

## ИССЛЕДОВАНИЕ МУЛЬТИФЕРРОИДНЫХ МНОГОСЛОЙНЫХ СТРУКТУР НА ОСНОВЕ ПЛЕНОК ФЕРРИТОВ И СЕГНЕТОЭЛЕКТРИКОВ

Семенов А.А.<sup>1</sup>, Дедык А.И.<sup>1</sup>, Белявский П.Ю.<sup>1</sup>, Устинов А.Б.<sup>1</sup>, Никитин А.А.<sup>1</sup>, Мыльников И.Л.<sup>1</sup>, Иванов М.С.<sup>2</sup>, Фирсова Н.Ю.<sup>2</sup>, Фетисов Л.Ю.<sup>2</sup>, Кудрявцев А.В.<sup>2</sup>

<sup>1</sup> ФГБОУ ВПО «Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет «ЛЭТИ» им. В.И. Ульянова (Ленина)», Санкт-Петербург, Россия (197376, г. Санкт-Петербург, ул. Профессора Попова, 5), e-mail: semalexander@gmail.com

<sup>2</sup> ФГБОУ ВПО «Московский государственный технический университет радиотехники, электроники и автоматики», Москва, Россия (119454, г. Москва, пр. Вернадского, 78), e-mail: natfirsova@gmail.com

В статье описываются результаты исследований диэлектрических магнитных и структурных свойств пленок с мультиферроидными свойствами. В работе исследованы два способа формирования мультиферроидных сред – на основе многослойных структур, содержащих пленки сегнетоэлектриков и ферромагнетиков, а также введением в сегнетоэлектрик магнитных элементов в концентрациях, достаточных для возникновения у последнего магнитных свойств. Наиболее перспективными материалами для создания многослойных структур феррит – сегнетоэлектрик являются сегнетоэлектрики на основе перовскитов, в частности твердые растворы титаната бария-стронция  $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$  (BSTO), а также ферриты из железиттриевого граната  $Y_3Fe_5O_{12}$  (YIG) и галлий-гадолиниевого граната (GGG). В статье экспериментально показано, что связь между электрической и магнитной подсистемами (магнитоэлектрический эффект) дает возможность изменять диэлектрические свойства с помощью магнитного поля для слоистых структур Cu-Cr/BSTO/YIG/GGG.

Ключевые слова: многослойные структуры, мультиферроик, феррит, сегнетоэлектрик.

## INVESTIGATIONS OF THE MULTIFERROIC MULTILAYERED STRUCTURES BASED ON FERRITE AND FERROELECTRIC FILMS

Semenov A.A.<sup>1</sup>, Dedyk A.I.<sup>1</sup>, Beliaevskiy P.Y.<sup>1</sup>, Ustinov A.B.<sup>1</sup>, Nikitin A.A.<sup>1</sup>, Mylnikov I.L.<sup>1</sup>, Ivanov M.S.<sup>2</sup>, Firsova N.Y.<sup>2</sup>, Fetisov L.Y.<sup>2</sup>, Kudriavtsev A.V.<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Saint Petersburg State Electrotechnical University “LETI”. Saint-Petersburg, Russia (197376, Saint-Petersburg, ul. Professora Popova, 5), e-mail: semalexander@gmail.com

<sup>2</sup> Moscow State Technical University of Radioengineering, Electronics and Automation, Moscow, Russia (119454, Moscow, av. Vernadskogo, 78), e-mail: natfirsova@gmail.com

The paper describes the results of studies of the dielectric, magnetic and structural properties of the multiferroic films. We have investigated two ways of forming multiferroic media – first of them based on multilayer film structures containing ferroelectric and ferromagnetic films and the second by the introduction of the magnetic elements in ferroelectric films in concentrations sufficient to cause magnetic properties. The most promising material for multilayer ferrite-ferroelectric are ferroelectrics based on perovskite solid solutions in particular barium strontium titanate  $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$  (BSTO), and ferrites of iron garnet  $Y_3Fe_5O_{12}$  (YIG). This article has been shown experimentally that the relationship between electric and magnetic subsystems (magnetoelectric effect) allows to modify the dielectric properties by the magnetic field in layered structures Cu-Cr/BSTO/YIG/GGG.

Key words: multilayered structures, multiferroic, ferrite, ferroelectric.

### Введение

В современной микроэлектронике большой практический интерес представляют мультиферроики. Связь между электрической и магнитной подсистемами дает возможность управлять их магнитными свойствами электрическим полем и, наоборот, изменять их электрические свойства в магнитном поле.

