УДК 537.633.9

МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ В ЛАМИНАТНЫХ СТРУКТУРАХ FeCoGa/Metglas/LGT С ТОНКОПЛЕНОЧНЫМИ МАГНИТОСТРИКЦИОННЫМИ СЛОЯМИ

[1,2]Носов А.П., [1]Грибов И.В., [1]Москвина Н.А., [1]Дружинин А.В., [1]Осотов В.И.

[1]ФГБУН «Институт физики металлов имени М.Н. Михеева» Уральского отделения Российской академии наук, Екатеринбург, e-mail: nossov@imp.uran.ru;

[2]ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина», Екатеринбург

Экспериментально исследован магнитоэлектрический эффект в трехслойных структурах, состоящих из двухслойного магнитострикционного ферромагнетика /пьезоэлектрика/ двухслойного магнитострикционного ферромагнетика. В качестве пьезоэлектрика использовали пластины монокристаллов лантангаллиевого танталата $La_3Ga_{5.5}Ta_{0.5}O_{14}$. Двухслойные магнитострикционные ферромагнетики получали нанесением тонких пленок сплава типа «галфенол» состава $Fe_{0.62}Co_{0.19}Ga_{0.19}$ на аморфные ленты типа «Метглас» методом импульсного лазерного осаждения. За счет отрицательного знака коэффициента магнитострикции в сплаве типа «галфенол» и положительного знака коэффициента магнитострикции в аморфной ленте в двухслойной структуре магнитострикционного ферромагнетика получали градиент коэффициента магнитострикции. Исследована зависимость величины магнитоэлектрического коэффициента трехслойных структур от статических магнитных полей величиной до 130 Э и переменных магнитных полей с частотами от 20 Гц до 10 кГц, коэффициенты линейности, частотные зависимости магнитных шумов. Экспериментально показано, что использование двухслойного магнитострикционного ферромагнетика с градиентом коэффициента магнитострикции по толщине позволяет повысить максимальную величину магнитоэлектрического коэффициента, коэффициенты линейности в области нулевых полей и в области полей ~ 40 Э во всем исследованном диапазоне частот, а также существенно снизить уровень магнитных шумов.

Ключевые слова: магнитоэлектрический эффект, сплавы системы Fe-Ga, лантангаллиевый танталат

MAGNETOELECTRIC EFFECT IN LAMINATED STRUCTURES FeCoGa/Metglas/LGT WITH THIN FILM MAGNETOSTRICTIVE LAYERS

[1,2]Nosov A.P., [1]Gribov I.V., [1]Moskvina N.A., [1]Druzhinin A.V., [1]Osotov V.I.

[1]M.N. Mikheev Institute of Metal Physics, Ural Branch of the Russian Academy of Sciences, Ekaterinburg, e-mail: nossov@imp.uran.ru;

[2]Ural Federal University, Ekaterinburg

Magnetoelectric effect in three-layered structures of the type bilayered magnetostrictive ferromagnet / piezoelectric / bilayered magnetostrictive ferromagnet was investigated experimentally. The plates of lanthanum gallium tantalate $La_3Ga_{5.5}Ta_{0.5}O_{14}$ single crystal were used as piezoelectric. Bilayered magnetostrictive ferromagnets were obtained by pulsed laser deposition of thin film of the «galfenol»-type $Fe_{0.62}Co_{0.19}Ga_{0.19}$ alloy on the surface of the amorphous «Metglas»-type alloy. Owing to the negative sign of magnetostriction coefficient of the «galfenol»-type alloy and positive sign of magnetostriction coefficient of the amorphous alloy gradient of magnetostriction coefficient was realized in bilayers. The dependence of magnitude of the magnetoelectric coefficient on the dc magnetic fields of up to 130 Oe and ac magnetic fields with frequencies from 20 Hz to 10 kHz, linearity coefficients, and magnetic noise were investigated. It is shown experimentally that utilization of bilayered magnetostrictive ferromagnet permits to increase the maximum value of magnetoelectric coefficient, linearity coefficients both near zero magnetic fields and in the fields of ~ 40 Oe, and substantially lower the magnetic noise.

