Магнитоэлектрические многослойные структуры арсенид галлия — никель — олово — никель

Д. А. Филиппов, И. Н. Маничева, В. М. Лалетин

Рассмотрена технология изготовления, приведены результаты теоретического и экспериментального исследования магнитоэлектрического эффекта в многослойной структуре, полученной методом гальванического осаждения чередующихся слоев никеля и олова на подложку из арсенида галлия. Экспериментально установлено, что использование олова в качестве промежуточного слоя многослойной структуры уменьшает механические напряжения, возникающие вследствие несоответствия параметров решеток на границе никель-арсенид галлия, что позволяет получать качественные многослойные структуры с толщиной никелевого слоя порядка 100 мкм. На основе совместного решения уравнений эластодинамики и электростатики для магнитострикционного, пьезоэлектрического и буферного слоев получено выражение для магнитоэлектрического коэффициента по напряжению. Теоретически показано и экспериментально подтверждено, что частотная зависимость магнитоэлектрического коэффициента имеет резонансный характер, причем величина резонансной частоты с ростом числа слоев плавно уменьшается от значения, соответствующего частоте собственных колебаний пластинки из арсенида галлия, приближаясь к значению, соответствующей частоте собственных колебаний пластинки, состоящей из слоя никеля и олова, толщина которого равна удвоенной толщине слоя никеля. Экспериментально установлено, что в области электромеханического резонанса они ? (полученные структуры?) имеют высокую добротность Q ≅ 1000, которая более чем в 20 раз превосходит добротность магнитоэлектрических структур, изготовленных методом склеивания, и обладают хорошей адгезией между слоями. Данные структуры перспективны для создания приборов на основе магнитоэлектрического эффекта.

Ключевые слова: магнитострикция, пьезоэлектричество, магнитоэлектрический эффект, арсенид галлия, никель, олово, адгезия, гальваническое осаждение.

DOI: 10.30791/1028-978X-2019-8-??-??

Введение

Магнитоэлектрический (МЭ) эффект заключается в изменении поляризации образца во внешнем магнитном поле, что приводит к возникновению электрического напряжения между обкладками образца. В последнее время МЭ привлекает к себе все более пристальное внимание исследователей [1]. Это связано с тем, что на его основе можно создавать приборы нового поколения, такие как гираторы [2], магнитоэлектрические датчики тока [3], трансформаторы напряжения, имеющие всего одну обмотку [4], магнитоэлектрические СВЧ аттенюаторы [5], индуктивности, перестраиваемые электрическим полем [6,7] и другие приборы. Интерес к изучению МЭ эффекта в магнитострикционно-пьезоэлектрических структурах связан с тем, что величина эффекта в этих материалах на несколько порядков превышает его величину в монокристаллах. Это объясняется тем, что механизм возникновения МЭ эффекта в композиционных материалах принципиально отличается от его возникновения в монокристаллах. Микроскопический механизм возникновения МЭ эффекта в монокристаллах обусловлен совместным действием спин-орбитального взаимодействия, взаимодействия электрона с внешним электрическим полем и внутрикристаллическим полем (полем лигандов) [8]. Спин-орбитальное взаимодействие является квантовым релятивистским эффектом, чем и обусловлена малость величины МЭ эффекта в монокристаллах. В отличие от монокристаллов, в композиционных материалах механизмом возникновения МЭ эффекта является механическое взаимодействие магнитострикционной и пьезоэлектрической систем. Переменное магнитное поле, вследствие магнитострикции, вызывает в магнетике механические деформации. Эти деформации передаются через границу раздела в пьезоэлектрик, приводя к изменению поляризации образца и возникновению электрического напряжения между обкладками. Схематично МЭ эффект в магнитострикционно-пьезоэлектрических структурах можно представить в виде произведения "магнитострикции на пьезоэлектричество".

По технологии изготовления МЭ композиты принято делить на объемные (bulk) композиты и слоистые (layered) структуры. Объемные композиционные материалы, полученные по керамической технологии, представляют собой спеченную смесь порошков магнитострикционной и пьезоэлектрической фаз [9]. Они просты в изготовлении, обладают хорошими механическими свойствами, но имеют большие токи утечки. Слоистые МЭ структуры, состоящие из чередующихся слоев магнетика и пьезоэлектрика [10], лучше поляризуются, обладают меньшими потерями, связанными с токами утечки, в качестве магнетика можно использовать металлы с большим коэффициентом магнитострикции [11 – 13]. Однако существенным недостатком слоистых структур является плохая механическая прочность, расслоение образцов по границам фаз, низкая добротность, поэтому актуальной задачей является изготовление структур с хорошим механическим сцеплением между фазами. Для изготовления слоистых МЭ структур используют методы: склеивания [11-13], напыления [14] и электролиза [15]. Большинство слоистых структур, полученных клеевым способом, имеют недостаточное механическое сцепление межслоевого соединения. Кроме того, наличие клеевого слоя приводит к значительному уменьшению МЭ эффекта [16]. Слоистые структуры, изготовленные методом напыления, обладают хорошей адгезией, но имеют небольшое значение МЭ эффекта. Это связано с тем, что для получения максимального значения МЭ эффекта необходимо соблюдение

равенства ${}^{p}t\sqrt{{}^{p}Y} = {}^{m}t\sqrt{{}^{m}Y}$ [17], где ${}^{p}Y, {}^{m}Y$ — модули Юнга пьезоэлектрической и магнитострикционной фаз, ${}^{p}t, {}^{m}t$ — их толщины. Поскольку модули Юнга магнетика и пьезоэлектрика обычно отличаются не более чем в два раза, то максимум эффекта наблюдается при толщине магнетика со-измеримой с толщиной пьезоэлектрика. При тол-

