

ВЛИЯНИЕ ТЕМПЕРАТУРЫ НА МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ В СТРУКТУРЕ С ЛАНГАТАТОМ

© 2025 г. Е. В. Болотина^{1,*}, Д. В. Савельев¹, А. В. Турутин², И. В. Кубасов²,
А. А. Темиров², Л. Ю. Фетисов¹

¹Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования
«МИРЭА — Российский технологический университет», Научно-образовательный центр
«Магнитоэлектрические материалы и устройства», Москва, Россия

²Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования
«Национальный исследовательский технологический университет «МИСИС»,
Лаборатория физики оксидных сегнетоэлектриков, Москва, Россия

*E-mail: ekaterina.bolotina1@mail.ru

Поступила в редакцию 15.11.2024 г.

После доработки 14.12.2024 г.

Принята к публикации 30.12.2024 г.

Изучена зависимость параметров резонансного магнитоэлектрического эффекта от температуры в трехслойной композитной структуре, состоящей из монокристалла лангата с осажденными на обе стороны тонкими слоями аморфного ферромагнитного сплава. Измерения выполнены в температурном диапазоне от 220 до 340 К. Установлен линейный характер уменьшения магнитоэлектрического коэффициента и чувствительности к магнитному полю с увеличением температуры.

Ключевые слова: магнитоэлектрический эффект, температурная зависимость, лангатат, аморфный магнитный сплав, магнетронное распыление

DOI: 10.31857/S0367676525040108, **EDN:** GTLUOO

ВВЕДЕНИЕ

Среди мультиферроидных материалов, обладающих магнитоэлектрическими (МЭ) эффектами, наибольший интерес вызывают слоистые композитные структуры, состоящие из соединенных между собой пьезоэлектрических (ПЭ) и ферромагнитных (ФМ) слоев. МЭ эффект заключается в изменении электрической поляризации образца при помещении его в магнитное поле и возникает в таких композитах в результате комбинации магнитострикции ФМ слоя и пьезоэлектрического эффекта в ПЭ слое [1–4]. Активное исследование МЭ эффектов привело к переходу от образцов с клеевым слоем к тонкопленочным структурам, изготовленным при помощи разнообразных методов напыления.

Такой переход обусловлен необходимостью повышения технологичности изготовления устройств с функциональными элементами на основе МЭ слоистых композитов, прежде всего, датчиков магнитных полей. Переход к тонкопленочным покрытиям приводит к улучшению воспроизводимости свойств МЭ композитов, повышению акустической добротности и, как следствие, чувствительности датчиков, работающих в резонансном режиме, а также уменьшению размеров устройств. Критически важным для

массового производства устройств на основе МЭ эффектов является их температурная стабильность и совместимость используемых материалов с существующими технологиями [5].

К настоящему моменту большинство исследований проводятся при комнатной температуре, при этом опубликован ряд работ, посвященных исследованию влияния температуры на МЭ характеристики композитных структур. В работах [6–8] теоретически и экспериментально исследованы МЭ эффекты в композитных структурах PZT-5A/TbDyFe, PMN-PT/никель и лангатат/никель при температурах от 150 до 400 К. В работах [8, 9] показано, что в структуре с электролитически осажденным на поверхность лангатата слоем никеля генерируемое МЭ напряжение зависит от совокупного вклада изменения добротности образца и пьезомагнитного модуля слоя никеля. В то же время клеевой слой для структур, в которых ПЭ и ФМ слои соединены с помощью клея, сильно деградирует при изменении температуры, что приводит к существенному (или непредсказуемому) уменьшению МЭ коэффициентов при температурах, отличных от комнатной [8–10].

Использование пьезоэлектрических керамик является нецелесообразным для применения в

прецизионных сенсорах магнитных полей, ввиду сильной зависимости их электрических и механических свойств от температуры окружающей среды и низкой акустической добротности [11]. Монокристаллы лангатата демонстрируют высокую термостабильность электрических и механических свойств [12] и совместимы с МЭМС технологиями, что делает их кандидатами на роль пьезоэлектрической составляющей МЭ композитов для датчиков магнитных полей. В данной работе исследования МЭ эффекта были проведены в структурах на основе пьезоэлектрического монокристалла лангатата, который обладает термостабильными свойствами [10–12]. Влияние температуры на МЭ эффект в таких композитных структурах ранее не проводили.

