УДК 537.9

МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ В СЛОИСТЫХ СТРУКТУРАХ СОСТАВА Ni/AIN/Ni И Ni/GaN/Ni

О.В.Соколов, Р.В.Петров*, К.Тониш**, Х.Тёпфер**

MAGNETOELECTRIC EFFECT IN LAYERED STRUCTURES OF Ni/AIN/Ni AND Ni/GaN/Ni

O.V.Sokolov, R.V.Petrov*, K.Tonisch**, H.Töpfer**

ЗАО «ЭЛСИ», Великий Новгород, o-v-sokolov@mail.ru *Институт электронных и информационных систем НовГУ **Технический университет Ильменау, Германия

Магнитоэлектрические композиты характеризуются наличием гигантского магнитоэлектрического эффекта, в отличие от известных однофазных структур. Исследования магнитоэлектрических композитов открыли широкие возможности для создания различных датчиков, трансформаторов и сверхвысокочастотных устройств. В данной статье проводится теоретическое исследование использования в качестве пьезоэлектрической фазы композитов нитрида алюминия и нитрида галлия. Даны рекомендации по выбору оптимального отношения толщин магнитострикционной и пьезоэлектрической фаз композита для получения максимального магнитоэлектрического коэффициента по напряжению.

Ключевые слова: магнитоэлектрический эффект, нитрид алюминия, нитрид галлия, продольные деформации

Magnetoelectric composites are known to enable the achievement of magnetoelectric voltage coefficients many orders of magnitude larger than previously reported values for single phase materials. The advancements have opened up many possibilities in applications of sensors, transformers, and microwave devices. This article studies the use of aluminum nitride and gallium nitride composites as a piezoelectric phase. Some recommendations on choosing the optimal ratio of the thickness of the composite magnetostrictive and piezoelectric phases for maximum magnetoelectric voltage coefficient are outlined.

Keywords: magnetoelectric effect, aluminum nitride, gallium nitride, longitudinal deformation

Введение

В двухфазных магнитострикционно-пьезоэлектрических структурах наблюдается МЭ эффект, заключающийся в индуцировании электрического (магнитного) поля при помещении образца во внешнее магнитное (электрическое) поле. Этот эффект является результатом механического взаимодействия магнитострикционной и пьезоэлектрических фаз [1-3]. В таких системах наблюдаются два типа МЭ эффекта.

1. Прямой МЭ эффект, заключающийся в появлении механических деформаций магнитострикционной фазы в переменном магнитном поле δH , которая связана с пьезоэлектрической фазой, в результате чего индуцируется электрическое поле δE вследствие пьезоэлектрического эффекта. МЭ коэффициент по напряжению $\alpha_E = \delta E/\delta H$ характеризует величину МЭ эффекта.

2. Обратный МЭ эффект, заключающийся в появлении механических деформаций пьезоэлектрической фазы под действием переменного электрического поля, которые передаются в магнитострикционную фазу и порождают индуцированное магнитное поле.

Сильные прямой и обратный МЭ эффекты наблюдались в композитах, где в качестве магнитострикционной фазы брались ферриты, манганиты, ферромагнитные металлы или сплавы, а в качестве пьезоэлектрической — титанат бария, цирконат титаната свинца (ЦТС), ниобат свинца-магния титанат свинца (PMN-PT), ниобат свинца-цинка титанат свинца (PZN-PT), поливинилиденфторид [1-5].

Использование указанных пьезоэлектриков позволяет получить сильный МЭ эффект благодаря большой величине пьезоэлектрического модуля d. Однако с точки зрения использования в приборах функциональной электроники композиционные материалы и структуры на основе сегнетоэлектриков имеют ряд недостатков, к которым относятся значительные потери на гистерезис, пироэлектрические эффекты, температурная зависимость параметров. Монокристаллические пьезоэлектрики могут обладать высокими значениями коэффициента электромеханической связи и практически не зависящей от температуры частотой электромеханического резонанса (ЭМР). МЭ коэффициент слоистых структур в значительной мере определяется отношением d/ɛ, где є — относительная диэлектрическая проницаемость пьезоэлектрика. Поэтому в последнее время возрос интерес к пьезоэлектрикам со значением d/ε , сравнимым по величине с традиционными пьезоэлектрическими материалами. В частности, наблюдался сильный МЭ эффект в структурах на основе AlN [6], танталата лантана галлия (ЛГТ) [7], кварца [8], арсенида галлия [9]. В области электромеханического резонанса наблюдается значительное увеличение МЭ коэффициента, поскольку МЭ эффект в композиционных материалах обусловлен механическим взаимодействием пьезоэлектрической и магнитострикционной фаз [1-2].

