

## Обратный магнитоэлектрический эффект в двухслойных композитах пьезокерамика $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ /аморфная лента Finemet

С. Л. Ефремова\* Е. Е. Шалыгина†

Московский государственный университет имени М.В.Ломоносова, физический факультет, кафедра магнетизма  
Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, д. 1, стр. 2

(Статья поступила 14.05.2018; Подписана в печать 25.05.2018)

В последние годы большое внимание уделяется исследованию магнитоэлектрических (МЭ) эффектов в твердых телах, что обусловлено возможностью их практического применения. В большинстве природных кристаллов МЭ-эффекты малы по величине и наблюдаются, как правило, при низких температурах или в больших магнитных полях. На сегодняшний день большая часть экспериментальных работ посвящена прямому магнитоэлектрическому эффекту. Однако изучение обратного магнитоэлектрического эффекта также заслуживает внимания. Увеличить МЭ-эффект можно путем создания композитных структур. Данная работа посвящена изучению обратного МЭ-эффекта в двухслойном композитном образце, состоящем из пьезоэлектрической пластины  $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$  и аморфной  $\text{FeSiBNbCu}$  ферромагнитной ленты. Обнаружено, что МЭ-эффект зависит от величины перемещающего поля  $\mathbf{H}$ , электрического напряжения  $U$ , а также от их взаимной ориентации.

PACS: 75.85.+t

УДК: 537.622.

Ключевые слова: аморфные магнитные материалы, магнитоэлектрический эффект, магнитооптический эффект, мультиферроики, сегнетоэлектрики.

### ВВЕДЕНИЕ

В последние годы большое внимание уделяется исследованию магнитоэлектрических эффектов в твердых телах. Это направление берёт начало с исследований Рентгена в 1888 г. Им было обнаружено, что движущийся диэлектрик, помещённый в магнитное поле, изменяет свою намагниченность [1]. Существование обратного эффекта было установлено в 1905 г. [2]. В 1894 г. П. Кюри предположил возможность существования в одном кристалле магнитного и электрического упорядочения [3]. Материалы, обладающие одновременно как минимум двумя из возможных типов упорядочения (ферромагнитное, сегнетоэлектрическое, сегнетоэластичное), получили название мультиферроики. Особенность мультиферроиков состоит в том, что в них могут наблюдаться магнитоэлектрические (МЭ) эффекты, проявляющиеся в изменении электрической поляризации  $P$  образца под действием внешнего магнитного поля  $\mathbf{H}$  (прямой МЭ-эффект) или в изменении намагниченности образца  $M$ , под действием электрического поля  $\mathbf{E}$  (обратный МЭ-эффект).

В настоящее время накоплен огромный экспериментальный материал о физических свойствах мультиферроиков (см., например, обзорную статью [4]). Вместе с тем анализ существующих данных показал, что на сегодняшний день большая часть экспериментальных работ посвящена прямому магнитоэлектрическому эффекту. Выполненные в последние годы исследования прямого МЭ-эффекта в мультиферроиках спо-

собствовали более глубокому пониманию электромагнитных явлений в твердых телах. Кроме того, они предопределили развитие нового поколения устройств твердотельной электроники, таких как высокочувствительные датчики магнитных полей, элементы хранения и обработки информации, автономные источники электрической энергии и др. [5, 6]. Однако проблема влияния электрического поля на магнитное состояние магнитных материалов по-прежнему заслуживает активного изучения.

Теоретическое рассмотрение МЭ-эффекта было выполнено Л. Д. Ландау и Е. М. Лифшицем в 1956 г. [7]. Описывается этот эффект членом в выражении для свободной энергии,  $F_{ME}$ , линейным как по электрическому  $E$ , так и по магнитному  $H$  полю:

$$F_{ME} = -\alpha_{ik} E_i H_k.$$

При этом намагниченность и поляризация выражаются через частные производные от свободной энергии:

$$M_k = -\frac{\partial F}{\partial H_k}, P_i = -\frac{\partial F}{\partial E_i}.$$

Таким образом, при  $\mathbf{H} = 0$  электрическое поле создаёт в веществе намагниченность:

$$M_k = \alpha_{ik} E_i,$$

а при  $\mathbf{E} = 0$  магнитное поле создаёт электрическую поляризацию:

$$P_i = \alpha_{ik} H_k.$$

\*E-mail: svetlana.efr96@gmail.com

†E-mail: shal@magn.ru

МЭ-эффект в кристаллах допускается лишь определёнными классами магнитной симметрии. В частности, кристалл должен быть инвариантен относительно типов инверсий  $I$  и  $R$ , где  $I$  — пространственная,  $R$  — временная инверсия. Экспериментально магнитоэлектрический эффект впервые наблюдал Д. Н. Астров в 1960 г. Фактически им было зарегистрировано изменение намагниченности монокристалла  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  под действием переменного электрического поля [8].

