

Магнитоэлектрические характеристики структур, полученных методом гальванического осаждения никеля и олова на подложку из арсенида галлия

Д. А. Филиппов, И. Н. Маничева, В. М. Лалетин, Т. О. Фирсова, Т. А. Галичян

Представлены результаты экспериментального исследования магнитоэлектрического эффекта в многослойной структуре, состоящей из чередующихся слоев никеля и олова, полученных гальваническим осаждением на подложку из арсенида галлия. Применение олова в качестве промежуточного слоя позволяет уменьшить механические напряжения, возникающие на границе «никель – арсенид галлия», улучшить адгезию между слоями, что позволяет получать качественные структуры с общей толщиной никелевого слоя порядка 100 мкм. Приведены экспериментальные результаты исследования частотной зависимости эффекта в области электромеханического резонанса. Резонансное значение величины магнитоэлектрического коэффициента по напряжению достигало 40 В/(см Э) при добротности структуры $Q \cong 700$, что значительно превосходит характеристики аналогичных структур, полученных методом склеивания.

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

Введение

Композиционные магнитоэлектрические материалы привлекают к себе внимание тем, что в них возможен магнитоэлектрический (МЭ) эффект, который заключается в изменении поляризации образца при помещении его в магнитное поле.

Величина МЭ-эффекта в композиционных материалах на несколько порядков больше, чем в

монокристаллах. Это объясняется тем, что механизмом возникновения МЭ-эффекта в монокристаллах является совместное действие спин-орбитального взаимодействия, взаимодействие электрона с внешним и внутрикристаллическим электрическим полем [1]. Несмотря на то, что в настоящее время известны десятки монокристаллов, в которых обнаружен МЭ-эффект [2], тем не менее, вследствие его малости, МЭ-монокристаллы не нашли широкого применения в технике.

Механизмом возникновения МЭ-эффекта в композитах является механическое взаимодействие магнитоэлектрической (МС) и пьезоэлектрической (ПЭ) фаз. Переменное магнитное поле вызывает в МС-компоненте механические деформации, которые передаются через границу раздела в ПЭ-компоненту, что приводит к изменению поляризации и возникновению электрического напряжения.

Композиционные МЭ-материалы можно разделить на группы: объемные и слоистые композиты. Объемные композиты представляют собой механически связанные смеси порошков МС- и ПЭ-фаз [3]. Слоистые композиты представляют собой структуры, состоящие из чередующихся слоев магнетика и пьезоэлектрика [4]. Слоистые структуры обладают рядом преимуществ по сравнению с объемными композитами: легко поляризуются, имеют малые токи утечки [5], в качестве МС-фазы можно использовать металлы, обладаю-

Филиппов Дмитрий Александрович¹, профессор, зав. кафедрой, д. ф.-м. н.

Маничева Ирина Николаевна¹, аспирант.

Лалетин Владимир Михайлович², с.н.с., к.ф.-м.н.

Фирсова Татьяна Олеговна¹, инженер.

Галичян Тигран Александрович³, м.н.с.

¹ Новгородский государственный университет им. Ярослава Мудрого.

Россия, 173003, Великий Новгород, ул. Большая Санкт-Петербургская, 41. Тел. (81622) 62-64-29.

E-mail: Dmitry.Filippov@novsu.ru

² Институт технической акустики НАН Беларуси. Белоруссия, 210717, Витебск, пр. Людникова, 13.

E-mail: laletin57@rambler.ru

³ Институт механики НАН РА.

Армения, 0019, Ереван, пр. Маршала Баграмяна, 24Б. E-mail: galichyantigran@gmail.com

Статья поступила в редакцию 1 марта 2018 г.