ОПИСАНИЕ ОБРАЗЦА

В данной работе исследован МЭ эффект в трехслойной композитной структуре на основе монокристалла лангатата ($\text{La}_3\text{Ga}_{5.5}\text{Ta}_{0.5}\text{O}_{14}$) X – срез, изготовленного АО «Фомос-Материалы», Москва [13]. На обе стороны монокристалла были осаждены слои тонкого аморфного ферромагнетика $\text{Fe}_{77}\text{Co}_4\text{Si}_8\text{B}_{11}$ толщиной около 1.5 мкм. Размеры структуры составили $21.3 \times 4.7 \times 0.4$ мм³. ФМ слои магнитострикционного материала наносили в НИТУ МИСИС (кафедра материаловедения полупроводников и диэлектриков) методом высокочастотного магнетронного распыления мишени. Мишень имела состав: $\text{Fe}_{70}\text{Co}_8\text{Si}_{12}\text{B}_{10}$. Осаждение проводили в вакуумной технологической камере SUNPLA-40TM без дополнительного нагрева подложкодержателя. Синтез пленок проходил в атмосфере аргона с рабочим давлением 0.5 Па при мощности магнетрона 200 Вт. Подробно методика изготовления тонкого аморфного ферромагнетика $\text{Fe}_{77}\text{Co}_4\text{Si}_8\text{B}_{11}$ описана в работах [14, 15].

МЕТОДИКА ИЗМЕРЕНИЙ

Исследования МЭ эффекта проводили динамическим методом на установке, разработанной в НОЦ «Магнитоэлектрические материалы и устройства» РТУ МИРЭА [11] в диапазоне температур от 220 до 340 К. Композитную структуру помещали во фторопластовую ячейку между кольцами Гельмгольца, которые создавали однородное постоянное магнитное поле напряженностью до 350 Э. Переменное магнитное поле с амплитудой h до 0.22 Э создавали при помощи модулирующих катушек, питаемых от генератора Agilent 33210A (Agilent Technologies, Inc., Santa Clara, CA, USA). Напряжение $u(t)$, генерируемое МЭ структурой, поступало на предусилитель SR-560 со входным импедансом 100 МОм с коэффициентом усиления $k = 1$, который работал как фильтр верхних частот с частотой среза

$f_{с-о} = 100$ Гц. Напряжение с выхода предусилителя измеряли вольтметром АКИП – 2401 (АО «ПриСТ», Москва) со входным сопротивлением 10 МОм.

Температуру в рабочей камере задавали, изменяя поток испаряемого жидкого азота, нагретого до определенной температуры, и поддерживали на одном уровне путем пропорционально-интегрально-дифференцирующего (ПИД) регулирования. Температуру измеряли с помощью терморезистора типа Pt1000, расположенного вблизи образца. Температурные измерения проводили согласно следующему протоколу. Структуру охлаждали до начальной температуры 220 К, измеряли амплитудно-частотную характеристику напряжения, а также зависимости напряжения от постоянного и переменного магнитных полей на частоте резонанса. Изменение температуры осуществляли с шагом 10 К при отключенном внешнем магнитном поле, на каждом значении температуры измерения повторяли. На основе полученных амплитудно-частотных характеристик (АЧХ) были построены зависимости резонансной частоты и добротности от температуры.

РЕЗУЛЬТАТЫ ИЗМЕРЕНИЙ

Результаты исследования линейного МЭ эффекта при комнатной температуре представлены на рис. 1. На рис. 1а приведена зависимость МЭ напряжения u , генерируемого структурой, от частоты переменного магнитного поля f амплитудой $h = 0.06$ Э. Измерения проводили при постоянном поле $H_m = 3$ Э. Пик на частоте $f \approx 115.43$ кГц соответствует первой моде продольных акустических колебаний и имеет амплитуду $u \approx 420$ мВ. Добротность резонанса составляет $Q = \Delta f/f \approx 4800$, где Δf – ширина пика на уровне 0.7 от высоты резонанса.

На рис. 1б приведена зависимость МЭ напряжения, генерируемого структурой, от постоянного магнитного поля, измеренная на частоте резонанса при амплитуде переменного магнитного поля $h = 0.06$ Э. Видно, что напряжение растет до максимального значения ($u \approx 420$ мВ), достигаемого в оптимальном магнитном поле $H_m = 3$ Э. При дальнейшем увеличении постоянного магнитного поля напряжение монотонно убывает. Форма полученной кривой определяется формой полевой зависимости пьезомагнитного модуля ($q = \partial\lambda/\partial H$, где λ – зависимость коэффициента магнитострикции от магнитного поля) ФМ слоя [10].