щине пьезоэлектрической подложки порядка сотен мкм методом напыления изготовить такие структуры невозможно. Использование технологии электролитического осаждения магнитострикционного металла на пьезоэлектрическую подложку позволяет получить слои магнетика, толщина которых соизмерима с толщиной пьезоэлектрика. Однако при получении слоев более 50 мкм наблюдается ухудшение адгезии между слоями. Чтобы улучшить адгезию между фазами при изготовлении использовали предварительное напыление подслоев Au – Ge – Ni на подложку из GaAs работе [15]. Однако вследствие несоответствия параметров решеток Ni и GaAs при больших толщинах слоев возникают механические напряжения, приводящие к короблению структуры и ее разрушению. Один из методов устранения этих напряжений, предложенный в данной работе, заключается в создании многослойной МЭ структуры, в которой электролитически осажденный слой никеля чередуется с электролитически осажденным слоем олова, выполняющим роль буферного слоя и снимающим механические напряжения. Олово является более пластичным материалом, чем никель. Модуль Юнга олова составляет $Y_{\rm Sn} = 35$ ГПа, модуль Юнга никеля — *Y*_{Ni} = 210 ГПа. Кроме того, олово является более экологически чистым металлом, по сравнению со свинцом, который тоже пластичен. Адгезия к арсениду галлия у олова лучше, чем у никеля. Вследствие этого, многослойные структуры, полученные электролитическим осаждением олова на подложку из арсенида галлия являются перспективными материалами для создания устройств на основе МЭ эффекта.

Цель данной работы — создание новых многослойных магнитострикционно-пьезоэлектрических структур в виде чередующихся слоев никеля и олова на подложке из арсенида галлия, методом электролитического осаждения; разработка математической модели МЭ взаимодействия в данных структурах и технологии их изготовления.

Технология изготовления структур

Исходные образцы в форме параллелепипеда с размерами $11 \times 5 \times 0,4$ мм вырезали из пластин GaAs с ориентацией поверхности (100), длинная сторона которых совпадала с направлением $\langle 011 \rangle$ кристалла (рис. 1).

При выборе материалов для изготовления слоистых структур в качестве пьезоэлектрической фазы обычно выбирают материалы с наибольшим значением пьезоэлектрического модуля *d*, к



- Рис. 1. Схематичное изображение структуры: *1* подложка из арсенида галлия, *2* слои никеля, *3* слои олова.
- Fig. 1. Schematic representation of the structure: 1 -gallium arsenide substrate, 2 -nickel layers, 3 -tin layers.

которым относится в частности, пьезокерамика цирконат-титанат свинца (ЦТС). Однако, как показывают расчеты [17], величина МЭ эффекта прямо пропорциональна величине пьезоэлектрического модуля и обратно пропорциональна значению диэлектрической проницаемости пьезоэлектрика. Величина пьезомодуля d у GaAs в 65 раз меньше, чем у ЦТС (GaAs — $d = -2,69 \cdot 10^{-12}$ м/В, ЦТС – $d = -175 \cdot 10^{-12}$ м/В), но величина его диэлектрической проницаемости в 135 раз меньше, чем у ЦТС (GaAs — $\varepsilon = 12,9$; ЦТС — $\varepsilon = 1750$). Отсюда следует, что при прочих равных условиях, величина МЭ эффекта в структурах на основе GaAs больше, чем в структурах на основе ЦТС. Кроме того, арсенид галлия является монокристаллом с более стабильными свойствами, в отличие от ЦТС, и не требует предварительной поляризации, что позволяет значительно упростить процесс изготовления структур. Для получения многослойной структуры поочерёдно использовали электролитическое

Таблица 1

Составы электролитов, использованные для создания структур

		Table 1
Compositions of electrolytes		
Компоненты электролита, г/л	Электролит 1	Электролит 2
Никель сернокислый	250	_
семиводный		
Никель хлористый	50	
шестиводный		
Борная кислота	25	
Олово сернокислое	_	60
Серная кислота		105
Препарат ОС-20	_	4,5

осаждение никеля в электролите 1 при катодной плотности тока 1 А/дм² и температуре электролита 55 – 65 °C, а затем электроосаждение олова в электролите 2 при комнатной температуре и катодной плотности тока 2 А/дм². В табл. 1 приведены составы электролитов, используемых для нанесения гальванических покрытий.

Олово является пассивным слоем и его наличие приводит к уменьшению величины эффекта, поэтому для получения максимального МЭ эффекта желательно делать структуры, у которых толщина слоя олова меньше, чем толщина активного никелевого слоя. Однако, как показали результаты многочисленных экспериментов, чем тоньше слой олова, тем хуже механическая прочность структуры. Во время проведения измерений в области электромеханического резонанса амплитуда колебаний резко возрастает, что приводит к росту механических напряжений, в результате чего происходит механическое разрушение образца. Экспериментально было установлено, что структуры с толщиной слоя никеля ${}^{m}t_{1} = 6$ мкм и толщиной слоя олова ${}^{l}t_{1} = 12$ мкм обладают хорошей адгезией между слоями. Для оценки прочности адгезии использовали метод отрыва клейкой ленты и метод скрайбирования. Для проведения испытаний были изготовлены 6 типов многослойных структур, состоящих из слоев никеля (4, 6, 8, 10, 12 и 14) и слоев олова (5, 7, 9, 11, 13 и 15) соответственно. После проведения измерений образцы не имели механических повреждений и не расслаивались, что указывало на наличие хорошей адгезии между слоями.