© Филиппов Д. А., Маничева И. Н., Лалетин В. М., Фирсова Т. О., Галичян Т. А., 2018

щие большим коэффициентом магнитострикции [6–8]. Одновременно они обладают целым рядом недостатков, обусловленных границей раздела МС- и ПЭ-фаз. Большинство слоистых МЭ-структур получают методом склеивания, что приводит к уменьшению добротности структуры, ослаблению МЭ-эффекта, нежелательно высокой температурной зависимости.

В работах [9, 10] приведены результаты исследования МЭ-эффекта в структурах, где МС-фаза наносилась на ПЭ-подложку методом напыления. Полученные структуры имели хорошую адгезию, но обладали небольшим значением эффекта. Как показано в [11], максимум МЭ-эффекта наблюдается при условии выполнения равенства:

$$p_t \sqrt{p_Y} = m_t \sqrt{m_Y},$$

где p_Y, m_Y – модули Юнга ПЭ- и МС-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, соизмеримой с толщиной пьезоэлектрика. Но методом напыления невозможно изготовить такие структуры. Использование метода электролитического осаждения МС-металла на ПЭ-подложку позволяет получить слой магнетика, толщина которых соизмерима с толщиной пьезоэлектрика. С целью улучшения адгезии между фазами при изготовлении целесообразно использовать структуры с предварительно напыленными на подложку из GaAs подслоями Au–Ge–Ni [12]. Однако вследствие несоответствия параметров решеток Ni и GaAs при больших толщинах слоев возникают механические напряжения, приводящие к короблению структуры и ее разрушению. Одним из способов устранения этих напряжений, предложенным в данной работе, является метод создания сэндвич-структуры, в которой слой никеля чередуется с буферным слоем олова.

Целью данной работы является экспериментальное исследование магнитоэлектрического эффекта в многослойной структуре, состоящей из чередующихся слоев никеля и олова, полученных гальваническим осаждением на подложку из арсенида галлия.

Метод изготовления структур

Образцы в форме параллелепипеда с размерами 11×5×0,4 мм вырезались из пластин GaAs с ориентацией поверхности (100), длинная сторона которых совпадала с направлением <011> кристалла (рис. 1). С целью улучшения адгезии на об-

разцы предварительно напылялись подслои Au–Ge–Ni.

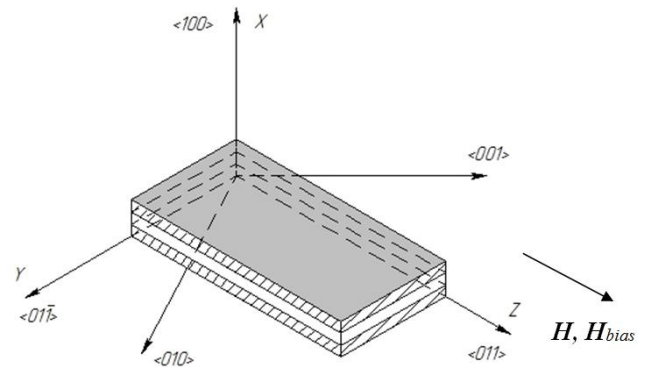


Рис. 1. Схематическое изображение структуры.

Для получения многослойной структуры поочередно использовали электролитическое осаждение никеля при катодной плотности тока 1 А/дм² и температуре электролита 55–65 °С, а затем электроосаждение олова при комнатной температуре и катодной плотности тока 2 А/дм². В результате, полученная многослойная структура состояла из шестнадцати слоёв никеля с каждой стороны образца, общей толщиной 100 мкм и семнадцати слоёв олова, общей толщиной 200 мкм. Общая толщина сэндвич-структуры с учетом подложки составила 1 мм. Слои на арсениде галлия обладали ровной, матовой поверхностью, без видимых дефектов.

Магнитоэлектрический эффект

МЭ-эффект в многослойной структуре изучался путем измерения напряжения, возникающего между обкладками, при помещении её в постоянное (подмагничивающее) и переменное магнитное поле, направленные вдоль длинной стороны образца (см. рис. 1).