Дальнейшие исследования показали, что однофазные магнитоэлектрические кристаллы естественного происхождения встречаются редко. МЭ-эффекты в них относительно слабые и проявляются при низких температурах, что ограничивает их практическое применение. Вместе с тем в композитных мультиферроиках, полученных в результате соединения пьезоэлектрической и магнитоэлектрической фаз, могут возникать сильные магнитоэлектрические отклики при температурах выше комнатной.

Идея магнитоэлектрических двухфазных композитных материалов была предложена van Suchtelen в 1972 г. [9]. По отдельности сегнетоэлектрическая и ферромагнитная фазы не проявляют магнитоэлектрических свойств. Однако в композитах, содержащих магнитоэлектрическую и пьезоэлектрическую компоненты, могут наблюдаться значительные по величине магнитоэлектрические эффекты. Механизм прямого МЭ-эффекта в композите состоит в следующем. Магнитное поле  $H$  вследствие прямой магнитоэлектрической деформации ферромагнитной компоненты композита, которая передается пьезоэлектрической компоненте благодаря механической связи между ними. В результате прямого пьезоэлектрического эффекта в пьезоэлектрической компоненте композита возникает поляризация  $P$ , соответственно, напряжение  $U$  на обкладках композита. В случае обратного МЭ-эффекта приложенное к пьезоэлектрической компоненте напряжение  $U$  вследствие обратного пьезоэлектрического эффекта вызывает деформацию пьезоэлектрической компоненты, которая передается ферромагнитной компоненте из-за механической связи между ними. В результате обратной магнитоэлектрической деформации это приводит к изменению намагниченности  $M$  ферромагнитной компоненты. Пьезоэлектрическую пластину вырезают таким образом, чтобы под действием электрического поля она деформировалась в требуемом для проведения эксперимента направлении.

Перспективными материалами для использования в качестве ферромагнитной фазы в композитах являются аморфные сплавы, что обусловлено их уникальными магнитными свойствами, такими как малое значение коэрцитивной силы, высокая намагниченность насыщения, отличная от нуля магнитоэлектрическая деформация, а также низкая стоимость по сравнению с кристаллическими металлами.

В данной работе в качестве ферромагнитной фазы в композитном образце использовался аморфный сплав  $\text{FeSiBNbCu}$ . Этот сплав впервые был получен

Yushizawa и др. в 1988 г. и был запатентован под названием Finemet [10]. Было установлено, что он обладает всеми вышеперечисленными свойствами. Кроме того, было обнаружено, что свойства  $\text{FeSiBNbCu}$  сплава можно существенно изменять с помощью отжига или замещения составляющих его элементов. Следует отметить, благодаря этому исследования физических свойств этого сплава ведутся вплоть до настоящего времени [11].

Целью данной работы является магнитооптическое изучение обратного магнитоэлектрического эффекта в двухслойном композитном образце, состоящем из пьезоэлектрической  $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$  пластины и аморфной  $\text{FeSiBNbCu}$  ферромагнитной ленты.

## 1. ОБРАЗЦЫ И МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ

### А. Изучаемый образец

Объектом исследования была двухслойная композитная структура, состоящая из аморфной  $\text{FeSiBNbCu}$  ленты (верхний слой), жестко закрепленной на пьезоэлектрической пластине  $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$  (PZT). Толщина магнитного слоя была равна 30 мкм, а пьезоэлектрического — 200 мкм. Длина и ширина образца были равны 8,5 и 4 мм, соответственно. Длинная сторона аморфного слоя совпадала с длиной исходной аморфной ленты, которая использовалась при изготовлении изучаемого образца. Магнитоэлектрическая деформация  $\lambda_S$  аморфной ленты была порядка  $2 \times 10^{-5}$ . На рис. 1 приведено схематическое изображение образца.