Теория магнитоэлектрического эффекта в сэндвич структуре

Модель структуры схематично представлена на рис. 2.

Структура состоит из пьезоэлектрической подложки l в форме параллелепипеда длиной L шириной W и толщиной pt, длинная сторона которого совпадает с направлением (011). На подложку с обеих сторон предварительно напылены подслои из золота и германия, на которые электролитическим способом осаждения нанесены N слоев никеля, толщиной mt_1 каждый и N + 1 слой олова, толщиной lt_1 каждый. Толщину подслоев будем считать пренебрежимо малой по сравнению с толщиной слоя олова и никеля и поэтому в дальнейшем их рассматривать не будем. Как уже отмечалось, в структуре возникают планарные и толщинные колебания. Характерные резонансные частоты для планарных колебаний определяются

Перспективные материалы 2019 № 8



- Рис. 2. Схематичное изображение модели многослойной структуры. Толщина магнетика ${}^{m}t = 2N^{m}t_{1}$, толщина буферного слоя ${}^{l}t_{1} = 2(N+1){}^{l}t_{1}$, N число магнитострикционных слоев.
- Fig. 2. Schematic representation of multilayer structure model. The total thickness of the magnetic layer ${}^{m}t = 2N^{m}t_{1}$, the total thickness of the buffer layer ${}^{l}t_{1}=2(N + 1){}^{l}t_{1}$, N—number of magnetostrictive layers.

длиной и шириной образца, для толщинных колебаний — толщиной образца. Будем считать образец длинным и узким, то есть L >> W, t. В этом случае частота резонанса для колебаний, распространяющихся по длине образца, будет много меньше частоты колебаний, распространяющихся по ширине и толщине образца и в первом приближении их можно рассматривать как независимые. Как уже отмечалось, при распространении колебаний по длине имеют место планарные колебания, связанные с однородной деформацией типа растяжение - сжатие, и изгибные колебания, связанные с деформациями типа изгиба. Возбуждение колебаний в структуре происходит в магнитострикционном слое и передается посредством касательных напряжений в пьезоэлектрический слой. Поскольку структура симметрична относительно пьезоэлектрика, то возбуждение колебаний в пьезоэлектрике будет осуществляться одновременно с обеих сторон со стороны? магнетика. Вследствие этого в такой структуре, в отличие от асимметричной, изгибные колебания возбуждаться не будут, и поэтому будем рассматревать только планарные колебания. Воспользуемся тем фактом, что толщина пьезоэлектрика, магнетика и буферного слоя много меньше длины образца, поэтому в первом приближении можно считать, что смещения слоев одинаковы и не изменяются по толщине образца. Таким образом, многослойную структуру можно рассматривать как "трехслойную" структуру "никель – олово" – подложка – "никель – олово". Данная структура также симметрична относительно центра пьезоэлектрика, поэтому такую структуру можно рассматривать как двухслойную структуру магнетик - пьезоэлектрик с удвоенной толщиной

магнетика. Таким образом, задача о многослойной структуре, представляющей собой сэндвич структуру, состоящую из чередующихся слоев олово – никель – олово ..., расположенных симметрично с обеих сторон на пьезоэлектрической подложке, сводится к задаче о структуре пьезоэлектрик – пассивный слой – магнетик с учетом только планарных колебаний.

Для нахождения МЭ коэффициента по напряжению сэндвич структуры воспользуемся методом, разработанным ранее для двухслойной структуры [18]. Поскольку толщина пьезоэлектрика, магнетика и буферного слоя много меньше длины образца, поэтому в первом приближении можно считать, что смещения слоев магнетика, буферного слоя и пьезоэлектрика вдоль длины образца одинаковы и не изменяются по толщине образца. В этом приближении уравнение движения для *z*-проекции вектора смещения среды запишем в виде:

$$\overline{\rho}\frac{\partial^2 u_z}{\partial t^2} = \frac{\partial \overline{T}_{zz}}{\partial z},\tag{1}$$

где $\overline{\rho} = \frac{{}^{m}\rho^{m}t + {}^{p}\rho^{p}t + {}^{l}\rho^{l}t}{{}^{m}t + {}^{p}t + {}^{l}t}$ — среднее значение

плотности образца, и $\overline{T}_{zz} = \frac{{}^m T_{zz} {}^m t + {}^p T_{zz} {}^p t + {}^l T_{zz} {}^l t}{{}^m t + {}^p t + {}^l t}$

— среднее значение тензора напряжений в образце, ${}^{m}t = N {}^{m}t_{1}$ — толщина слоя магнетика, ${}^{l}t = (N+1) {}^{l}t_{1}$ — толщина промежуточного слоя, N — число слоев магнетика.

Уравнения для компоненты тензора деформаций пьезоэлектрика ${}^{p}S_{zz}$ и магнетика ${}^{m}S_{zz}$, а также *x*-проекции вектора электрической индукции ${}^{p}D_{r}$ в этом приближении имеют вид:

$${}^{p}S_{zz} = \frac{1}{{}^{p}Y}{}^{p}T_{zz} + d_{x,zz}E_{x},$$
(2)

$${}^{m}S_{zz} = \frac{1}{{}^{m}Y}{}^{m}T_{zz} + q_{z,zz}H_{z},$$
(3)