Вначале исследовалась полевая зависимость низкочастотного МЭ-сигнала. При постоянном значении напряженности переменного магнитного поля $H = 1$ Э измерялась зависимость МЭ-коэффициента от напряженности подмагничивающего поля H_{bias} . Затем при напряженности поля подмагничивания, соответствующего максимуму эффекта, исследовалась частотная зависимость МЭ-коэффициента в области электромеханического резонанса. У арсенида галлия отличными от нуля компонентами ПЭ-тензора являются $d_{14} = d_{25} = d_{36}$, поэтому электрическое напряжение, индуцируемое на обкладках образца, возникает в результате деформаций сдвига, а не деформаций «растяжения–сжатия» как в структурах на основе цирконата-титаната свинца [11].

Переменное магнитное поле, направленное вдоль длинной стороны образца (ось Z), вызывает в магнитной компоненте деформации «растяжения-сжатия», тензор которых в системе координат, связанных с образцом, обозначим через S_{zz} . Эти деформации передаются в пьезоэлектрик, что приводит к возникновению электрического напряжения на обкладках.

Для нахождения МЭ-характеристик сэндвич-структуры воспользуемся методом, разработанным ранее для двухслойной структуры [13]. Воспользуемся тем, 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. В этом приближении уравнение движения для z -проекции вектора смещения среды запишем в виде:

$$\bar{\rho} \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} = \frac{\partial \bar{T}_{zz}}{\partial z}, \quad (1)$$

где $\bar{\rho}$ – среднее значение плотности образца, и \bar{T}_{zz} – среднее значение тензора напряжений в образце.

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

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

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

$${}^p D_x = {}^p \varepsilon_{xx} {}^p E_x + {}^p d_{x,zz} {}^p T_{zz}, \quad (4)$$

где ${}^p T_{zz}$, ${}^m T_{zz}$ – компоненты тензора напряжений ПЭ- и МС-фаз; ${}^p Y$, ${}^m Y$ – модуль Юнга пьезоэлектрика вдоль направления $\langle 011 \rangle$ (Z – ось), и магнетика соответственно, ${}^p d_{x,zz}$ – пьезоэлектрический тензор в системе координат XYZ (рис. 1), ${}^p \varepsilon_{xx}$ – тензор диэлектрической проницаемости и ${}^p E_x$ – x компонента вектора напряженности электрического поля, ${}^m q_{z,zz}$ – пьезомагнитный коэффициент, ${}^m H_x$ – напряженность магнитного поля.

Компоненты ПЭ тензора ${}^p d_{x,zz}$ в системе координат XYZ связаны с компонентами ПЭ-тензора ${}^p d_{\alpha,\beta}$ в кристаллографической системе координат соотношением:

$$d_{x,zz} = d_{14} \beta_{z2} \beta_{z3}, \quad (5)$$

где β_{z2} , β_{z3} – матрица косинусов между осью Z и осями 2 и 3 ($\langle 010 \rangle$ и направления $\langle 001 \rangle$).

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

$$u(z) = A \cos(kz) + B \sin(kz), \quad (6)$$

где A и B – постоянные интегрирования.

Подставляя выражение (6) в уравнение (1), получаем для них дисперсионное соотношение в виде:

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

где $\bar{Y} = \frac{{}^m Y {}^m t + {}^l Y {}^l t + {}^p Y {}^p t}{{}^m t + {}^l t + {}^p t}$ – среднее значение

модуля Юнга сэндвич структуры. Уравнение (7) показывает, что сохраняется линейная связь между угловой частотой и волновым числом, однако эта связь будет определяться характеристиками трех структур.