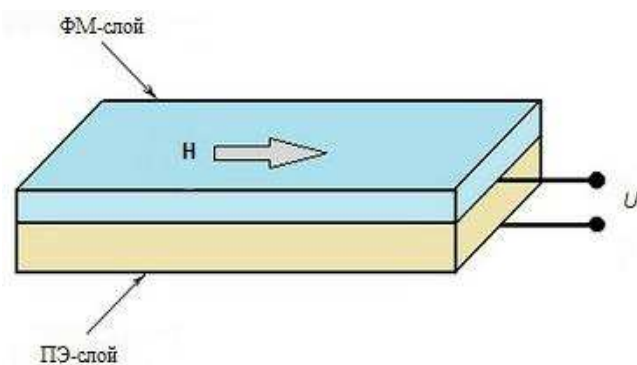


Рис. 1: Схема изучаемого образца

### В. Методика эксперимента

Методика измерения обратного МЭ-эффекта заключалась в следующем. К пьезоэлектрической пластине прикладывалось электрическое напряжение  $U$  различной величины (75, 100, 160, 200 В). При  $U = 0$ , а также при наличии  $U$  измерялись кривые намагничивания для аморфной ленты. Измерения были выполнены

на магнитооптическом магнитометре (подробно описанном в [12]) с помощью экваториального эффекта Керра (ЭЭК). ЭЭК состоит в изменении интенсивности света, отраженного от образца при его перемагничивании магнитным полем  $\mathbf{H}$ , приложенным параллельно поверхности образца и перпендикулярно плоскости падения света. Для повышения чувствительности методики использовался модуляционный метод регистрации магнитооптических сигналов, позволяющий устранять флуктуации интенсивности источника света и фототока приемника излучения. В силу того, что этот метод является дифференциальным, его чувствительность на 2-3 порядка выше по сравнению со статическим методом. Вследствие этого он позволяет измерять относительное изменение интенсивности отраженного света от перемагничиваемого образца вплоть до  $10^{-5}$ .

Измерения кривых намагничивания  $M/M_S(\mathbf{H})$ , где  $M_S$  — намагниченность насыщения образца, были выполнены при двух ориентациях внешнего магнитного поля. В одном случае магнитное поле  $\mathbf{H}$  было параллельно длинной стороне образца, а в другом — параллельно короткой стороне. Предварительные измерения кривых намагничивания при  $U = 0$  показали, что поле насыщения  $H_S$  аморфного слоя в магнитном поле, приложенном параллельно длинной стороне образца, меньше, чем в перпендикулярном поле. Это означает, что ось легкого намагничивания аморфного слоя совпадает с его длиной, что обусловлено положительным значением магнитострикции  $\lambda_S$ . Здесь, безусловно, нельзя исключить влияние формы магнитного слоя. Уменьшение ширины аморфного слоя по сравнению с длиной сопровождается увеличением размагничивающего фактора, и как следствие этого, увеличением поля насыщения.

Чтобы исключить влияние краевых эффектов, измерения кривых намагничивания были выполнены в центре образца. По изменению вида кривых намагничивания при  $U \neq 0$  по сравнению с исходными кривыми ( $U = 0$ ) оценивалась величина МЭ-эффекта.

Известно [13], что коэффициент обратного МЭ-эффекта,  $\alpha$ , рассчитывается по формуле

$$\alpha = \Delta B/E = \Delta B/(U/d), \quad (1)$$

где  $E$  — величина напряжённости электрического поля, приложенного к образцу,  $d$  — толщина образца.

Для количественной оценки величины индукции  $B$  на вибрационном магнитометре фирмы «Lake Shore VSM 7400» была измерена петля гистерезиса аморфной ленты.

Изменение магнитной индукции ( $\Delta B$ ) аморфной ленты за счёт МЭ-эффекта при каждом значении перемагничивающего поля  $\mathbf{H}$  определялось как разность значений индукции  $B$  при  $U = 0$  и  $U \neq 0$ :