$${}^{p}D_{x} = \varepsilon_{xx}E_{x} + d_{x,zz} \, {}^{p}T_{zz}, \qquad (4)$$

где ${}^{p}T_{zz}$, ${}^{m}T_{zz}$ — компоненты тензора напряжений пьезоэлектрической и магнитострикционной фаз; ${}^{p}Y$, ${}^{m}Y$ — модуль Юнга пьезоэлектрика и магнетика соответственно вдоль направления (011) (Z ось), $d_{x,zz}$ — пьезоэлектрический тензор в системе координат XYZ (рис. 1), ε_{xx} — тензор диэлектрической проницаемости $E_x - x$ компонента вектора напряженности электрического поля, $q_{x,zz}$ — пьезомагнитный коэффициент, H_z — напряженность магнитного поля. Компоненты пьезоэлектрического тензора ${}^{p}d_{x,zz}$ в системе координат *XYZ* связаны с компонентами тензора ${}^{p}d_{\alpha,\beta}$ в кристаллографической системе координат соотношением:

$$d_{x,zz} = d_{14}\beta_{z2}\beta_{z3},\tag{5}$$

где β_{z2} , β_{z3} — матрица косинусов между осью *Z* и осями 2 и 3 (между направлением $\langle 011 \rangle$ и направлениями $\langle 010 \rangle$ и $\langle 001 \rangle$).

Решение уравнения (1) для вектора смещения среды представим в виде плоских волн, распространяющихся вдоль длины образца:

$$u_z(z) = A\cos(kz) + B\sin(kz), \tag{6}$$

где *А* и *В* — постоянные интегрирования. Подставляя выражение (6) в уравнение (1), получим дисперсионное соотношение в виде:

$$\omega = \sqrt{\frac{{}^{m}Y^{m}t + {}^{l}Y^{l}t + {}^{p}Y^{p}t}{{}^{m}\rho^{m}t + {}^{l}\rho^{l}t + {}^{p}\rho^{p}t}}k.$$
(7)

Как следует из выражения (7), скорость распространения упругих волн в сэндвич структуре $V = \frac{d\omega}{dk}$ зависит как от параметров активных пьезоэлектрического и магнитострикционного слоев, так и от параметров пассивного буферного слоя.

Магнитоэлектрический коэффициент по напряжению определяется как отношение средней напряженности электрического поля $\langle E \rangle$ к среднему значению напряженности переменного магнитного поля $\langle H \rangle$, то есть

$$\alpha_E = \frac{\langle E \rangle}{\langle H \rangle},\tag{8}$$

где $\langle E \rangle = \frac{U}{{}^{m}t + {}^{l}t + {}^{p}t}$ — среднее значение напряженности электрического поля в структуре, U — возникающая разность потенциалов между электродами.

Для получения выражения для МЭ коэффициента воспользуемся методом, разработанным ранее в работах [17, 18]. Из условия механического равновесия на торцах образца, то есть в точках $z = \pm L/2$ имеем следующие граничные условия:

$$\int_{0}^{p_{t}} {}^{p}T_{zz}(\pm L/2, x)dx + \int_{p_{t}}^{t_{t}} {}^{l}T_{zz}(\pm L/2, x)dx + \int_{l_{t}}^{m_{t}} {}^{m}T_{zz}(\pm L/2, x)dx = 0.$$
(9)

Используя эти граничные условия, для постоянных интегрирования *A* и *B* получим следующие выражения:

$$A = 0,$$

$$B = \frac{{}^{m}Y^{m}t q_{z,zz} {}^{m}H_{x} + {}^{p}Y^{p}t d_{x,zz}E_{x}}{k\cos(\kappa)} \times \frac{1}{{}^{m}Y^{m}t + {}^{l}Y^{l}t + {}^{p}Y^{p}t},$$
(10)

где введен безразмерный параметр $\kappa = kL/2$. Выражая из уравнения (2) компоненту тензора напряжений через компоненты тензора деформаций и подставляя получившееся выражение в уравнение для нормальной компоненты вектора электрической индукции, получим для нее выражение в виде:

$${}^{p}D_{x} = \varepsilon_{xx}E_{x} + {}^{p}Yd_{x,zz}\frac{\partial^{p}u_{z}}{\partial z} - {}^{p}Y\left(d_{x,zz}\right)^{2}{}^{p}E_{x}.$$
(11)

Для определения напряженности электрического поля ${}^{p}E_{x}$ индуцированного в пьезоэлектрике, воспользуемся условием разомкнутой цепи:

$$I = \iint \frac{\partial D_x}{\partial t} dz dy = 0.$$
(12)

Подставляя выражение (11) в уравнение (12) после интегрирования, получим:

$${}^{p}E_{x} = \frac{{}^{p}Y d_{x,zz} q_{z,zz}}{\varepsilon_{xx}} \frac{{}^{m}H_{x}}{\Delta} \times \frac{{}^{m}Y^{m}t}{{}^{m}t + {}^{l}Y^{l}t + {}^{p}Y^{p}t} \cdot \frac{\tan(\kappa)}{\kappa}, \qquad (13)$$

где введено обозначение

Z

$$\Delta = 1 - k_p^2 \frac{{}^{p}Y^{p}t}{{}^{m}Y^{m}t + {}^{l}Y^{l}t + {}^{p}Y^{p}t} \frac{\tan(\kappa)}{\kappa}.$$
 (14)

Здесь $k_p^2 = \frac{d_{x,zz}^2 {}^p Y}{\varepsilon_{xx}}$ — квадрат коэффициента электромеханической связи.

