05,06

Магнитоэлектрический эффект в тонкопленочных магнитострикционно-пьезоэлектрических структурах, выращенных на подложке

© Д.А. Филиппов

Новгородский государственный университет им. Ярослава Мудрого,
Великий Новгород, Россия

E-mail: Dmitry.Filippov@novsu.ru

(Поступила в Редакцию 15 ноября 2011 г.)

Представлена теория магнитоэлектрического эффекта в структуре тонкая магнитоэлектрическая пленка—пассивная подложка. На основе совместного решения материальных уравнений и уравнений движения пленки и подложки получено дисперсионное соотношение для упругих волн, распространяющихся в плоскости образца. Показано, что в том случае, если скорость распространения упругих колебаний в подложке больше, чем в магнитоэлектрической пленке, распространение упругих колебаний в подложке происходит в приповерхностном слое. При этом толщина подложки практически не оказывает влияния на величину эффекта.

Работа выполнена при частичной поддержке гранта РФФИ № 11-02-98801-р_север_а и программы „Развитие научного потенциала высшей школы“ (проект № 2.1.1/10009).

1. Введение

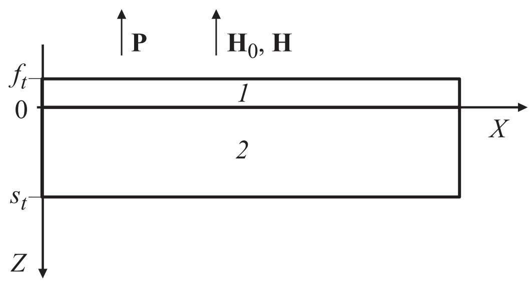
В последнее время активно исследуется магнитоэлектрический (МЭ) эффект в тонкопленочных магнитострикционно-пьезоэлектрических структурах, выращенных на подложке [1,2]. Такие структуры имеют специфические особенности по сравнению с объемными и многослойными композитами. С одной стороны, в них лучше контакт между магнитострикционным и пьезоэлектрическим слоями, чем в многослойных композитах, что приводит к увеличению эффекта. С другой стороны, наличие механической связи между активным МЭ-слоем и пассивной подложкой приводит к тому, что она „зажимает“ активный слой, вследствие чего можно ожидать, что величина эффекта в таких структурах будет пренебрежимо малой по сравнению с величиной эффекта в многослойных и объемных композитах [3]. Тем не менее изготовленная на подложке из кремния двухслойная тонкопленочная структура феррит-кобальтовая шпинель—цирконат-титанат свинца (CFO/PZT) обнаружила хорошие МЭ-свойства [2]. В настоящей работе на примере простой модели показано, что при определенных условиях подложка „не зажимает“ активный магнитострикционно-пьезоэлектрический слой и величина МЭ-эффекта практически не зависит от толщины подложки.

2. Модель и основные уравнения

В качестве модели рассмотрим структуру, представляющую собой МЭ-пленку толщиной ${}^f t$, выращенную на проводящей подложке толщиной ${}^s t$ (см. рисунок). Активная МЭ-пленка состоит из двух или более механически связанных магнитострикционных и пьезоэлектрических слоев (связь 2-2) либо из зерен или наностолбиков из магнитострикционного материала, внедренных в пьезоэлектрическую матрицу (связь 0-3 или 1-3) [3]. Поскольку характерные размеры структурных единиц МЭ-пленки (толщина слоев, радиус зерна или диаметр столбика) много меньше размеров образца и характерных масштабов изменения внешних воздействий, с макроскопической точки зрения такую МЭ-пленку можно рассматривать как однородную среду, свойства которой описываются некоторыми эффективными параметрами. Методика расчета эффективных параметров среды, предложенная первоначально в [4,5], получила дальнейшее развитие в работах [6,7].

В качестве примера рассмотрим образец в форме прямоугольной пластинки шириной W и длиной L. Выберем систему координат таким образом, чтобы ее начало совпадало с границей раздела слоев, а ось Z направим вертикально вниз, перпендикулярно границе раздела (см. рисунок). Пусть МЭ-пленка поляризована перпендикулярно плоскости контактов (ось Z). В дальнейшем будем считать, что толщина пленки ${}^f t$ много меньше толщины подложки ${}^s t$.

Рассмотрим продольный МЭ-эффект. В этом случае магнитные поля (постоянное $\mathbf{H}_0$ и переменное $\mathbf{H}$ с частотой ω) совпадают по направлению с вектором поляризации $\mathbf{P}$. Ограничимся рассмотрением планарных колебаний, распространяющихся вдоль пластинки (ось X). Переменное магнитное поле возбуждает в магнитострикционной фазе пленки продольные колебания среды, которые посредством механического контакта между фазами передаются в пьезоэлектрик, где и возникает электрическое поле. При этом вследствие механической связи на границе раздела пленка—подложка колебания МЭ-пленки посредством сдвиговых напряжений переда-



Схематическое изображение структуры. *1* — магнитоэлектрическая пленка толщиной ${}^f t$, *2* — подложка толщиной ${}^s t$.

