

УДК 537.6  
<https://doi.org/10.32362/2500-316X-2022-10-3-64-73>



НАУЧНАЯ СТАТЬЯ

## Магнитоэлектрический эффект в двухслойных полосковых и периодических гетероструктурах никель – цирконат-титанат свинца

Ф.А. Федулов<sup>@</sup>,  
Д.В. Савельев,  
Д.В. Чашин,  
В.И. Шишкин,  
Ю.К. Фетисов

МИРЭА – Российский технологический университет, Москва, 119454 Россия

<sup>@</sup> Автор для переписки, e-mail: [ostsilograf@ya.ru](mailto:ostsilograf@ya.ru)

### Резюме

**Цели.** Актуальной задачей при создании магнитоэлектрических (МЭ) устройств на основе композитных гетероструктур ферромагнетик-пьезоэлектрик является уменьшение их размеров, что позволит повысить рабочие частоты устройств и интегрировать их в современную электронику. Цель работы – исследование влияния размеров на характеристики МЭ эффектов в полосковых и периодических гетероструктурах никель – цирконат-титанат свинца, изготовленных методом электролитического осаждения.

**Методы.** Для изготовления образцов использовали диски цирконата-титаната свинца с Ag-электродами. На одну поверхность диска электролитически наносили слой Ni. Исследовали резонансную частоту МЭ эффекта, коэффициент МЭ преобразования на этой частоте и величину оптимального магнитного поля смещения для полученных образцов.

**Результаты.** Показано, что уменьшение размера в плоскости полосковых структур до ~1 мм приводит к росту частоты резонансного МЭ эффекта до ~1 МГц и одновременно к снижению эффективности МЭ преобразования. МЭ коэффициент для периодических гетероструктур с шириной Ni-полосок ~100 мкм и расстоянием между ними 20–100 мкм составляет ~1 В/(Э · см). Показано, что при увеличении угла  $\varphi$  между направлением постоянного поля  $H$  и осью Ni-полосок от 0° до 90° величина оптимального поля  $H_m$  возрастает в ~2.5 раза, а максимальная амплитуда напряжения  $u_{\max}(H_m)$  падает в 4 раза.

**Выводы.** В периодических структурах частота резонансного МЭ эффекта определяется размером подложки и может составлять единицы кГц, а эффективность преобразования полей зависит от ширины Ni-полосок и расстояния между ними. Обнаружена и объяснена анизотропия характеристик МЭ эффектов в исследованных гетероструктурах, возникающая из-за эффектов размагничивания. Анизотропия МЭ эффекта в периодических гетероструктурах может быть использована для создания датчиков постоянных магнитных полей, чувствительных к ориентации поля.

**Ключевые слова:** магнитоэлектрический эффект, магнитострикция, пьезоэлектрический эффект, анизотропия, датчик магнитного поля

• Поступила: 24.11.2021 • Доработана: 18.02.2022 • Принята к опубликованию: 18.04.2022

**Для цитирования:** Федулов Ф.А., Савельев Д.В., Чашин Д.В., Шишкин В.И., Фетисов Ю.К. Магнитоэлектрический эффект в двухслойных полосковых и периодических гетероструктурах никель – цирконат-титанат свинца. *Russ. Technol. J.* 2022;10(3):64–73. <https://doi.org/10.32362/2500-316X-2022-10-3-64-73>

**Прозрачность финансовой деятельности:** Авторы не имеют финансовой заинтересованности в представленных материалах или методах.

Авторы заявляют об отсутствии конфликта интересов.

## RESEARCH ARTICLE

# Magnetolectric effects in stripe- and periodic heterostructures based on nickel–lead zirconate titanate bilayers

Fedor A. Fedulov<sup>@</sup>,  
Dmitriy V. Saveliev,  
Dmitriy V. Chashin,  
Vladimir I. Shishkin,  
Yuri K. Fetisov

MIREA – Russian Technological University, Moscow, 119454 Russia  
<sup>@</sup> Corresponding author, e-mail: [ostsilograf@ya.ru](mailto:ostsilograf@ya.ru)

### Abstract

**Objectives.** A topical task in the design of magnetolectric (ME) devices based on composite ferromagnetic–piezoelectric heterostructures involves reducing their dimensions to increase their operating frequencies and optimize their integration in modern electronics. The study set out to investigate the influence of in-plane dimensions on the characteristics of ME effects in stripe and periodic nickel–lead zirconate titanate heterostructures manufactured via electrolytic deposition.

**Methods.** Lead zirconate titanate disks with Ag-electrodes were used for manufacturing the ME heterostructures; Ni was deposited on one Ag-electrode only.

**Results.** While a reduction in stripe size leads to an increase in the frequency of the resonant ME effect, it is followed by a decrease in ME conversion efficiency. The ME coefficient for the periodic heterostructures is about  $\sim 1$  V/(Oe·cm). By increasing the angle between the magnetic field  $H$  and the Ni-stripe axis from  $0^\circ$  to  $90^\circ$ , a 2.5-fold increase in the optimal field  $H_m$  and a 4-fold drop in the maximum amplitude of ME voltage  $u_{\max}(H_m)$  was achieved.

**Conclusions.** In periodic heterostructures, the frequency of the resonant ME effect is determined by the substrate's size, while ME conversion efficiency depends on the width of the Ni stripes and the distance between them. The observed anisotropy of the ME effects in the investigated heterostructures is explained in terms of demagnetization effects. In the future, the anisotropic ME effect in the periodic heterostructures could be used to develop magnetic field sensors that are sensitive to field orientation.

**Keywords:** magnetolectric effect, magnetostriction, piezoelectric effect, anisotropy, magnetic field sensor

• Submitted: 24.11.2021 • Revised: 18.02.2022 • Accepted: 18.04.2022

**For citation:** Fedulov F.A., Saveliev D.V., Chashin D.V., Shishkin V.I., Fetisov Y.K. Magnetoelectric effects in stripe- and periodic heterostructures based on nickel–lead zirconate titanate bilayers. *Russ. Technol. J.* 2022;10(3):64–73. <https://doi.org/10.32362/2500-316X-2022-10-3-64-73>

**Financial disclosure:** The authors have no a financial or property interest in any material or method mentioned.

The authors declare no conflicts of interest.

