭ и длительностью импульса в 450 мкс. Были изучены параметры осцилляций на временных зависимостях МЭ напряжения, генерируемого структурой.

На рисунке 10 приведены временные зависимости напряжения, снимаемого со структуры, при амплитуде импульса магнитного поля 6.5 кЭ, а также частотный спектр, полученный из этой зависимости при помощи преобразования Фурье. На рисунке видны осцилляции в области



максимума приложенного импульса, а также сразу после него. Эти осцилляции соответствуют возбуждению в структуре изгибных и планарных колебаний. Они возбуждаются при разных амплитудах импульсов магнитных полей и с разной интенсивностью. Кроме того, как было показано в предыдущей главе, для случая симметричной структуры осцилляции, соответствующие изгибным колебаниям, не возникают.



Была разработана методика получения частотных и полевых зависимостей магнитоэлектрического коэффициента из измеренных зависимостей  $h(t)$  и  $u(t)$ . Она основана на анализе спектров импульсов  $h(f)$  и  $g(f)$  с помощью преобразования Фурье. Используя формулу  $\alpha_E(f) = (1/a_p) \cdot u(f)/h(f)$ , можно найти искомую зависимость МЭ коэффициента от частоты. Чтобы получить полевые зависимости МЭ коэффициента  $\alpha_E(H)$ , необходимо измерить сначала зависимости  $h(t)$  и  $u(t)$ ,

затем вычислить от них производные по времени  $\delta h(t)/\delta t$  и  $\delta u(t)/\delta t$ , рассчитать значение  $\alpha_E = (1/a_p) \cdot (\delta u / \delta h)$ . Совокупность полученных значений  $\alpha_E$  и  $h$  даст искомую полевую зависимость. В заключение отмечается возможность измерения импульсных магнитных полей с амплитудами вплоть до 38 кЭ, то есть возможность создания датчиков импульсных магнитных полей на основе магнитоэлектрических композитных структур.

## ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ВЫВОДЫ

1. Показано, что одними из наиболее перспективных композитных мультиферроидных структур являются структуры с аморфными магнитными сплавами, в которых эффективность МЭ взаимодействия достигает  $10 - 10^2$  В/Э·см в резонансном режиме.
2. Исследованная трехслойная композитная мультиферроидная структура Ni/PZT/FeSiCB на основе магнитных материалов с различными знаками магнитострикции обеспечивает усиление МЭ взаимодействия в  $\sim 3$  раза по сравнению с двухслойными структурами.

3. В композитных структурах на основе пьезоэлектриков, используемых вместо сегнетоэлектрических материалов, эффективность МЭ взаимодействия достигает рекордных значений  $\sim 10^3$  В/Э·см в резонансном режиме.
4. Под действием постоянного электрического поля  $E$ , приложенного к композитной структуре, величина МЭ коэффициента изменяется более чем на порядок, при этом резонансная частота структуры может сдвигаться на величину до 12 % для исследованной структуры. Предложено феноменологическое объяснение наблюдаемого эффекта.
5. Установлено, что в композитных мультиферроидных структурах формируется сигнал на акустической резонансной частоте образца при действии переменного магнитного поля с частотой вдвое меньшей.
6. Показано, что при возбуждении структуры с пермендюратором магнитными импульсами с амплитудой, значительно большей поля насыщения (до 38 кЭ), отклик системы несет информацию о видах осцилляций в системе, резонансных частотах, полевых и частотных зависимостях магнитоэлектрического взаимодействия в структуре.

## **ОСНОВНЫЕ ПУБЛИКАЦИИ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ**

### **Статьи в журналах из перечня ВАК:**

1. Фетисов Л.Ю., Каменцев К.Е., Фетисов Ю.К. Влияние электрического поля на характеристики магнитоэлектрического взаимодействия в композитной структуре ферромагнетик – сегнетоэлектрик //ФТТ. – 2009. – Т. 51. – В. 11. – С. 2175- 2179.
2. Фетисов Л.Ю., Каменцев К.Е., Остащенко А.Ю. Влияние проводимости на частотные характеристики магнитоэлектрического напряжения в многослойной пленочной структуре //Нано- и микросистемная техника. – 2009. – Т. 105. – В. 4. – С. 23-26.
3. Фетисов Л.Ю., Буш А.А., Каменцев К.Е., Мещеряков В.Ф., Фетисов Ю.К., Чашин Д.В. Низкочастотный магнитоэлектрический эффект в композитной планарной структуре галфенол – цирконат-титанат свинца //ЖТФ. – 2009. – Т. 79. – В. 9. – С. 71-77.
4. Fetisov L.Y., Srinivasan G., Fetisov Y.K. Influence of bias electrical on magnetoelectric interactions in ferromagnetic-piezoelectric layered structures//Appl. Phys. Lett. – 2009. – V. 94. – №. 1325007.
5. Fetisov L.Y., Kamentsev K.E., Srinivasan G., Fetisov Y.K. Frequency dependence of magnetoelectric voltage for a multilayer ferrite-piezoelectric structure with ferrite conductivity //Integrated Ferroelectrics. – 2009. – V. 106. – P. 1-6.

