

## PMN-PZT/Ni 자기-전기 복합체에서 단결정 압전 모드에 따른 자기장 감도 특성

박소정<sup>1</sup> · Mahesh Peddigari<sup>2</sup> · 류정호<sup>1,3+</sup>

### Magnetic-field Sensitivity of PMN-PZT/Ni Magnetolectric Composite with Piezoelectric Single Crystal Mode Changes

Sojeong Park<sup>1</sup>, Mahesh Peddigari<sup>2</sup>, and Jungho Ryu<sup>1,3+</sup>

#### Abstract

Magnetolectric (ME) composites were designed using the PMN-PZT single crystal and Ni foils; the properties and magnetic-field sensitivities of ME composites with different piezoelectric vibration modes (i.e., 31, 32, and 36 modes that depend on the crystal orientation of the single crystal) were compared. In the off-resonance condition, the ME coupling properties of the ME composites with the 32 and 36 piezoelectric vibration modes were better than those of the ME composites with the 31 piezoelectric vibration mode. However, in the resonance condition, the ME coupling properties of the ME composites were almost similar, irrespective of the piezoelectric vibration mode. Additionally, in the off-resonance condition (at 1 kHz), the magnetic-field sensitivity of the ME composites with the 36 piezoelectric vibration mode was up to 2 nT and those of the ME composites with the 31 and 32 piezoelectric vibration modes were up to 5 nT. These magnetic-field sensitivities are similar to those offered by conventional high-sensitivity magnetic-field sensors; the potential of the proposed sensor to replace costly and bulky high-sensitivity magnetic field sensors is significant.

**Keywords:** Magnetolectric composites, PMN-PZT, Ni, Piezoelectric mode, Magnetic-field sensors

#### 1. 서 론

자기-전기(ME; Magnetolectric) 복합체는 자왜 재료와 압전 재료의 계면 결합을 이용하는 복합체로 자기장과 전기장에 모두 반응하는 특성을 가지고 있다. 자기장에 노출되었을 때는 복합체로부터 전기적 전압이 발생하고 전기장에 노출되었을 때는 복합체의 자기적 특성이 변화한다. 이러한 자기-전기 복합체는 전류 센서, 에너지 하베스터 등 여러 응용 분야에 활용될 수 있을 것으로 기대되고 있으며[1-5], 그 중, 뛰어난 자기장 감도 특

성으로 DC, AC 자기장 센서로 활용에 많은 주목을 받고 있다[6-10].

높은 자기-전기 결합 특성을 갖는 자기-전기 복합체를 제작하기 위해서는 복합체를 구성하는 자왜 재료와 압전 재료 간의 계면 결합이 최적화되어야 한다. 자기-전기 결합 특성은 일반적으로 자기-전기 결합 계수의 측정을 통해 이루어진다. 자기-전기 복합체는 입자상 복합체, 섬유상 복합체, 판상 복합체, 기타 나노 구조를 활용한 복합체 등 여러가지 구조 형태로 구성될 수 있으며, 복합체의 구조에 따라 자기-전기 결합 특성은 큰 영향을 받는 것으로 알려져 있다. 입자상 복합체 구조의 경우, 두 종류의 상 계면 사이에 전달되는 비이상적 변형 및 높은 전류 누설이 발생하여 자기-전기 결합 효과가 크지 않으며, 공정상의 변수에 의해서 특성이 큰 변화를 가질 수 있는 것으로 알려져 있다[2]. 반면, 2-2 복합체로 알려진 판상형 복합체 구조의 경우, 자왜, 압전 재료 상의 고유한 전기적, 기계적 특성을 간직할 수 있으며, 에폭시 등 계면 결합 재료에 의해 쉽게 결합이 가능하여 제작이 편리하며, 누설 전류에 의한 압전체에서의 분극 열화가 없기 때문에 높은 자기-전기 결합 효과를 구현할 수 있다. 따라서 자기-전기 복합체의 형태에 따른 자기-전기 결합 특성을 비교해보면 판상형 복합체 구조로 제작된 복합체에서 일반적으로 가장 높은 자기-전기 계수를 가지는 것으로 보고되고 있다[2,5,11].

또한 높은 자기-전기 결합 특성을 갖기 위해서는 재료 자체가 우수한 자왜 및 압전 계수를 가져야 한다. 압전재료에는 세라믹, 폴

<sup>1</sup> 영남대학교 신소재공학부 (School of Materials Science and Engineering, Yeungnam University)

280 Daehak-ro, Gyeongsan, Gyeongbuk 38541, Korea

<sup>2</sup> 한국기계연구원 부설 재료연구소 기능세라믹연구실(Functional Ceramics Group, Korea Institute of Materials Science)

797, Changwon-daero, Seongsan-gu, Changwon-si, Gyeongnam 51508, Korea

<sup>3</sup> 영남대학교 재료기술연구소(Institute of Materials Technology, Yeungnam University)

280 Daehak-ro, Gyeongsan, Gyeongbuk 38541, Korea

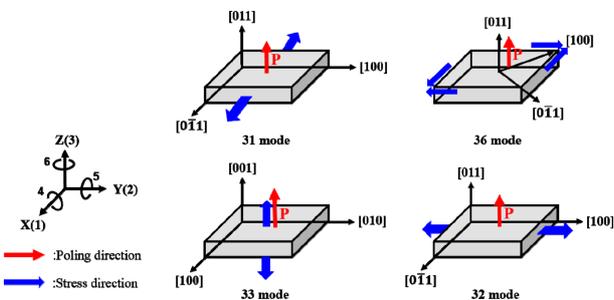
<sup>+</sup>Corresponding author: jhryu@ynu.ac.kr

(Received : Dec. 10, 2019, Revised : Jan. 03, 2020, Accepted : Jan. 15, 2020)

This is an Open Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License(<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/3.0>) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

리머, 단결정 압전 재료가 있는데 일반적으로 많이 사용되고 있는 세라믹 압전 재료는 폴리머 압전 재료에 비해 전기-기계 결합 계수가 크다는 장점이 있지만 폴리머에 비해 탄성 계수가 커서 큰 변형에서는 취성으로 인해 파괴가 쉽게 일어나는 단점이 있다. 반면, 폴리머 압전 재료는 유연하기 때문에 큰 변형에서 사용할 수는 있으나 전기-기계 결합 계수가 작다는 단점을 가진다[4]. 한편, 단결정 압전 재료는 높은 전기-기계 결합 계수를 가지며, 단결정을 가공하는 결정 방향에 따라 나타나는 다양한 압전 모드에 의해 다양한 설계가 가능하다. 즉, 동일한 조성의 재료를 사용하더라도 압전 특성의 결정학적 이방성으로 인해 압전 모드에 따라 특성 값의 큰 변화가 관찰되므로, 압전 단결정의 압전 모드를 효과적으로 사용할 경우 높은 자기-전기 결합 특성을 유도할 수 있다[12-20].

Fig. 1은 능면정계 (rhombohedral structure) 결정 구조를 가지는 압전 단결정의 결정 배향 방향에 따른 압전모드를 나타낸 것이다. 33모드의 경우 단결정의 특성이 등방성을 가지기 때문에, 분극 방향과 변형이 발생하는 방향이 일치한다. 그리고 31, 32, 그리고 36 모드의 경우 이방성 특성을 가지며, 모두 동일한 방향으로 전기장이 인가되지만, 변형이 발생하는 방향에 따라 다른 압전 계수, 기계적 품질계수, 그리고 탄성 컴플라이언스 값의 차이가 발생하게 된다. 이러한 압전 단결정의 고유한 압전 모드를 자기-전기 복합체에 적용하게 되면 압전 모드에 따라 자기-전기 결합 특성에서도 차이가 발생할 수 있다.



**Fig. 1.** Schematic of the piezoelectric vibration mode according to the crystal orientation direction of the rhombohedral structured single crystal.

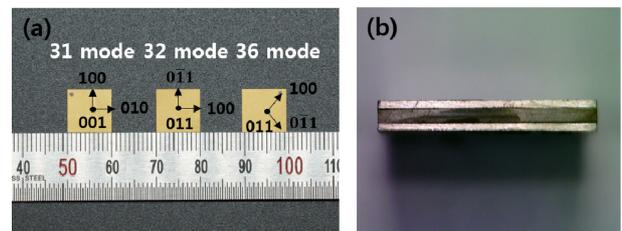
한편, 다양한 자왜 재료 중, 대표적인 금속 자왜 재료인 Ni은 가격이 저렴하며, 자왜 특성이 비교적 양호하다. 또한 Ni은 대표적인 강자성 소재중 하나이며, 자왜 특성이 이력특성을 나타내어, 자기장이 없는 상태에서도 자왜 특성을 가지는 강자성 특성을 가지고 있어 DC 바이어스 자기장이 없어도 높은 자기-전기 결합 특성을 보이는 self-bias 자기-전기 결합 특성을 가지도록 복합체를 설계할 수 있다. 또한 압전 세라믹/단결정 재료와의 기계적 임피던스 매칭이 좋아서 미세한 자기장에서도 변형을 압전 재료에 응력으로 전달하는 능력이 우수한 것으로 알려져 있다[14.21-24].

본 연구에서는 자왜 재료로는 Ni 금속, 압전 재료로  $Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3-Pb(ZrTi)O_3$  (PMN-PZT) 단결정을 이용하여 판상형 구조의 자기-전기 복합체를 제작하였다. 앞서 언급한 바와 같이 압전 단결정 재료는 결정의 가공 방향에 따라서 압전 모드를 변화시킬 수 있는 특성을 가지기 때문에 압전 단결정의 결정 배향 방향에 따른 가공을 통하여 31, 32, 그리고 36모드 압전 단결정을 제작한 후, 판상형 구조의 자기-전기 복합체에 적용하였고, 압전 단결정의 압전 모드에 따른 자기-전기 결합 특성을 분석하고, 자기장 센서로의 활용을 위한 자기장 감도 특성을 평가하였다.

## 2. 연구 방법

### 2.1 ME 복합체 제작 방법

본 연구에서 사용된 압전 재료는 III세대 hard PMN-PZT 압전 단결정(CPSC-SCM1, Ceracomp, Korea)으로 고상 단결정 성장(Solid-state Single Crystal Growth; SSCG) 방법을 통해 제작되었다. 진동을 가했을 때 발생하는 결정의 전기 및 기계적 손실을 줄이기 위해 Mn을 첨가하여 높은 기계적 품질 계수를 가지게 함과 동시에 유전 손실을 최소화하였다. 단결정의 제조 과정은 앞서 문헌들을 통하여 확인할 수 있다[25-27]. 압전 단결정은 성장 후 기계적 가공을 통하여  $10 \times 10 \times 0.5 \text{ mm}^3$ 의 평판형상으로 가공하였다. 자왜 재료로는 Ni 판(99.5%, W05E042, Alfa Aesar, MC)을 사용하여 자기-전기 복합체를 제작하였다. Ni 판은 압전 단결정과 동일한 면적인  $10 \times 10 \times 0.25 \text{ mm}^3$ 로 와이어 방전 가공을 통해 절단하여 사용하였다. 그리고 압전 단결정의 결정 배향 방향에 따른 효과를 비교해보기 위해 31, 32, 그리고 36모드의 압전 단결정을 절단한 Ni 판 사이에 넣고 에폭시 접착제 (DP460, 3M, MN)를 이용하여 적층하였다.



**Fig. 1.** Photos of (a) the piezoelectric single crystals for ME composite and (b) cross section of fabricated ME composite of Ni/PMN-PZT/Ni.

그 후, 강한 계면 결합을 위해 60도의 오븐에서 24시간 동안 경화시켜 주었다. 제작된 ME 복합체들의 접착층의 두께는 약  $10 \mu\text{m}$  정도였다. Fig. 1은 (a) PMN-PZT 압전 단결정들의 사진과 (b) 실제로 제작된 Ni/PMN-PZT/Ni 자기-전기 복합체의 단면 사진이다.

## 2.2 특성 평가 방법

단결정 및 자기-전기 복합체의 임피던스 스펙트럼을 임피던스 분석기 (E4990A, KEYSIGHT, SC) 로 측정하여 단결정의 압전 특성과 자기-전기 복합체의 공진 거동을 측정했다. DC 바이어스 자기장( $H_{dc}$ )과 중첩된 AC 자기장 ( $H_{ac}$ )은 Lock-in 증폭기 (SR865A, Stanford Research Systems, SC)에서 발생된 sine형 파형을 Hi-speed bipolar 증폭기(HSA4011, NF corporation, Japan)를 거쳐 증폭시킨 후, 헬름홀츠 코일 (M125-1AH, MMSTech CO., Korea)을 통하여 샘플에 인가하였다. DC 전자석(KRTech, Korea)을 헬름홀츠 코일의 사이에 배치하여 샘플에 DC 자기장 바이어스를 변화시켰다. 복합체 샘플의 자기-전기 결합 특성은 복합체 샘플의 전기-기계적 공진 조건과 비공진 조건(1 kHz)에서 측정하여, 주파수에 따른 자기-전기 결합 특성을 분석하였다. 자기-전기 복합체의 자기장 감도를 측정하기 위해 샘플을 헬름홀츠 코일 내부에 위치시킨 뒤, 최대의 자기-전기 결합 특성을 보이는 DC 바이어스 자기장을 영구자석을 통해 인가하여 AC 자기장의 크기 변화에 따른 발생 전압을 Lock-in 증폭기를 통하여 측정하였다. 이 때, 외부 자기장과 전기장의 노이즈를 최소화 하기 위해 헬름홀츠 코일과 측정 복합체는 Faraday case와 자기장 쉴드 박스 내부에 배치하였다. Fig. 2는 자기장 감도 측정 장비의 개략도를 나타낸 것이다.

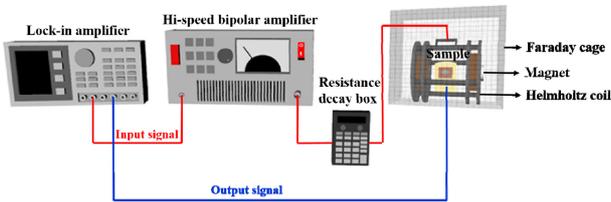


Fig. 2. Schematic of magnetic field sensitivity measurement.

## 3. 결과 및 고찰

### 3.1 압전 모드에 따른 압전 단결정의 특성

본 연구에 사용된 압전 단결정 재료는 III세대 Mn이 도핑된 hard PMN-PZT 압전 단결정으로 고상 단결정 성장 방법을 통해 제작되었다. 동일한 조성의 단결정을 결정배향에 따라 성장, 가공후 사용되었으나 앞서 기술한바와 같이 압전 단결정의 특성은 모드에 따라 크게 달라질 수 있다. Table 1 에서 확인 할 수 있듯이, 면방향의 압전상수에 있어서 36모드의 특성이 다른 모드에 비하여 우수한 것을 확인 할 수 있으므로, 우수한 ME 특성이 기대된다. 하지만 ME 결합특성은 압전 특성 뿐만 아니라 소재의 기계적 특성 (탄성 컴플라이언스) 등에도 좌우될 수 있음이 알려져 있다[28].

Table 1. Dielectric and piezoelectric properties of piezoelectric single crystals used for ME composites

mode	$\epsilon_r$	Tan $\delta$	$k_{ij}$	$d_{ij}$ (pC/N)	$g_{ij}$ (mV·m/N)
31	3575	0.006	0.59	1260 (33mode)	31.3
32	2437	0.003	0.78	836	41.4
36	2500	0.004	0.72	1163	52.5

### 3.2 자기-전기 결합 특성

Fig. 3은 임피던스 분석기를 이용하여 3가지 압전 모드를 가지는 자기-전기 복합체의 전기적인 임피던스 스펙트럼을 분석한 결과이다. 50 kHz에서 250 kHz의 넓은 주파수 대역에서 31, 36모드의 자기-전기 복합체는 단일 공진 스펙트럼을 가지지만 32모드의 복합체는 근접한 2개의 공진 스펙트럼이 나타난 것을 확인할 수 있다. 측정된 전기적 공진 스펙트럼은 복합체의 형상 (특히 면 방향의 치수)에 의해 크게 좌우될 수 있기 때문에 센서의 적용에 있어서 특정 주파수의 공진 모드는 복합체의 형상 변경을 통하여 제어될 수 있다.

Fig. 4는 DC 바이어스 자기장의 변화에 따른 자기-전기 복합

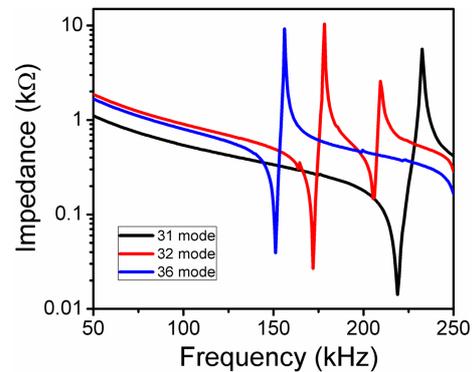


Fig. 3. Electrical impedance of the ME composites with different piezoelectric modes in a wide frequency band.

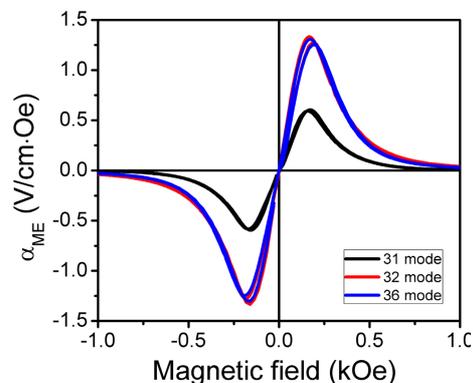


Fig. 4. Off-resonance ME voltage coefficient  $\alpha_{ME}$  of the ME composites with different piezoelectric modes as a function of DC magnetic bias field at a frequency of 1 kHz and  $H_{ac}$  of 1 Oe.

체들의 비공진(frequency=1 kHz,  $H_{ac}=1$  Oe)조건에서 측정된 자기-전기 결합 계수 ( $\alpha_{ME}$ )를 보여준다. 31모드의 자기-전기 복합체에 비해 32, 36 모드의 자기-전기 복합체가 우수한 자기-전기 결합 특성을 가지며, 자왜 재료로 강자성의 Ni 판을 사용하였기 때문에 자기장 변화에 따른 자기-전기 결합 특성이 약간의 이력 특성을 가지는 것을 확인할 수 있다. 이때 36, 32 모드의 압전 단결정을 사용한 자기-전기 복합체는 1.25 V/cm·Oe의 매우 우수한 자기-전기 결합 특성을 가지는 것으로 확인되었다.

자기-전기 복합체는 일반적인 압전 재료를 이용한 소자들과 마찬가지로 공진 모드에서 증폭된 자기-전기 결합 특성을 가질 수 있다. 공진 모드에서의 자기-전기 결합 특성을 확인하기 위하여 앞서 Fig. 3에서 측정된 주파수 범위와 동일한 주파수 대역인 50 kHz에서 250 kHz의 주파수 범위에서 자기-전기 결합 특성을 평가하였다. 앞서 Fig. 4에서 설명한 바와 같이 자기-전기 복합체는 DC 바이어스 자기장의 크기에 따라 크게 달라질 수 있기 때문에 공진 모드의 자기-전기 결합 특성을 평가할 때 최대의 자기-전기 결합 특성이 나타나는 DC 바이어스 필드를 시료에 인가하였고, 0.001 Oe의 AC 자기장을 주파수에 변화를 주어가며 시료에 인가했을 때 발생하는 전기적인 신호를 측정하였다. 이렇게 얻어진 공진 모드에서의 자기-전기 결합 특성을 Fig. 5에 도시하였다.

Fig. 5를 보면 36모드의 복합체가 157 kHz의 공진주파수에서 9.26 V/cm·Oe의 공진모드 자기-전기 결합 계수를 나타내었다. 그 다음으로 32모드 복합체는 178 kHz에서 9.44 V/cm·Oe, 31 모드 복합체는 234 kHz에서 9.26 V/cm·Oe의 공진모드 자기-전기 결합 계수 값을 각각 나타내었다. 비공진 조건과는 달리, 공진 조건에서는 31, 32, 그리고 36 모드의 자기-전기 복합체의 자기-전기 결합 계수 값이 거의 유사한 것을 볼 수 있다. 또한, Fig. 3과 5를 비교해 보았을 때, 임피던스 스펙트럼의 반공진 주파수와 최대의 자기-전기 결합 계수 값인 공진 주파수의 위치가 일치하는 것을 확인할 수 있다. 일반적으로, 정압전 효과를 이용한 자기-전기 복합체는 반공진 주파수에서 최댓값의 정 자기-전기 결합 (Direct magnetoelectric coupling) 특성이 발생하는

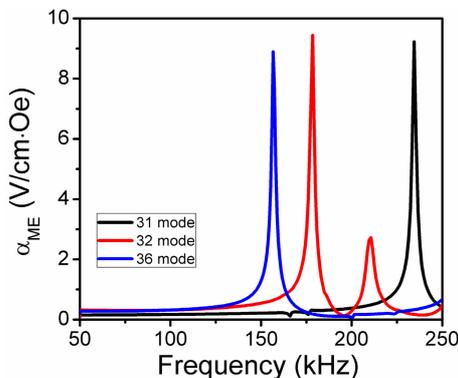


Fig. 5. Resonance ME voltage coefficient  $\alpha_{ME}$  of the ME composites as a function of the driving frequency.

것으로 알려져 있다[29].

하지만 31, 36모드의 자기-전기 복합체는 50 kHz에서 250 kHz의 넓은 주파수 범위에서 단일 공진 스펙트럼이 나타나지만, 32모드의 자기-전기 복합체는 동일한 주파수 범위에서 2개의 공진주파수가 거의 근접하게 나타났다. 이러한 32모드 자기-전기 복합체의 다중 공진 스펙트럼은 좁은 주파수 대역에서 100 결정 방향의 공진 모드와  $0\bar{1}1$  결정 방향의 공진 모드가 개별적으로 자기-전기 전압을 생성하기 때문이다. 정사각형의 모양을 가지는 32모드의 압전 단결정의 경우에는 이 두 개의 개별 공진 모드에 따라서, Torsional 공진 현상이 추가적으로 발생할 수 있음이 보고된 바 있다[17]. 따라서, 이러한 다중 공진 스펙트럼은 특정 주파수에서 활용되는 자기장 센서로의 응용시에는 인접하는 공진 현상에 의해 자기장 감지 신호가 중첩되어 감도에 좋지 않은 영향을 미칠 수 있다.

### 3.3 자기장 감도 특성

31, 32, 그리고 36 모드의 압전 모드를 가지는 압전 단결정이 적용된 자기-전기 복합체를 비공진 주파수 (1 kHz)의 조건에서 자기장 감지 한계를 측정하였다. Fig. 4의 비공진상태에서의 자기-전기 결합특성 그래프에서 각각의 압전 모드에 따라 자기-전기 결합 계수가 최댓값이 되는 DC 자기장을 DC 바이어스 필드로 가해주고 AC 자기장의 크기를 변화시키며 복합체에서 발생하는 자기-전기 결합 전압을 측정하였다. 인가된 AC 자기장

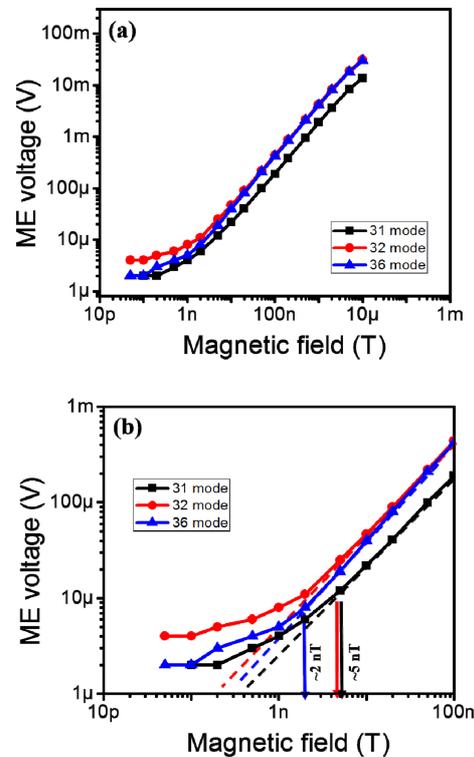


Fig. 6. AC magnetic field sensitivity of the ME composites with different piezoelectric modes.

의 크기에 따라 모든 복합체에서 발생하는 전압은 선형의 관계를 가지는 것을 확인 할 수 있다. 이 기울기는 자기-전기 결합 계수에 대응하는 값으로써, 31모드의 기울기가 상대적으로 완만함은 앞서 Fig. 4의 자기-전기 결합계수가 상대적으로 낮은 것과 일치하는 결과이다. 인가 자기장의 강도가 미세해짐에 따라 발생하는 전압의 선형성이 없어지기 시작하며, 이 때의 자기장의 강도를 복합체의 감지 한계로 판단할 수 있다. 그 결과, Fig. 6 (b)에 확대 도시한 바와 같이, 비공진 조건에서 36모드의 자기-전기 복합체는 2 nT의 자기장까지 감지할 수 있는 감지 한계를 가지는 반면, 31, 32 모드의 복합체는 5 nT까지의 자기장을 감지할 수 있는 감지 한계를 가지는 것으로 확인되었다. 일반적으로 사용되고 있는 자기장 센서들의 감도와 비교해 보았을 때, 홀 효과를 이용한 자기 센서 대비 우수한 감지 한계를 가지고 있을 뿐만 아니라 search coil 등의 고성능 자기 센서 등과 유사한 자기장 감도를 가지는 것을 확인할 수 있다[30]. 따라서, Ni 판과 PMN-PZT 압전 단결정을 이용한 자기-전기 복합체는 자기장 센서로서 활용되기에 충분한 잠재력을 가지고 있는 것으로 기대되어진다.

#### 4. 결 론

본 연구에서는 Ni판과 PMN-PZT 압전 단결정을 사용하여 판상 구조의 자기-전기 복합체를 제작하였다. 압전 단결정의 결정 배향 방향에 따른 다양한 압전 모드를 사용한 자기-전기 복합체를 제작하여 자기-전기 특성과 자기장 감지 한계 특성을 비교하였다. 비공진 조건에서는 32, 36모드의 자기-전기 복합체가 31모드의 복합체에 비해 우수한 자기-전기 결합 특성을 나타내었으나, 공진 조건에서는 모두 유사한 자기-전기 결합 특성 값을 나타내었다. 또한 비공진 조건(1 kHz)에서 단결정의 압전 모드에 따른 자기장 감지 한계를 측정해본 결과, 36모드가 최대 2 nT까지의 자기장을 감지할 수 있는 우수한 자기장 감지 한계를 가졌으며, 31, 32 모드는 동일하게 최대 5 nT까지의 자기장을 감지할 수 있는 한계를 나타내었다. 이러한 자기장 감지 한계는 일반적으로 사용되고 있는 자기장 센서들의 감도와 비교해 보았을 때, Search coil 등의 고성능의 자기 센서들과 유사한 정도의 감지 한계를 가지는 것으로 확인되었다. 따라서 PMN-PZT 단결정과 Ni를 이용한 판상 구조의 자기-전기 복합체는 앞에서 언급한 고감도 센서들의 대체 방안으로 큰 잠재력을 가지고 있다고 기대된다.

#### 감사의 글

본 연구는 국가과학기술연구회의 창의형융합사업의 지원을 받아 수행되었습니다. (No. CAP-17-04-KRISS)

#### REFERENCES

- [1] V. Annapureddy, S. M. Na, G. T. Hwang, M. G. Kang, R. Sriramdas, H. Palneedi, W. H. Yoon, B. D. Hahn, J. W. Kim, C. W. Ahn, D. S. Park, J. J. Choi, D. Y. Jeong, A. B. Flatau, M. Peddigari, S. Priya, K. H. Kim, and J. Ryu, "Exceeding milli-watt powering magneto-mechano-electric generator for standalone-powered electronics", *Energy Environ. Sci.*, Vol. 11, No. 4, pp. 818-829, 2018.
- [2] H. Palneedi, V. Annapureddy, S. Priya, and J. Ryu, "Status and Perspectives of Multiferroic Magnetoelectric Composite Materials and Applications", *Actuators*, Vol. 5, No. 1, pp. 1-31, 2016.
- [3] J. Ryu, J. E. Kang, Y. Zhou, S. Y. Choi, W. H. Yoon, D. S. Park, J. J. Choi, B. D. Hahn, C. W. Ahn, J. W. Kim, Y. D. Kim, S. Priya, S. Y. Lee, S. Jeong, and D. Y. Jeong, "Ubiquitous magneto-mechano-electric generator", *Energy Environ. Sci.*, Vol. 8, No. 8, pp. 2402-2408, 2015.
- [4] J. Ryu, S. Y. Choi, J. W. Kim, K. H. Kim, and D. Y. Jeong, "Energy harvester technology using magnetoelectric composite", *Ceramist*, Vol. 18, No. 4, pp. 38-47, 2015.
- [5] S. Priya, J. Ryu, C. S. Park, J. Oliver, J. J. Choi, and D. S. Park, "Piezoelectric and Magnetoelectric Thick Films for Fabricating Power Sources in Wireless Sensor Nodes", *Sensors*, Vol. 9, No. 8, pp. 6362-6384, 2009.
- [6] Z. Chu, W. Shi, H. Shi, Q. Chen, L. Wang, M. J. PourhosseiniAsl, C. Xiao, T. Xie, and S. Dong, "A 1D Magnetoelectric Sensor Array for Magnetic Sketching", *Adv. Mater. Technol.*, Vol. 4, No. 3, pp. 1800484(1)-1800484(9), 2018.
- [7] M. Li, C. Dong, H. Zhou, Z. Wang, X. Wang, X. Liang, Y. Lin, and N. X. Sun, "Highly Sensitive DC Magnetic Field Sensor Based on Nonlinear ME Effect", *IEEE Sens. Lett.*, Vol. 1, No. 6, pp. 2501104(1)- 2501104(4), 2017.
- [8] D. Burdin, D. Chashin, N. Ekononov, L. Fetisov, Y. Fetisov, and M. Shamonin, "DC magnetic field sensing based on the nonlinear magnetoelectric effect in magnetic heterostructures", *J. Phys. D Appl. Phys.*, Vol. 49, No. 37, pp. 375002(1)- 375002(10), 2016.
- [9] L. Chen, P. Li, Y. Wen, and Y. Zhu, "Note: High sensitivity self-bias magnetoelectric sensor with two different magnetostrictive materials", *Rev. Sci. Instrum.*, Vol. 84, No. 6, pp. 066101(1)-066101(3), 2013.
- [10] J. Zhai, Z. Xing, S. Dong, J. Li, and D. Viehland, "Detection of pico-Tesla magnetic fields using magneto-electric sensors at room temperature", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 88, No. 6, pp. 062510(1)-062510(3), 2006.
- [11] Z. Chu, M. PourhosseiniAsl, and S. Dong, "Review of multi-layered magnetoelectric composite materials and devices applications", *J. Phys. D Appl. Phys.*, Vol. 51, No. 24, pp. 243001(1)-243001(21), 2018.
- [12] A. V. Turutin, J. V. Vidal, I. V. Kubasov, A. M. Kislyuk, M. D. Malinkovich, Y. N. Parkhomenko, S. P. Kobeleva, O. V. Pakhomov, A. L. Kholkin, and N. A. Sobolev, "Magnetoelectric metglas/bidomain  $\gamma + 140^\circ$ -cut lithium niobate composite for sensing fT magnetic fields", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 112, No. 26, pp. 262906(1)-262906(5), 2018.

- [13] S. Zhang, F. Li, F. Yu, X. Jiang, H. Y. Lee, J. Luo, and T. R. Shrout, "Recent Developments in Piezoelectric Crystals", *J. