

05,06

## Нелинейный магнитоэлектрический эффект в композиционных мультиферроиках

© Д.А. Филиппов<sup>1</sup>, В.М. Лалетин<sup>2</sup>, Т.О. Фирсова<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Новгородский государственный университет им. Ярослава Мудрого, Великий Новгород, Россия

<sup>2</sup> Институт технической акустики, Витебск, Белоруссия

E-mail: Dmitry.Filippov@novsu.ru

(Поступила в Редакцию 14 ноября 2013 г.)

Представлены теоретические и экспериментальные результаты исследования нелинейного магнитоэлектрического эффекта в композиционных мультиферроиках в низкочастотной области спектра и в области электромеханического резонанса. Показано, что в таких структурах возникает нелинейный магнитоэлектрический эффект, который в области слабых полей квадратичен по напряженности переменного магнитного поля. В области электромеханического резонанса происходит резонансное возбуждение электрического поля посредством переменного магнитного поля с частотой, в 2 раза меньшей частоты резонанса. В низкочастотной области спектра вследствие суперпозиции сигналов от линейного и нелинейного эффектов возникает разность амплитудных значений двух соседних максимумов напряжения, величина которой в области слабых полей пропорциональна напряженности постоянного магнитного поля. Приведены результаты экспериментального исследования для двухслойной структуры пермендюр–цирконат-титанат свинца.

Работа выполнена при частичной поддержке Министерства образования и науки РФ в рамках государственного задания высшим учебным заведениям (проект № 7.1283.2011).

### 1. Введение

Мультиферроики (или сегнетомагнетики) — вещества, обладающие одновременно и магнитным, и электрическим упорядочением [1–4]. Взаимосвязь магнитных, электрических и упругих свойств мультиферроиков приводит к тому, что в них возможны перекрестные эффекты, связывающие между собой магнитные и электрические характеристики материала. При приложении к такой структуре внешнего электрического поля происходит изменение намагниченности, и, наоборот, при приложении внешнего магнитного поля происходит изменение поляризации. Этот эффект, называемый магнитоэлектрическим (МЭ), интересен тем, что позволяет создавать принципиально новые приборы твердотельной электроники [4,5]. Величина МЭ-эффекта в монокристаллических мультиферроиках (например, таких, как феррит висмута) довольно мала, что значительно сдерживает их практическое применение. В композиционных мультиферроиках, представляющих собой механически связанные магнитоэлектрические и пьезоэлектрические компоненты типа феррит–пьезоэлектрик или металл–пьезоэлектрик, величина МЭ-эффекта значительно больше. Это позволяет использовать их для создания приборов на основе МЭ-эффекта, например таких, как датчики магнитного поля, с чувствительностью, значительно превышающей чувствительность датчиков Холла [6]. Механизм возникновения МЭ-эффекта в композиционных мультиферроиках обусловлен связью магнитоэлектрики и пьезоэлектричества. В переменном

магнитном поле вследствие магнитоэлектрики в ферритовом компоненте возникают механические напряжения, которые передаются в пьезоэлектрическую фазу, где вследствие пьезоэффекта происходит изменение поляризации, что приводит к возникновению электрического напряжения. Поскольку пьезоэлектричество является линейной функцией напряженности электрического поля, а магнитоэлектрика — нелинейной функцией намагниченности, в общем случае возникают как линейные, так и нелинейные МЭ-эффекты. Ранее во многих работах (см., например, обзоры [4,5]) исследовался линейный МЭ-эффект, заключающийся в возникновении электрического напряжения на конденсаторе, диэлектриком которого является магнитоэлектрично-пьезоэлектрический материал, при помещении его в постоянное (подмагничивающее) и переменное магнитные поля. Частотная зависимость эффекта имеет резонансный характер, и на частоте антирезонанса наблюдается пиковое увеличение МЭ-коэффициента [7,8]. Величина эффекта зависит от постоянного магнитного поля, и на так называемой полевой зависимости имеется ярко выраженный максимум [9,10]. В области слабых полей величина эффекта пропорциональна величине поля подмагничивания. Это связано с тем, что в области, далекой от насыщения, магнитоэлектрика является квадратичной функцией намагниченности [11], поэтому при наличии поля подмагничивания величина МЭ-эффекта пропорциональна произведению напряженностей постоянного и переменного магнитного полей, т.е. наблюдается линейный по переменному магнитному полю МЭ-эффект. Однако

