

УДК 53.043

МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ОТКЛИК В ГЕТЕРОГЕННЫХ СЛОИСТЫХ СТРУКТУРАХ ЦТС– НИКЕЛЬЦИНКОВЫЙ ФЕРРИТ – ТЕРФЕНОЛ

А. А. Богомолов¹, А. В. Солнышкин¹, Д. Ю. Карпенков¹,
А. Ю. Карпенков¹, В. А. Головнин², А. Г. Пастушенков¹

¹ Тверской государственный университет, кафедра магнетизма

² ОАО "НИИ "Элпа", г. Зеленоград

В работе приводятся результаты экспериментальных исследований магнитоэлектрических свойств слоистых гетероструктур ЦТС-46/Ni-Zn ферритов двух марок (1000НН и 2000НН). Исследованы зависимости магнитоэлектрического отклика от конфигурации, формы и толщины слоев композитов. Установлено, что увеличение толщины магнитоэлектрического отклика от 0,35 до 3,5 мм отрицательно сказывается на МЭ отклике. Сравнительный анализ результатов измерений на образцах разной формы показывает, что значения МЭ эффекта для дисков в 2,5 раза больше, чем для прямоугольных гетероструктур.

Ключевые слова: магнитоэлектрический эффект, пьезокерамика, магнитоэлектрические материалы, композитные материалы, слоистые гетероструктуры

Магнитоэлектрические (МЭ) эффекты в композитных планарных структурах, содержащих механически связанные ферромагнитные и ферроэлектрические слои, интенсивно исследуют в последнее время в связи с перспективами их использования в датчиках магнитных полей, генераторах и преобразователях напряжения [1-5]. МЭ эффект возникает благодаря комбинации магнитоэлектрического и пьезоэффекта и проявляется в виде генерации электрического напряжения U на гранях структуры при её помещении в переменное магнитное поле [6]. Значение эффекта характеризует коэффициент МЭ-преобразования. Магнитоэлектрический коэффициент по напряжению вычисляется из соотношения:

$$\alpha_E = \frac{E_3}{H_1}, \quad (1)$$

где H_1 – переменное магнитное поле, а E_3 – напряженность электрического поля в материале, определяемая согласно известной формуле:

$$E_3 = \frac{U_0}{d}, \quad (2)$$

где d – толщина пьезоэлектрического материала, $U_0 = U/k$, U – напряжение на выходе усилителя, k – коэффициент усиления.

В работе приводятся результаты экспериментальных исследований магнитоэлектрических свойств слоистых гетероструктур ЦТС-46, Ni-Zn ферритов двух марок 1000НН и 2000НН и Терфенол-Д. Исследованы зависимости магнитоэлектрического отклика от конфигурации, формы и толщины слоев композитов.

Методика эксперимента. Исследуемые образцы помещали внутрь соленоида 1, служащего для создания переменного магнитного поля в интервале 0...10 Э, который, в свою очередь, располагался внутри соленоида 2, предназначенного для получения однородного постоянного магнитного поля в диапазоне 0...1500 Э. Переменное и постоянное поля были направлены параллельно плоскости слоев. Сигнал от задающего генератора подавался на соленоид 1, что обеспечивало изменение напряженности поля по гармоническому закону с максимальной частотой $f = 220$ кГц. Соленоид 2 постоянного поля был подключен к программируемому источнику тока – АК ИП 1118. Напряжение U с обкладок структуры, генерируемое в результате МЭ эффекта, с помощью витой пары подавалось на низкочастотный усилитель У4-28. Усилитель У4-28 имел входное сопротивление 1 МОм и обеспечивал максимальное усиление сигнала до 100 дБ. После усиления сигнал регистрировался измерительным комплексом, включающим компьютер с установленной платой сбора данных и вольтметр для контроля сигнала. Параллельно проводились измерения частоты подаваемого сигнала, а также переменного тока для контроля стабильности возбуждающего переменного поля.

Изготовление образцов. В исследованиях использовались двух- и трехслойные структуры чередующихся слоев никель-цинкового феррита состава $Ni_{0,3}Zn_{0,7}Fe_2O_4$ (НЦФ) и слоев предварительно поляризованного цирконата-титаната свинца ЦТС-46. В качестве материала для образования сильной механической связи между слоями использовался эпоксидный клей. Выбор в качестве магнитоэлектрика НЦФ с химической формулой $Ni_{0,3}Zn_{0,7}Fe_2O_4$ обусловлен тем, что образцы данного состава обладают наивысшей начальной магнитной проницаемостью $\mu_{нач} = 2500$ Гс/Э, характерной для никель-цинковых ферритов (рис. 1) [7].