6. Fetisov L.Y., Kamentsev K.E., Srinivasan G., Fetisov Y.K., Chashin D.V. Converse magnetoelectric effects in a galphenol and lead zirconate titanate bilayer // *J. Appl. Phys.* – 2009. – V. 105. – №. 123918.
7. Фетисов Л.Ю., Чашин Д.В., Перов Н.С., Фетисов Ю.К. Магнитоэлектрический эффект в планарных структурах аморфный ферромагнетик FeNiSiC – пьезоэлектрик // *ЖТФ.* – 2011. – Т. 81. – В. 4. – С. 56 – 61.
8. Фетисов Л.Ю., Перов Н.С., Фетисов Ю.К. Резонансное магнитоэлектрическое взаимодействие в несимметричной биморфной структуре ферромагнетик – сегнетоэлектрик // *ПЖТФ.* – 2011. – Т. 37. – В. 6. – С. 1-7.
9. Fetisov L.Y., Perov N.S., Fetisov Y.K., Srinivasan G. and Petrov V.M. Resonance magnetoelectric interactions in an asymmetric ferromagnetic-ferroelectric layered structures // *J. Appl. Phys.* – 2011. - V. 109. - № 053908. – P. 1-4.
10. Sreenivasulu G., Fetisov L.Y., Srinivasan G., Fetisov Y.K. Piezoelectric single crystal langatate and ferromagnetic composites: Studies on low-frequency and resonance magnetoelectric effects // *Appl. Phys. Let.* – 2012. – V. 100. – №. 052901.
11. Фетисов Л.Ю. Резонансный магнитоэлектрический эффект в композитной структуре кварц-ферромагнетик // *Нано- и микросистемная техника.* - 2012. – Т. 6. – С. 14-16.
12. Fetisov L.Y., Chashin D.V., Fetisov Y.K., Segalla A.G., and Srinivasan G. Resonance magnetoelectric effects in a layered composite under magnetic and electrical excitations // *J. of Appl. Phys.* – 2012. – V. 112. – №. 014103.
13. Kreitmeier F., Chashin D.V., Fetisov Y.K., Fetisov L.Y., Schulz I., Monkman G.J. and Shamonine M. Nonlinear magnetoelectric response of planar ferromagnetic-piezoelectric structures to sub-millisecond magnetic pulses // *Sensors.* – 2012. - V. 12. – P. 14821 – 14837.

#### **Статьи в сборниках трудов:**

1. Фетисов Л.Ю., Перов Н.С., Фетисов Ю.К. Магнитоэлектрический эффект в структуре аморфный ферромагнетик – пьезоэлектрик // *Сборник трудов XXI Международной конференции «Новое в магнетизме и магнитных материалах», Москва – 2008.* – С. 324-325.
2. Фетисов Л.Ю., Перов Н.С. Датчики магнитных полей на основе композитных структур ферромагнетик-пьезоэлектрик // *Сборник научных трудов 3 международной научной конференции “Функциональная компонентная база микро-, опто- и наноэлектроники”.* - 2011. - с. 237.

3. Фетисов Л.Ю., Крайтмаер Ф, Чашин Д.В., Фетисов Ю.К., Шульц И., Монкман Г.Д., Шамонин М. Нелинейный магнитоэлектрический отклик слоистой композитной структуры под воздействием коротких магнитных импульсов // Сборник трудов 22 Международной конференции «Новое в магнетизме и магнитных материалах». – 2012. – С. 598.