Также AlN, GaN и SiC рассматривались в качестве перспективных материалов для проектирования микро- и нано-электромеханических резонаторов для дальнейшего использования в различных датчиках [10]. Изучалось возбуждение изгибных и продольных колебаний в резонаторах различных конструкций при помощи воздействия постоянного магнитного поля на протекающий электрический ток либо при помощи приложения к резонатору переменного электрического напряжения.



Рис.1. Трехслойная структура Ni—пьезоэлектрик—Ni

В данной работе рассматривается возбуждение продольных колебаний в слоистых структурах состава Ni/AlN/Ni и Ni/GaN/Ni с помощью МЭ эффекта путем воздействия переменного магнитного поля при наличии постоянного магнитного поля. При этом исследование МЭ эффекта целесообразно проводить на частотах более 100 кГц для уменьшения потерь, связанных с конечным удельным электрическим сопротивлением нитрида алюминия и нитрида галлия [9]. Для того чтобы избежать необходимости рассматривать наряду с продольными изгибные колебания, структуры должны изготавливаться трехслойными, симметричными по высоте (рис.1).

Теоретическое моделирование магнитоэлектрического эффекта

Известно, что величина МЭ коэффициента по напряжению для слоистой структуры определяется произведением пьезоэлектрического коэффициента пьезоэлектрика и псевдопьезомагнитного коэффициента магнитострикционного слоя. Кристаллическая структура нитрида алюминия и нитрида галлия обладает симметрией $C_{6v}^4 - P6_3mc$. Компоненты тензора жесткости и пьезоэлектрического тензора, а также плотности и относительной диэлектрической проницаемости нитрида алюминия и нитрида галлия указаны в таблице.

Физические константы Ану и бату		
	AlN	GaN
Плотность, кг/м ³	3255	6150
$c_{11}, \frac{\mathrm{K}\Gamma}{\mathrm{M}\cdot\mathrm{c}^2}$	4,1·10 ¹¹	3,9·10 ¹¹
$c_{12}, \frac{\mathrm{K}\Gamma}{\mathrm{M}\cdot\mathrm{c}^2}$	1,49·10 ¹¹	1,45·10 ¹¹
$c_{13}, \frac{\mathrm{K}\Gamma}{\mathrm{M}\cdot\mathrm{c}^2}$	0,99·10 ¹¹	1,06·10 ¹¹
$c_{33}, \frac{\mathrm{K}\Gamma}{\mathrm{M}\cdot\mathrm{c}^2}$	3,89·10 ¹¹	3,98·10 ¹¹
$C_{44}, \frac{\mathrm{K}\Gamma}{\mathrm{M}\cdot\mathrm{c}^2}$	1,25·10 ¹¹	1,05·10 ¹¹
Относительная диэлектрическая проницаемость	8,5	8,9
$e_{31}, \frac{K\pi}{M^2}$	-0,58	-0,33
$e_{33}, \frac{K\pi}{M^2}$	1,55	0,65
$e_{24}, \frac{K\pi}{M^2}$	-0,48	-0,30