На рис. 2 представлена геометрия образцов, ориентация векторов поляризации и напряженностей постоянного и переменного магнитного поля.

Геометрические размеры и состав слоев исследуемых композитов приведены в табл. 1 и 2.

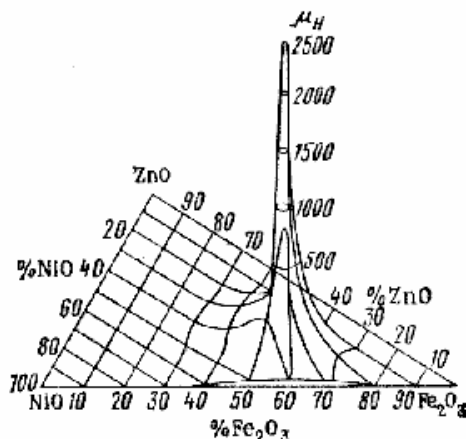


Рис. 1. Зависимость начальной магнитной проницаемости в системе NiO-ZnO-Fe₂O₃ от состава (температура обжига 1380°C)

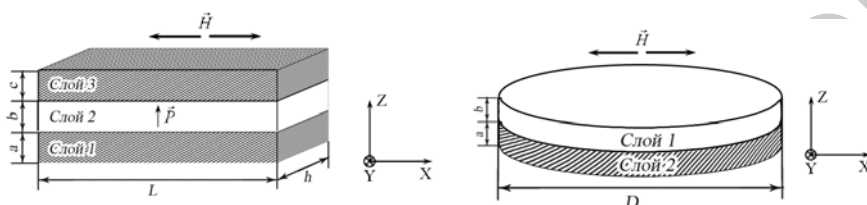


Рис. 2. Исследуемые образцы и их ориентация в магнитном поле

Таблица 1. Геометрические размеры и состав слоев исследуемых образцов прямоугольной формы

№ п.п.	Слой 1	Слой 2	Слой 3	a, mm	b, mm	c, mm	L, mm	h, mm
1	Биморф	1000НН	-	0,2	0,35	-	27	8
2	Биморф	Терфенол	-	0,2	1	-	27	8
3	1000НН	ЦТС-46	1000НН	0,2	0,2	0,2	18	10
4	1000НН	ЦТС-46	-	0,2	0,2	-	18	10
5	2000НН	ЦТС-46	2000НН	0,2	0,2	0,2	18	10
6	2000НН	ЦТС-46	-	0,2	0,2	-	18	10
7	1000НН	ЦТС-19	-	3,5	1	-	40	10
8	1000НН	ЦТС-19	-	0,35	1	-	40	10
9	1000НН	ЦТС-19	-	3,5	1	-	40	10

Таблица 2. Геометрические размеры и состав слоев исследуемых образцов в форме диска

№ п.п.	Слой 1	Слой 2	a, mm	b, mm	D, mm
10	1000НН	ЦТС-19	0,35	1	4
11	1000НН	ЦТС-19	3,5	1	4

Результаты исследований. В образца №1 (биморф ЦТС-46/ $\text{Ni}_{0.3}\text{Zn}_{0.7}\text{Fe}_2\text{O}_4$) в отсутствие постоянного подмагничивающего поля наблюдается магнитоэлектрический отклик, частота которого равна удвоенной частоте переменного напряжения, подаваемого на соленоид 1, формирующий переменное магнитное поле (рис. 3, *a*). Удвоение частоты отклика наблюдается на всех частотах поля возбуждения. Это явление свидетельствует о магнитоэлектрической природе наблюдаемого магнитоэлектрического отклика.