наряду с линейным эффектом возникает и нелинейный МЭ-эффект, величина которого пропорциональна квадрату переменного магнитного поля. При больших полях подмагничивания его величина много меньше линейного, и его вкладом в результирующий сигнал можно пренебречь. Однако в области слабых полей его величина может быть соизмерима или больше величины линейного эффекта. Этот факт следует учитывать при разработке магнитоэлектрических датчиков магнитного поля, предназначенных для измерения слабых полей.

При квадратичном по напряженности переменного магнитного поля эффекте частота механических колебаний, возникающих в магнитоэлектрической фазе, будет равна удвоенной частоте приложенного переменного магнитного поля. Передаваясь посредством механического взаимодействия в пьезоэлектрическую фазу, эти колебания приведут к изменению поляризации пьезоэлектрика, в результате чего на обкладках конденсатора возникнет электрическое напряжение с удвоенной частотой. При равенстве частоты переменного магнитного поля половине значения частоты антирезонанса будет происходить резонансное увеличение эффекта. В отличие от линейного эффекта этот резонанс будет наблюдаться при нулевом значении поля подмагничивания, и его величина будет квадратична по напряженности переменного магнитного поля.

В низкочастотной области спектра вследствие суперпозиции сигналов от линейного и нелинейного эффектов на временной зависимости сигнала возникает разность между амплитудами двух соседних максимумов, величина которой пропорциональна напряженности постоянного магнитного поля. Этот эффект можно использовать в качестве метода измерения постоянного магнитного поля в области полей, далеких от поля насыщения магнетика.

## 2. Теория эффекта

В качестве модели для теоретического описания эффекта, как и в [12], рассмотрим структуру в виде пластинки, состоящей из магнетика толщиной  ${}^m t$  и пьезоэлектрика толщиной  ${}^p t$ , поляризованного в направлении, перпендикулярном плоскости пластинки (ось  $Z$ ).

Будем считать, что направление постоянного магнитного поля и переменного магнитного поля с частотой  $\omega'$  совпадает с направлением поляризации. Уравнение движения для  $x$ -проекции вектора смещения среды  ${}^\alpha u_x$  с учетом неоднородности колебаний в направлении, перпендикулярном границе раздела, имеет вид

$${}^\alpha \rho \frac{\partial^2 {}^\alpha u_x}{\partial t^2} = \frac{\partial {}^\alpha T_{xx}}{\partial x} + \frac{\partial {}^\alpha T_{xz}}{\partial z}, \quad (1)$$

где индекс  $\alpha$  равен  $m$  для магнитоэлектрического и  $p$  для пьезоэлектрического слоя,  ${}^\alpha \rho$  — плотность феррита или пьезоэлектрика,  ${}^\alpha T_{ij}$  — тензор напряжений.

Полагая пластинку длинной и узкой, т.е. пренебрегая неоднородностями по ширине пластинки, с учетом того, что возникающие в магнитоэлектрической фазе колебания среды передаются в пьезоэлектрическую фазу посредством сдвиговых деформаций, уравнения для тензора деформаций магнитоэлектрической  ${}^m S_{ij}$  и пьезоэлектрической  ${}^p S_{ij}$  фаз и  $z$ -компоненты вектора электрической индукции запишем в виде