Keywords: magnetoelectric effect, Fe-Ga type alloys, lanthanum gallium tantalite, thin films

Необходимость создания нового поколения датчиков статических и переменных магнитных полей для нужд магнитоэлектроники, информатики и робототехники стимулирует активные исследования новых физических эффектов, которые могут быть использованы для их разработки. Поэтому в последние годы ведется активное изучение магнитоэлектрического эффекта (МЭ) в многослойных структурах типа магнитострикционный ферромагнетик /пьезоэлектрик/ магнитострикционный ферромагнетик (МФ/П/МФ) [1, 2]. В них реализована магнитомеханическая связь между слоями, обладающими пьезо- и магнитострикционными свойствами. Деформацию в таких структурах можно осуществить воздействием либо электрическим полем на пьезоэлектрик, либо магнитным полем на ферромагнетик. При приложении переменного магнитного поля H_{ac} с частотой f_{ac} происходит деформация магнитострикционных ферромагнитных слоев, которая из-за магнитомеханической связи между слоями передается пьезоэлектрику. При деформации пьезоэлектрического слоя за счет пьезоэффекта происходит генерация электрических зарядов и в структуре возникает электриче-

ское напряжение. Количественной характеристикой МЭ является магнитоэлектрический коэффициент по напряжению (МЭКН) $\alpha = dE/H_{ac} = dV/(tdH_{ac})$, где dV – величина электрического напряжения, t – толщина слоя пьезоэлектрика. На величину α влияют физические характеристики как магнитострикционного ферромагнетика, так и пьезоэлектрика: пьезомагнитный коэффициент $q = d\lambda/dH_{dc}$, где λ – коэффициент магнитострикции, H_{dc} – статическое магнитное поле, пьезомодуль d и относительная диэлектрическая проницаемость ε.

Для потенциальных практических применений желательно иметь структуры с возможно большей величиной α, что требует подробного исследования влияния и оптимизации физических характеристик как отдельных слоев, так и структуры в целом. Возможным путем увеличения α является использование в слоях материалов, имеющих неоднородные физические свойства по толщине: коэффициента λ для ферромагнитной подсистемы и d для сегнетоэлектрической подсистемы. В случае ферромагнитной подсистемы можно использовать материалы, имеющие разные знаки коэффициента магнитострикции, то есть создавать слои с большим градиентом коэффициента магнитострикции по толщине слоя. Повышение величины α за счет d пьезоэлектрических слоев, а также q ферромагнитных слоев в многослойной структуре, характеризуемой градиентом свойств по толщине, продемонстрировано в [3]. Получение градиента коэффициента магнитострикции по толщине только ферромагнитного слоя реализовано в [4].

Для возможных практических применений больший интерес представляют МФ/П/МФ структуры, предназначенные для регистрации слабых (до 100 Э) магнитных полей. Поэтому в качестве ферромагнитных слоев в многослойных структурах широко используют магнитомягкие магнитострикционные материалы, такие как аморфные сплавы типа «Метглас» (Metglas) [5]. Эти сплавы имеют большие величины q, малую коэрцитивную силу, высокую начальную магнитную проницаемость, Коэффициент магнитострикции этих сплавов положителен. Поверхность характеризуется малой шероховатостью, на которую можно наносить тонкие пленки металлов, пьезо- и сегнетоэлектрических материалов. При нанесении тонкой пленки металлического магнитострикционного сплава другого состава, имеющего отрицательную магнитострикцию, такая двухслойная структура будет характеризоваться градиентом λ по толщине, что может привести к увеличению величины q ферромагнитного слоя в целом.

Наиболее широко используемыми материалами пьезоэлектрических слоев в МЭ структурах являются различные типы пьезокерамик, содержащих свинец [4, 6]. Основным достоинством этих типов пьезокерамик является большая величина d. Однако они характеризуются сравнительно узким температурным рабочим диапазоном и низкой температурой Кюри. Кроме того, в последние годы все более актуальными являются проблемы перехода к пьезокерамикам, не содержащим свинец. Сравнительно недавно в работах [7, 8] была продемонстрирована перспективность использования в МЭ структурах сегнетоэлектрического материала состава $La_3Ga_{5.5}Ta_{0.5}O_{14}$ (лантангаллиевого танталата, LGT), не содержащего свинец. Достоинством этого материала является возможность работы при высоких температурах, поскольку его температура плавления составляет 1450 С. В качестве материала магнитострикционного слоя в работах [7, 8] использовали сплав типа «пермендюр» (Fe-Co-V).

Цель исследования: изучить влияние градиента коэффициента магнитострикции по толщине магнитострикционного слоя на МЭКН в структурах МФ/П/МФ, в которых в качестве сегнетоэлектрика использован лантангаллиевый танталат. Градиент коэффициента магнитострикции по толщине МФ слоя создавался путем нанесения тонкой пленки $Fe_{0.62}Co_{0.19}Ga_{0.19}$ с отрицательным значением λ на аморфную ленту типа «Метглас» с положительным значением λ.