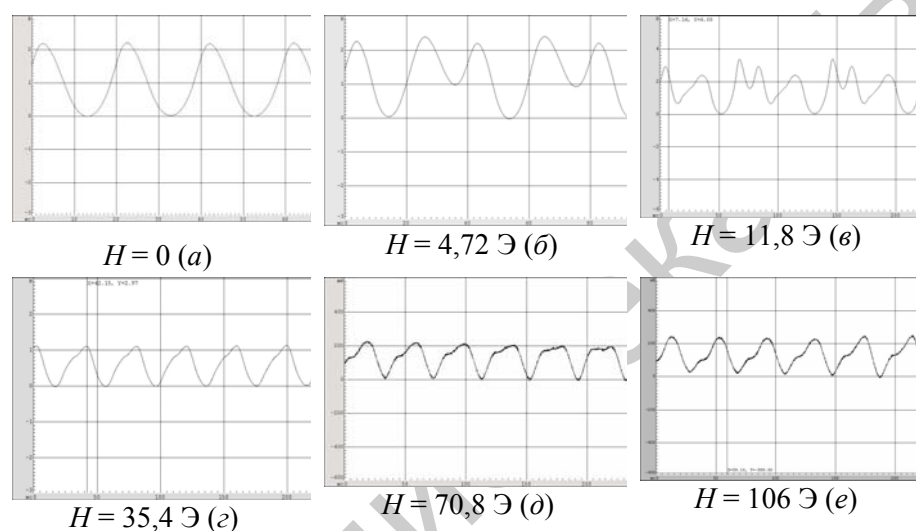


Рис. 3 Формы магнитоэлектрического отклика образца №1, полученные на частоте 25 Гц при различных значениях постоянного поля

При приложении постоянного смещающего магнитного поля наблюдается искажение формы магнитоэлектрического отклика и изменение его амплитуды (рис. 3).

Необходимо отметить наличие перехода от отклика с удвоенной частотой к отклику, совпадающему по частоте с возбуждающим переменным магнитным полем (рис. 3, *e*). Этот образец примечателен тем, что в области достаточно низких частот наблюдаются многочисленные резонансные магнитоэлектрические отклики.

На рис. 4 представлена зависимость магнитоэлектрического отклика от напряженности постоянного магнитного поля на частоте одного из резонансов ($f = 3 \text{ кГц}$). Прямой и обратный ход совпадают, что свидетельствует об отсутствии гистерезисных явлений.

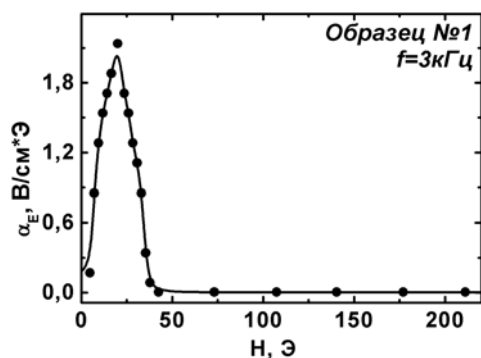


Рис. 4. Зависимость магнитоэлектрического коэффициента композита состава биморф ЦТС-46/NiZn-феррит (образец №1). Амплитудное значение переменного магнитного поля составляло 5 Э

На различных резонансных частотах проведено измерение магнитоэлектрического отклика и выполнен расчет магнитоэлектрического коэффициента α_E этого композита. Результаты представлены в табл. 3.

Таблица 3. Резонансные частоты и магнитоэлектрические коэффициенты образца №1 (биморф ЦТС-46/NiZn-феррит)

Резонансная частота, Гц	$\alpha_E, \text{В/см}\cdot\text{Э}$
2950	2,1
8780	0,47
9970	0,69
20800	0,33

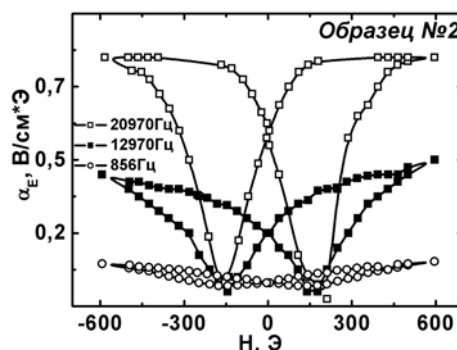
Наибольшее значение МЭ коэффициента приходится на частоту 2950 Гц. Этот результат близок к расчетному значению магнитоэлектрического коэффициента двухслойной структуры, состоящей из пластин пьезокерамики и никелевого феррита [8].

Ниже представлены результаты измерений образца №2 (биморф ЦТС-46/Терфенол-D).

В случае образца биморф ЦТС-46/Терфенол-D (композит, состоящий из одного слоя биморфного образца ЦТС и одного слоя указанного магнитного материала) описанное выше поведение магнитоэлектрического отклика не наблюдается. Для этого композита мы не наблюдаем удвоения частоты магнитоэлектрического отклика в исследуемой области частот 10 Гц ... 200 кГц.