$${}^m S_{xx} = \frac{1}{mY} {}^m T_{xx} + g_{xx,z} (H_z)^2, \quad (2)$$

$${}^m S_{xz} = \frac{1}{mG} {}^m T_{xz}, \quad (3)$$

$${}^p S_{xx} = \frac{1}{pY} {}^p T_{xx} + d_{z,xx} E_z, \quad (4)$$

$${}^p S_{xz} = \frac{1}{pG} {}^p T_{xz}, \quad (5)$$

$$D_z = \varepsilon_{zz} E_z + d_{z,xx} {}^p T_{xx}. \quad (6)$$

Здесь введены обозначения  ${}^m Y, {}^m G, {}^p Y, {}^p G$  — модули Юнга и сдвига магнитоэлектрической и пьезоэлектрической фаз соответственно;  $g_{xx,z} = \delta \lambda_1 / (\delta (M_z)^2) \chi^2$  — магнитоэлектрический коэффициент;  $\lambda_1$  — магнитоэлектрическая деформация в направлении, перпендикулярном магнитному полю;  $\chi$  — магнитная восприимчивость;  $d_{z,xx}$  — пьезоэлектрический тензор;  $\varepsilon_{zz}$  — тензор диэлектрической проницаемости пьезоэлектрика;  $H_z = H_m \exp(i\omega' t)$  — напряженность переменного магнитного поля с частотой  $\omega'$ ;  $E_z$  —  $z$ -проекция вектора напряженности электрического поля в пьезоэлектрике.

Решение уравнения (1) представим в виде

$${}^\alpha u_x = {}^\alpha u(x, z) \exp(i\omega t), \quad (7)$$

где  $\omega = 2\omega'$  — частота механических колебаний.

Решая уравнение движения для  $x$ -проекции вектора смещения среды и подставляя полученное выражение в уравнение (6) с использованием условия разомкнутой цепи для разности потенциалов, возникающей на обкладках конденсатора, получим выражение

$$U(t) = \frac{{}^p Y d_{xx,z} g_{xx,z}}{\varepsilon_{zz} \Delta_a} \frac{{}^m Y {}^m t}{{}^m Y {}^m t \frac{\text{th}({}^m \kappa)}{{}^m \kappa} + {}^p Y {}^p t \frac{\text{tg}({}^p \kappa)}{{}^p \kappa}} \times \frac{\text{tg}(\kappa)}{\kappa} \frac{\text{th}({}^p \kappa)}{{}^p \kappa} {}^p t (H_z(t))^2. \quad (8)$$

Здесь введены следующие обозначения:

$$\Delta_a = 1 - K_p^2 \left( 1 - \frac{{}^p Y {}^p t}{{}^m Y {}^m t \frac{\text{th}({}^m \kappa)}{{}^m \kappa} + {}^p Y {}^p t \frac{\text{tg}({}^p \kappa)}{{}^p \kappa}} \frac{\text{tg}(\kappa)}{\kappa} \frac{\text{tg}({}^p \kappa)}{{}^p \kappa} \right),$$

$K_p^2 = \frac{{}^p Y (d_{xx,z})^2}{\varepsilon_{xx}}$  — квадрат коэффициента электромеханической связи;  ${}^m \kappa = {}^m \chi {}^m t$  и  ${}^p \kappa = {}^p \chi {}^p t$  — безразмерные

переменные;  ${}^m\chi^2 = 2(1 + \nu)(k^2 - \frac{\omega^2}{mV_L^2})$ ,  ${}^p\chi^2 = -2(1 + \nu) \times (k^2 - \frac{\omega^2}{pV_L^2})$  — переменные, определяющие неоднородность смещения среды вдоль оси  $Z$ ;  ${}^mV_L = \sqrt{{}^mY/{}^m\rho}$ ,  ${}^pV_L = \sqrt{{}^pY/{}^p\rho}$  — скорости продольных звуковых волн;  $\nu$  — коэффициент Пуассона, который предполагается одинаковым для магнитоэлектрической и пьезоэлектрической фаз;  $\kappa = kL/2$  — безразмерный параметр;  $k$  — волновое число. Дисперсионное соотношение, связывающее волновое число с угловой частотой, определяется исходя из условия совместности решения системы уравнений (1)–(5) и, согласно [12], определяется выражением

$${}^m\chi^m Y \operatorname{tg}({}^m\kappa) = {}^p\chi^p Y \operatorname{th}({}^p\kappa). \quad (9)$$

Уравнение (9) для тонких слоев значительно упрощается и переходит в выражение:

$$k = \sqrt{\frac{{}^m\rho^m t + {}^p\rho^p t}{{}^mY^m t + {}^pY^p t}} \omega. \quad (10)$$

### 3. Нелинейный МЭ-эффект в области электромеханического резонанса

Уравнение (8) описывает частотную зависимость МЭ-эффекта, которая определяется через зависимость волнового числа от частоты. Как следует из уравнения (8), на так называемых частотах антирезонанса, когда выполняется условие  $\Delta_a = 0$ , наблюдается пиковое увеличение эффекта. Следует отметить, что частоты антирезонанса находятся вблизи частот резонанса, которые определяются условием  $\kappa = (\pi/2)(2n - 1)$  или  $L = (\lambda/2)(2n - 1)$ , где  $\lambda$  — длина волны акустических колебаний,  $n = 1, 2, \dots$  — целое число. Тогда с учетом (10) частота первого или основного резонанса будет наблюдаться вблизи частоты, определяемой условием

$$f_{\text{res}} = \frac{1}{2L} \sqrt{\frac{{}^mY^m t + {}^pY^p t}{{}^m\rho^m t + {}^p\rho^p t}}. \quad (11)$$

Для экспериментального исследования эффекта использовались двухслойные прямоугольные структуры состава пермендюр–цирконат-титанат свинца (ЦТС). Длина пластинок  $L = 28$  mm, ширина  $W = 4.6$  mm. Толщина пьезоэлектрика  ${}^p t = 0.4$  mm, толщина пермендюра  ${}^m t = 0.2$  mm. Используя эти параметры структуры, величину модулей Юнга  ${}^m Y = 180$  GPa,  ${}^p Y = 67$  GPa и числовые значения плотности пермендюра  ${}^m \rho = 8.1 \cdot 10^3$  kg/m<sup>3</sup> и ЦТС  ${}^p \rho = 7.0 \cdot 10^3$  kg/m<sup>3</sup>, для частоты электромеханического резонанса, вычисленной по формуле (11), получаем значение порядка 70 kHz.

В экспериментах измерялась частотная зависимость напряжения, возникающего на обкладках конденсатора при помещении его в переменное магнитное поле, создаваемое катушками Гельмгольца. На рис. 1 представлена зависимость величины напряжения, возникающего на обкладках конденсатора, от частоты приложенного

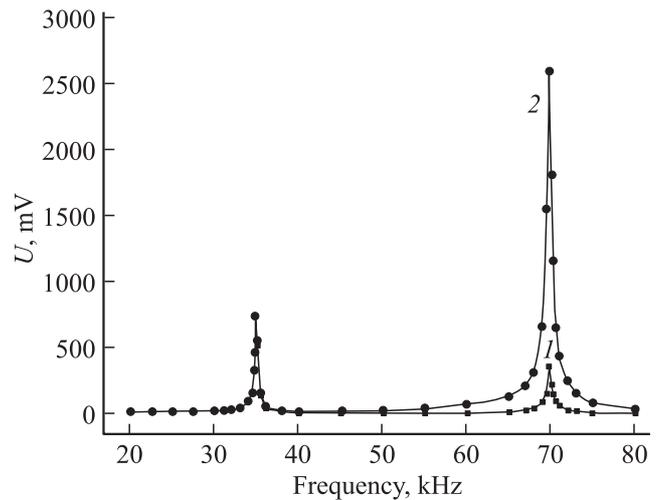


Рис. 1. Частотная зависимость МЭ-эффекта. Поле подмагничивания  $H_{\text{bias}} = 0$  (1) и 2 Oe (2).