Значение МЭ коэффициента определяется формулой $\alpha = (u/b)/h$, где u – амплитуда МЭ напряжения, h – амплитуда переменного магнитного поля, b – толщина ПЭ слоя структуры. Значение МЭ коэффициента, полученное в оптимальном поле, составило $\alpha = 175 \text{ В} \cdot \text{Э}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$.

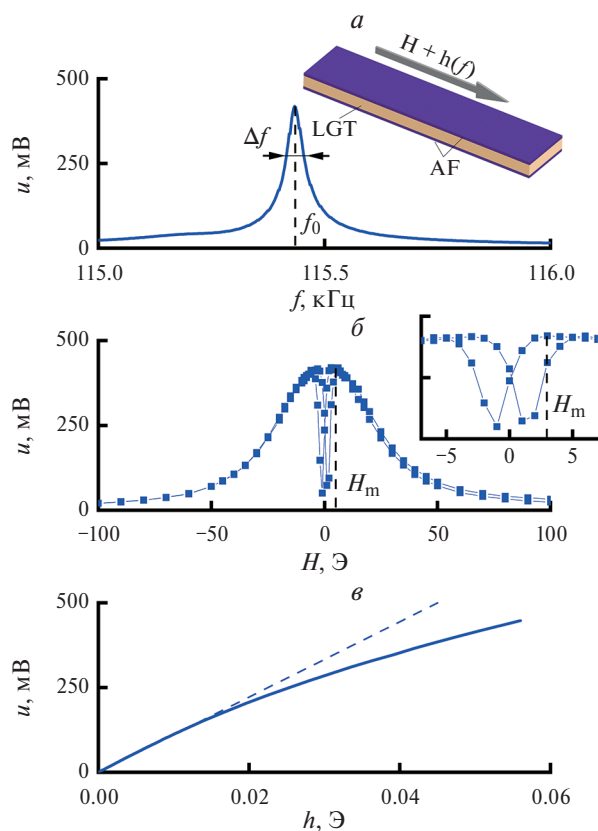


Рис. 1. Характеристики линейного магнитоэлектрического эффекта: амплитудно-частотная характеристика структуры (а), измеренная при постоянном магнитном поле $H_m = 3$ Э, при амплитуде переменного магнитного поля $h = 0.06$ Э; зависимость МЭ напряжения, генерируемого структурой, от постоянного магнитного поля (б), измеренная на частоте резонанса при амплитуде переменного магнитного поля $h = 0.06$ Э; зависимость МЭ напряжения от амплитуды переменного магнитного поля (в), измеренная на частоте резонанса при постоянном магнитном поле $H_m = 3$ Э.

Это больше, чем значение $64 \text{ В} \cdot \text{Э}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$, полученное на структуре Metglas-LGT-Metglas, изготовленной методом склеивания [14] за счет лучшей передачи деформации между слоями, но в ~ 2.5 раза меньше коэффициента $450 \text{ В} \cdot \text{Э}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ структуры LGT-Metglas с магнитным слоем толщиной 25 мкм [11], что объясняется, в первую очередь, малой толщиной ФМ слоя по сравнению с толщиной лангатата в нашем случае [17].

На рис. 1в приведена зависимость МЭ напряжения, генерируемого структурой, от амплитуды переменного магнитного поля h , измеренная в поле H_m . Полученная зависимость в области малых амплитуд переменного магнитного поля h имеет вид, близкий к линейному. Отклонение от линейной зависимости в сторону меньших значений напряжения при росте h обусловлено возникновением нелинейных МЭ эф-

фектов. Чувствительность образца, определяемая как тангенс угла наклона линейной части зависимости u от h на линейном участке до 0.02 Э, равна $s \approx 7.5 \text{ В} \cdot \text{Э}^{-1}$, что больше чувствительности образца, изготовленного методом склеивания ($s \approx 6 \text{ В} \cdot \text{Э}^{-1}$) [16].

На втором этапе были исследованы температурные зависимости линейного магнитоэлектрического эффекта. Зависимости МЭ коэффициента, акустической добротности резонанса и резонансной частоты от температуры получены на основе измеренных частотных зависимостей МЭ напряжения и представлены на рис. 2.