С ростом напряженности переменного магнитного поля (при нулевом постоянном поле) амплитуда отклика возрастает, а частота остается неизменной. Постоянное магнитное поле приводит к росту

магнитоэлектрического отклика. При циклическом изменении подмагничивающего поля имеет место петля типа «бабочки». На рис. 5 представлены зависимости магнитоэлектрического отклика от постоянного поля смещения, полученные для трех резонансных частот.



Р и с . 5. Зависимость магнитоэлектрического коэффициента по напряжению композита состава биморф ЦТС-46/Терфенол-Д от значения и направления поля смещения. Амплитудное значение переменного магнитного поля составляло 5 Э

При изменении частоты внешнего переменного магнитного поля наблюдаются резонансы магнитоэлектрического отклика. Это обусловлено возбуждением собственных акустических колебаний, что приводит к резонансному возрастанию амплитуды деформаций и, как следствие, к увеличению МЭ сигнала [9]. Частоты резонансов и соответствующие магнитоэлектрические коэффициенты приведены в таблице 4.

Т а б л и ц а 4. Резонансные частоты и магнитоэлектрические коэффициенты композита биморф ЦТС-46/Терфенол-Д

Частота, Гц	α_E , В/(см·Э)
400	0,035
624	0,035
893	0,38
1200	0,056
1750	0,071
11930	0,53
14230	0,20
20600	0,80

Максимальный магнитоэлектрический отклик наблюдается вблизи резонансной частоты $f=20\text{кГц}$ и составляет $0,8\text{ В/(см·Э)}$, что значительно меньше значения α_E образце с НЦФ.

На втором этапе исследований была поставлена задача изучить зависимости между значениями МЭ отклика, толщиной магнитостриктора и формой образца. Для этого были изготовлены образцы прямоугольной и дискообразной формы с разной толщиной феррита 1000НН от 0,35 мм (образцы №8, 10) до 3,5 мм (образцы № 7, 8, 11).

В табл. 5 и 6 приведены сводные данные о результатах исследований на образцах в форме параллелепипеда и диска соответственно. Модулирующее поле $H_{\sim} = 1,54 \text{ Э}$.

Т а б л и ц а 5. Результаты исследований образцов прямоугольной формы

№ п.п.	Частота, Гц	α_E , В/(см Э)	H , Э
7	10000	0,14	7
	21000	0,11	
	30000	0,18	
	119000	2,55	
8	7000	0,73	11,8
	12000	0,69	
	88000	6,23	
9	20000	0,22	7
	70000	1,47	
	122000	3,67	

Т а б л и ц а 6. Результаты исследований образцов дисковидной формы

№ п.п.	Частота, Гц	α_E , В/(см Э)	H , Э
10	2269	0,11	23,6
	26098	5,49	
	53113	0,48	
	89169	1,37	
	97467	0,76	
	135213	6,67	
	141712	10,66	
	156104	2,33	
11	56170	3,21	177
	160779	2,52	

Как видно из представленных данных, МЭ отклик образцов в форме диска в среднем превышает значения, наблюдаемые на прямоугольных образцах.

Увеличение толщины слоя магнитостриктора отрицательно сказывается на значении МЭ эффекта. Следует отметить, что при увеличении толщины феррита на дискообразных образцах пропадают резонансы МЭ отклика в низкочастотной области.

Целью второго этапа исследований стало изучение влияния конфигурации слоев на поведение МЭ отклика. Для этого были изготовлены двухслойные композиты с двумя разными марками ферритов, а затем к образцам №3 и №5 было добавлено еще по одному слою магнитостриктора. Дополнительной задачей на данном этапе стало определение технологии склеивания слоев, способной обеспечить максимальные МЭ свойства композитов. В качестве объектов исследований были выбраны клей БФ-2 (образцы №4, 6) и эпоксидный клей (образцы №3, 5). Результаты исследований МЭ отклика в поле 1,54 Э представлены в табл. 7.