Магнитоэлектрический коэффициент по напряжению

Магнитоэлектрический коэффициент по напряжению определяется как отношение средней напряженности электрического поля $\langle E \rangle$ к напряженности переменного магнитного поля H , т. е.

$$\alpha_E = \langle E \rangle / H, \quad (8)$$

где $\langle E \rangle = U / ({}^m t + {}^l t + {}^p t)$ – 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 [11, 13]. Из условия механического равновесия на торцах образца, т. е. в точках $z = \pm L/2$, имеем следующие граничные условия:

$$\int_0^{{}^p t} {}^p T_{zz}(\pm L/2, x) dx + \int_{{}^p t}^{{}^l t} {}^l T_{zz}(\pm L/2, x) dx + \int_{{}^l t}^{{}^m t} {}^m T_{zz}(\pm L/2, x) dx = 0. \quad (9)$$

Используя эти граничные условия, для постоянных интегрирования получим выражения:

$$A = 0, \\ B = \frac{{}^m Y {}^m t {}^m q_{z,zz} {}^m H_x + {}^p Y {}^p t {}^p d_{x,zz} {}^p E_x}{k \cos(\kappa)} \times \frac{1}{({}^m t {}^m Y + {}^l t {}^l Y + {}^p t {}^p Y)}, \quad (10)$$

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 выражение в виде:

$${}^p D_z = {}^p \varepsilon_{xx} {}^p E_x + {}^p Y {}^p d_{x,zz} \frac{\partial {}^p u_z}{\partial z} - {}^p Y ({}^p d_{x,zz})^2 {}^p E_x. \quad (11)$$

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

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

Подставляя выражение (11) в уравнение (12) и проводя интегрирование, получим выражение:

$${}^p E_x = \frac{{}^p Y {}^p d_{x,zz} {}^m q_{x,zz}}{{}^p \varepsilon_{xx}} \times \frac{{}^m H_x}{\Delta} \times \frac{{}^m Y {}^m t}{({}^m t {}^m Y + {}^l t {}^l Y + {}^p t {}^p Y)} \times \frac{\tan(\kappa)}{\kappa}, \quad (14)$$

где введено обозначение:

$$\Delta = 1 - k_p^2 \frac{{}^m H_x}{({}^m t {}^m Y + {}^l t {}^l Y + {}^p t {}^p Y) \frac{\tan(\kappa)}{\kappa}}. \quad (15)$$

Используем определение МЭ-коэффициента (8) с учетом того, что возникающая разность потенциалов между электродами равна $U = {}^p E_x {}^p t$. Отсюда получим выражение для МЭ-коэффициента по напряжению:

$$\alpha_E = \frac{{}^p Y {}^p d_{x,zz} {}^m q_{z,zz}}{{}^p \varepsilon_{xx} ({}^m t {}^m Y + {}^l t {}^l Y + {}^p t {}^p Y)} \times \frac{{}^m Y {}^m t}{\Delta} \times \frac{\tan(\kappa)}{\kappa}. \quad (16)$$

Уравнение (16) устанавливает частотную за-

висимость МЭ-коэффициента по напряжению. Это зависимость определяется через параметр $\kappa = kL/2$, а волновое число k определяется дисперсионным соотношением (6). Поэтому меняя состав структуры, можно получить различные частотные характеристики.

На рис. 2 представлены результаты экспериментальных измерений частотной зависимости МЭ-коэффициента по напряжению для структуры, состоящей из шестнадцати слоёв никеля с каждой стороны образца (общей толщиной 100 мкм) и семнадцати слоёв олова (общей толщиной 200 мкм). Общая толщина сэндвич-структуры с учетом подложки составила 1 мм. Слои на арсениде галлия обладали ровной, матовой поверхностью, без видимых дефектов.

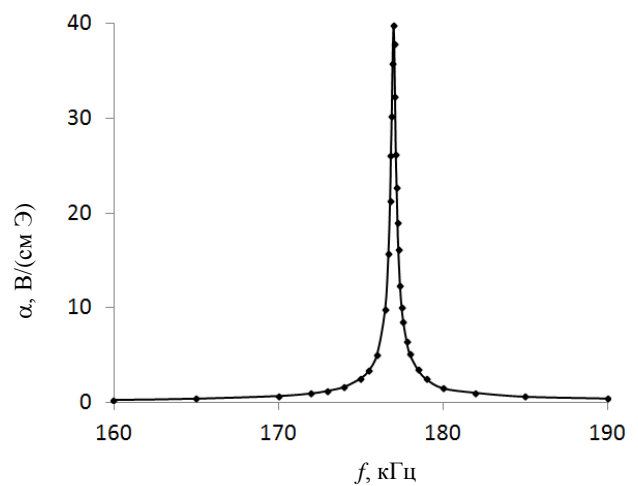


Рис. 2. Частотная зависимость многослойной структуры арсенид галлия–никель–олово–никель. Поле подмагничивания $H_{bias} = 360$ Э

Из рисунка видно, что частотная зависимость имеет резонансный характер. Величина МЭ-коэффициента по напряжению несколько ниже, чем в чистой структуре никель–арсенид галлия [12], что объясняется наличием пассивного буферного слоя олова. Однако данная структура имеет очень высокую добротность $Q \cong 700$, что является преимуществом по сравнению с добротностью образцов, полученных методом склеивания.

Заключение

Представлены результаты экспериментального исследования магнитоэлектрического эффекта в многослойной структуре, состоящей из чередующихся слоев никеля и олова, полученных гальваническим осаждением на подложку из арсенида галлия. Применение олова в качестве промежуточного слоя позволяет уменьшить механические напряжения, возникающие на границе

«никель – арсенид галлия», улучшить адгезию между слоями, что позволяет получать качественные структуры с общей толщиной никелевого слоя порядка 100 мкм. Приведены экспериментальные результаты исследования частотной зависимости эффекта в области электромеханического резонанса. Резонансное значение величины магнитоэлектрического коэффициента по напряжению достигало 40 В/(см Э) при добротности структуры $Q \cong 700$, что значительно превосходит характеристики аналогичных структур, полученных методом склеивания. Такие многослойные структуры являются перспективными для конструирования приборов на основе МЭ-эффекта.

ЛИТЕРАТУРА

1. Bichurin M. I., Filippov D. A. // *Ferroelectrics*. 1997. Vol. 204. No. 1-4. P. 225.
2. Звездин А. К., Пятаков А. П. // *Успехи физических наук*. 2012. Т. 182. № 6. С. 593.
3. Laletin V. M., Srinivasan G. // *Ferroelectrics*. 2002. Vol. 280. P. 177.
4. Srinivasan G., Rasmussen E. T., Gallegos J., Srinivasan R., Yu. I., Bokhan I., Laletin V. M. // *Physical Review B*. 2001. Vol. 64. P. 214408 (1-6).
5. Филиппов Д. А., Лалетин В. М., Srinivasan G. // *Журнал технической физики*. 2012. Т. 82. № 1. С. 47.
6. Fetisov Y. K., Petrov V. M., Srinivasan G. // *J. Mater. Res.* 2007. Vol. 22. P. 2074.
7. Fetisov Y. K., Kamentsev K. E., Chashin D. V., Fetisov L. Y., Srinivasan G. // *J. Appl. Phys.* 2009. Vol. 105. P. 123918.
8. Филиппов Д. А., Радченко Г. С., Лалетин В. М. // *Физика твердого тела*. 2016. Т. 58. № 3. С. 495.
9. Гриднев С. А., Калинин Ю. Е., Гриднев А. В., Калинин А. В., Григорьев Е. С. // *Физика твердого тела*. 2015. Т. 57. Вып. 7. С. 1349.
10. Лалетин В. М., Стогний А. И., Новицкий Н. Н., Поддубная Н. Н. // *Письма в ЖТФ*. 2014. Т. 40. Вып. 21. С. 71.
11. Филиппов Д. А., Лалетин В. М., Галичян Т. А. // *Физика твердого тела*. 2013. Т. 55. Вып. 9. С. 1728.
12. Филиппов Д. А., Фирсова Т. О., Лалетин В. М., Поддубная Н. Н. // *Письма в ЖТФ*. 2017. Т. 43. Вып. 6. С. 72.
13. Filippov D. A., Laletin V. M., Galichyan T. A. // *Applied Physics A*. 2014. Vol. 115. P. 1087.

PACS: 75.80.+q; 75.50.Gg

Magnetoelectric characteristics of a structure, obtained by galvanic deposition of tin and nickel on a gallium arsenide substrate

D. A. Filippov¹, I. N. Manicheva¹, V. M. Laletin², T. O. Firsova¹, and T. A. Galichyan³

¹Novgorod State University
41 Greater St. Petersburg str., Velikij Novgorod, 626429, Russia
E-mail: Dmitry.Filippov@novsu.ru

²Institute of Technical Acoustics, National Academy of Sciences of Belarus
13 Lyudnikava av., Vitebsk, BY-210023, Belarus
laletin57@rambler.ru

³Institute of Mechanics, National Academy of Sciences of Armenia
24B Baghramyan av., Yerevan, 0019, Armenia
galichyantigran@gmail.com

Received March 1, 2018

The technology of fabrication and the results of the magnetoelectric effect investigation in sandwich structure manufactured by galvanic deposition tin and nickel on the gallium arsenide substrate are presented. It is shown that the use of tin as an intermediate layer lead to reduces the mechanical stresses resulting on the interface nickel and gallium arsenide. It is possible to obtain qualitative structures with nickel layer thickness on the order of 100 microns. Experimental results of the frequency dependence of the magnetoelectric voltage coefficient in the region of electromechanical resonance are presented. The resonance value of the magnetoelectric voltage coefficient reached 40 V/(cm Oe) with the Q-factor $\cong 700$, which significantly exceeds the characteristics of similar structures obtained by bonding.

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

REFERENCES

1. M. I. Bichurin and D. A. Filippov, *Ferroelectrics* **204**, 225 (1997).
2. A. K. Zvezdin and A. P. Pyatakov, *Phys. Usp.* **55**, 557 (2012).
3. V. M. Laletin and G. Srinivasan, *Ferroelectrics* **280**, 177 (2002).
4. G. Srinivasan, E. T. Rasmussen, J. Gallegos, R. Srinivasan, I. Yu., I. Bokhan, and V. M. Laletin, *Physical Review B.* **64**, 214408 (2001).
5. D. A. Filippov, V. M. Laletin, and G. Srinivasan, *Technical Physics* **57**, 44 (2012).
6. Y. K. Fetisov, V. M. Petrov, and G. Srinivasan, *J. Mater. Res.* **22**, 2074 (2007).
7. Y. K. Fetisov, K. E. Kamentsev, D. V. Chashin, L. Y. Fetisov, and G. Srinivasan, *J. Appl. Phys.* **105**, 123918 (2009).
8. D. A. Filippov, G. S. Radchenko, and V. M. Laletin, *Physics of the Solid State* **58**, 508 (2016).
9. S. A. Gridnev, Y. E. Kalinin, A. V. Kalgin, and E. S. Grigor'ev, *Physics of Solid State* **57**, 1372 (2015).
10. V. M. Laletin, A. I. Stognij, N. N. Novitskij, and N. N. Poddubnaya, *Technical Physics Letters* **40**, 969 (2014).
11. D. A. Filippov, V. M. Laletin, and T. A. Galichyan, *Physics of Solid State* **55**, 1840 (2013).
12. D. A. Filippov, T. O. Firsova, V. M. Laletin, and N. N. Poddubnaya, *Technical Physics Letters* **43**, 313 (2017).
13. D. A. Filippov, V. M. Laletin, and T. A. Galichyan, *Applied Physics A.* **115**, 1087 (2014).