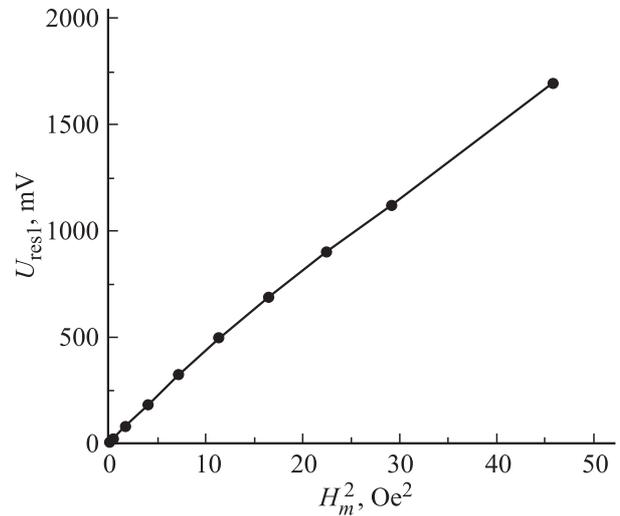


Рис. 2. Зависимость резонансного значения нелинейного МЭ-эффекта от квадрата напряженности переменного магнитного поля.

магнитного поля при нулевом поле подмагничивания и при поле подмагничивания  $H_{\text{bias}} = 2$  Oe.

На рисунке хорошо видны два резонанса: первый — на частоте 35 kHz, второй — на частоте 70 kHz. Величина второго резонанса возрастает при увеличении поля подмагничивания, и он обусловлен обычным электромеханическим резонансом, возникающим при линейном эффекте [7,8]. Наличие второго резонанса при нулевом поле подмагничивания, по всей видимости, обусловлено магнитным полем Земли. Частота первого резонанса вдвое меньше частоты электромеханического резонанса, и он связан с нелинейным МЭ-эффектом. Как следует из рис. 1, его величина не меняется при изменении поля подмагничивания. На рис. 2 представлена зависимость его резонансного значения от величины переменного магнитного поля. Как видно из рисунка, наблюдается

квадратичная зависимость величины эффекта от напряженности переменного магнитного поля. Таким образом, этот резонанс связан с нелинейным эффектом, и резонансное возбуждение электрического поля происходит посредством переменного магнитного поля с частотой, в 2 раза меньшей частоты электромеханического резонанса. Следует отметить, что поскольку резонансное значение МЭ-эффекта на частоте электромеханического резонанса возрастает с увеличением поля подмагничивания, при напряженности поля подмагничивания, в несколько раз превышающей величину переменного магнитного поля, нелинейный резонанс становится фактически незаметным на фоне резонанса, связанного с линейным эффектом.

#### 4. Нелинейный МЭ-эффект в низкочастотной области спектра

В низкочастотной области спектра выражение (8) можно значительно упростить, воспользовавшись тем обстоятельством, что безразмерные параметры  $\kappa$ ,  ${}^m\kappa$ ,  ${}^p\kappa \ll 1$ .

Переходя к пределу  $\kappa$ ,  ${}^m\kappa$ ,  ${}^p\kappa \rightarrow 0$  для низкочастотного значения нелинейного МЭ-эффекта, получим следующее выражение:

$$U^{\text{low}}(t) = \frac{{}^pY d_{xx,z} g_{xx,z}}{\varepsilon_{zz} \Delta_a^{\text{low}}} \frac{{}^mY m_t}{mY m_t + {}^pY p_t} p_t (H_z(t))^2, \quad (12)$$

где

$$\Delta_a^{\text{low}} = 1 - K_p^2 \left( 1 - \frac{{}^pY p_t}{mY m_t + {}^pY p_t} \right).$$