ются в подложку, и в ней также возникают механические колебания. Подложка в данном случае играет роль пассивной среды, на которой находится активный МЭ-слой. Поскольку имеется резкая граница между МЭ-пленкой и пассивной подложкой, амплитуда колебаний будет неоднородной перпендикулярно границе раздела.

В соответствии с этим обобщенный закон Гука, связывающий тензоры деформаций S_{ij} с тензорами напряжений T_{ij} и напряжениями, вызванными электрическим и магнитным полями, запишется в виде

$$ {}^f S_{xx} = \frac{1}{{}^f E} {}^f T_{xx} + d_{xx,z} E_z + q_{xx,z} H_z, \tag{1} $$

$$ {}^f S_{xz} = \frac{1}{{}^f G} {}^f T_{xz}, \tag{2} $$

$$ {}^s S_{xx} = \frac{1}{{}^s E} {}^s T_{xx}, \tag{3} $$

$$ {}^s S_{xz} = \frac{1}{{}^s G} {}^s T_{xz}. \tag{4} $$

Здесь ${}^f S_{ij}$, ${}^f T_{ij}$, ${}^s S_{ij}$, ${}^s T_{ij}$ — компоненты тензора деформаций и напряжений пленки и подложки соответственно, ${}^f E$, ${}^f G$, ${}^s E$, ${}^s G$ — модуль Юнга и модуль сдвига пленки и подложки, $d_{xx,z}$, $q_{qq,z}$ — компоненты пьезоэлектрического и пьезомагнитного модулей, E_z, H_z — напряженности электрического и магнитного полей. Для индукции электрического поля, возникающего в пленке, имеет место уравнение

$$ D_z = \varepsilon_{zz} E_z + d_{xx,z} {}^f T_{xx}, \tag{5} $$

где ε_{zz} — компонента тензора диэлектрической проницаемости пленки.

Поскольку имеется выделенное направление — ось Z, совпадающее с направлением поляризации и направлением постоянного магнитного поля, а также неоднородность вдоль оси Z, связанная с границей раздела пленка–подложка, в первом приближении можно считать, что вдоль оси Y смещения будут однородными и отличными от нуля компонентами будут только компоненты напряжений ${}^\alpha T_{xx}$ и ${}^\alpha T_{xz}$. В соответствии с этим уравнение движения среды для МЭ-пленки и подложки имеет вид

$$ {}^\alpha \rho \, \frac{\partial^{2\alpha} u_x}{\partial t^2} = \frac{\partial^\alpha T_{xx}}{\partial x} + \frac{\partial^\alpha T_{xz}}{\partial z}, \tag{6} $$

где индекс α равен соответственно f для пленки и s для подложки. Совместное решение уравнений (1)–(6) позволяет определить МЭ-свойства структуры.

3. Магнитоэлектрический коэффициент по напряжению

Важнейшей характеристикой МЭ-эффекта является магнитоэлектрический коэффициент по напряжению α_E, который определяется как $\alpha_E = \langle E \rangle / H$. Здесь $\langle E \rangle$ — среднее значение напряженности электрического поля, H — напряженность переменного магнитного поля. Для его нахождения используют уравнение (5) с учетом реализуемого в эксперименте условия разомкнутой цепи. В (5) входит тензор напряжений ${}^f T_{xx}$, выражение для которого можно получить из совместного решения системы уравнений (1)–(4) и уравнения (6). Поскольку имеется неоднородность вдоль оси Z, решение уравнения (6) для вектора смещения среды ${}^\alpha u_x$ представим в виде плоских волн, амплитуда которых изменяется по толщине образца,

$$ {}^\alpha u_x = {}^\alpha g(z) \left({}^\alpha A \cos(\omega t - kx) + {}^\alpha B \sin(\omega t - kx) \right), \tag{7} $$

где ${}^\alpha A$ и ${}^\alpha B$ — постоянные интегрирования. Подстановка выражения (7) в уравнение движения (6) приводит к следующему уравнению для функции ${}^\alpha g(z)$:

$$ {}^\alpha G \, \frac{\partial^{2\alpha} g(z)}{\partial z^2} + ({}^\alpha \rho \omega^2 - {}^\alpha E k^2) {}^\alpha g(z) = 0. \tag{8} $$

После преобразований уравнения для функций, определяющих изменение амплитуды колебаний в пленке ${}^f g(z)$ и подложке ${}^s g(z)$, примут вид

$$ \frac{\partial^2 {}^f g(z)}{\partial z^2} + 2(1+\nu) \left[\frac{\omega^2}{{}^f V_L^2} - k^2 \right] {}^f g(z) = 0, \tag{9} $$

$$ \frac{\partial^2 {}^s g(z)}{\partial z^2} + 2(1+\nu) \left[\frac{\omega^2}{{}^s V_L^2} - k^2 \right] {}^s g(z) = 0, \tag{10} $$

где $\frac{1}{{}^f V_L^2} = \frac{{}^f \rho}{{}^f E}$, $\frac{1}{{}^s V_L^2} = \frac{{}^s \rho}{{}^s E}$ — скорости продольных волн в пленке и подложке соответственно, $\nu = -\frac{s_{12}}{s_{11}}$ — коэффициент Пуассона, который для обеих сред предполагается одинаковым. Вид функций ${}^f g(z)$ и ${}^s g(z)$ (экспоненциальные или тригонометрические) зависит от знака члена, стоящего в квадратных скобках в уравнениях (9) и (10). При одинаковых значениях ω и k один из коэффициентов, стоящих в квадратных скобках, будет меньше нуля, а другой — больше нуля. Для определенности выберем структуру, представляющую собой МЭ-пленку из феррит-никелевой шпинели и цирконата-титаната свинца, выращенную на подложке из титаната стронция. В этом случае скорость распространения упругих волн в подложке будет больше, чем в МЭ-пленке. В соответствии с этим при одинаковых значениях ω и k коэффициент, стоящий в квадратных скобках в (9), будет больше нуля, а в (10) — меньше нуля, и решения уравнений запишутся в виде

$$^{f}g(z) = C_1 \cos(^{f}\chi z) + C_2 \sin(^{f}\chi z), \tag{11}$$

$$^{s}g(z) = C_3 \exp(-^{s}\chi z), \tag{12}$$

где введены следующие обозначения: $^{f}\chi^2 = 2(1+\nu) \times \left(\frac{\omega^2}{^{f}V_L^2} - k^2\right)$, $^{s}\chi^2 = -2(1+\nu)\left(\frac{\omega^2}{^{s}V_L^2} - k^2\right)$.

Для определения постоянных интегрирования воспользуемся граничными условиями, а именно на свободной поверхности, т.е. в точке $z = -^{f}t$, нормальная составляющая тензора напряжений равна нулю; на границе раздела в точке $z = 0$ смещения первой и второй сред одинаковы и одинаковы сдвиговые напряжения. Это дает следующую систему уравнений:

$$C_1 \sin(^{f}\chi^{f}t) + C_2 \cos(^{f}\chi^{f}t) = 0, \tag{13}$$

$$C_1 = C_3, \tag{14}$$

$$^{f}G^{f}\chi C_2 = -^{s}G^{s}\chi C_3. \tag{15}$$

Условия совместимости системы приводят к уравнению

$$\mathrm{tg}^{f}\kappa = ^{s}G^{s}\chi/^{f}G^{f}\chi, \tag{16}$$

где введен безразмерный параметр $^{f}\kappa = ^{f}\chi^{f}t$.

Уравнение (16) в неявном виде определяет дисперсионное соотношение при распространении упругих волн в структуре МЭ-пленка–подложка. Воспользуемся тем, что пленка тонкая, поэтому параметр $^{f}\kappa \ll 1$; в первом приближении можно считать, что $\mathrm{tg}^{f}\kappa \approx {}^{f}\kappa$, и уравнение (16) сводится к виду

$$^{f}\chi^{f}\kappa = (^{s}G/^{f}G)^{s}\chi. \tag{17}$$

Используя малость параметра $^{f}\kappa$ и решая уравнение (17) методом последовательных приближений, для параметра $^{s}\chi$ получим следующее выражение:

$$^{s}\chi = 2(1+\nu)(^{f}G/^{s}G)\left((^{s}V_L/^{f}V_L)^2 - 1\right)k^{f}\kappa. \tag{18}$$

Отсюда следует дисперсионное соотношение

$$\omega = ^{s}V_L k\left[1 - (1+\nu)(^{f}G/^{s}G)^2\left((^{s}V_L/^{f}V_L)^2 - 1\right)^2 {}^{f}\kappa^2\right]. \tag{19}$$

Как видно из (19), скорость распространения упругих волн в структуре МЭ-пленка–подложка зависит от волнового вектора и ее значение больше, чем скорость распространения волн в пленке, но несколько меньше скорости распространения продольных волн в подложке. Глубина проникновения волн определяется параметром $^{s}\chi$. Параметр $^{f}\kappa$, входящий в выражение (18) для $^{s}\chi$, вследствие малости толщины пленки много меньше единицы; следовательно, распространение волн происходит в узком приповерхностном слое, глубина которого уменьшается с увеличением частоты колебаний.

МЭ-коэффициент α_E определим обычным способом [8], используя условие разомкнутой цепи и условие механического равновесия, которое приводит к следующим граничным условиям на свободных поверхностях пластинки:

$$\int_{^{f}-t}^{0} {}^{f}T_{xx}(\pm L/2, z)dz + \int_{0}^{^{s}t} {}^{s}T_{xx}(\pm L/2, z)dz = 0. \tag{20}$$

Используя уравнения (6), (11), (12), с учетом граничных условий (13), (14) и (20) для смещений МЭ-пленки получим выражение

$$^{a}u_x(x,z) = B_1\left(\cos(^{f}\chi z) - \mathrm{tg}(^{f}\kappa)\sin(^{f}\chi z)\right)\sin(kx), \tag{21}$$

где

$$B_1 = \frac{d_{xx,z}E_z + q_{xx,z}H_z}{k\cos(\kappa/2)[\mathrm{tg}(^{f}\kappa)/^{f}\chi + \left(1 - \exp(-^{s}\kappa)/^{s}\chi\right)]},$$

$$\kappa = kL, \quad ^{s}\kappa = ^{s}\chi^{s}t$$

— безразмерные параметры.

Электрический ток найдем, используя соотношение

$$I = \int_{0}^{W} dy \int_{-L/2}^{L/2} \frac{\partial D_z}{\partial t}\,dx. \tag{22}$$

Выражая компоненты тензора напряжений через компоненты тензора деформаций из уравнения (2) и подставляя их в уравнение (5), получим выражение для D_z. Далее, подставляя полученное для D_z выражение в уравнение (22) и используя условие разомкнутой цепи $I = 0$, получим уравнение для напряженности электрического поля E_z, из которого найдем МЭ-коэффициент по напряжению как $\alpha_E = E/H$.

Выполняя указанные преобразования, окончательно для МЭ-коэффициента получим следующее выражение:

$$\alpha_E = \frac{^{f}E d_{xx,z} q_{xx,z}}{\varepsilon_{zz}} \frac{\Delta}{\Delta_\alpha}, \tag{23}$$

где

$$\Delta = 1 - \frac{\mathrm{tg}(\kappa/2)}{\kappa/2} \frac{1}{[1 + \gamma\left(1 - \exp(-^{s}\kappa)\right)]/(^{s}\chi^{f}t)},$$

$$\Delta_a = 1 - K_p 2\Delta, \quad \gamma = ^{s}E/^{f}E.$$

Здесь $K_p^2 = {}^{f}E d_{xxz}^2/(\varepsilon_{zz})$ — квадрат коэффициента электромеханической связи.

4. Заключение

Как следует из выражения (23), частотная зависимость МЭ-коэффициента по напряжению имеет резонансный характер. На так называемой частоте антирезонанса, когда $\Delta_a = 0$, имеет место пиковое увеличение МЭ-коэффициента. Частота резонанса зависит от геометрических размеров пластинки и параметров, характеризующих механические свойства МЭ-слоя и подложки. В областях, далеких от резонанса, величина МЭ-коэффициента практически не зависит от частоты и толщины подложки.

Таким образом, для структуры активная МЭ-пленка—пассивная подложка, в том случае, когда скорость распространения упругих волн в подложке больше, чем в пленке, величина МЭ-эффекта практически не зависит от толщины подложки и определяется эффективными параметрами активной МЭ-пленки.

Список литературы

[1] H. Zheng, J. Wang, S.E. Lofland, Z. Ma, L. Mohaddes-Ardabili, T. Zhao, L. Salamabca-Riba, S.R. Shinde, S.B. Ogale, F. Bai, D. Viehland, Y. Jia, D.G. Schlom, M. Wuttig, A. Routburd, R. Ramesh. Science **303**, 661 (2004).

[2] J. Zhou, H. He, Z. Shi, C.W. Nan. Appl. Phys. Lett. **88**, 013 111 (2006).

[3] C.-W. Nan, G. Liu, Y. Lin, H. Chen. Phys. Rev. Lett. **94**, 197 203 (2005).

[4] G. Harshe, J.O. Dougherty, R.E. Newnham. Int. J. Appl. Electromagn. Mater. **4**, 145 (1993).

[5] G. Harshe, J.P. Dougherty, R.E. Newnham. Int. J. Appl. Electromagn. Mater **4**, 161 (1993).

[6] М.И. Бичурин, В.М. Петров, Д.А. Филиппов, Г. Сринивасан, В.М. Лалетин. Перспективные материалы *6*, 5 (2004).

[7] I.A. Osaretin, R.G. Rojas. Phys. Rev. B **82**, 174 415 (2010).

[8] Д.А. Филиппов, М.И. Бичурин, В.М. Петров, В.М. Лалетин, Н.Н. Поддубная, G. Srinivasan. Письма в ЖТФ **30**, *1*, 15 (2004).