## ВВЕДЕНИЕ

В последние годы большое внимание ученых привлекает изучение магнитоэлектрических (МЭ) эффектов в композитных гетероструктурах, содержащих ферромагнитные (ФМ) и пьезоэлектрические (ПЭ) слои, и разработка устройств на их основе. Созданы прототипы высокочувствительных МЭ датчиков постоянных и переменных магнитных полей, электрически управляемых устройств обработки радиосигналов, автономных источников электрической энергии [1–3]. Установлено, что МЭ эффекты в ФМ-ПЭ структурах возникают в результате комбинации магнитострикции ФМ слоя и пьезоэлектричества в ПЭ слое из-за механической связи между слоями [4] и проявляются в генерации структурой переменного электрического напряжения  $u$  под действием переменного магнитного поля  $h$  (прямой эффект) или изменении намагниченности структуры  $m$  под действием переменного электрического поля  $e$  (обратный эффект). Показано, что эффективность МЭ преобразования полей возрастает на  $\sim 2$  порядка при совпадении частоты возбуждающего поля с частотой акустического резонанса структуры [5]. В настоящее время актуальными задачами являются уменьшение размеров МЭ элементов, что позволит повысить рабочие частоты устройств и интегрировать их в современную электронику и микросистемную технику, а также изучение взаимодействия МЭ элементов в составе пространственно-распределенных структур, которые предполагается использовать для измерений магнитных полей в биологии и медицине [6]. Ранее было экспериментально показано, что уменьшение размеров ФМ-ПЭ гетероструктур в плоскости до  $\sim 0.5$ – $1$  см приводит к повышению частоты акустического резонанса структуры  $f_0$  и снижению амплитуды генерируемого МЭ напряжения  $u(f_0)$  на этой частоте [7]. Кроме того, из-за эффектов размагничивания возрастает оптимальное магнитное поле смещения  $H_m$ , которое необходимо дополнительно прикладывать к структуре [8]. При использовании гетероструктур в виде длинных полосок анизотропия формы приводит к возникновению сильной анизотропии [9], что может найти применение для разработки датчиков постоянных магнитных полей, чувствительных к направлению поля [10]. Исследований характеристик МЭ эффектов в периодических структурах,

содержащих набор МЭ элементов, насколько известно авторам, до настоящего времени не проводили.

Целью данной работы явилось изучение характеристик МЭ эффектов в полосковых и периодических гетероструктурах с ФМ слоем из никеля (Ni) и ПЭ слоем из пьезокерамики цирконата-титаната свинца (ЦТС) миллиметровых и субмиллиметровых размеров в плоскости. Выбор материалов обусловлен возможностью использования технологии электроосаждения толстых слоев Ni, который обладает достаточно высокой магнитострикцией в малых магнитных полях. В первой части работы описан метод изготовления Ni-ЦТС гетероструктур в виде отдельных полосок и метод изготовления периодических структур в виде решетки из Ni-полосок на поверхности ЦТС-подложки, а также методики измерений. Вторая часть содержит результаты экспериментальных исследований МЭ характеристик отдельных Ni-ЦТС полосок с линейными размерами  $\sim 1$ – $15$  мм. В третьей части работы приведены МЭ характеристики Ni-ЦТС гетероструктур с Ni-решетками с периодами  $0.12$ – $0.2$  мм, включая частотные, полевые и амплитудные зависимости. Развита теория, объясняющая возникновение сильной анизотропии МЭ эффекта в периодических структурах и учитывающая магнитное взаимодействие между отдельными полосками решетки. В заключении сформулированы основные выводы и рекомендации работы.

## МАТЕРИАЛЫ И МЕТОДЫ

Для экспериментального исследования влияния линейных размеров МЭ структуры на характеристики прямого резонансного МЭ эффекта были изготовлены структуры двух типов. Первый тип представлял собой двухслойные композитные гетероструктуры со слоями из пьезоэлектрической керамики цирконата-титаната свинца  $\text{PbZr}_{0.52}\text{Ti}_{0.48}\text{O}_3$  (ЦТС) и Ni, схематический вид и фотографии которых представлен на рис. 1а и 1б соответственно. Пьезокерамика ЦТС была выбрана как распространенный, изотропный и легко обрабатываемый материал. Пьезомодуль керамики равнялся  $d_{31} \approx 175$  пКл/м, а диэлектрическая проницаемость  $\epsilon \approx 1700$ . Слои ферромагнитного Ni обладают высокой магнитострикцией  $\lambda_S = -30 \cdot 10^{-6}$  и насыщаются в малых магнитных полях  $H_S \approx 1$  кЭ. Для изготовления образцов использовали коммерчески доступные ЦТС-диски диаметром  $25$  мм и толщиной  $a_p = 200$  мкм

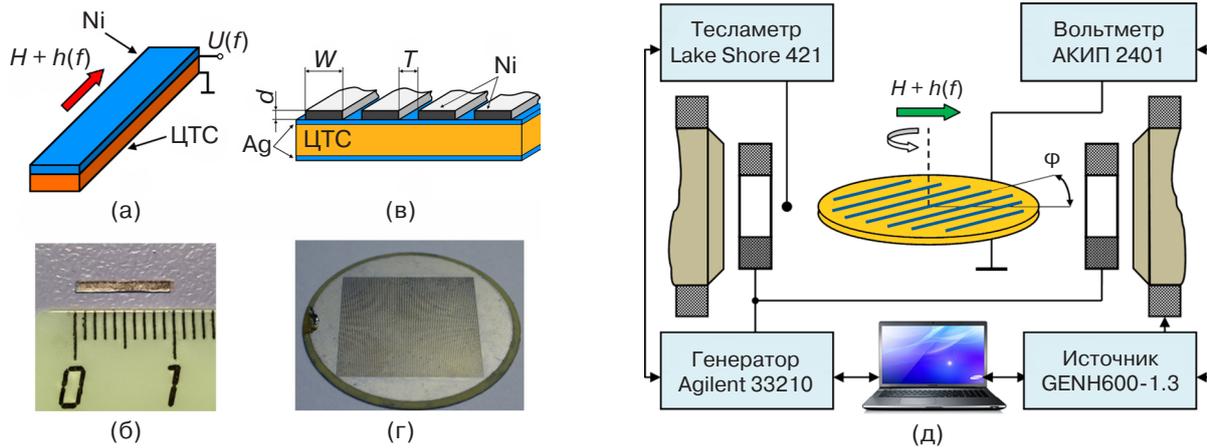


Рис. 1. Внешний вид и схематическое изображение исследуемых композитных Ni-ЦТС гетероструктур (а) – (г) и блок-схема измерительной установки (д)