Ферромагнетики, сегнетоэлектрики и сегнетоэластики, несмотря на разную природу происходящих в них структурных фазовых переходов, демонстрируют целый ряд сходных свойств: возникновение доменов, аномалии физических свойств в окрестности перехода, наличие гистерезисов. Если в веществе сосуществуют хотя бы два из трех параметров порядка: магнитного, электрического или деформационного, то его называют мультиферроиком. Эти материалы проявляют свойства, характерные как для магнетиков, так и для сегнетоэлектриков в отдельности – спонтанную намагниченность, магнитострикцию, спонтанную поляризацию и пьезоэлектрический эффект, так и совершенно новые свойства, связанные с взаимодействием магнитной и электрической подсистем [4].

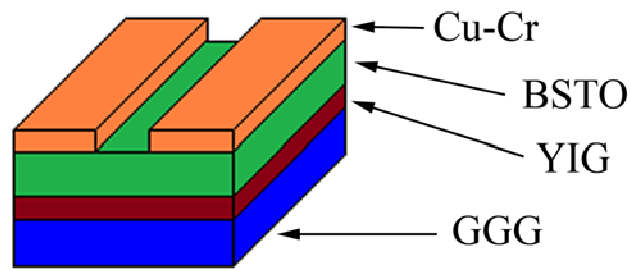
При этом сама структура феррит – сегнетоэлектрик может быть реализована либо в виде слоев феррита и сегнетоэлектрика [6], либо в виде гетерофазной системы сегнетоэлектрика, перемешанного с магнитными ионами [3]. Наибольшие значения МЭ эффект достигает в гетероструктурах, созданных на основе материалов, обладающих большими значениями магнитострикционного и пьезоэлектрического коэффициентов. С точки зрения применения гетероструктур феррит – сегнетоэлектрик для создания СВЧ-устройств в качестве феррита наиболее перспективны монокристаллы железо-иттриевого граната как имеющие минимальные магнитные потери на СВЧ. Большинство исследований сосредоточено на изучении сочетания кристалла ЖИГ с различными типами сегнетоэлектрических слоев.

### **Подготовка образцов и методика эксперимента**

Наиболее перспективными материалами для создания многослойных структур феррит – сегнетоэлектрик являются сегнетоэлектрики на основе перовскитов, в частности твердые растворы титаната бария-стронция  $Ba_xSr_{1-x}TiO_3$  (BSTO), а также ферриты из железоиттриевого граната  $Y_3Fe_5O_{12}$  (YIG) и галлий-гадолиниевого граната (GGG).

В ходе работы были получены многослойные пленочные структуры, Cu-Cr/BSTO/YIG/GGG. Для исследований влияния подложки на свойства всей структуры использовались различные подложки: гадолиний-галлиевый гранат (GGG), сапфир ( $\alpha\text{-}I_2O_3$ ), алюминат лантана (LAO), поликор. Толщина подложек составляла 300–500  $\mu m$ . Пленки BSTO ( $Ba_{0,5}Sr_{0,5}TiO_3$ ) наносились методом ВЧ магнетронного распыления [5] и имели толщину  $h = 0,5\text{--}1,5 \mu m$ . Пленки YIG ( $Y_3Fe_5O_{12}$ ) толщиной 5–8  $\mu m$  получены с помощью жидкофазной эпитаксии. В качестве электродов использовались медь с подслоем хрома Cu-Cr.

После изготовления структур на них с помощью жидкостной фотолитографии были сформированы планарные конденсаторы (рис. 1). Ширина зазора планарных конденсаторов составляла  $d = 0,3\text{--}0,7 \mu m$ , длина зазоров  $l = 250\text{--}850 \mu m$ .



**Рис. 1. Планарные конденсаторы на основе гетероструктур феррит – сегнетоэлектрик.**

Измерения вольт-фарадных характеристик (ВФХ), диэлектрических потерь ( $\text{tg}\delta$ ), температурных зависимостей емкости и диэлектрических потерь проводились на частоте 1 МГц, т.к. известно, что для твердых растворов BSTO не наблюдается дисперсия диэлектрической проницаемости ( $\epsilon$ ) в диапазоне частот  $f = (10^2 - 10^{12})$  Hz. Кроме того, нами проводились частотные измерения диэлектрической проницаемости и добротности исследуемых керамических образцов [1] в диапазоне  $(10^3 - 5 \cdot 10^{10})$  Hz, которые подтвердили отсутствие частотной дисперсии  $\epsilon$  и обнаружили очень незначительное увеличение тангенса угла диэлектрических потерь в указанном диапазоне частот. В качестве измерителя полного импеданса образцов на частоте 1 МГц использовался автоматический цифровой мост E7-12. Диэлектрическая проницаемость рассчитывалась по емкости планарной структуры [2], относительная погрешность определения диэлектрической проницаемости была не более 0,2%. Температурные зависимости емкости измерялись в диапазоне  $T = (77 - 300)$  К.