Таблица 7. МЭ отклик образцов №3, 4, 5 и 6 в модулирующем поле 1,54 Э

Образец №3		Образец №4		Образец №5		Образец №6	
Частота, Гц	α_E , В/(см Э)	Частота, Гц	α_E , В/(см Э)	Частота, Гц	α_E , В/(см Э)	Частота, Гц	α_E , В/(см Э)
280,635	0,46	285,11	0,55	148,862	0,27	246,956	0,29
427,64	0,53	3841	0,92	270,987	0,46	382,797	0,33
3686,94	1,28	5172	2,75	299,49	0,69	615,1	0,31
13131,7	1,56	11538	0,87	3579	1,03	3103	0,8
17366,6	0,82	14736	1,83	6312	1,56	4307	0,66
24173,1	4,58	21315	0,82	10923	1,28	11404	0,87
28567,2	1,28	30857	2,66	15268	0,92	17018	0,55
144365	22,56	140489	6,35	21537	10,53	19411	1,19
		144334	7,05	29879	0,73	25327	0,87
				46793	1,14	133286	3,53
				144220	5,92	145563	5,64
				148194	7,76		
				190971	3,81		

Проведенные исследования показывают, что использование эпоксидного клея обеспечивает более высокие значения МЭ эффекта, чем БФ-2.

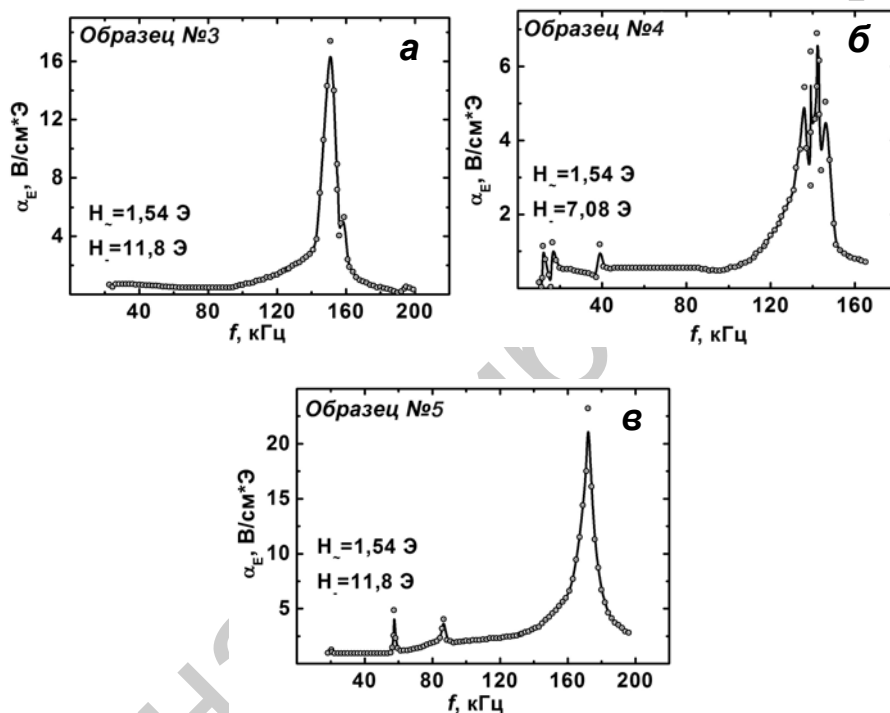
После добавления третьего слоя феррита к образцам №3 и 5 были исследованы амплитудно-частотные характеристики полученных композитов. Результаты исследований представлены на рис. 6 и в табл. 8.

Сопоставление результатов измерения МЭ отклика на трех и двухслойных композитах с НЦФ марки 1000НН не выявило значительных отличий. Наблюдается лишь исчезновение резонансных максимумов эффекта в низкочастотной области на композитах с двумя слоями магнитостриктора. Однако, при использовании НЦФ марки 2000НН на трехслойном композите обнаружено гигантское значение

МЭ эффекта $\alpha_E=25$ В/(см Э) вблизи резонансной частоты 173 кГц в постоянном поле 11,8 Э.

Т а б л и ц а 8. Магнитоэлектрические коэффициенты трёхслойных образцов

Образец №3		Образец №5	
Частота, Гц	α_E , В/(см Э)	Частота, Гц	α_E , В/(см Э)
22169	0,87	56988	0,92
26580	0,69	58159	4,58
35391	0,69	58984	0,92
153486	19,08	86828	3,66
193507	0,46	89915	1,83
		131748	2,75
		173319	24,89
		194331	2,75



Р и с . 6. Амплитудночастотные характеристики композитов НЦФ-ЦТС-НЦФ (1000НН) (а), НЦФ-ЦТС (1000НН) (б), НЦФ-ЦТС-НЦФ (2000НН) (в) в модулирующем переменном поле $H = 1,54$ Э

Дополнительно было исследовано смещение резонансных частот МЭ отклика в зависимости от прикладываемого постоянного магнитного поля. Результаты измерений представлены на рис. 7.