Материалы и методы исследования

Пластины монокристалла лантангаллиевого танталата $La_3Ga_{5.5}Ta_{0.5}O_{14}$ (LGT, X-срез) [9] с типичными размерами 5×5×0,3 мм^3 были использованы в качестве материала пьезоэлектрического слоя. Аморфные ленты сплава типа «Метглас» состава 440 A [10] производства компании «Гаммамет», Екатеринбург, Россия, толщиной 34 мкм без термообработок применяли в качестве материала магнитострикционного ферромагнитного слоя. Зависимости $\lambda(H_{dc})$ измеряли с использованием тензодатчика. Величину коэффициента магнитострикции насыщения определяли при двух ориентациях H_{dc}: вдоль ($\lambda_{11} = +20\times10^{-6}$/Э) и поперек ($\lambda_{12} = -15\times10^{-6}$/Э) направления прокатки. Величину пьезомагнитного коэффициента q вычисляли как $q = q_{11} + q_{12} = d\lambda_{11}/dH_{dc} + d\lambda_{12}/dH_{dc} = +0{,}46\times10^{-6}$/Э.

Двухслойную структуру магнитострикционного слоя получали нанесением методом импульсного лазерного осаждения на поверхность аморфной ленты 440 A тонких пленок $Fe_{0.62}Co_{0.19}Ga_{0.19}$. Металлические сплавы составов «галфенол» Fe-Ga являются магнитострикционными материалами с большими значениями λ. Коэффициент магнитострикции этих сплавов имеет отрицательный знак. Введение в сплавы Co приводит к росту λ. Исследование концентрационных зависимостей коэффициента магнитострикции тонких пленок системы Fe-Co-Ga [11] показало, что состав $Fe_{0.62}Co_{0.19}Ga_{0.19}$ характеризовался максимальным значением λ.

Пленки $Fe_{0.62}Co_{0.19}Ga_{0.19}$ толщиной 25 нм на поверхность аморфной ленты 440А наносили с использованием эксимерного лазера CL 7050 (компания «Оптосистемы», г. Троицк, Московская область, Россия [12]). В процессе нанесения температуру аморфной ленты поддерживали при значении 200 °С.

Исследовали МЭ свойства МФ/П/МФ структур, в которых в качестве пьезоэлектрика использовали пластины монокристалла LGT. Были исследованы структуры двух составов. В одном случае материалом верхнего и нижнего слоев были аморфные ленты 440А (далее – образцы (440А)). В другом случае использовали ленты 440А с тонкой пленкой $Fe_{0.62}Co_{0.19}Ga_{0.19}$ (далее – образцы (440А/FeCoGa)). Трехслойную МФ/П/МФ структуру приготавливали путем склеивания отдельных слоев цианокрилатным клеем. По сравнению с двухслойной МФ/П структурой трехслойная МФ/П/МФ структура характеризуется большей величиной МЭКН [1].

Измерения МЭКН выполняли в условиях приложения статического H_{dc} и переменного H_{ac} магнитных полей с частотой f_{ac}. Возникающее напряжение dV на пьезоэлектрическом слое регистрировали синхронным детектором. Измеряли зависимости МЭКН α от H_{dc} и f_{ac}.

Измерения магнитных шумов проводили в камере с трехслойным магнитным экраном при приложении к образцу переменного магнитного поля напряженностью 100–900 микроэрстед и усиления напряжения с образца предусилителем с большим импедансом и низким уровнем собственных шумов (типа SRS SR560). Затем сигнал подавали на анализатор спектра модели SRS SR780.

Все измерения выполняли при комнатной температуре.

Результаты исследования и их обсуждение

Результаты измерений МЭКН для f_{ac} = 110, 500 Гц и 10 кГц для образцов (440А) представлены на рис. 1. Все зависимости α(H_{dc}) имеют сходную форму с максимумом при H_{dc} ~70 Э. Это значение H_{dc} соответствует положению максимума на зависимости $q(H_{dc})$.