### **Экспериментальные результаты**

Результаты исследований, полученных с помощью рентгеновского дифракционного анализа (РДА) и исследования диэлектрических характеристик СЭ пленок BST, выращенных на LAO,  $\alpha - \text{Al}_2\text{O}_3$ , поликоре и YIG, позволили определить влияние подложки на структурные и диэлектрические свойства пленок (табл. 1).

Сравнение данных РДА позволяет сделать следующие выводы относительно влияния подложки на диэлектрические характеристики пленок BSTO. Относительные деформации пленок BSTO, выращенных на подложках из LAO, составляют  $\xi = (4,2 - 6,2) \cdot 10^{-3}$  и являются деформациями растяжения. Для пленок BSTO, выращенных на подложках  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ , наблюдаются деформации сжатия и по оценкам составляют  $\xi = - (3,1 - 4.2) \cdot 10^{-3}$ . Для большинства пленок BSTO, выращенных на подложках из поликора, деформации либо отсутствуют, либо в 20–30 раз по абсолютной величине меньше, чем для подложек  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ .

В пленках BSTO, выращенных на слоистой структуре YIG/GGG, деформации также невелики, как и в пленках на основе поликора, но являются слабыми деформациями сжатия.

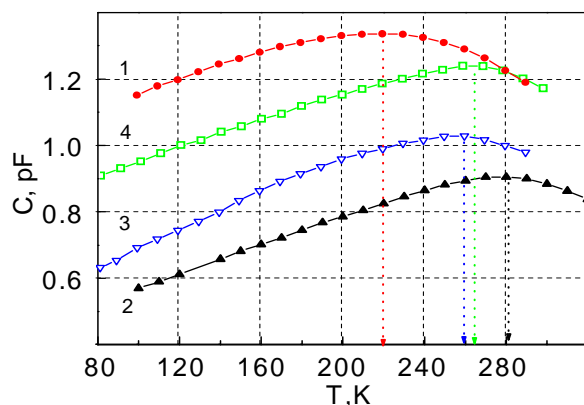
**Таблица 1**

Номер образца	1	2	3	4	5
Подложка	LAO	$\alpha$	поликор	YIG	поликор
Толщина пленки $h$ , $\mu\text{m}$	0.950	0.75	0.4	0.4	0,9
Структура	[100]	[100]	[100]	[100]	[101]
Соотношение Ba/Sr, $x$	0,55	0.55	0.6	0.6	0.77
Постоянная решетки $a$ , $\text{Å}$	3.982	3.954	3.966	3.962	3.981
Температура максимума, $T_m$ , К	220	280	260	265	-
$\epsilon$ (300К, 0 V)	2200	1545	820	1910	1575*
$\text{tg}\delta$ (300К, 0 V)	0.005	0.011	0.009	0.017	0.018*
Коэффициент управляемости $n$ (300 К, 30 V/ $\mu\text{m}$ )	1.4	2.1	1.74	1.43	1.6

\* Относительная диэлектрическая проницаемость BSTO ( $\epsilon$ ) и тангенс угла диэлектрических потерь ( $\text{tg}\delta$ ) для данного образца измерены на частоте  $f = 29,7$  GHz.

Для некоторых из рассмотренных в таблице 1 образцов на рис. 2 приведены температурные зависимости емкости структур  $C(T)$ , выращенных на различных подложках. Отличие значений емкости образцов по абсолютной величине связаны с различной геометрией исследованных планарных конденсаторов. Основным является то, что в зависимости от знака и величины относительных деформаций изменяется направление смещения максимума ( $T_m$ ) температурной зависимости емкости. Так, температура максимума образца (3) с подложкой из поликора, в которой практически отсутствуют напряжения, соответствует  $T_m = 260$  К (кривая 1). Для образцов, в которых наблюдались растягивающие напряжения – BSTO/LAO –  $T_m$  смещалась в сторону более низких температур на 20–40 К (кривая 2, обр. 1). Для образцов с напряжениями сжатия – BSTO/ $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> – температура

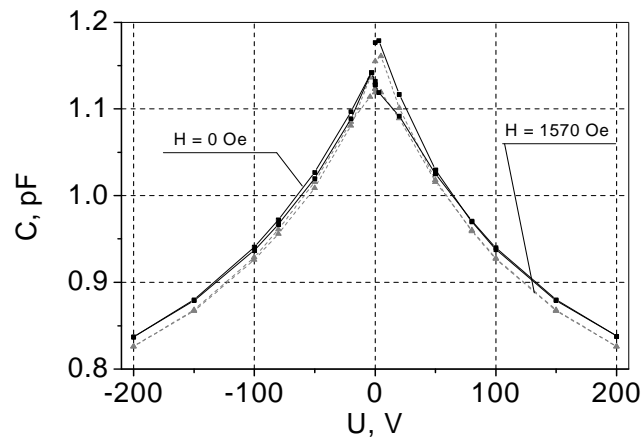
максимума смещалась в область более высоких  $T_m$  на 10–20 К (кривая 3, обр. 2). Положение температурного максимума зависимости  $C(T)$  для многослойной структуры BSTO/YIG/GGG составляло  $T_m = 265$  К (кривая 4), было близко к практически ненапряженной структуре BSTO/поликор.



**Рис. 2.** Температурные зависимости емкости слоистых структур на различных подложках: 1 – LAO; 2 –  $\alpha$ - $Al_2O_3$ ; 3 – поликор; 4 – YIG.

Особенности процесса формирования пленки на интерфейсе пленка-подложка можно проследить на основе анализа спектров XPS многослойной структуры BST/YIG/GGG. Было установлено, что поверхностный слой пленки BSTO толщиной  $\sim 0,035$   $\mu m$  (при толщине всей пленки 0,4  $\mu m$ ) является восстановленным, начиная с этой толщины распределение всех основных компонентов пленки однородно. Из компонентов пленки YIG в пленке BST обнаруживаются лишь следы Y. Область интерфейса на границе BSTO/YIG составляет  $\sim 0,1$   $\mu m$  (при толщине пленки YIG 8  $\mu m$ ). В работе также проводилось исследование параметра магнитной диссипации  $\Delta H$ . В результате был подтвержден факт, что пленка BSTO не оказывает заметного влияния на свойства пленки YIG.

Для исследования магнитодиэлектрического эффекта в многослойных структурах Cu-Cr/BSTO/YIG/GGG измерения ВФХ проводились в магнитном поле с напряженностью до 1570 Э. На рис. 3 приведены ВФХ конденсаторов в отсутствии магнитного поля (сплошная линия) и в поле 1570 Э (пунктирная линия).



**Рис. 3. ВФХ конденсатора на основе структуры Cu-Cr/BSTO/YIG/GGG в отсутствии магнитного поля и при напряженности магнитного поля  $H = 1570$  Э.**

Приложение магнитного поля приводит к уменьшению емкости конденсаторов, что можно объяснить изменением механических напряжений в пленке BSTO за счет магнитоэлектрического эффекта. Исследование температурных зависимостей емкости показало, что во внешнем магнитном поле температура максимума сдвигается в сторону низких температур. Это соответствует возникновению растягивающих напряжений.

#### **Выводы**

Таким образом, экспериментально показано, что связь между электрической и магнитной подсистемами (магнитоэлектрический эффект) дает возможность изменять диэлектрические свойства с помощью магнитного поля для слоистых структур Cu-Cr/BSTO/YIG/GGG.

Показано также влияние растягивающих и сжимающих напряжений со стороны подложки и пленки феррита на диэлектрические характеристики многослойных структур.

*Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки России Федеральными программами «Научные и педагогические кадры инновационной России» и «Развитие потенциала высшей школы».*

*Авторы выражают благодарность Анохиной Т.И. за подготовку образцов для исследований.*

#### **Список литературы**

1. Ненашева Е.А., Канарейкин А.Д., Дедык А.И., Павлова Ю.В. // ФТТ. – 2009. – Т. 51. – Вып. 8. – С. 1468–1471.
2. Сегнетоэлектрики в технике СВЧ / под ред. О.Г. Вендика. – М. : Сов. радио, 1979.
3. Смоленский Г.А. [и др.] Сегнетоэлектрики и антисегнетоэлектрики. – Л. : Наука, 1971. – 476 с.

4. Ozgur U., Alivov Ya., Morkoc H. // J. Mater Sci Mater Electron. – 2009. – Vol. 20. – P. 911-916.
5. Semenov A.A., Karmanenko S.F., Demidov V.E., et all. // Appl. Phys. Lett. – 2006. – Vol. 88. – P. 033503.
6. Srinivasan G., Dong S., Viehland D., Bichurin M., Nan C. // J. Appl. Phys. – 2008. – Vol. 103. – P. 031101-031101-35.

**Рецензенты:**

Баранов И.В., д.т.н., профессор, заместитель директора Института холода и биотехнологий ФГБОУ ВПО «Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий, механики и оптики», зав. кафедрой «Физика ИХиБТ», г. Санкт-Петербург.

Головков А.А., д.т.н., профессор кафедры «Радиоэлектронные средства» ФГБОУ ВПО «Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет «ЛЭТИ» им. В.И. Ульянова (Ленина), г. Санкт-Петербург.