$$\Delta B(H) = B(H, U \neq 0) - B(H, U = 0)$$

## 2. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

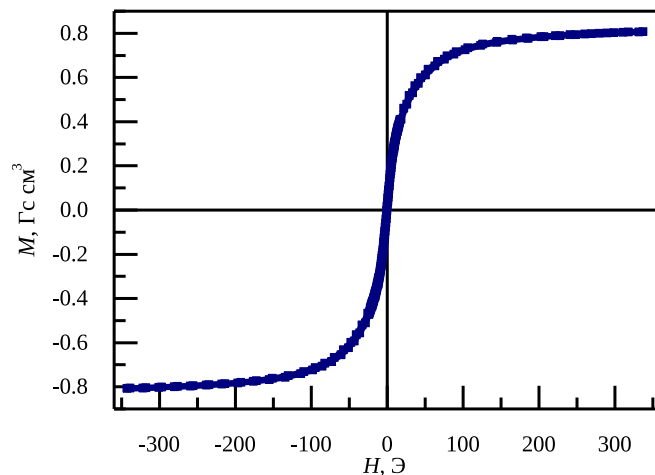


Рис. 2: Петля гистерезиса, измеренная для аморфной ленты

На рис. 2 представлена петля гистерезиса, измеренная для аморфной ленты на вибрационном магнитометре.

Используя выше приведенные данные и размеры образца, было найдено значение индукции насыщения аморфной ленты:  $B_S = 10472$  Гс.

На рис. 3 и рис. 4 представлены кривые намагничивания, наблюдаемые для аморфной ленты при отсутствии и при наличии различной величины электрического напряжения, приложенного к пьезоэлектрической пластине. Для наглядности слева на рис. 3 и рис. 4 приведены начальные участки кривых намагничивания.

Анализ выше приведенных данных показывает, что при ориентации  $\mathbf{H}$  параллельно/перпендикулярно длинной стороне образца, наклон кривых намагничивания уменьшается/увеличивается с ростом приложенного напряжения  $U$ .

Зависимости изменения магнитной индукции аморфной ленты  $\Delta B$  от величины приложенного к образцу магнитного поля и напряженности электрического поля  $E$ , приложенного к пьезоэлектрической пластине, представлены на рис. 5 и 6.

На рис. 7 представлены зависимости коэффициента обратного МЭ-эффекта  $\alpha$ , рассчитанного по формуле (1), от величины перемагничивающего поля при ориентациях  $\mathbf{H}$  параллельно и перпендикулярно длинной стороне образца.

Анализ полученных данных показывает, что при ориентации перемагничивающего поля  $\mathbf{H}$  параллельно длинной стороне образца максимальное абсолютное значение обратного МЭ-эффекта  $\alpha$  достигает  $0.1$  Гс·см/В, а при ориентации  $\mathbf{H}$  перпендикулярно длинной стороне образца максимальное значение  $\alpha$  равно  $0.049$  Гс·см/В.

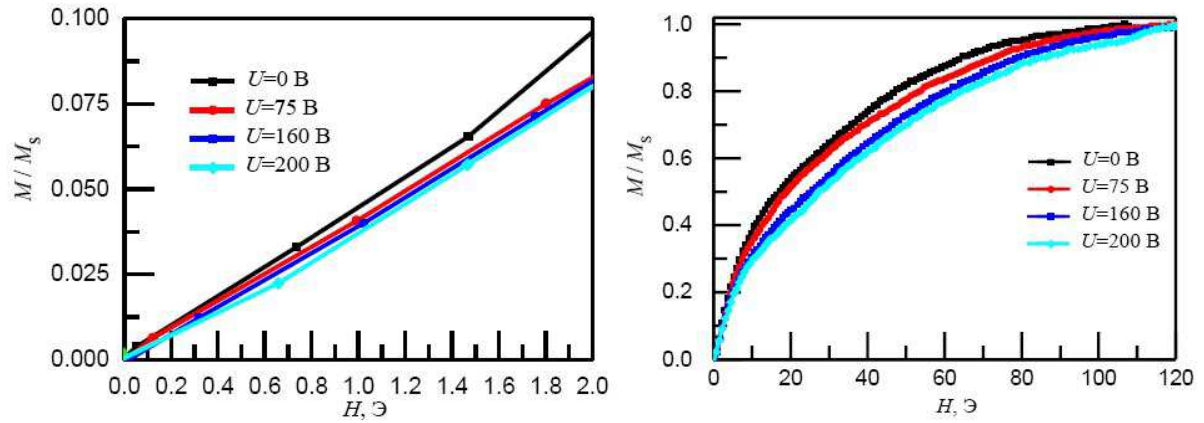


Рис. 3: Кривые намагничивания, наблюдаемые для изучаемого образца при отсутствии и при наличии электрического напряжения  $U$ . Перемагничивающее поле  $\mathbf{H}$  направлено параллельно длинной стороне образца