Используя определение МЭ коэффициента (8) с учетом того, что возникающая разность потенциалов между электродами равна $U = E_x^{p} t$, получим для него выражение:

$$\alpha_E = \frac{{}^{p_Y} d_{x,zz} q_{z,zz}}{\varepsilon_{xx} \Delta} \frac{{}^{m_Y} {}^m t}{{}^m Y^m t + {}^l Y^l t + {}^p Y^p t} \frac{\tan(\kappa)}{\kappa}.$$
(15)

Как следует из (15), когда параметр $\Delta = 0$, имеет место резонансное увеличение МЭ коэффициента по напряжению. Поскольку квадрат коэф-

Перспективные материалы 2019 № 8

фициента электромеханической связи $k_p^2 \ll 1$, то резонансное увеличение эффекта происходит при значении параметра $\kappa \approx \pi/2$. Это соответствует условию, когда на длине образца укладывается половина длины волны. Используя дисперсионное соотношение (7) для резонансной частоты получим выражение:

$$f_{res} = \frac{1}{2L} \sqrt{\frac{{}^{m}Y^{m}t + {}^{l}Y^{l}t + {}^{p}Y^{p}t}{{}^{m}\rho^{m}t + {}^{l}\rho^{l}t + {}^{p}\rho^{p}t}}.$$
(16)

Как следует из уравнения (16), резонансная частота определяется длиной образца и зависит от модуля Юнга и толщины каждого из слоев. Для многослойной структуры олово – никель – ... – олово – арсенид галлия – олово – ...никель – олово, состоящей из N слоев магнетика толщина магнитострикционного слоя ${}^{m}t = 2N^{m}t_{1}$, толщина слоя олова ${}^{l}t = 2(N+1)^{l}t_{1}$. На рис. 3 представлена зависимость резонансной частоты от числа слоев магнитострикционного слоя для структуры длиной L = 11 мм, рассчитанная по формуле (16) и измеренная экспериментально.

Как видно из рис. 3, с увеличением числа слоев резонансная частота плавно уменьшается от значения 167,6 кГц, соответствующего частоте собственных колебаний пластинки из арсенида галлия, приближаясь к значению 150 кГц, соответствующего частоте собственных колебаний пластинки,



Рис. 3. Зависимость резонансной частоты от числа слоев магнитострикционного слоя для структуры длиной *L* = 11 мм, толщина слоя никеля *^mt* = 6 мкм, толщина слоя олова *^lt* = 12 мкм. *1* — теория, *2* — эксперимент.

Fig. 3. Dependence of the resonance frequency on the number of layers of the magnetostrictive layer for the structure with 11 mm length, the thickness of the nickel layer ${}^{m}t=6$ mkm, the thickness of the tin layer ${}^{l}t = 12$ mkm, l — theory, 2 — experiment.

состоящей из слоя никеля и олова, толщина которого равна удвоенной толщине слоя никеля.

В области низких частот, в которой (когда) безразмерный параметр $\kappa \ll 1$, разлагая тригонометрическую функцию в ряд и используя тот факт, что параметр $k_p^2 \ll 1$, выражение (15) для МЭ коэффициента можно представить как:

$$\alpha_{E}^{Low} = \frac{{}^{p}Y {}^{p}d_{x,zz} {}^{m}q_{z,zz}}{{}^{p}\varepsilon_{xx}} \times \frac{{}^{m}Y2N {}^{m}t_{1}}{{}^{m}Y2N {}^{m}t_{1} + {}^{l}Y2(N+1){}^{l}t_{1} + {}^{p}Y {}^{p}t}.$$
(17)

Из выражения (17) следует, что при малом числе слоев, когда выполняется условие ${}^{m}Y2N{}^{m}t_{1} + {}^{l}Y2(N+1){}^{l}t_{1} << {}^{p}Y{}^{p}t$, значение МЭ коэффициента линейно возрастает с увеличением числа слоев. По мере увеличения числа слоев рост МЭ коэффициента замедляется и стремится к предельному значению, определяемому выражением:

$$\left(\alpha_{E}^{Low}\right)_{N\to\infty} = \frac{{}^{p}Y^{p}d_{x,zz} {}^{m}q_{z,zz}}{{}^{p}\varepsilon_{xx}} \frac{1}{1 + {}^{l}Y^{l}t_{1} / {}^{m}Y^{m}t_{1}}.$$
(18)

Эксперимент

Экспериментально МЭ эффект в созданной структуре исследовали методом измерения напряжения на ее обкладках при помещении структуры в постоянное (подмагничивающее) и переменное магнитное поля. Вначале исследовали полевую зависимость низкочастотного МЭ сигнала. При постоянном значении напряженности переменного магнитного поля H = 80 А/м (1 Э) измеряли зависимость МЭ коэффициента от напряженности подмагничивающего поля. Затем при напряженности поля подмагничивания, соответствующего максимуму эффекта, исследовали частотную зависимость МЭ коэффициента в области электромеханического резонанса. На рис. 4 представлены рассчитанная по выражению (15) и экспериментально измеренная частотные зависимости МЭ коэффициента по напряжению для структуры, состоящей из N = 4 слоев никеля толщиной ${}^{m}t_{1} = 6$ мкм каждый и 5 слоев олова толщиной ${}^{l}t_{1} = \dot{1}2$ мкм на подложке из арсенида галлия толщиной ^{*p*}t = 400 мкм и длиной L = 11 MM.

Как видно из рис. 4, наблюдается хорошее соответствие теории с экспериментом. В полном соответствии с теорией, на частоте, соответствующей условию электромеханического резонанса, происходит пиковое увеличение МЭ коэффициента по



Рис. 4. Частотная зависимость МЭ коэффициента по напряжению. Число слоев никеля N = 4 толщиной ${}^{m}t_{1} = 6$ мкм каждый и число слоев олова N = 5 толщиной ${}^{l}t_{1} = 12$ мкм на подложке из арсенида галлия толщиной ${}^{p}t = 400$ мкм и длиной L = 11 мм. I — теория, 2 — эксперимент.