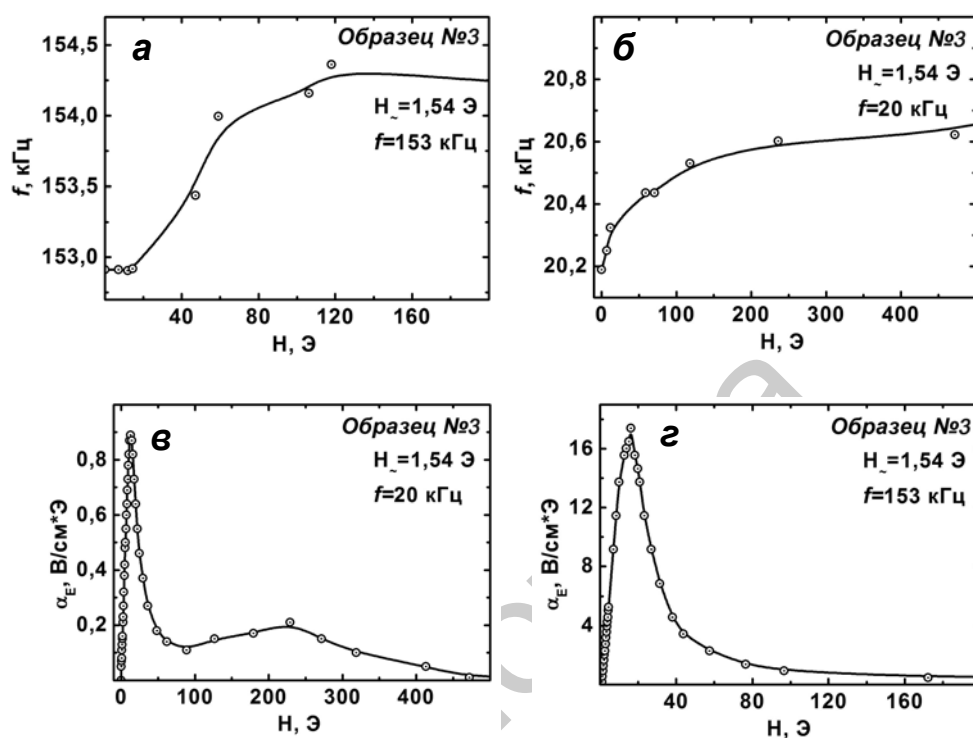


Рис. 7. Полевые зависимости смещения резонансных частот (а, б) и полевые зависимости МЭ отклика (в, з) для трехслойного композита ЦТС-НЦФ (1000НН)

Из графиков видно, что при наложении постоянного магнитного поля резонансы МЭ отклика смещаются незначительно. Сопоставление полевых зависимостей МЭ коэффициента и резонансной частоты показывает, что максимальное изменение последней наблюдается в интервале полей, где происходит уменьшение МЭ эффекта.

Выводы. В ходе проведенных исследований были определены значения магнитоэлектрического коэффициента для слоистых гетероструктур со слоями ЦТС, никель-цинкового феррита двух марок 1000НН и 2000НН и Терфенола-Д. Установлено, что увеличение толщины магнитоэлектрика от 0,35мм до 3,5 мм отрицательно сказывается на величине МЭ эффекта. Сравнительный анализ результатов измерения на образцах разной формы показывает, что МЭ эффект для дисков в 2,5 раза больше, чем на прямоугольных

гетероструктурах. Обнаружены гигантские значения МЭ коэффициента $\alpha_E = 25$ В/(см Э) на трехслойном композите НЦФ-ЦТС-НЦФ (2000НН) вблизи резонансной частоты 173 кГц в постоянном поле 11,8 Э.

Работа выполнена при поддержке программы Министерства образования и науки РФ «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009 – 2013 годы.