В том случае, если магнитное поле представляет собой сумму двух полей — переменного  $H(t) = H_m \exp(-i\omega t)$  с частотой  $\omega$  и постоянного  $H_0$ , временная развертка сигнала будет представлять собой функцию, образованную в результате сложения функций простого и удвоенного аргументов. Из (12) следует, что разность соседних максимумов напряжения, возникающая в результате сложения двух сигналов (одного — с частотой  $\omega$ , другого — с удвоенной частотой  $2\omega$ ), определяется следующим выражением:

$$\Delta U_m = C H_m H_0, \quad (13)$$

где  $C$  — постоянная для данной структуры величина, равная

$$C = 2 \frac{{}^pY d_{xx,z} g_{xx,z}}{{}^p\varepsilon_{zz} \Delta_a^{\text{low}}} \frac{{}^mY m_t}{mY m_t + {}^pY p_t} p_t. \quad (14)$$

Как следует из выражения (13), в полях, далеких от насыщения, возникающая разность потенциалов пропорциональна как величине постоянного магнитного поля, так и амплитуде переменного магнитного поля. Это свойство структуры можно использовать для измерения величины постоянного магнитного поля в области малых полей, когда имеет место квадратичная зависимость магнитострикции от напряженности магнитного поля.

Для экспериментальных исследований низкочастотного МЭ-эффекта использовалась трехслойная структура пермендюр—цирконат-титанат свинца (ЦТС 850)—пермендюр. Образцы имели прямоугольную форму. Длина образца  $L = 20 \text{ mm}$ , ширина  $W = 5 \text{ mm}$ , толщина пьезоэлектрика  ${}^p t = 0.35 \text{ mm}$ , толщина одной пластины пермендюра  ${}^m t = 0.18 \text{ mm}$ . Переменное магнитное поле частотой  $f = 1 \text{ kHz}$  создавалось катушкой Гельмгольца. Для определения величины переменного магнитного поля катушка Гельмгольца была вначале проградуирована. Входная разность потенциалов, приложенная к катушке Гельмгольца, и выходная разность потенциалов, возникающая на обкладках конденсатора, выводились на экран осциллографа. При помещении конденсатора в переменное магнитное поле на его обкладках возникала разность потенциалов, меняющаяся по гармоническому закону с удвоенной частотой. При изменении величины напряженности переменного магнитного поля до  $40 \text{ Oe}$  заметных искажений в выходном сигнале не обнаружено. При приложении постоянного магнитного поля для выходного сигнала наблюдается типичная картина, возникающая при сложении двух синфазных колебаний с одинарной и удвоенной частотой. При этом возникает разность между соседними амплитудными значениями напряжения. Величина разности между соседними максимумами напряжения увеличивается с ростом напряженности приложенного постоянного магнитного поля в полном соответствии с формулой (13). Были проведены измерения разности амплитудных значений соседних максимумов в зависимости от приложенного постоянного магнитного поля при различных значениях переменного магнитного поля. Результаты измерений представлены на рис. 3. Как видно из рисунка, в полном соответствии с теорией в области слабых полей возникающая разность потенциалов пропорциональна как величине постоянного магнитного поля, так и вели-