Fig. 4. Frequency dependence of magnetoelectric voltage coefficient. The number of nickel layers — 4, thickness of each layer — 6 mkm, number of tin layers — 5, thickness of each layer — 12 mkm, on gallium arsenide substrate with thickness 400 mkm and length 11 mm. 1 — theory, 2 — experiment.

напряжению. Данная структура, имеет высокую добротность $Q \cong 1000$, что превышает добротность структур на основе цирконата-титаната свинца почти в 20 раз [19]. Это объясняется тем, что, во-первых, в качестве пьезоэлектрика использовался монокристаллический арсенид галлия, имеющий более совершенную структуру, чем пьезокерамика. Во-вторых, при изготовлении структур применяли метод электролитического осаждения, а не склеивания. Использование электролитического осаждения позволяет исключить промежуточный слой клея, имеющий малый модуль Юнга и который приводит к уменьшению жесткости структуры. Кроме того, механические свойства клея имеют очень высокую температурную зависимость, поэтому его исключение позволяет значительно расширить температурный интервал использования структур.

Выводы

1. Созданы новые многослойные магнитострикционно-пьезоэлектрические структуры в виде чередующихся слоев никеля и олова на подложке из арсенида галлия, полученных методом электролитического осаждения, обладающих величиной магнитоэлектрического эффекта и добротностью, превосходящей аналогичные клеевые структуры, разработана технология их изготовления и исследованы основные характеристики.

2. Разработана математическая модель магнтоэлектрического эффекта в созданных многослойных структурах GaAs - Sn - Ni. На основе совместного решения уравнений эластодинамики и электростатики для магнитострикционного, пьезоэлектрического и буферного слоев получено выражение для магнитоэлектрического коэффициента по напряжению. Теоретически показано и экспериментально подтверждено, что его частотная зависимость имеет резонансный характер, причем величина резонансной частоты с ростом числа слоев плавно уменьшается от значения, соответствующего частоте собственных колебаний пластинки из арсенида галлия, приближаясь к значению, соответствующей частоте собственных колебаний пластинки, состоящей из слоя никеля и олова, толщина которого равна удвоенной толщине слоя никеля.

Разработанные многослойные структуры являются перспективными материалами для создания приборов на основе МЭ эффекта.

Литература

- Звездин А.К., Пятаков А.П. Магнитоэлектрические материалы и мультиферроики. Успехи физических наук, 2012, т. 182, № 6, с. 593 – 620.
- Zhai J., Gao J., De Vreugd C., Li J., Viehland D., Filippov A.V., Bichurin M.I., Drozdov D.V., Semenov G.A., Dong S.X. Magnetoelectric gyrator. The European Physical Journal B, 2009, v. 71, p. 383 – 385.
- Никитин А.О., Леонтьев В.С., Петров Р.В., Мельничук Д.Г. Магнитоэлектрический датчик тока с улучшенной схемой обработки сигнала. Вестник Новгородского государственного университета, 2015, № 6 (89), с. 90 – 94.
- Филиппов Д.А., Галкина Т.А., Лалетин В.М., Srinivasan G. Преобразователь напряжения на основе инверсного магнитоэлектрического эффекта. Письма в ЖТФ, 2012, т. 38, № 2, с. 82 – 86.
- Антоненков О.В., Филиппов Д.А. Магнитоэлектрический СВЧ аттенюатор, управляемый электрическим полем. Письма в ЖТФ, 2007, т. 33, № 17, с. 77 82.
- Lou J., Reed D., Liu M., Sun N.X. Electrostatically tunable magnetoelectric inductors with large inductance tenability. Appl. Phys. Lett., 2009, v. 94, p. 112508.
- Zhang J., Chen D., Filippov D.A., Li K., Zhang Q., Jiang L., Zhu W., Cao L., Srinivasan G. Bidirectional tunable ferrite-piezoelectric trilayer magnetoelectric inductors. Appl. Phys. Lett., 2018, v. 113, p. 113502.
- 8. Bichurin M.I., Filippov D.A. The microscopic mechanism of the magnetoelectric effect in the

Перспективные материалы 2019 № 8

microwave range. Ferroelectrics, 1997, v. 204, no. 1-4, p. 225-232.