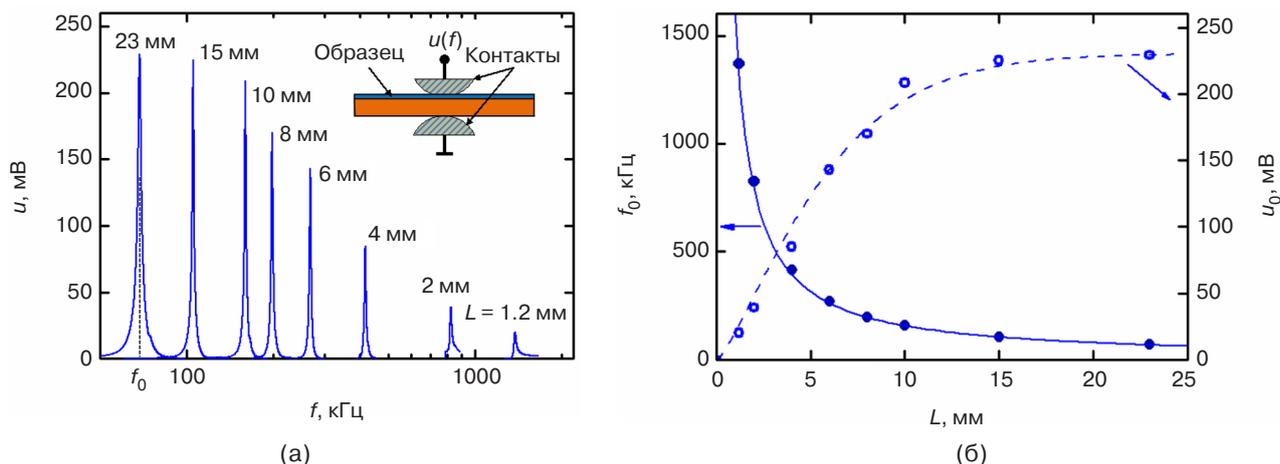
с Ag-электродами толщиной по  $\sim 2$  мкм (НИИ Элпа, Москва, Россия). На одну поверхность диска методом электролитического осаждения наносили слой Ni толщиной  $a_m \approx 10$  мкм из водного раствора солей  $NiCl_2$  и  $NiSO_4$  [11]. Скорость осаждения Ni при плотности тока  $1 \text{ A/cm}^2$  составляла 1 мкм/мин. Из центральной части диска вырезали полоски шириной по 1 мм. Затем из полосок были изготовлены структуры длиной  $L = 1.2, 2, 4, 6, 8, 10, 15$  и 23 мм. Метод электролитического осаждения позволил изготовить монолитные структуры с изотропными в плоскости свойствами и хорошей механической связью между слоями.

МЭ структуры второго типа представляли собой решетки из параллельных Ni-полосок, нанесенные на поверхность ЦТС-подложки. В качестве ЦТС-подложки использовали те же диски диаметром 25 мм и толщиной  $a_p = 200$  мкм с Ag-электродами толщиной 2 мкм на поверхностях. Решетку из Ni-полосок изготавливали следующим методом. Оба электрода ЦТС-диска покрывали слоем положительного фоторезиста марки CRC Kontakt Chemie Positiv 20/200 (Бельгия) толщиной  $\sim 2$  мкм. Одну из поверхностей экспонировали через фотомаску размером  $16 \text{ mm} \times 16 \text{ mm}$  в виде параллельных полосок ультрафиолетовым излучением в течение 60 с. Затем удаляли засвеченные участки фоторезиста водным раствором гидроксида натрия с концентрацией 6 г/л. После этого на свободные участки Ag-электрода электролитически осаждали слой Ni толщиной  $a_m \approx 10$  мкм. Поперечное сечение изготовленных образцов схематически изображено на рис. 1в, а внешний вид одного из образцов – на рис. 1г. Таким методом были изготовлены несколько структур с решеткой из Ni-полосок шириной  $w = 100$  мкм и расстоянием между полосками  $T = 20, 50$  и 100 мкм. Кроме того, для сравнения был изготовлен образец, одна из поверхностей которого была покрыта сплошным слоем ( $T = 0$ ) Ni толщиной  $a_m \approx 10$  мкм. Измеренная на этом образце намагниченность насыщения Ni составляла

$M_S = 5900$  Гс, а магнитострикция насыщения достигала  $\lambda_S = -30 \cdot 10^{-6}$  в поле насыщения  $H_S \approx 1$  кЭ.

Блок-схема установки для исследования МЭ эффектов показана на рис. 1д. Образцы помещали между катушками Гельмгольца радиусом 15 см, подключенными к генератору Agilent 33210A (Agilent Technologies, США). Катушки генерировали переменное возбуждающее магнитное поле  $h \cos(2\pi ft)$  с частотой  $f = 1$  кГц – 2 МГц и амплитудой до  $h = 4$  Э. Постоянное магнитное поле  $H = 0-2$  кЭ создавали с помощью электромагнита с диаметром полюсов 50 мм, подключенного к блоку питания TDK GENH600-1.3 (TDK-Lambda Corporation, Германия). Поле  $H$  измеряли с помощью тесламетра Lake Shore 421 (Lake Shore Cryotronics, Вествил, Огайо, США). Поля  $h$  и  $H$  были приложены в плоскости структуры и параллельно друг другу. При исследовании анизотропии МЭ эффекта гетероструктуру с Ni-решеткой вращали вокруг вертикальной оси, изменяя угол  $\phi$  между полями и осью Ni-полосок. Напряжение  $u$ , генерируемое вследствие МЭ эффекта между электродами ЦТС-диска, измеряли с помощью вольтметра АКПП 2401 с входным сопротивлением 10 МΩ. Регистрировали зависимости МЭ напряжения от частоты возбуждающего поля  $f$  и напряженности поля смещения  $H$  при разных ориентациях структуры (угол  $\phi$ ). Установка работала в автоматическом режиме под управлением специализированной программы в среде LabVIEW<sup>1</sup>.

<sup>1</sup> Среда создания приложений для задач сбора, обработки, визуализации информации, полученной от приборов, лабораторных установок, управления технологическими процессами и устройствами. Разработана компанией National Instruments, США. URL: <https://www.ni.com/>, дата обращения: 22.11.2021. [The environment for creating applications for the collection, processing, and visualization of information received from instruments, laboratory facilities, process control and devices, was developed by National Instruments, USA. <https://www.ni.com/>. Accessed November 22, 2021.]



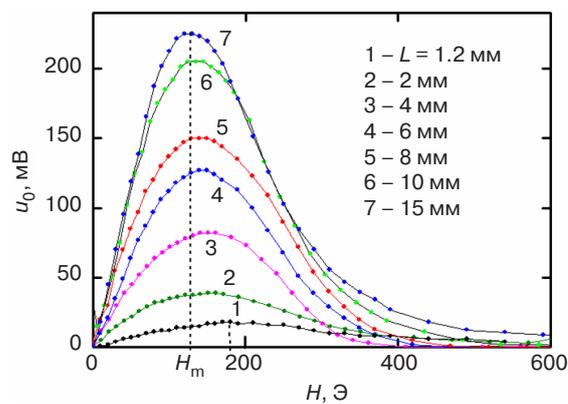
**Рис. 2.** (а) зависимости амплитуды МЭ напряжения  $u$  от частоты  $f$  возбуждающего магнитного поля при амплитуде поля  $h = 1.3$  Э для Ni-ЦТС полосок разной длины  $L$ . На вставке схематически изображен метод крепления образцов; (б) зависимости резонансной частоты  $f_0$  и напряжения  $u_0$ , генерируемого на частоте  $f_0$ , от длины Ni-ЦТС полоски  $L$ . Точки – экспериментальные данные, сплошная линия – расчет по формуле (1), штриховая линия – аппроксимация

Магнитострикцию ФМ слоя структуры измеряли с помощью тензодатчика, наклеенного на поверхность пленки Ni, а кривые намагничивания пленки Ni – с помощью вибрационного магнетометра Lake Shore 7407 (Lake Shore Cryotronics, Вествил, Огайо, США).

### МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ В ПОЛОСКАХ Ni-ЦТС

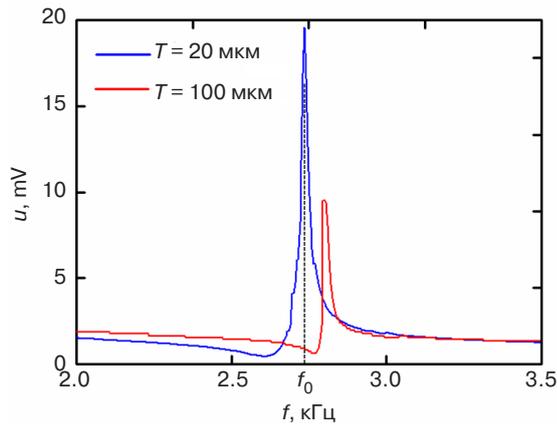
На первом этапе был исследован линейный МЭ эффект в двухслойных Ni-ЦТС гетероструктурах в виде полосок разной длины  $L$ . На рис. 2 приведены измеренные зависимости амплитуды МЭ напряжения  $u$  от частоты  $f$  возбуждающего магнитного поля с амплитудой  $h = 1.3$  Э для структур различной  $L$ . Для каждого образца измерения проводили в оптимальном постоянном поле  $H_m$ , направленном вдоль оси полоски, при котором МЭ преобразование наиболее эффективно. Видно, что с уменьшением  $L$  от 23 мм до 1.2 мм резонансная частота  $f_0$  увеличивалась от 68.7 кГц до 1380 кГц, при этом амплитуда сигнала на резонансной частоте падала в ~12 раз. Добротность резонансов  $Q = f_0/\Delta f$  (где  $\Delta f$  – полоса пропускания по уровню 0.7) составляла  $Q \approx 100$  для структур с  $L = 4$ –23 мм и затем падала до  $Q \approx 67$  и  $Q \approx 150$  при уменьшении  $L$  до 2 мм и 1.2 мм соответственно. На рис. 2б представлена зависимость резонансной частоты  $f_0$  и МЭ напряжения на данной частоте  $u_0$  от длины структуры  $L$ . Для образца длиной  $L = 1.2$  мм резонансная частота  $f_0 = 1380$  кГц почти в 5 раз выше, чем для структуры длиной 5 мм, описанной в [12]. Амплитуда МЭ напряжения оставалась постоянной  $u_0 \approx 230$  мВ для структур длиной  $L = 25$ –10 мм, а затем примерно линейно падала до  $u_0 \approx 19$  мВ при уменьшении  $L$  до 1.2 мм.

На рис. 3 изображены зависимости МЭ напряжения  $u_0$  от постоянного магнитного поля  $H$  для Ni-ЦТС полосок разной длины  $L$ . Форма зависимостей типична для линейного МЭ эффекта: на начальном участке  $u_0$  линейно возрастает с увеличением  $H$ , затем достигает максимума при  $H_m$ , своем для каждого образца, и плавно спадает до нуля при насыщении ФМ слоя. С уменьшением длины полоски поле  $H_m$  смещалось в область больших полей, а амплитуда напряжения  $u_0$  при  $H_m$  падала в ~12 раз.



**Рис. 3.** Зависимости МЭ напряжения  $u_0$  от постоянного магнитного поля  $H$  при  $h = 1.3$  Э для структур различной длины  $L$ . Поле  $H_m$  показано только для полоски длиной 15 мм

Наиболее важными характеристиками МЭ эффекта в гетероструктурах являются резонансная частота  $f_0$ , коэффициент МЭ преобразования на этой частоте  $\alpha_E = u(f_0)/(a_p h)$  и величина оптимального магнитного поля смещения  $H_m$ . Частоту резонанса для исследуемых структур можно оценить по формуле для частоты основной моды акустических колебаний свободного стержня  $f_0 = (1/2L)\sqrt{Y/\rho}$  [13]. Эффективные

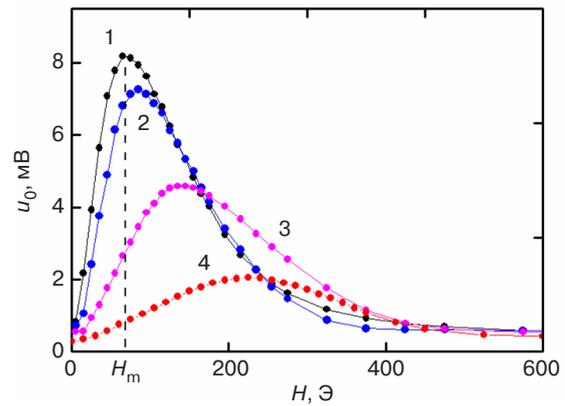


**Рис. 4.** Зависимость МЭ напряжения  $u$  от частоты  $f$  возбуждающего поля для периодических Ni-ЦТС гетероструктур с расстоянием между Ni-полосками 20 мкм и 100 мкм при поле  $H = 90$  Э, направленном вдоль Ni-полосок

значения модуля Юнга  $Y$  и плотности  $\rho$  для Ni-ЦТС структуры с двумя Ag-электродами находятся, как  $Y = \sum Y_k a_k / \sum a_k$  и  $\rho = \sum \rho_k a_k / \sum a_k$ , где  $Y_k$ ,  $\rho_k$  и  $a_k$  – модуль Юнга, плотность и толщина соответствующего слоя структуры соответственно. Подставляя в формулу значения параметров слоев ( $Y_m = 21.5 \cdot 10^{10}$  Н/м<sup>2</sup>,  $Y_p = 7 \cdot 10^{10}$  Н/м<sup>2</sup>,  $Y_{Ag} = 7.9 \cdot 10^{10}$  Н/м<sup>2</sup>;  $\rho_m = 8.9 \cdot 10^3$  кг/м<sup>3</sup>,  $\rho_p = 7.7 \cdot 10^3$  кг/м<sup>3</sup>,  $\rho_{Ag} = 10.5 \cdot 10^3$  кг/м<sup>3</sup>;  $a_m = 10$  мкм,  $a_p = 200$  мкм,  $a_{Ag} = 2$  мкм), получаем зависимость частоты резонанса от длины образца  $f_0 = 1570/L$  кГц, где  $L$  выражено в миллиметрах. Рассчитанная зависимость, изображенная на рис. 2б сплошной линией, хорошо описывает данные измерений. Отметим, что частота  $f_0$  незначительно изменялась (<1%) при перестройке магнитного поля  $H$  из-за изменения модуля Юнга ФМ слоя структуры [14]. Максимальная величина МЭ коэффициента для Ni-ЦТС полосок длиной 15 мм составляла  $\alpha_E \approx 8.8$  В/(Э · см). Увеличение оптимального поля  $H_m$  от  $\sim 120$  Э до  $\sim 180$  Э при уменьшении длины гетероструктуры от 15 мм до 1.2 мм объясняется эффектом размагничивания [2]. Падение амплитуды МЭ напряжения с уменьшением длины  $L$  (и повышением частоты  $f_0$ ) структуры обусловлено, в основном, ростом потерь в ЦТС слое из-за увеличения частоты резонанса. К падению напряжения может приводить также уменьшение акустической добротности  $Q$  и пьезомодуля  $d_{31}$  ЦТС-слоя с ростом частоты резонанса.

### МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ В ПЕРИОДИЧЕСКИХ ГЕТЕРОСТРУКТУРАХ Ni-ЦТС

На втором этапе были исследованы характеристики МЭ эффекта в периодических гетероструктурах с Ni-решетками. На рис. 4 в качестве примера



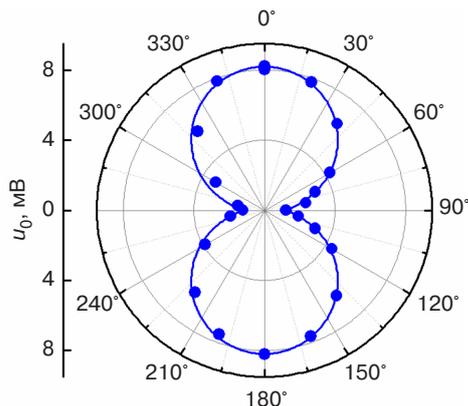
**Рис. 5.** Зависимость напряжения  $u_0$  от поля  $H$  для периодической Ni-ЦТС структуры с  $T = 100$  мкм при разных ориентациях поля  $H$ : 1 –  $\phi = 0^\circ$ , 2 –  $30^\circ$ , 3 –  $60^\circ$ , 4 –  $90^\circ$

показаны зависимости МЭ напряжения  $u$  от частоты  $f$  возбуждающего поля для структур с расстоянием между Ni-полосками  $T = 20$  мкм и  $T = 100$  мкм при поле  $h = 1$  Э и постоянном поле  $H = 90$  Э, направленном вдоль Ni-полосок. Резонансный пик вблизи частоты  $f_0 \approx 2.74$  кГц с добротностью  $Q \approx 150$  по уровню 0.7 соответствует, как показано далее, возбуждению низшей моды изгибных колебаний структуры. Видно, что высота пика  $u_0$  уменьшается в несколько раз, а частота  $f_0$  незначительно растет с увеличением расстояния между Ni-полосками. Величина МЭ коэффициента для периодической структуры с  $T = 20$  мкм на частоте резонанса составляла  $\alpha_E \approx 1.0$  В/(Э · см), т.е. была того же порядка, что и в структурах со сплошным слоем Ni [11].

На рис. 5 для структуры с  $T = 100$  мкм продемонстрирована трансформация зависимости  $u_0(H)$  при вращении направления поля  $H$  в плоскости структуры. Видно, что при увеличении угла  $\phi$  между полем  $H$  и осью Ni-полосок от нуля до  $90^\circ$  величина  $H_m$  возрастает от  $\sim 70$  Э до  $\sim 230$  Э, а максимальная амплитуда напряжения  $u_{\max}(H_m)$  при этом монотонно падает от  $\sim 8$  мВ до  $\sim 2$  мВ.

На рис. 6 приведены угловые зависимости МЭ напряжения  $u$  для структуры с  $T = 100$  мкм, построенные с использованием данных, аналогичных показанным на рис. 5. Кривая демонстрирует сильную анизотропию линейного МЭ эффекта в структуре. Видно, что МЭ напряжение достигает максимума при намагничивании структуры вдоль Ni-полосок (при  $\phi = 0^\circ$ ) и падает в  $\sim 4$  раза при намагничивании поперек полосок (при  $\phi = 90^\circ$ ).

Для выяснения природы резонансного пика, показанного на рис. 4, методом Хладни была визуализирована пространственная структура моды колебаний Ni-ЦТС диска. Для этого на поверхность



**Рис. 6.** Зависимость напряжения  $u_0$  для периодической Ni-ЦТС структуры с  $T = 100$  мкм от угла  $\varphi$  ориентации поля  $H$  в плоскости. Точки – эксперимент, сплошная линия – расчет

Ni-ЦТС диска, возбуждаемого на частоте резонанса  $f_0 \approx 2.74$  кГц, был насыпан тонкий слой порошка  $\text{TiO}_2$  с размерами частиц  $\sim 2\text{--}3$  мкм. Как видно на рис. 7а, порошок собрался вблизи линии нулевого вертикального смещения, которая имеет форму искаженной окружности. Распределение деформаций изгибной моды колебаний диска было рассчитано также с использованием программы *COMSOL Multiphysics*<sup>2</sup> (COMSOL Group, Швеция). Из рис. 7б видно, что основная мода колебаний имеет одну узловую окружность. Рассчитанная частота этой моды  $f_{\text{cal}} = 2.24$  кГц

<sup>2</sup> Программное обеспечение для моделирования конструкции, устройств и процессов в инженерных, производственных и научных исследованиях. [The software for modeling constructions, devices, and processes in engineering, production, and scientific applications.]

удовлетворительно совпадает с измеренной частотой 2.74 кГц. Разница рассчитанной и измеренной частот и отличие формы узловой диаметра от окружности могут быть связаны с влиянием места крепления диска.

### ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

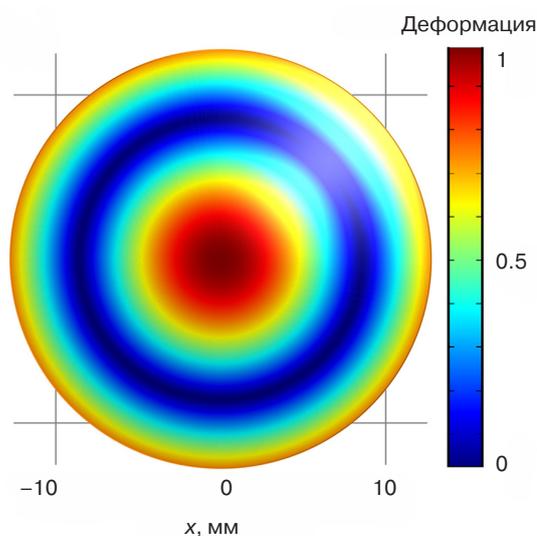
Для объяснения характеристик МЭ эффектов в полосках и периодических Ni-ЦТС гетероструктурах используем теорию низкочастотного линейного МЭ эффекта в планарных ФМ-ПЭ структурах [15]. Величина МЭ напряжения, генерируемого структурой на частоте резонанса, описывается упрощенной формулой