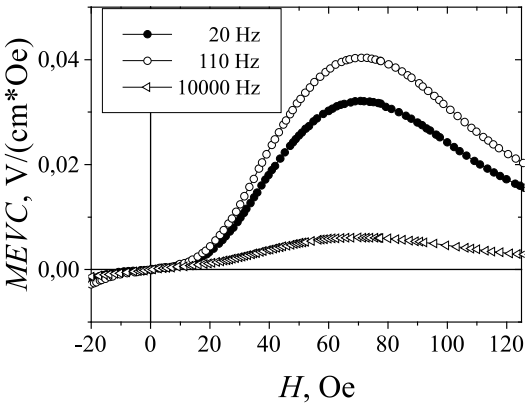

Рис. 1. Полевая зависимость МЭКН для образца (440А). f_{ac} = 20, 110 Гц и 10 кГц

Следует отметить слабую зависимость от частоты положений максимумов кривых α(H_{dc}). Однако максимальная величина α при H_{dc} ~70 Э существенно и немонотонно зависит от частоты. Для всех частот при H_{dc} > 250Э значения α постепенно уменьшаются и становятся существенно малыми, по сравнению с максимальными. Вид зависимостей α(H_{dc}) и $q(H_{dc})$ качественно подобен.

Для МФ/П/МФ структур с градиентом коэффициента магнитострикции по толщине магнитострикционного слоя нанесение тонкой пленки $Fe_{0.62}Co_{0.19}Ga_{0.19}$ с отрицательным коэффициентом магнитострикции качественно не изменяет вид зависимостей α(H_{dc}), однако влияет на максимальную величину МЭКН. Это иллюстрирует рис. 2, на котором представлены сравнительные данные для структур с магнитострикционными слоями только с аморфной лентой (440А) и аморфной лентой с пленкой $Fe_{0.62}Co_{0.19}Ga_{0.19}$ (440А/FeCoGa). Из приведенных данных видно, что градиент коэффициента магнитострикции по толщине магнитострикционных слоев приводит к увеличению максимальной величины МЭКН для всех исследованных частот.

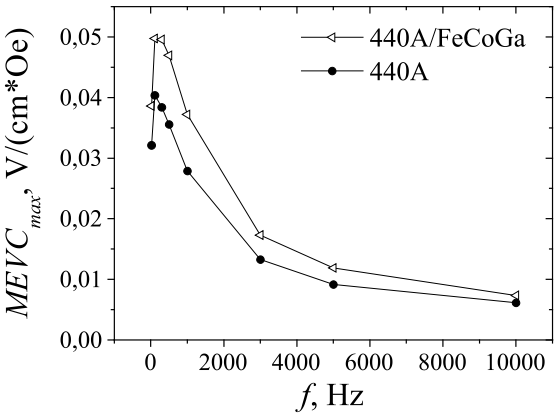

Рис. 2. Влияние тонкой пленки $Fe_{0.62}Co_{0.19}Ga_{0.19}$ на частотные зависимости α(H_{dc}~70 Э). Данные для образцов (440А) и (440А/FeCoGa)

Для возможных применений МЭ ламинатных структур в качестве датчиков статических и переменных магнитных полей важное значение имеет линейность зависимостей α(H_{dc}) [13]. Как видно из рис. 3, в общем случае на зависимостях α(H_{dc}) можно выделить два коэффициента линейности (КЛ): $dMEVC/dH_{lowH}$ вблизи нуля или в области слабых магнитных полей и $dMEVC/dH_{highH}$ в области «сильных» магнитных полей (H_{dc} ~40 Э). Первый КЛ может представлять интерес в устройствах, предназна-

ченных для регистрации предельно слабых полей, а второй – при работе на устройствах со смещением рабочей точки постоянным магнитным полем. Для функционирования обоих вариантов устройств величина КЛ должна быть по возможности большей.

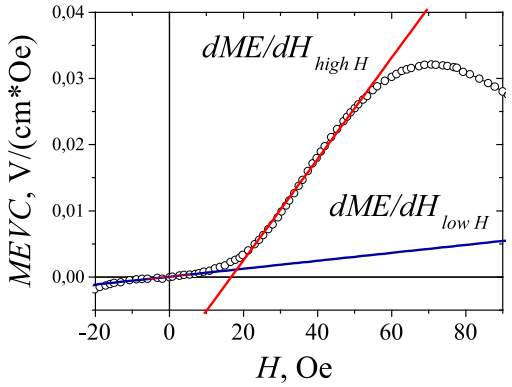

Рис. 3. Определения КЛ для слабых ($dMEVC/dH_{lowH}$) и «сильных» ($dMEVC/dH_{highH}$) магнитных полей

Рис. 4 иллюстрирует влияние градиента коэффициента магнитострикции по толщине магнитострикционных слоев на частотные зависимости коэффициентов линейности МЭ ламинатных структур. Как видно из приведенных данных, нанесение тонких пленок $Fe_{0.62}Co_{0.19}Ga_{0.19}$ приводит к росту величин коэффициентов линейности для всех исследованных частот.