- Laletin V.M., Srinivasan G. Magnetoelectric effects in composites of nickel ferrite and barium lead zirconate titanate. Ferroelectrics, 2002, v. 280, p. 177 – 185.
- Srinivasan G., Rasmussen E.T., Gallegos J., Srinivasan R., Yu. I., Bokhan I., Laletin V.M. Novel magnetoelectric bilayer and multilayer structures of magnetostrictive and piezoelectric oxides. Physical Review B, 2001, v. 64, p. 214408 (1 – 6).
- Fetisov Y.K., Petrov V.M., Srinivasan G. Inverse magnetoelectric effects in a ferromagnetic-piezoelectric layered structure. J. Mater. Res., 2007, v. 22, p. 2074 – 2080.
- Fetisov Y.K., Kamentsev K.E., Chashin D.V., Fetisov L.Y., Srinivasan G. Inverse magnetoelectric effects in a ferro-magnetic piezoelectric layered structure. J. Appl. Phys., 2009, v. 1051, p. 123918.
- Гриднев С.А., Калинин Ю.Е., Гриднев А.В., Калгин А.В., Григорьев Е.С. Прямой магнитоэлектрический эффект в трехслойных композитах Fe_{0,45}Co_{0,45}Zr_{0,1} – PbZr_{0,53}Ti_{0,47}O₃ – Fe_{0,45}Co_{0,45}Zr_{0,1}. Физика твердого тела, 2015, т. 57, вып. 7, с. 1349 – 1353.
- 14. 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, вып. 21, с. 71 – 77.
- Филиппов Д.А., Фирсова Т.О., Лалетин В.М., Поддубная Н.Н. Магнитоэлектрический эффект в структуре никель – арсенид галлия – никель. Письма в ЖТФ, 2017, т. 43, вып 6, с. 72 – 77.
- Filippov D.A., Galichyan T.A., Laletin V.M. Influence of an interlayer bonding on the magnetoelectric effect in the layered magnetostrictive-piezoelectric structure. Appl. Phys. A., 2014, v. 116, p. 2167 – 2171.
- Filippov D.A., Laletin V.M., Galichyan T.A. Magnetoelectric effect in bilayer magnetostrictivepiezoelectric structure. Theory and experiment. Applied Physics A., 2014, v. 115, p. 1087 – 1091.
- Филиппов Д.А., Лалетин В.М., Galichyan Т.А. Магнитоэлектрический эффект в двухслойной магнитострикционно-пьезоэлектрической структуре. Физика твердого тела, 2013, т. 55, № 9, с. 1728 – 1733.
- Филиппов Д.А., Лалетин В.М., Фирсова Т.О., Антоненков О.В. Технология изготовления и магнитоэлектрические свойства структур цирконаттитанат свинца – никель. Вестник Новгородского государственного университета, 2015, № 6(89), с. 100 – 104.

References

 Zvezdin A.K., Pyatakov A.P. Magnetoelectric materials and multiferroics. Uspehi Fizicheskikh Nauk — Physics-Uspekhi (Advances in Physical Sciences), 2012, vol. 55, pp. 557 – 581.

- Zhai J., Gao J., Vreugd C.De, Li J., Viehland D., Filippov A.V., Bichurin M.I., Drozdov D.V., Semenov G.A., Dong S.X. Magnetoelectric gyrator. The European Physical Journal B, 2009, vol. 71, pp. 383 – 385.
- Nikitin A.O., Leont'ev V.S., Petrov R.V., Mel'nichuk D.G. Magnitoelektrichesky datchik toka s uluchshennoy skhemoy obrabotki signala [Magnetoelectric current sensor with improved circuit of the signal processing]. Vestnik of NovSU — Vestnik of Yaroslav the Wise Novgorod State University, Physico-Mathematical Science, 2015, no. 6 (89), pp. 90 – 94.
- Filippov D.A., Galkina T.A., Laletin V.M., Srinivasan G. Voltage transformer based on inverse magnetoelectric effect. *Pis'ma v zhurnal tekhnicheskoy fiziki — Technical Physics Letters*, 2012, vol. 38, no. 1, pp. 93 – 95.
- Antonenkov O.V., Filippov D.A. Electric-fieldcontrolled magnetoelectric microwave attenuator. *Pis'ma v zhurnal tekhnicheskoy fiziki – Technical Physics Letters*, 2007, vol. 33, no. 9, pp. 752 – 754.
- Lou J., Reed D., Liu M., Sun N.X. Electrostatically tunable magnetoelectric inductors with large inductance tenability. Appl. Phys. Lett., 2009, vol. 94, p. 112508.
- Zhang J., Chen D., Filippov D.A., Li K., Zhang Q., Jiang L., Zhu W., Cao L., Srinivasan G. Bidirectional tunable ferrite-piezoelectric trilayer magnetoelectric inductors. Appl. Phys. Lett., 2018, vol. 113, p. 113502.
- Bichurin M.I., Filippov D.A. The microscopic mechanism of the magnetoelectric effect in the microwave range. Ferroelectrics, 1997, vol. 204, no. 1 – 4, pp. 225 – 232.
- Laletin V.M., Srinivasan G. Magnetoelectric effects in composites of nickel ferrite and barium lead zirconate titanate. Ferroelectrics, 2002, vol. 280, pp. 177 – 185.
- Srinivasan G., Rasmussen E.T., Gallegos J., Srinivasan R., Yu. I., Bokhan I., Laletin V.M. Novel magnetoelectric bilayer and multilayer structures of magnetostrictive and piezoelectric oxides. Physical Review B, 2001, vol.64, p. 214408 (1 – 6).
- Fetisov Y.K., Petrov V.M., Srinivasan G. Inverse magnetoelectric effects in a ferromagnetic-piezoelectric layered structure. J. Mater. Res., 2007, vol. 22, pp. 2074 – 2080.
- Fetisov Y.K., Kamentsev K.E., Chashin D.V., Fetisov L.Y., Srinivasan G. Inverse magnetoelectric effects in a ferro-magnetic piezoelectric layered structure. J. Appl. Phys., 2009, vol. 105, p. 123918.
- Gridnev S.A., Kalinin Y.E., Kalgin A.V., Grigor'ev E.S. Pryamoy magnitoelektrichesky effekt v trekhsloynykh kompozitakh Fe_{0.45}Co_{0.45}Zr_{0.1}-PbZr_{0.53}Ti_{0.47}O₃-Fe_{0.45}Co_{0.45}Zr_{0.1} [Direct magnetoelectric effect in threelayer Fe_{0.45}Co_{0.45}Zr_{0.1}-PbZr_{0.53}Ti_{0.47}O₃-Fe_{0.45}Co_{0.45}Zr_{0.1} composites]. *Fizika Tverdogo Tela* — *Physics of the Solid State*, 2015, vol. 57, pp. 1372 – 1376.
- Laletin V.M., Stognii A.I., Novitskii N.N., Poddubnaya N.N. Magnitoelektrichesky effekt v strukturakh na osnove metallizirovannykh podlozhek arsenida galliya [The magnetoelectric effect in structures based on metallized gallium arsenide

substrates]. Pis'ma v zhurnal tekhnicheskoy fiziki — Technical Physics Letters, 2014, vol. 40, pp. 969 – 971.