На рис. 2а приведена зависимость значения МЭ коэффициента, полученного в оптимальном магнитном поле H_m , значение которого подбиралось для каждой точки, от температуры T . Значение МЭ коэффициента линейно уменьшается со значения $\alpha \approx 250 \text{ В} \cdot \text{Э}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ при температуре 220 К до значения $\alpha \approx 150 \text{ В} \cdot \text{Э}^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$ при температуре 340 К. Все значения МЭ коэффициента получены в оптимальном магнитном поле H_m при амплитуде переменного магнитного поля $h = 0.22$ Э. Общее изменение МЭ коэффициента $\Delta\alpha/\alpha$ составляет 40%. Такое поведение МЭ эффекта связано с уменьшением акустиче-

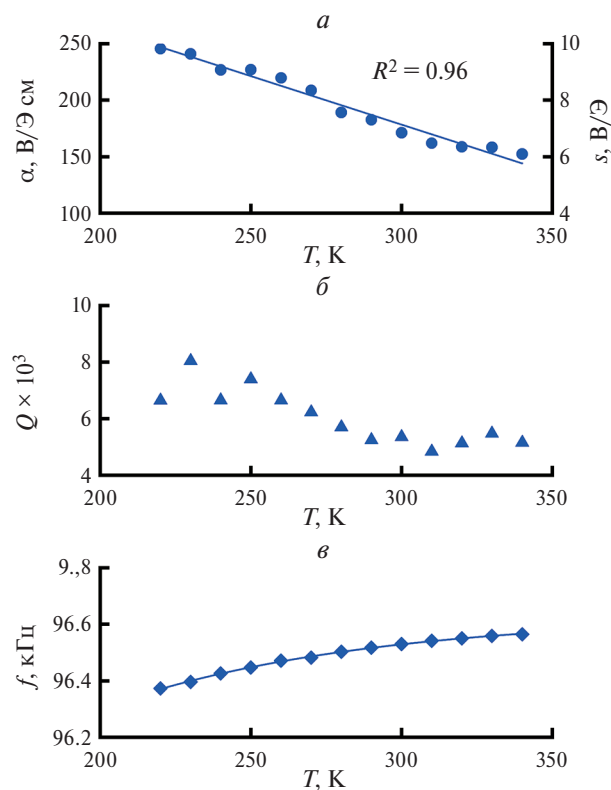


Рис. 2. Температурные зависимости линейного МЭ эффекта: зависимость МЭ коэффициента и чувствительности от температуры (а), зависимость акустической добротности резонанса от температуры (б), зависимость резонансной частоты структуры от температуры (в).

ской добротности резонанса со значения примерно от 8000 до примерно 5100 при увеличении температуры, что видно на рис. 2б. Общее изменение добротности также составило примерно 40%, что может быть обусловлено увеличением внутренних механических потерь резонатора от температуры. Помимо этого, на рис. 2а приведена зависимость чувствительности структуры к магнитному полю от температуры. Видно, что чувствительность линейно падает с увеличением температуры около 40% от $s \approx 9.8$ В/Э (при $T = 220$ К) до $s \approx 6$ В/Э (при $T = 340$ К).

Наконец, на рис. 2в приведена зависимость резонансной частоты f от температуры, на которой наблюдается незначительный рост (0.1%) резонансной частоты с увеличением температуры, что обусловлено температурной стабильностью модуля Юнга ($f \propto \sqrt{E_{22}}$) монокристалла лангатата [18].

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, нами было исследовано влияние температуры на характеристики магнитоэлектрического эффекта в структуре, изготовленной на основе пластины монокристалла лангатата с напыленными с обеих ее сторон слоями тонкого аморфного ферромагнитного сплава. При комнатной температуре магнитоэлектрический коэффициент составил $\alpha \approx 175$ В·Э⁻¹·см⁻¹. Показано, что магнитоэлектрический коэффициент линейно уменьшается со значения 350 В·Э⁻¹·см⁻¹ на 40 % в диапазоне температур от 220 до 340 К. Резонансная частота структуры практически не зависит от температуры. Полученные результаты могут быть перспективны для создания высокочувствительных датчиков магнитных полей на основе монокристаллов, работающих в широком диапазоне температур.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования РФ в рамках государственного задания (проект № FSME-2023-0003). Кубасов И.В., Турутин А.В. и Темиров А.А. благодарят грант Российского научного фонда № 24-49-10017, <https://rscf.ru/project/24-49-10017/> в части синте-