Согласно [1] для многослойных структур типа МФ/П/МФ величина МЭКН пропорциональна отношению d_{11}/ε_{11}. Для монокристаллов пьезоэлектриков составов LGT относительная диэлектрическая проницаемость ε_{11} слабо зависит от частоты до частот порядка 10 кГц. Поэтому качественно наблюдающиеся закономерности изменений зависимостей $\alpha(f_{ac})$ могут быть объяснены частотными изменениями характеристик МФ слоев. Если определить коэффициент магнитомеханической связи как $k_m = (4\pi\lambda(f_{ac})\mu_r'/E)^{1/2}$, где $\lambda(f_{ac})$ – коэффициент магнитострикции в переменном магнитном поле, пропорциональный q, μ_r' – действительная часть относительной магнитной проницаемости, E – модуль Юнга [1]. В нашем случае увеличение максимального значения α на всех частотах для образцов (440A/FeCoGa), по-видимому, связано с ростом $\lambda(f_{ac})$ за счет градиента коэффициента магнитострикции по толщине магнитострикционных слоев. Для исследованных образцов влияние этого фактора представляется более существенным, чем возможные изменения k_m за счет μ_r'.

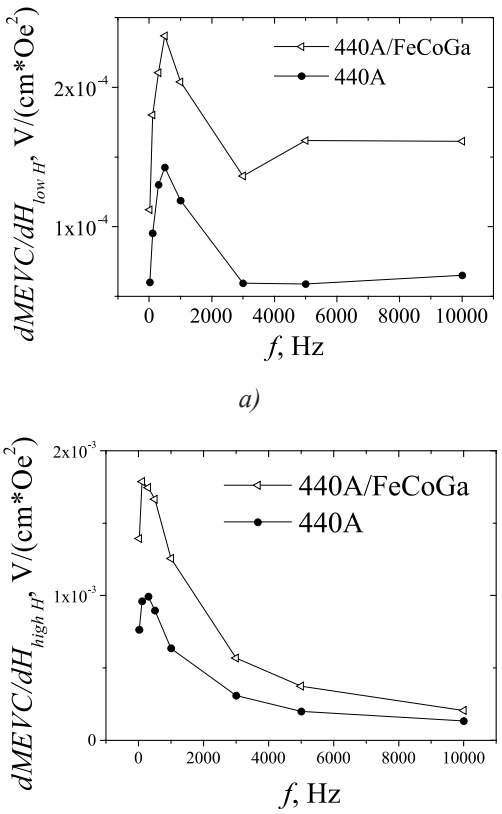

Рис. 4. Частотные зависимости КЛ для слабых (а) и «сильных» (б) магнитных полей. Данные для образцов (440A) и (440A/FeCoGa)

На рис. 5 представлены данные по магнитным шумам в диапазоне частот 0,5–14 Гц. Из приведенных данных видно, что уровень шумов существенно ниже для структур с градиентом коэффициента магнитострикции по толщине магнитострикционных слоев. Для частоты 1 Гц уровень шумов в структуре с магнитострикционными слоями аморфная лента/пленка $Fe_{0.62}Co_{0.19}Ga_{0.19}$ почти в три раза ниже, чем в структуре только с аморфной лентой.

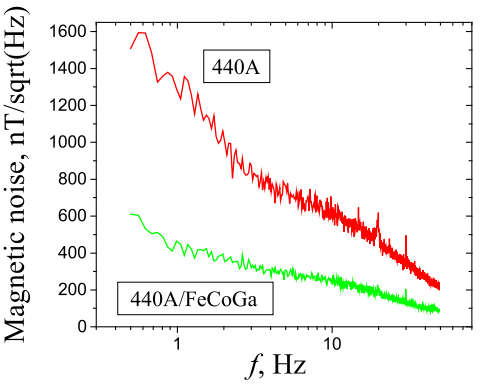

Рис. 5. Частотные зависимости магнитных шумов для образцов (440A) и (440A/FeCoGa)

Заключение

Экспериментально исследовано влияние градиента коэффициента магнитострикции ферромагнитных слоев в трехслойных структурах типа двухслойный магнитострикционный ферромагнетик/пьезоэлектрика/ двухслойный магнитострикционный ферромагнетик на величину магнитоэлектрического коэффициента по напряжению. В качестве двухслойного магнитострикционного ферромагнетика использовали тонкие пленки $Fe_{0.62}Co_{0.19}Ga_{0.19}$ с отрицательным коэффициентом магнитострикции, нанесенные импульсным лазерным осаждением на аморфные ленты типа «Метглас» с положительным коэффициентом магнитострикции. В качестве пьезоэлектрика использованы пластины монокристалла LGT. Показано, что структуры со слоями с градиентом коэффициента магнитострикции характеризуются большими значениями МЭКН, коэффициентов линейности, низкими магнитными шумами. Результаты могут быть использованы при создании МЭ датчиков статических и переменных магнитных полей, работающих в диапазоне повышенных температур.