**Опубликованные тезисы докладов:**

1. Fetisov L.Y., Danilichev S., Lebedev S., Srinivasan G. Magnetostriction of an obliquely magnetized ferromagnetic film // Book of abstracts, International conference “Micro- and nanoelectronics - 2007”, Звенигород – 2007. – Paper P2-20.
2. Fetisov L.Y., Fetisov Y.K., Srinivasan G. Angular dependence of magnetostriction in obliquely magnetized ferromagnetic films // Abstracts of the Moscow International Symposium on Magnetism, Москва – 2008. – Paper PO-8-98.
3. Fetisov L.Y., Fetisov Y.K., Lebedev S. Magnetolectric interaction in obliquely magnetized ferromagnetic-piezoelectric layered structures // Abstracts of Joint European Magnetic Symposia, Dublin, Ireland – 2008. – ab. FM 057.
4. Fetisov L.Y., Fetisov Y.K., Kamentsev K.E., Srinivasan G., Frequency dependence of magnetoelectric voltage for a multilayer ferrite-piezoelectric structure with finite conductivity // Abstract booklet of the 9-th European Conference on Application of Polar Dielectrics, Roma, Italy – 2008. – P.133.
5. Фетисов Л.Ю., Перов Н.С. Магнитоэлектрический эффект в структуре магнитная пленка – пьезоэлектрик // Материалы докладов Международной конференции студентов, аспирантов и молодых ученых «Ломоносов»-2009 / Отв. ред. И.А. Алешковский, П.Н. Костылев. [Электронный ресурс] - М.: Издательство МГУ; СП МЫСЛЬ, Москва - 2009.
6. Фетисов Л.Ю., Перов Н.С. Датчики магнитных полей и автономные источники энергии на основе магнитоэлектрического эффекта в слоистых структурах ферромагнетик – пьезоэлектрик // Сборник тезисов Научно-практической конференции «Фундаментальные и прикладные аспекты инновационных проектов Физического факультета МГУ», Москва – 2009. – С. 136-137.
7. Fetisov L.Y., Fetisov Y.K., Srinivasan G. Electrical field control of magnetoelectric interaction efficiency in ferromagnetic-piezoelectric structures // Abstracts of the International Conference on Functional Materials, Ukraine, Crimea, Partenit – 2009.
8. Fetisov Y.K., Fetisov L.Y., Srinivasan G. Electrical tuning of magnetoelectric conversion efficiency in layered lead zirconate titanate - ferromagnetic structure // Abstracts of the 12<sup>th</sup> International

- Meeting on Ferroelectricity and the 16<sup>th</sup> IEEE International Symposium on the Applications of Ferroelectrics, Xi'an, China – 2009. – P. KO-012.
9. Fetisov L.Y., Perov N.S., Fetisov Y.K. Magnetolectric interaction in hybrid magnetic-piezoelectric film structures // Abstracts of the Intern. Conference on Magnetism, Karlsruhe, Germany – 2009. – P. 732.
  10. Фетисов Л.Ю., Перов Н.С. Резонансный магнитоэлектрический эффект в структуре аморфный магнитный сплав-пъезоэлектрик-никель // Сборник тезисов 4-й Байкальской международной конференции “Магнитные материалы. Новые технологии”, Иркутск – 2010. – № О-20.
  11. Фетисов Л.Ю., Перов Н.С., Фетисов Ю.К. Магнитоэлектрический эффект в мультиферроидной структуре никель - цирконат титанат свинца – аморфный магнитный сплав // Тезисы докладов 19 Всероссийской конференции по физике сегнетоэлектриков, Москва – 2011. – S2-55.
  12. Fetisov L.Y., Perov N.S., Medvedev M.D., Srinivasan G., and Sreenivasulu G. New magnetolectric composite structures for magnetic field sensors // 9<sup>th</sup> European conference on magnetic sensors and actuators, Prague, Czech Republic – 2012. – P. 89.

#### **Список цитированной литературы**

1. Астров Д.Н. Магнитоэлектрический эффект в окиси хрома // ЖЭТФ, 1961. – Т. 40. – С. 1035 – 1041.
2. Van Suchtelen J. Product properties: A New Application of Composite Materials // Philips Res. Rep., 1972. – V. 27. – P. 28 – 37.
3. Nan C.-W., Bichurin M.I., Dong S., Viehland D. and Srinivasan G. Multiferroic Magnetolectric composites: Historical perspective, status, and future directions // Journal of Applied Physics. – 2008. – V. 108. – N. 031101.
4. Пятаков А.П., Звездин А.К. Магнитоэлектрические материалы и мультиферроики // Успехи Физических Наук. – 2012. – Т. 182. – Вып. 6. – С. 569–592.
5. Bichurin M.I., Petrov V.M., Srinivasan G. Theory of low-frequency magnetolectric coupling in magnetostrictive-piezoelectric bilayers // Phys. Rev. B. – 2003. – V. 68. - № 054402.
6. Srinivasan G., Rasmussen E.T., Gallegos J., Srinivasan R., Bokhan Yu. and Laletin V.M. Magnetolectric bilayer and multilayer structures of magnetostrictive and piezoelectric oxides // Phys. Rev. B. – 2001. – V. 64. – № 214408.