за метгласа и подготовки магнитоэлектрических структур.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Nan C.W., Bichurin M.I., Dong S. et al. // J. Appl. Phys. 2008. V. 103. Art. No. 031101.
2. Turutin A.V., Kubasov I.V., Kislyuk A.M. et al. // Nanobiotech. Reports. 2022. V. 17. P. 261.
3. Kuts V.V., Turutin A.V., Kislyuk A.M. et al. // Mod. Elect. Mater. 2023. V. 9. No. 3. P. 105.
4. Зеленов Ф.В., Тарасенко Т.Н., Ковалёв О.Е. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2023. Т. 87. № 3. С. 373. Zelenov F.V., Tarasenko T.N., Kovalev O.E. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2023. V. 87. No. 3. P. 322.
5. Luo B., Will-Cole A.R., Dong C. et al. // Nature Rev. Electr. Eng. 2024. V. 1. P. 317.
6. Zhang J., Gao Y. // Int. J. Sol. Struct. 2015. V. 69. P. 291.
7. Subhani S.M., Maniprakash S., Arockiarajan A. // Mechanics. Mater. 2018. V. 126. P. 111.
8. Бурдин Д.А., Фетисов Ю.К., Чашин Д.В., Экономов Н.А. // Письма в ЖТФ. 2012. Т. 38. № 14. С. 41; Burdin D.A., Fetisov Y.K., Chashin D.V., Ekonomov N.A. // Tech. Phys. Lett. 2012. V. 38. No 7. P. 661.
9. Бурдин Д.А., Фетисов Ю.К., Чашин Д.В., Экономов Н.А. // Изв. РАН. Сер. физ. 2012. Т. 78. № 2. С. 201; Burdin D.A., Fetisov Y.K., Chashin D.V., Ekonomov N.A. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2014. V. 78. No. 2. P. 131.
10. Бурдин Д.А., Фетисов Л.Ю., Фетисов Ю.К. и др. // ЖТФ. 2014. Т. 84. № 9. С. 90.
11. Burdin D.A., Ekonomov N.A., Chashin D.V. et al. // Materials. 2017. V. 10. Art. No. 1183.
12. Davulis P., Pereira da Cunha M. // Proc. IEEE Int. Freq. Control Symp. (California, 2010). P. 252.
13. https://newpiezo.com/knowledge_base/crystals/langatat.
14. Turutin A.V., Skryleva E.A., Kubasov I.V. et al. // Materials. 2023. V. 16. No. 2. Art. No. 484.
15. Fetisov L.Y., Dzhaparidze M.V., Savelev D.V. et al. // Sensors. 2023. V. 23. No. 9. Art. No. 4523.
16. Fedulov F.A., Fetisov L.Y., Chashin D.V. et al. // Sens. Actuat. A. Phys. 2022. V. 346. Art. No. 113844.
17. Филиппов Д.А., Лалетин В.М., Галичян Т.А. // ФТТ. 2013. Т. 55. № 9. С. 1728; Filippov D.A., Laleitin V.M., Galichyan T.A. // Phys. Solid State. 2013. V. 55. No. 9. P. 1840.
18. Davulis P.M. Characterization of the Elastic, Piezoelectric, and Dielectric Properties of Langatate At High Temperatures Up To 900 °C. Doctor. Dissert. The University of Maine, 2013.

Influence of temperature on magnetoelectric effect in a structure containing langatate

E. V. Bolotina^{a,*}, D. V. Savelev^a, A. V. Turutin^b, I. V. Kubasov^b, A. A. Temirov^b, L. Y. Fetisov^a

^a*MIREA — Russian Technological University, Moscow, 119454 Russia*

^b*Laboratory of Physics of Oxide Ferroelectrics, National University of Science and Technology MISIS, Moscow, 119049 Russia*

**e-mail: ekaterina.bolotina1@mail.ru*

The effect of temperature on the linear magnetoelectric response in a three-layered composite structure comprising a single crystal of langatate with thin films of an amorphous ferromagnetic alloy deposited on either side was investigated. Measurements were conducted in the temperature range of 220–340 K. As a result, a linear reduction in the magnetoelectric coupling coefficient and sensitivity to a magnetic field with an increase in temperature was observed.

Keywords: magnetoelectric effect, temperature dependence, langatate, amorphous magnetic alloy, magnetron sputtering