Работа выполнена в рамках государственного задания Минобрнауки РФ (тема АААА-А18-118020290104-2).

Список литературы

1. Srinivasan G. Magnetoelectric composites. Annu, Rev. Mater. Res. 2010. vol. 40. P. 153–178. DOI: 10.1146/annurev-matsci-070909-104459.

2. Sun N.X., Srinivasan G. Voltage control of magnetism in multiferroic heterostructures and devices. SPIN. 2012. vol. 2. no. 3. 1240004 (46 p.). DOI: 10.1142/S2010324712400048.

3. Petrov V.M., Srinivasan G. Enhancement of magnetoelectric coupling in functionally graded ferroelectric and ferromagnetic bilayers. Physical Review B. 2008. vol. 78. 184421 (8 p.). DOI: 10.1103/PhysRevB.78.184421.

4. Gribov I.V., Osotov V.I., Nosov A.P., et al. Magnetoelectric effects in functionally stepped magnetic nanobilayers on ferroelectric substrates: Observation and theory on the influence of interlayer exchange coupling. Journal of Applied Physics. 2014. vol. 115. P. 193909–193908. DOI: 10.1063/1.4878458.

5. Sreenivasulu G., Mandal S.K., Bandekar S., et al. Low-frequency and resonance magnetoelectric effects in piezoelectric and functionally stepped ferromagnetic layered composites. Phys.Rev.B. 2011. Vol. 84. 144426 (6 p.). DOI: 10.1103/PhysRevB.84.144426.

6. More-Chevalier J., Lüders U., Cibert C., et al. Magnetoelectric coupling in $Pb(Zr,Ti)O_3$–Galfenol thin film heterostructures. Applied Physics Letters. 2015. vol. 107. P. 252903–252906. DOI: 10.1063/1.4938218.

7. Sreenivasulu G., Fetisov L.Y., Fetisov Y.K., Srinivasan G. Piezoelectric single crystal langatate and ferromagnetic composites: Studies on low-frequency and resonance magnetoelectric effects. Applied Physics Letters. 2012. vol. 100. 052901 (4 p.). DOI: 10.1063/1.3679661.

8. Sreenivasulu G., Qu P., Piskulich E., et al. Shear strain mediated magneto-electric effects in composites of piezoelectric lanthanum gallium silicate or tantalate and ferromagnetic alloys. Applied Physics Letters. 2014. vol. 105. P. 32409–32408. DOI: 10.1063/1.4891536.

9. Бурдин Д.А., Фетисов Л.Ю., Фетисов Ю.К., Чашин Д.В., Экономов Н.А. Резонансный магнитоэлектрический эффект без поля смещения в монолитной структуре пьезоэлектрический лангатат–ферромагнетик с гистерезисом // Журнал технической физики 2014. Т. 84. № 9. С. 90–95.

10. Стародубцев Ю.Н., Белозеров В.Я. Магнитные свойства аморфных и нанокристаллических сплавов. Екатеринбург: Изд-во «Урал» Уральского университета, 2002. 384 с.

11. Jen S.U., Tsai T.L., Kuo P.C., et al. Magnetostrictive and structural properties of FeCoGa films. Journal of Applied Physics. 2010. vol.107. 013914 (4 p.). DOI: 10.1063/1.3284962.

12. Vartapetov S.K., Zakhryapa A.V., Kozlovsky V.I., et al. Study of the formation of a microrelief on ZnSe- and CdSe-crystal surfaces ablated by excimer KrF-laser radiation. Quantum Electronics. 2016. Vol. 46. No. 10. P. 903–910. DOI:10.1088/0953-8984/21/4/045603.

13. Shen L., Menghui Li M., Junqi Gao J., et al. Magnetoelectric nonlinearity in magnetoelectric laminate sensors. Journal of Applied Physics. 2011. vol. 110. 114510 (6 p.). DOI: 10.1063/1.3665130.