Φυριμιοςκμο κομοτριστι ΛIN μ CoN

Компоненты тензора податливости пьезоэлектрика находятся через компоненты тензора жесткости следующим образом

$${}^{p}s_{11}^{0} = \frac{{}^{p}c_{11}{}^{p}c_{33}{}^{-p}c_{13}^{2}}{\left({}^{p}c_{11}{}^{-p}c_{12}\right)\left({}^{p}c_{11}{}^{p}c_{33}{}^{+p}c_{12}{}^{p}c_{33}{}^{-2}{}^{p}c_{13}^{2}\right)},$$

$${}^{p}s_{12}^{0} = \frac{{}^{p}c_{13}^{2}{}^{-p}c_{12}{}^{p}c_{33}}{\left({}^{p}c_{11}{}^{-p}c_{12}\right)\left({}^{p}c_{11}{}^{p}c_{33}{}^{+p}c_{12}{}^{p}c_{33}{}^{-2}{}^{p}c_{13}^{2}\right)},$$

$${}^{p}s_{13}^{0} = \frac{{}^{-p}c_{13}}{{}^{p}c_{11}{}^{p}c_{33}{}^{+p}c_{12}{}^{p}c_{33}{}^{-2}{}^{p}c_{13}^{2}},$$

$${}^{p}s_{33}^{0} = \frac{{}^{p}c_{11}{}^{+p}c_{12}{}^{p}c_{33}{}^{-2}{}^{p}c_{13}^{2}},$$

$${}^{p}s_{44}^{0} = \frac{1}{{}^{p}c_{44}}.$$

$$(1)$$

Компоненты пьезоэлектрического тензора *d*⁰ находятся по известной формуле

$$d_{mik}^0 = s_{ikjl}^0 e_{mjl}.$$
 (2)

Отличные от нуля компоненты

$$d_{31}^{0} = d_{32}^{0} = ({}^{p}s_{11}^{0} + {}^{p}s_{12}^{0})e_{31} + {}^{p}s_{13}^{0}e_{33},$$

$$d_{33}^{0} = 2{}^{p}s_{13}^{0}e_{31} + {}^{p}s_{33}^{0}e_{33},$$

$$d_{24}^{0} = d_{15}^{0} = {}^{p}s_{44}^{0}e_{24}.$$
(3)

Для никеля использовались следующие значения

физических констант: ${}^{m}\rho = 8902 \frac{\mathrm{Kr}}{\mathrm{M}^{3}}, {}^{m}s_{11} = 20 \cdot 10^{-12} \frac{\mathrm{M}^{2}}{\mathrm{H}},$

 $q_{11} = -4.14 \cdot 10^{-9} \, \frac{\mathrm{M}}{\mathrm{A}}.$

Рассмотрим образец в форме тонкой узкой пластинки, имеющей длину l = 50 мкм, ширину b < l, толщины слоя пьезоэлектрика ${}^{p}t = 500$ нм, а каждого

слоя никеля — ${}^{m}t = 100$ нм. Слой пьезоэлектрика лежит в плоскости (0001). Внешнее магнитное поле направлено вдоль длины пластинки. Ось 1', направленная вдоль длины пластинки, образует угол θ с осью [1000]. В этом случае единственной отличной от нуля компонентой тензора механических напряжений является $T_{1'1'}$, и может быть использована одномерная модель для механических деформаций.

При переходе от стандартной кристаллографической системы координат (1, 2, 3) к другой системе координат (1', 2', 3') компоненты тензора пьезоэлектрических коэффициентов преобразуются следующим образом:

$$d_{i'j'k'} = \beta_{i'l}\beta_{j'm}\beta_{k'n}d_{lmn}, \qquad (4)$$

где β — матрица направляющих косинусов осей 1', 2', 3' относительно осей 1, 2, 3.

Аналогично пьезоэлектрическим коэффициентам преобразуются компоненты тензора податливости

$$s_{i'j'k'p'} = \beta_{i'l}\beta_{j'm}\beta_{k'n}\beta_{p'u}s_{lmnu}.$$
(5)

Электрическое поле, индуцированное в пьезоэлектрическом слое вдоль оси 3', в соответствии законом Гука связано с деформацией:

$${}^{P}S_{1} = d_{31}E_{3} + {}^{p}S_{11}{}^{p}T_{1}.$$
 (6)

В этом выражении опущены штрихи в индексах компонентов векторов и тензоров.