- Filippov D.A, Firsova T.O, Laletin V.M., Poddubnaya N.N. Magnitoelektrichesky effekt v strukture nikel – arsenid galliya – nikel [The magnetoelectric effect in nickel–gallium arsenide– nickel structures]. *Pis'ma v zhurnal tekhnicheskoy fiziki – Technical Physics Letters*, 2017, vol. 43, pp. 313 – 315.
- Filippov D.A., Galichyan T.A., Laletin V.M. Influence of an interlayer bonding on the magnetoelectric effect in the layered magnetostrictive-piezoelectric structure. Appl. Phys. A., 2014, vol. 116, pp. 2167 – 2171.
- 17. Filippov D.A., Laletin V.M., Galichyan T.A. Magnetoelectric effect in bilayer magnetostrictive-

piezoelectric structure. Theory and experiment. Applied Physics A., 2014, vol. 115, pp. 1087 – 1091.

- Filippov D.A., Laletin V.M., Galichyan T.A. Magnitoelektrichesky effekt v dvukhsloynoy magnitostriktsionnopyezoelektricheskoy strukture [Magnetoelectric Effect in a magnetostrictive-piezoelectric bilayer structure]. *Fizika Tverdogo Tela* — *Physics of the Solid State*, 2013, vol. 55, pp. 1840 – 1845.
- Filippov D.A., Laletin V.M., Firsova T.O., Antonenkov O.V. Tekhnologiya izgotovleniya i magnitoelektricheskiye svoystva struktur tsirkonattitanat svintsa – nikel [Manufacturing techniques and magnetoelectric properties of lead zirconate titanate – nickel structures]. Vestnik of NovSU — Vestnik of Yaroslav the Wise Novgorod State University, Physico-Mathematical Science, 2015, no. 6 (89), pp. 100 – 104.
 - Статья поступила в редакцию 13.08.2018 г. после доработки — 17.01.2019 г.
 - принята к публикации —21.01.2019 г.

Филиппов Дмитрий Александрович — Новгородский государственный университет им. Ярослава Мудрого (173003, Россия, г. Великий Новгород, ул. Большая Санкт-Петербургская, д. 41), доктор физико-математических наук, профессор, заведующий кафедрой, специалист в области физики магнитных явлений и пьезоэлектричества. E-mail: Dmitry.Filippov@novsu.ru.

Маничева Ирина Николаевна — Новгородский государственный университет им. Ярослава Мудрого (173003, Россия, г. Великий Новгород, ул. Большая Санкт-Петербургская, д. 41), аспирант, специализируется в области физики магнитных явлений и пьезоэлектричества. E-mail: Manicheva.i@mail.ru.

Лалетин Владимир Михайлович — Институт технической акустики НАН Беларуси (210717, Беларусь, г. Витебск, пр. Людникова 13), кандидат физикоматематических наук, старший научный сотрудник, специалист в области материаловедения. E-mail: laletin57@rambler.ru.

Magnetoelectric properties of multilayer gallium arsenide – nickel – tin – nickel structure

D. A. Filippov, I. N. Manicheva, V. M. Laletin

The work describes the manufacturing technology, the results of a theoretical and experimental study of the magnetoelectric effect in a multilayer structure obtained by the method of galvanic deposition of alternating layers of nickel and tin on a gallium arsenide substrate are presented. It was established experimentally that the use of tin as an intermediate layer reduces the mechanical stresses arising from the inconsistency of the lattice parameters at the gallium nickel-arsenide interface, which makes it possible to obtain high-quality multilayer structures with a nickel layer thickness of about 100 microns. Based on the joint solution of the equations of elastodynamics and electrostatics for the magnetostriction, piezoelectric and buffer layers, an expression is obtained for the magnetoelectric voltage coefficient. It is theoretically shown and experimentally confirmed that its frequency dependence has a resonant character, and the magnitude of the resonant frequency with increasing number of layers gradually decreases from the value corresponding to the natural frequency of nickel and tin, whose thickness is equal to twice the thickness of the nickel layer. It was established experimentally that in the of electromechanical resonance region these structures have a high Q-1000 Q, which is much higher than the Q-factor of the magnetoelectric structures made by the method of gluing, and have good adhesion between the layers. These structures are promising for creating devices based on the magnetoelectric effect.

Keywords: magnetostriction, piezoelectricity, magnetoelectric effect, gallium arsenide, nickel, tin, adhesion, galvanic deposition.

Filippov Dmitry — Yaroslav the Wise Novgorod State University (B. Ul. Peterburgskaya, 41, Velikii Novgorod, 173003, Russia), Dr Sci (Phys-Math), professor, head of Engineering technology department, specialist in the field of physics of magnetic phenomena and piezoelectricity. E-mail: Dmitry.Filippov@novsu.ru.

Manicheva Irina — Yaroslav the Wise Novgorod State University (B. Ul. Peterburgskaya, 41, Velikii Novgorod, 173003, Russia), postgraduate student, specialist in the field of physics of magnetic phenomena and piezoelectricity. E-mail: manicheva.i@mail.ru.

Laletin Vladimir — Institute of Technical Acoustics, National Academy of Sciences of Belarus, (Lyudnikava Praspekt, 13, Vitebsk, BY-210023 Belarus), PhD (Phys-Math), senior scientist, expert in material science. E-mail: laletin57@rambler.ru.