$$u(H) \approx AQ \frac{d_{31} \lambda^{(1)}}{\varepsilon} h, \quad (1)$$

где  $A$  – постоянный коэффициент, зависящий только от размеров и механических параметров слоев;  $Q$  – добротность акустического резонанса;  $d_{31}$  и  $\varepsilon$  – пьезомодуль и диэлектрическая проницаемость ПЭ слоя;  $\lambda^{(1)}(H) = \partial \lambda / \partial H|_H$  – пьезомагнитный коэффициент;  $\lambda(H)$  – полевая зависимость магнитострикции ФМ слоя;  $h$  – амплитуда возбуждающего магнитного поля. На частоте резонанса амплитуда напряжения возрастает в  $Q$  раз, что и наблюдали экспериментально. Вид зависимости  $u_0(H)$  при линейном МЭ эффекте (см. рис. 3 и рис. 5) объясняется полевой зависимостью пьезомагнитного коэффициента  $\lambda^{(1)}(H)$ . Напряжение достигает максимума при оптимальном поле  $H_m$ , соответствующем максимуму  $\lambda^{(1)}$ , а затем падает из-за уменьшения пьезомагнитного коэффициента по мере насыщения ФМ слоя. Амплитуда генерируемого напряжения  $u_0$  линейно растет с увеличением поля  $h$ .



(а)



(б)

**Рис. 7.** (а) Фигура Хладни для моды колебаний Ni-ЦТС диска на частоте резонанса; (б) распределение деформаций изгибной моды колебаний Ni-ЦТС диска, рассчитанное в *COMSOL Multiphysics*

Анизотропия характеристик линейного МЭ эффекта в описанных структурах возникает из-за эффектов размагничивания. Рассмотрим вначале влияние размагничивания на МЭ эффект в одной Ni-полоске. Известно, что в ФМ образце эллипсоидальной формы магнитное поле внутри ферромагнетика  $H_{in}$  связано с внешним полем  $H$  соотношением [16]

$$H_{in} = H - NM(H_{in}), \quad (2)$$

где  $N$  – размагничивающий фактор вдоль главной оси эллипсоида;  $M$  – намагниченность ферромагнетика.

Для Ni справедливо соотношение  $M = \chi H_{in} \approx \mu H_{in}$ , поскольку магнитная проницаемость  $\mu = \chi + 1$  и магнитная восприимчивость  $\chi$  много больше единицы.

Тогда из (2) получаем соотношение

$$H_{in} \approx \frac{H}{1 + N\mu}, \quad (3)$$

т.е. из-за размагничивания поле  $H_{in}$  внутри ферромагнетика уменьшается в  $1 + N\mu$  раз.

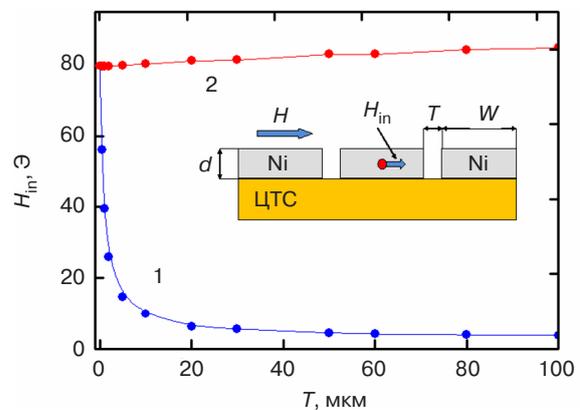
Для полоски Ni прямоугольной формы длиной  $\sim 20$  мкм, шириной 100 мкм и толщиной 10 мкм расчет [17] дает размагничивающие факторы  $N_1 \approx 0.000002$  и  $N_2 \approx 0.67$  при ориентации поля  $H$  в плоскости вдоль и поперек к оси полоски соответственно. Разложим поле  $H$  на две составляющие  $H_1 = H \cos \varphi$ , параллельную оси полоски, и  $H_2 = H \sin \varphi$ , перпендикулярную оси полоски. Соотношение (3) применимо для каждой составляющей в отдельности. Полное поле внутри полоски  $H_{in} = \sqrt{H_{in1}^2 + H_{in2}^2}$ . Тогда, при касательном намагничивании ФМ полоски под углом  $\varphi$  к ее оси, поле внутри полоски можно найти как

$$H_{in}(H, \varphi) = H \sqrt{\frac{\cos^2 \varphi}{(1 + N_1\mu)^2} + \frac{\sin^2 \varphi}{(1 + N_2\mu)^2}}. \quad (4)$$

Дифференцируя (4) по магнитному полю, находим зависимость пьезомагнитного коэффициента  $\lambda^{(1)}(H, \varphi)$  от величины поля  $H$  и угла  $\varphi$ , задающего ориентацию поля относительно оси Ni-полосок структуры. Необходимо также учесть, что размагничивание аналогичным образом влияет и на величину поля возбуждения  $h_{in}$  внутри ФМ слоя. Расчеты показали, что с увеличением угла  $\varphi$  оптимальное магнитное поле смещения  $H_m$  растет, а величина генерируемого при этом поле МЭ напряжения  $u_0(H_m)$  падает, что полностью согласуется с данными измерений, приведенными на рис. 5. Угловая зависимость амплитуды МЭ напряжения  $u_0(\varphi)$ , рассчитанная описанным методом с использованием выражений (1) и (4), соответствующих эксперименту значениям параметров и подгоночном коэффициенте  $A_1 = 4.8 \cdot 10^{15}$  В<sup>2</sup>/м, изображена

сплошной линией на рис. 6. Видно, что предлагаемая теория хорошо описывает результаты эксперимента. Таким образом, сравнение экспериментальных данных с результатами расчетов позволяет сделать вывод, что учет размагничивания в одиночной Ni-полоске дает возможность качественно хорошо описать анизотропию линейного МЭ эффекта в периодической Ni-ЦТС гетероструктуре. Величина анизотропии МЭ эффекта в структурах с Ni-слоем в виде решетки зависит также и от расстояния между соседними полосками. В работах [18–20] показано, что диполь-дипольное взаимодействие между соседними ФМ-полосками приводит к ослаблению размагничивания с последующим увеличением внутреннего поля в ферромагнетике.

В качестве демонстрации было проведено конечно-элементное моделирование в программе *COMSOL Multiphysics*. Вычисления выполнены для решетки размером в плоскости 16 мм  $\times$  16 мм, состоящей из Ni-полосок шириной  $W = 100$  мкм, длиной  $L = 16$  мм и толщиной  $a_m = 10$  мкм. Расстояние между полосками изменяли от  $T = 0.5$  мкм до  $T = 100$  мкм. Величину внешнего магнитного поля и относительную магнитную проницаемость Ni брали равными  $H = 90$  Э и  $\mu = 350$  соответственно. Внутреннее магнитное поле  $H_{in}$  рассчитывали в середине центральной Ni-полоски решетки. На рис. 8 изображена рассчитанная зависимость поля  $H_{in}$  от расстояния  $T$  между полосками при намагничивании решетки перпендикулярно к оси полосок (кривая 1).