Пьезоэлектрический модуль d_{31} можно выразить через исходные модули кристалла, используя формулу (4). Матрица направляющих косинусов для рассматриваемой плоскости образца равна

$$\beta = \begin{pmatrix} \cos\theta & -\sin\theta & 0\\ \sin\theta & \cos\theta & 0\\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}.$$
 (7)

Подстановка (7) в (4) дает

 $d_{31} = d_{31}^0$

Подстановка (7) в (5) дает

$${}^{p}s_{11} = \left(1 - \frac{1}{2}\sin^{2}(2\theta)\right)^{p}s_{11}^{0} + \frac{1}{4}\sin^{2}(2\theta)\left({}^{p}s_{44}^{0} + 2{}^{p}s_{12}^{0}\right)$$

Для получения выражения для МЭ коэффициента по напряжению необходимо найти механическое напряжение в пьезоэлектрическом слое на основе решения уравнения движения среды для двухфазной магнитострикционно-пьезоэлектрической структуры:

$$\overline{\rho} \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = {}^p V \frac{\partial^p T_{ij}}{\partial x_j} + {}^m V \frac{\partial^m T_{ij}}{\partial x_j}, \tag{9}$$

где u_i — смещение композита, $\overline{\rho} = {}^{p}V^{p}\rho + {}^{m}V^{m}\rho$ — средняя плотность вещества композита, ${}^{p}V$ — объемная доля пьезоэлектрика, ${}^{m}V$ — объемная доля никеля, ${}^{p}\rho$, ${}^{m}\rho$, ${}^{p}T_{ij}$ и ${}^{m}T_{ij}$ — плотности и компоненты тензора напряжений пьезоэлектрической и ферромагнитной составляющих соответственно. Граничные условия заключаются в приравнивании нулю суммарной силы, действующей на образец. Подстановка найденного механического напряжения в условие разомкнутой электрической цепи приводит к выражению для МЭ коэффициента по напряжению

$$\alpha_{E} = -\frac{{}^{m}V{}^{p}Vq_{11}d_{31}{}^{p}s_{11}\tan(\eta)}{{}^{m}s_{11}\left(\epsilon\epsilon_{0}{}^{p}s_{11}^{2}c_{11}\eta + d_{31}^{2}\left[\tan(\eta) - c_{11}{}^{p}s_{11}\eta\right]\right)}, \quad (10)$$
где $k = \sqrt{\frac{\overline{\rho}}{c_{11}}}\omega$ — волновое число, $c_{11} = \frac{{}^{p}V}{{}^{p}s_{11}} + \frac{{}^{m}V}{{}^{m}s_{11}}$ —
эффективный коэффициент жесткости композита,

 $\eta = \frac{kl}{2}$.

Часто вторым слагаемым в знаменателе (10) можно пренебречь, тогда формула для магнитоэлектрического коэффициента по напряжению принимает более простой вид

$$\alpha_{E} = -\frac{{}^{m}V^{p}Vq_{11}d_{31}\tan(\eta)}{{}^{m}s_{11}{}^{p}s_{11}\varepsilon\varepsilon_{0}c_{11}\eta}.$$
 (11)

Учет этого слагаемого приводит к небольшому сдвигу резонансной частоты, при котором магнитоэлектрический коэффициент имеет максимум, но не изменяет само максимальное значение магнитоэлектрического коэффициента.

Результаты расчета частотной зависимости магнитоэлектрического коэффициента по напряжению для $\theta = 0^{\circ}$ для слоистых структур Ni/AlN/Ni и Ni/GaN/Ni приведены на рис.2. Для учета потерь при расчете положено $\omega = 2\pi \left(1 + \frac{i}{2 \cdot 100}\right) f$.



Рис.2. Зависимость МЭ коэффициента по напряжению от частоты переменного магнитного поля для θ = 0°: сплошная линия — AIN, прерывистая — GaN

Основная резонансная несдвинутая частота находится из условия $\eta = \frac{\pi}{2}$:

$$f_{\rm pes} = \frac{1}{2l} \sqrt{\frac{c_{11}}{\rho}}.$$
 (12)

Если подставить резонансную частоту в формулу для МЭ-коэффициента, то получится зависимость максимума МЭ-коэффициента от угла θ . Эта зависимость представлена на рис.3.