Список литературы

1. Фетисов Ю.К. Магнитоэлектрический эффект в многослойных структурах ферромагнетик–пьезоэлектрик и его применения в электронике // Изв. РАН. Сер. Физ. 2007. Т. 71, № 11. С. 1667–1669.
2. Nan C.-W., Bichurin M.I., Dong S., Viehland D., Srinivasan G. Multiferroic magnetoelectric composites: Historical perspective, status, and future directions // J. Appl. Phys. 2008. V. 103. P. 031101.
3. Буш А.А., Шкуратов В.Я., Черных И.А., Фетисов Ю.К. Тостопленочные слоистые композитные структуры цирконат-титанат свинца-феррит никеля-цинка: получение методом сеткотрафаретной печати и магнитоэлектрические свойства // Журн. техн. физ. 2010. Т. 80, №3. С. 69–76.
4. Fetisov Y.K., Bush A.A, Kamentsev K.E., Srinivasan G. Pyroelectric effect in magnetoelectric multilayer composites // Solid State Commun. 2004. V. 132. P. 319–324.
5. Бичурин М.И., Петров В.М., Аверкин С.В., Филиппов А.В. Электромеханический резонанс в магнитоэлектрических слоистых структурах // ФТТ. 2010. Т. 52, №10. С. 1975–1980.
6. Буш А.А., Каменцев К.Е., Мещеряков В.Ф. Фетисов Ю.К., Чашин Д.В., Фетисов Л.Ю. Низкочастотный магнитоэлектрический эффект в композитной планарной структуре галфенол-цирконат-титанат свинца // ЖТФ. 2009. Т. 79, № 9. С. 71–77.
7. Рабкин Л.И., Соскин С.А., Эпштейн Б.Ш. Ферриты // М.: Энергия, 1968, с. 381.
8. Остащенко А.Ю., Преображенский В.Л., Pernod P. Магнитоэлектрический эффект в асимметричной слоистой структуре магнетик-пьезоэлектрик. // ФТТ. 2008. Т. 50, вып. 3. С. 446.
9. Филиппов Д.А., Бичурин М.А., Петров В.М., Поддубная Н.Н., Srinivasan G. Гигантский магнитоэлектрический эффект в композиционных материалах в области электромеханического резонанса // Письма в ЖТФ. 2004. Т. 30, №1. С. 15–20.

MAGNETOELECTRIC RESPONSE OF HETEROGENEOUS LAMINATED PZT– NICKEL-ZINC FERRITE – TERFENOL STRUCTURES

A. A. Bogomolov¹, A. V. Solnyshkin¹, D. Yu. Karpenkov¹,
A. Yu. Karpenkov¹, V. A. Golovnin², A. G. Pastushenkov¹

¹ Tver State University, *Chair of magnetism*

² Research Institute «ELPA», *Zelenograd*

The results of experimental study of magnetoelectric (ME) properties of laminated heterostructures LZT-46/Ni-Zn ferrites of two types (1000HH and 2000HH) are given. The dependence of the magnetoelectric response on the layer configuration, shape and thickness is examined. It is shown that the thickness increase from 0.35 to 3.5 mm has a negative effect on the ME response. Comparative analysis of the measurement results for the samples of different shape shows that the ME effect in disk-shaped samples is by a factor of 2.5 larger than in rectangular-shaped heterostructures.

Keywords: *magnetoelectric effect, piezoceramics, magnetostrictive materials, composite materials, layered heterostructures*

Об авторах:

БОГОМОЛОВ Алексей Алексеевич – доктор физико-математических наук, профессор кафедры физики сегнето- и пьезоэлектриков, *e-mail:* Alexsey.Bogomolov@tversu.ru;

СОЛНЫШКИН Александр Валентинович – кандидат физико-математических наук, доцент кафедры физики сегнето- и пьезоэлектриков, *e-mail:* a.solnyshkin@mail.ru;

КАРПЕНКОВ Дмитрий Юрьевич – аспирант кафедры магнетизма ТвГУ;

КАРПЕНКОВ Алексей Юрьевич – аспирант кафедры магнетизма ТвГУ;

ГОЛОВНИН Владимир Алексеевич – кандидат физ.-мат. наук, начальник лаборатории ОАО НИИ "ЭЛПА", *e-mail:* golovnin41@rambler.ru;

ПАСТУШЕНКОВ Александр Григорьевич – кандидат физ.-мат. наук, доцент кафедры магнетизма ТвГУ, *e-mail:* Aleksander.Pastushenkov@tversu.ru.