**Рис. 8.** Зависимость внутреннего поля  $H_{in}$  в середине центральной Ni-полоски от расстояния между полосками решетки, намагниченной в поле  $H = 90$  Э поперек (1) и вдоль (2) оси Ni-полосок. На вставке схематично изображено поперечное сечение Ni-решетки на ЦТС-подложке

При больших расстояниях  $T \gg a_m$ , когда каждую Ni-полоску можно считать изолированной от других, поле внутри центральной полоски равно  $H_{in} \approx H/(1 + \mu N_2) \approx 0.4$  Э, т.е. внешнее поле ослабляется вследствие размагничивания. Из рис. 8 видно, что диполь-дипольное взаимодействие начинает проявляться при  $T \sim a_m = 10$  мкм. С уменьшением  $T$  до нуля, т.е. при переходе к сплошному слою Ni, внутреннее

поле становится равным  $H_{in} \approx H/(1 + \mu N_3) \approx 79$  Э, где  $N_3 \approx 0.0004$  – размагничивающий фактор для сплошного Ni-слоя размерами в плоскости 16 мм × 16 мм и толщиной 10 мкм [17]. При намагничивании структуры вдоль Ni-полосок (кривая 2 на рис. 8) внутреннее поле уменьшается незначительно, от  $H_{in} \approx H/(1 + \mu N_1) \approx 89.6$  Э (изолированная Ni-полоска) до  $H_{in} \approx H/(1 + \mu N_3) \approx 79$  Э (сплошной Ni-слой). Поскольку амплитуда МЭ напряжения зависит от внутреннего поля в ФМ слое, то уменьшение расстояния между Ni-полосками приводит к уменьшению анизотропии линейного МЭ эффекта. Таким образом, меняя расстояние между ФМ-полосками в решетке, можно управлять величиной внутреннего поля в полосках и, как следствие, анизотропией МЭ эффекта в периодических гетероструктурах. Описанный анизотропный МЭ эффект в периодических гетероструктурах, содержащих ФМ слой в виде решетки, может быть использован для создания магнитометров, чувствительных к ориентации магнитного поля [21, 22].

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе показано, что в полосках на основе гетероструктур Ni-ЦТС частота резонансного МЭ эффекта и коэффициент МЭ преобразования определяются размерами полоски в плоскости. С уменьшением длины полоски от 23 мм до ~1 мм частота резонанса возрастает до ~1.4 МГц, а коэффициент МЭ преобразования при этом падает от  $\alpha_E \approx 8.8$  В/(Э · см) практически до нуля. В периодических гетероструктурах в виде решетки из Ni-полосок на поверхности ЦТС-подложки частота резонансного МЭ эффекта определяется размерами подложки в плоскости, а коэффициент МЭ преобразования зависит от ширины

Ni-полосок и расстояния между полосками. МЭ коэффициент для периодических гетероструктур с шириной Ni-полосок ~100 мкм и расстоянием между ними 20–100 мкм равняется ~1 В/(Э · см). Теория, учитывающая эффекты размагничивания, хорошо объясняет анизотропию МЭ эффекта при изменении ориентации постоянного поля смещения относительно оси полосок. Анизотропия МЭ эффекта в периодических гетероструктурах может быть использована для создания датчиков постоянных магнитных полей, чувствительных к ориентации поля.

### БЛАГОДАРНОСТИ

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (грант № 19-79-10128). Работы по изготовлению образцов выполнены при финансовой поддержке Совета по грантам Президента Российской Федерации. Часть измерений проводили на оборудовании Центра коллективного пользования РТУ МИРЭА.

#### Вклад авторов

**Ф.А. Федулов** – проведение измерений, изготовление образцов.

**Д.В. Савельев** – проведение измерений

**Д.В. Чашин** – разработка методики исследования.

**В.И. Шишкин** – обработка результатов.

**Ю.К. Фетисов** – концептуализация исследования.

#### Authors' contributions

**F.A. Fedulov** – conducting measurements, manufacturing samples.

**D.V. Saveliev** – conducting measurements.

**D.V. Chashin** – research methodology design.

**V.I. Shishkin** – processing of results.

**Y.K. Fetisov** – research concept development.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ / REFERENCES

- Bichurin M., Petrov R., Sokolov O., Leontiev V., Kuts V., Kiselev D., Wang Y. Magnetoelectric magnetic field sensors: A review. *Sensors*. 2021;21(18):6322. <https://doi.org/10.3390/s21186322>
- Gutierrez J., Lasheras A., Martins P., Pereira N., Barandiaran J.M., Lanseros-Mendes S. Metallic glass/PVDF magnetoelectric laminates for resonant sensors and actuators: A review. *Sensors*. 2017;17(6):1251. <https://doi.org/10.3390/s17061251>
- Tu C., Chu Z.-Q., Spetzler B., et al. Mechanical-resonance-enhanced thin-film magnetoelectric heterostructures for magnetometers, mechanical antennas, tunable RF inductors, and filters. *Materials*. 2019;12(14):2259. <https://doi.org/10.3390/ma12142259>
- Suchtelen van J. Product properties: a new application of composite materials. *Philips Res. Rep.* 1972;27:28–37.
- Bichurin M., Filippov D., Petrov V., Laletsin V., Paddubnaya N., Srinivasan G. Resonance magnetoelectric effects in layered magneto-strictive-piezoelectric composites. *Phys. Rev. B*. 2003;68(13):10–13. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.68.132408>
- Kopyl S., Surmenev R., Surmeneva M., Fetisov Y., Kholkin A. Magnetoelectric effect: principles and applications in biology and medicine – a review. *Mater. Today Bio*. 2021;12:100149. <https://doi.org/10.1016/j.mtbio.2021.100149>
- Li L., Yao X., Gan L., Zhang X., Zhou J.-P. Magnetoelectric anisotropy in laminate composite for detecting magnetic field. *Func. Mater. Lett.* 2018;12(01):1850098. <https://doi.org/10.1142/S1793604718500984>
- Vopsariou M., Stewart M., Fry T., Cain M., Srinivasan G. Tuning the magnetoelectric effect in multiferroic composites via crystallographic texture. *IEEE Trans. Magn.* 2008;44(11):3017–3020. <https://doi.org/10.1109/TMAG.2008.2001649>
- Buridin D.A., Ekonomov N.A., Gordeev S.N., Fetisov Y.K. Anisotropy of ME effect in an amorphous ferromagnet-piezoelectric heterostructure. *J. Magn. Mag. Mater.* 2021;521(Part 2):167530. <https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2020.167530>
- Fetisov Y., Chashin D., Saveliev D., Fetisov L., Chamonin M. Anisotropic magnetoelectric effect in a planar heterostructure comprising piezoelectric

- ceramics and magnetostrictive fibrous composite. *Materials*. 2019;12(19):3228. <https://doi.org/10.3390/ma12193228>
11. Chashin D.V., Fetisov Y.K., Tafintseva E.V., Srinivasan G. Magnetolectric effects in layered samples of lead zirconium titanate and nickel films. *Solid State Comm.* 2008;148(1–2): 55–58. <https://doi.org/10.1016/j.ssc.2008.07.015>
  12. Lasheras A., Gutierrez J., Barandiaran J.M. Quantification of size effects in the magnetolectric response of metallic glass/PVDF laminates. *Appl. Phys. Lett.* 2016;108(22):222903. <https://doi.org/10.1063/1.4953156>
  13. Timoshenko S. *Vibration Problems in Engineering*. NY: D. Van Nostrand Company Inc.; 1955. 468 p.
  14. Nan T., Hui Y., Rinaldi M., Sun N.X. Self-biased 215 MHz magnetolectric MEMS resonator for ultra-sensitive DC magnetic fields detection. *Sci. Rep.* 2013;3:1985. <https://doi.org/10.1038/srep01985>
  15. Bichurin M., Petrov V., Srinivasan G. Theory of low-frequency magnetolectric coupling in magnetostrictive-piezoelectric bilayers. *Phys. Rev. B.* 2003;68(5):1–13. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.68.054402>
  16. Osborn J.A. Demagnetizing factors of the general ellipsoid. *Phys. Rev.* 1945;67(11–12):351–357. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.67.351>
  17. Chen D.X., Pardo E., Sanchez A. Demagnetizing factors of rectangular prisms and ellipsoids. *IEEE Trans. Magn.* 2002;38(4):1742–1752. <https://doi.org/10.1109/TMAG.2002.1017766>
  18. Malkinski L.M., Yu M., Scherer P. D.J. Magnetostatic interactions in two-dimensional arrays of magnetic strips. *Mater. Res. Symp. Proc.* 2010;1250:G08–03. <https://doi.org/10.1557/PROC-1250-G08-03>
  19. Encinas-Oropesa A., Demand M., Piroux L., Huynen I., Ebels U. Dipolar interaction in arrays of nickel nanowires studied by ferromagnetic resonance. *Phys. Rev. B.* 2001;63(10):104415. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.63.104415>
  20. Tartakovskaya E.V., Vovk A., Golub V. Dipolar interaction in ordered superlattices of ferromagnetic nanoparticles. *Phys. Stat. Sol. A.* 2008;205(8):1787–1789. <https://doi.org/10.1002/pssa.200723610>
  21. Zhai J., Dong S., Xing Z., Li J., Viehland D. Geomagnetic sensor based on giant magnetolectric effect. *Appl. Phys. Lett.* 2007;91(12):125513. <https://doi.org/10.1063/1.2789391>
  22. Duc N.H., Tu B.D., Ngoc N.T., Lap V.D., Giang T.H. Metglas/PZT-magnetolectric 2-D geomagnetic device for computing precise angular position. *IEEE Trans. Magn.* 2013;49(8):4839–4842. <https://doi.org/10.1109/TMAG.2013.2241446>

#### Об авторах

**Федулов Фёдор Александрович**, к.т.н., инженер Научно-образовательного центра «Магнитоэлектрические материалы и устройства» ФГБОУ ВО «МИРЭА – Российский технологический университет» (119454, Россия, Москва, пр-т Вернадского, д. 78). E-mail: ostsilograf@ya.ru. Scopus Author ID 57194284263, <https://orcid.org/0000-0003-2188-0011>

**Савельев Дмитрий Владимирович**, аспирант кафедры наноэлектроники Института перспективных технологий и промышленного программирования ФГБОУ ВО «МИРЭА – Российский технологический университет» (119454, Россия, Москва, пр-т Вернадского, д. 78). E-mail: dimsav94@gmail.com. Scopus Author ID 57196479660, ResearcherID D-8952-2019, <https://orcid.org/0000-0001-7762-9198>

**Чашин Дмитрий Владимирович**, к.т.н., ведущий инженер Научно-образовательного центра «Магнитоэлектрические материалы и устройства» ФГБОУ ВО «МИРЭА – Российский технологический университет» (119454, Россия, Москва, пр-т Вернадского, д. 78). E-mail: chashindv@ya.ru. Scopus Author ID 23977510200, <https://orcid.org/0000-0002-1031-6696>

**Шишкин Владимир Ильич**, к.х.н., доцент, заместитель директора Учебно-научного объединения «Электроника» ФГБОУ ВО «МИРЭА – Российский технологический университет» (119454, Россия, Москва, пр-т Вернадского, д. 78). E-mail: shishkin@mirea.ru. <https://orcid.org/0000-0002-2480-1182>

**Фетисов Юрий Константинович**, д.ф.-м.н., профессор, директор Научно-образовательного центра «Магнитоэлектрические материалы и устройства» ФГБОУ ВО «МИРЭА – Российский технологический университет» (119454, Россия, Москва, пр-т Вернадского, д. 78). E-mail: fetisov@mirea.ru. Scopus Author ID 7003504213, <https://orcid.org/0000-0002-8627-2730>

#### About the authors

**Fedor A. Fedulov**, Cand. Sci. (Eng.), Engineer, Scientific and Education Center “Magnetolectric materials and devices,” MIREA – Russian Technological University (78, Vernadskogo pr., Moscow, 119454 Russia). E-mail: ostsilograf@ya.ru. Scopus Author ID 57194284263, <https://orcid.org/0000-0003-2188-0011>

**Dmitriy V. Saveliev**, Postgraduate Student, Department of Nanoelectronics, Institute for Advanced Technologies and Industrial Programming, MIREA – Russian Technological University (78, Vernadskogo pr., Moscow, 119454 Russia). E-mail: dimsav94@gmail.com. Scopus Author ID 57196479660, ResearcherID D-8952-2019, <https://orcid.org/0000-0001-7762-9198>

**Dmitriy V. Chashin**, Cand. Sci. (Eng.), Lead Engineer, Scientific and Education Center “Magnetolectric materials and devices,” MIREA – Russian Technological University (78, Vernadskogo pr., Moscow, 119454 Russia). E-mail: chashindv@ya.ru. Scopus Author ID 23977510200, <https://orcid.org/0000-0002-1031-6696>

**Vladimir I. Shishkin**, Cand. Sci. (Chem.), Assistant Professor, Deputy Director, Education and Science Association “Electronics,” MIREA – Russian Technological University (78, Vernadskogo pr., Moscow, 119454 Russia). E-mail: shishkin@mirea.ru. <https://orcid.org/0000-0002-2480-1182>

**Yuri K. Fetisov**, Dr. Sci. (Phys.–Math.), Professor, Director, Scientific and Education Center “Magnetolectric materials and devices,” MIREA – Russian Technological University (78, Vernadskogo pr., Moscow, 119454 Russia). E-mail: fetisov@mirea.ru. Scopus Author ID 7003504213, <https://orcid.org/0000-0002-8627-2730>