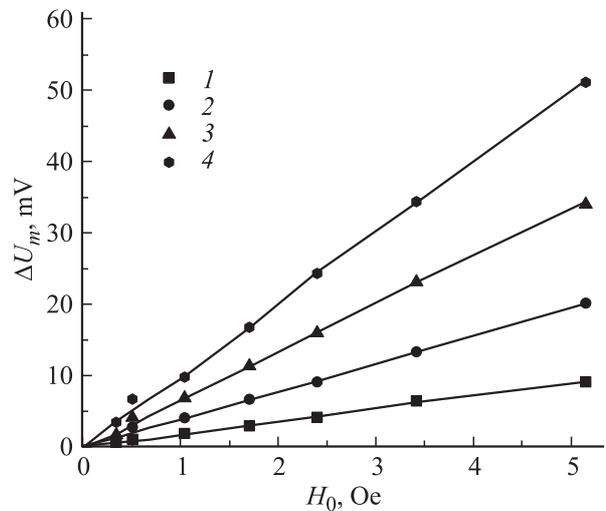


Рис. 3. Зависимость разности амплитудных значений напряжения  $\Delta U_m$  от величины постоянного магнитного поля  $H_0$  при значениях амплитуды переменного магнитного поля  $H_m = 10$  (1), 20 (2), 30 (3) и 40 Ое (4).

чине переменного магнитного поля. Чувствительность структуры линейно изменяется с увеличением напряженности переменного магнитного поля. Это свойство можно использовать для измерения величины постоянного магнитного поля, при этом величина переменного магнитного поля играет роль диапазона измерений. Для данной структуры максимальная чувствительность составила 10 мВ/Ое при величине переменного магнитного поля 40 Ое, что превосходит чувствительность традиционных полупроводниковых датчиков, основанных на эффекте Холла.

## 5. Заключение

В композиционных мультиферроиках на основе магнитострикционно-пьезоэлектрических структур наряду с линейным по переменному магнитному полю эффектом наблюдается также нелинейный МЭ-эффект. Этот эффект приводит к резонансному возбуждению колебаний электрического поля под действием переменного магнитного поля с частотой, в 2 раза меньшей частоты электромеханического резонанса. Величина нелинейного эффекта квадратична по напряженности переменного магнитного поля и в области слабых полей не зависит от поля подмагничивания.

В низкочастотной области спектра вследствие суперпозиции сигналов от линейного и нелинейного эффектов на временной зависимости сигнала возникает разность между амплитудами соседних максимумов. Величина этой разности пропорциональна напряженности постоянного магнитного поля. Этот эффект можно использовать в качестве метода измерения постоянного магнитного поля в области полей, далеких от поля насыщения магнетика.

## Список литературы

- [1] Г.А. Смоленский, И.Е. Чупис. УФН **137**, 415 (1982).
- [2] Ю.Н. Веневцев, В.В. Гагулин, В.Н. Любимов. Сегнетомагнетики. Наука, М. (1982). 224 с.
- [3] H. Schmid. *Ferroelectrics* **162**, 317 (1994).
- [4] А.И. Пятаков, А.К. Звездин. УФН **182**, 593 (2012).
- [5] C.W. Nan, M.I. Bichurin, S.X. Dong, D. Viehland, G. Srinivasan. *J. Appl. Phys.* **103**, 031 101 (2008).
- [6] J.Y. Zhai, Z.P. Xing, S.X. Dong, J.F. Li, D. Viehland. *Appl. Phys. Lett.* **88**, 062 510 (2006).
- [7] Д.А. Филиппов, М.И. Бичурин, В.М. Петров, В.М. Лалетин, Н.Н. Поддубная, G. Srinivasan. *Письма в ЖТФ* **30**, 1, 15 (2004).
- [8] Д.А. Филиппов, М.И. Бичурин, В.М. Петров, В.М. Лалетин, G. Srinivasan. *ФТТ* **46**, 1621 (2004).
- [9] G. Srinivasan, C.P. De Vreugd, V.M. Laletin, N. Paddubnaya, M.I. Bichurin, V.M. Petrov, D.A. Filippov. *Phys. Rev. B* **71**, 184 423 (2005).
- [10] Д.А. Филиппов, В.М. Лалетин, G. Srinivasan. *ЖТФ* **82**, 1, 47 (2012).
- [11] К.П. Белов. Магнитострикционные явления и их технические приложения. Наука, М. (1987). 160 с.
- [12] Д.А. Филиппов, В.М. Лалетин, Т.А. Galichyan. *ФТТ* **55**, 1728 (2013).