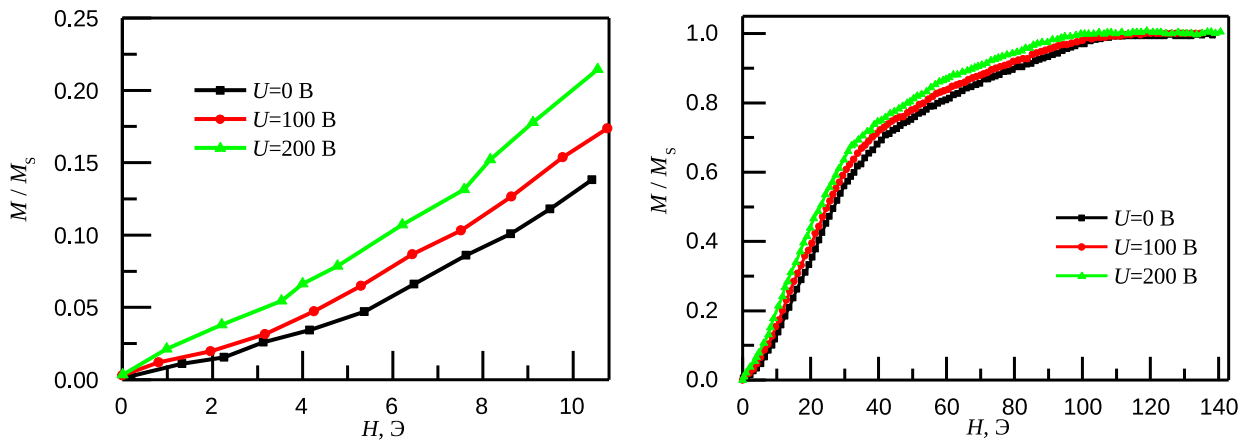


Рис. 4: Кривые намагничивания, наблюдаемые для изучаемого образца при отсутствии и при наличии электрического напряжения  $U$ . Перемагничивающее поле  $\mathbf{H}$  приложено перпендикулярно длинной стороне образца

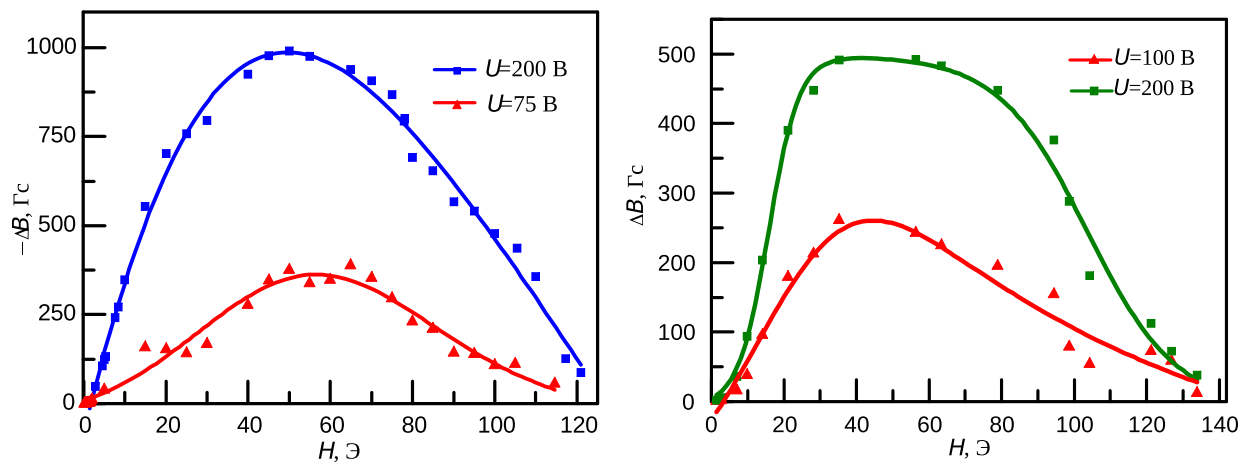


Рис. 5: Зависимости изменения магнитной индукции  $\Delta B$  от напряженности перемагничивающего поля  $\mathbf{H}$ . Поле  $\mathbf{H}$  направлено параллельно (слева) и перпендикулярно (справа) длинной стороне образца

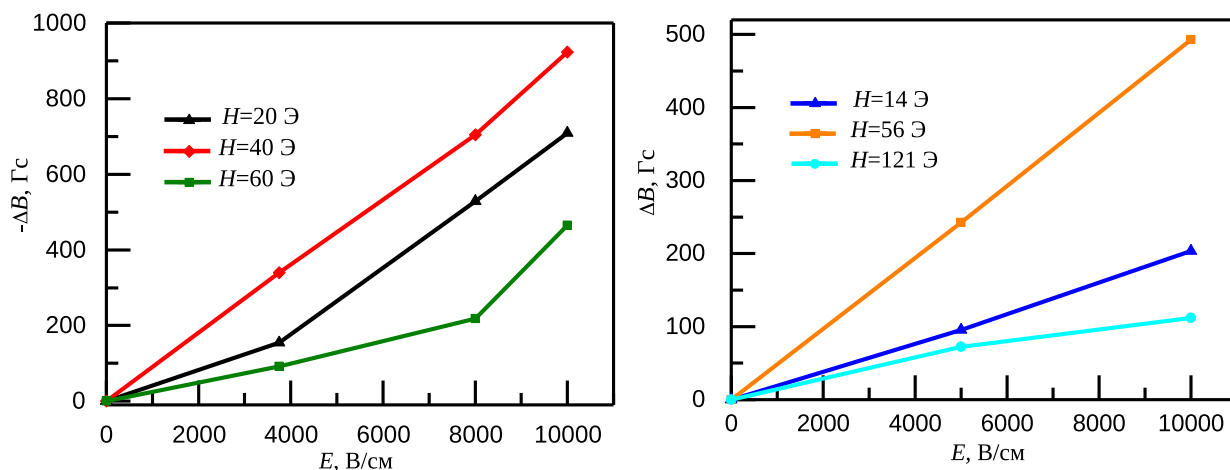


Рис. 6: Зависимости изменения магнитной индукции  $\Delta B$  от напряженности электрического поля  $E$ . Поле  $\mathbf{H}$  направлено параллельно (слева) и перпендикулярно (справа) длинной стороне образца

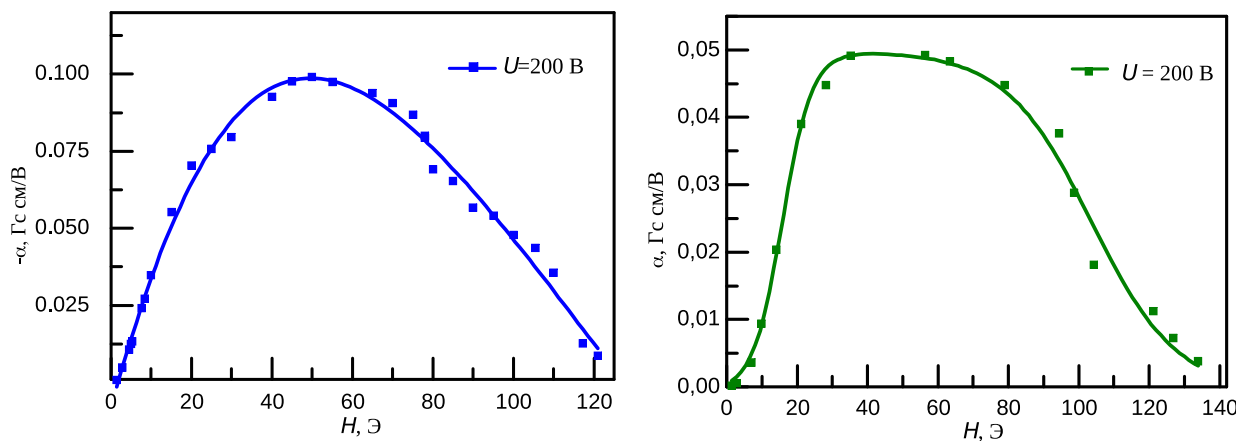


Рис. 7: Зависимости коэффициента обратного МЭ-эффекта  $\alpha$  от напряженности перемагничивающего поля  $H$ . Поле  $\mathbf{H}$  направлено параллельно (слева) и перпендикулярно (справа) длинной стороне образца