(8)



Рис.3. Зависимость максимального значения МЭ коэффициента по напряжению на частоте ЭМР от угла θ: сплошная линия — AIN, прерывистая — GaN

Видно, что зависимость довольно слабая, максимум достигается при $\theta = 0$.

Попробуем теперь получить оптимальное соотношение между толщинами слоев ферромагнетика и пьезоэлектрика. Для этого положим $\theta = 0^{\circ}$ и учтем, что ${}^{m}V = 1 - {}^{p}V$.

Ниже на рис.4 представлена зависимость МЭ-коэффициента от ${}^{p}V$.



Рис.4. Зависимость максимального значения МЭкоэффициента от объемной доли пьезоэлектрика: сплошная линия — AIN, прерывистая — GaN

Максимум для AlN достигается при ${}^{p}V = 0,276$.

Соответственно, если мы хотим сделать трехслойную симметричную по высоте структуру, в которой толщина слоя нитрида алюминия 500 нм, то нужны будут два слоя никеля толщиной 656 нм каждый. Максимум для GaN достигается при ${}^{p}V = 0,282$.

Соответственно, если мы хотим сделать трехслойную симметричную по высоте структуру, в которой толщина слоя нитрида галлия 500 нм, то нужны будут два слоя никеля толщиной 637 нм каждый.

Ниже на рис.5 показана зависимость МЭ-коэффициента по напряжению от частоты переменного магнитного поля f, Гц, при $\theta = 0^{\circ}$ в таких структурах.



Рис.5. Зависимость МЭ коэффициента по напряжению от частоты переменного магнитного поля для $\theta = 0^{\circ}$: ${}^{\rho}V = 0,276$ — сплошная линия AIN, ${}^{\rho}V = 0,282$ — прерывистая линия GaN

Заключение

В данной работе рассмотрен МЭ эффект в слоистых структурах на основе магнитострикционного металла никеля и монокристаллических нитридов алюминия и галлия. Предложена теоретическая модель МЭ эффекта в области ЭМР. При этом размеры образцов таковы, что частота ЭМР находится в пределах десятков МГц, и потери, связанные с конечным удельным электрическим сопротивлением нитридов алюминия и галлия, становятся малыми. Добротность продольной моды ЭМР ожидается порядка 10². Расчеты выполнены для образцов, лежащих в кристаллографической плоскости (0001). Максимальный МЭ эффект наблюдается при условии, что направление длины образца параллельно оси [1000]. Найдены оптимальные отношения толщин магнитострикционной и пьезоэлектрической фаз, при которых МЭ эффект максимален. Показано, что при прочих равных условиях МЭ коэффициент по напряжению при использовании нитрида алюминия почти в 2 раза больше, чем при использовании нитрида галлия. Результаты работы могут быть использованы при разработке устройств функциональной электроники на основе МЭ эффекта с учетом того, что монокристаллические нитрилы алюминия и галлия обладают большим значением d/ε и практически не зависящей от температуры частотой ЭМР.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства образования и науки РФ в рамках государственного заказа (грант N1639).