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Впервые магнитооптический метод исследования магнитных материалов позволил обнаружить и проанализировать особенности обратного магнитоэлектрического эффекта в двухслойной композитной структуре, состоящей из аморфного FeSiBNbCu слоя и Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> пластины. Установлено, что изменение ориентации перемагничивающего поля  $\mathbf{H}$  от совпадающего с длинной стороной изучаемого образца к перпендикулярному направлению сопровождается измене-

нием величины и знака обратного МЭ-эффекта. Обнаружено, что максимальное абсолютное значение обратного МЭ-эффекта  $\alpha$  при ориентации перемагничивающего поля  $\mathbf{H}$  параллельно длинной стороне образца порядка 0.1 Гс·см/В, а при перпендикулярном направлении — 0.049 Гс·см/В.

Различие знака обратного МЭ-эффекта при перемагничивании образца магнитным полем, приложенном параллельно длинной и короткой стороне образца, обусловлено анизотропией аморфного слоя.

[1] Rontgen W. C. Ann.Phys. 1888. **35**. P. 264.  
 [2] Wilson N. A. Philos. Trans. R. Soc. London, Ser. A. 1905. **204**. P. 121.  
 [3] Curie P. J. Phys. 1894. **3** (Ser. III). P. 393.

[4] Nan C.-W., Bichurin M.I., Dong S.X., Viehland D., Srinivasan G. J. Appl. Phys. 2008. **103**. P. 031101.  
 [5] Eerenstein W., Wiora M., Prieto J.L., Scott J.F., Mathur N.D. Nature Materials. 2007. **6**. P. 348.



- [6] *Fusil S., Garsia V., Barthelemy A., Bibes M.* Annu. Rev. Mater. Res. 2014. **44**, P. 91.
- [7] *Ландау Л. Д., Лифшиц Е. М.* Электродинамика сплошных сред. Наука. М., 1982.
- [8] *Астров Д. Н.* ЖЭТФ. 1961. **40**, N 4. P. 1035.
- [9] *Van Suchtelen J.* Philips Res. Rep. 1972. **27**, P. 28.
- [10] *Yoshizawa Y., Oguma S., Yamauchi K.* J. Appl. Phys. 1988. **64**, P. 6044.
- [11] *Gheiratmand T., Madaah Hosseini H. R.* JMMM. 2016. **408**, P. 177.
- [12] *Shalyguina E. E., Komarov M. A., Abrosimova N. M., Shalygin A. N.* J. Magn. Magn. Mater. 2002. V.254-255. P. 173.
- [13] *Калгин А. В., Григорьев Е. С., Граби З. Х.* Альтернативная энергетика и экология. 2013 **122**, № 03/2 С.49.

---

## Inverse magnetoelectric effect in $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ (PZT)/Finemet two-layered composite structures

S. L. Efremova<sup>a</sup>, E. E. Shalygina<sup>b</sup>

<sup>1</sup>*Department of magnetism, Faculty of Physics, M.V.Lomonosov Moscow State University. Moscow 119991, Russia*  
E-mail: <sup>a</sup>svetlana.efr96@gmail.com, <sup>b</sup>shal@magn.ru

In recent years, much attention has been paid to the study of magnetoelectric (ME) effects in solids that was caused by the possibility of their practical applications. In most of natural crystals, ME effects are small in magnitude and are observed, as a rule, at low temperatures or in large magnetic fields. To date, most of the experimental work is devoted to a direct magnetoelectric effect. However, the study of the inverse magnetoelectric effect also deserves attention. The ME effect can be increased by creating composite structures. This paper is devoted to the study of the reverse ME effect in a two-layer composite sample consisting of a piezoelectric plate  $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$  and an amorphous  $\text{FeSiBNbCu}$  ferromagnetic ribbon. It was found that the ME effect depends on the magnitude of the magnetization reversal field,  $\mathbf{H}$ , the electric voltage,  $U$ , and also on their mutual orientations.

PACS: 75.85.+t

*Keywords:* amorphous magnetic materials, magnetoelectric effect, magneto-optical effect, multiferroics, ferroelectrics.

*Received 14 May 2018.*

### Сведения об авторах

1. Шалыгина Елена Евгеньевна – доктор физ.-мат. наук, профессор, гл. науч. сотрудник; тел.: (495) 939-24-35, e-mail: shal@magn.ru.
  2. Ефремова Светлана Леонидовна – студент; e-mail: svetlana.efr96@gmail.com.
-