- Nan C.W., Bichurin M.I., Dong S.X. et al. Multiferroic magnetoelectric composites: Historical perspective, status, and future directions // Appl. Phys. 2008. V.103. P.031101.
- Bichurin M.I., Petrov V.M. Modeling of Magnetoelectric Effects in Composites // Springer Series in Materials Science 2014. V.201. 108 p.
- Ma J., Hu J., Li Z., Nan C.W. Recent Progress in Multiferroic Magnetoelectric Composites: from Bulk to Thin Films // Adv. Mater. 2011. V.23. P.1062-1087.
- Wang J., Gray D., Barry D. et al. An Extremely Low Equivalent Magnetic Noise Magnetoelectric Sensor // Adv. Mater. 2011. V.23. P.4111.
- Onuta T., Wang Y., Long C.J., Takeuchi I. Energy harvesting properties of all-thin-film multiferroic cantilevers // Appl. Phys. Lett. 2011. V.99. P.203506.
- Lage E., Kirchhof Ch., Hrkac V. et al. Exchange biasing of magnetoelectric composites // Nature Materials. 2012. V.11. P.523-529. doi: 10.1038/nmat3306.
- Bichurin M.I., Petrov R.V., Petrov V.M. Magnetoelectric effect at thickness shear mode in ferrite-piezoelectric bilayer // Appl. Phys. Lett. 2013. V.103. P.092902.
- Sreenivasulu G., Petrov V.M., Fetisov L.Y. et al. Magnetoelectric Interactions in Layered Composites of Piezoelectric Quartz and Magnetostrictive Alloys // Phys. Rev. B. 2012. V.86. P.214405.
- Лалетин В.М., Стогний А.И., Новицкий Н.Н., Поддубная Н.Н. Магнитоэлектрический эффект в структурах на основе металлизированных подложек арсенида галлия // Письма в ЖТФ. 2014. Т.40. №21. С.71-78.
- Brueckner K., Niebelschuetz F., Tonisch K. et al. Micro- and nano-electromechanical resonators based on SiC and group III-nitrides for sensor applications // Phys. Status Solidi A. 2010. P.1-20. doi: 10.1002/pssa.201026343.

References

1. Nan C.W., Bichurin M.I., Dong S.X., Viehland D., Srinivasan G. Multiferroic magnetoelectric composites: Historical perspective, status, and future directions. Journal of Applied Physics, 2008, vol. 103, p. 031101. (doi: http://dx.doi.org/10.1063/1.2836410.)

- Bichurin M.I., Petrov V.M. Modeling of magnetoelectric effects in composites. Springer Series in Materials Science, 2014, vol. 201. 108 p.
- Ma J., Hu J., Li Z., Nan C.W. Recent progress in multiferroic magnetoelectric composites: from bulk to thin films. Advanced Materials, 2011, vol. 23, pp. 1062-1087.
- 4. Wang J., Gray D., Barry D., Gao J., Li M., Li J., Viehland D. An extremely low equivalent magnetic noise magnetoelectric sensor. Advanced Materials, 2011, vol. 23, pp. 4111-4114.
- Onuta T., Wang Y., Long C.J., Takeuchi I. Energy harvesting properties of all-thin-film multiferroic cantilevers. Applied Physics Letters, 2011, vol. 99, p. 203506. (doi: http://dx.doi.org/10.1063/1.3662037.)
- Lage E., Kirchhof Ch., Hrkac V., Kienle L., Jahns R., Knöchel R., Quandt E., Meyners D. Exchange biasing of magnetoelectric composites. Nature Materials, 2012, vol. 11, pp. 523-529. doi: 10.1038/nmat3306.
- Bichurin M.I., Petrov R.V., Petrov V.M. Magnetoelectric effect at thickness shear mode in ferrite-piezoelectric bilayer. Applied Physics Letters, 2013, vol. 103, p. 092902.
- Sreenivasulu G., Petrov V.M., Fetisov L.Y., Fetisov Y.K., Srinivasan G. Magnetoelectric interactions in layered composites of piezoelectric quartz and magnetostrictive alloys. Physical Review B, 2012, vol. 86, p. 214405.
- Laletin V.M., Stognii A.I., Novitskii N.N., Poddubnaia N.N. Magnitoelektricheskii effekt v strukturakh na osnove metallizirovannykh podlozhek arsenida galliia [The magnetoelectric effect in structures based on metalized gallium arsenide substrates]. Pis'ma v Zhurnal tekhnicheskoi fiziki (Pis'ma v ZhTF) – Technical Physics Letters, 2014, vol. 40, no. 11, pp. 969-971.
- Brueckner K., Niebelschuetz F., Tonisch K., Foerster Ch., Cimalla V., Stephan R., Pezoldt J., Stauden T., Ambacher O., Hein M.A. Micro- and nano-electromechanical resonators based on SiC and group III-nitrides for sensor applications. Physica Status Solidi A, 2010, pp. 1-20. doi: 10.1002/pssa.201026343.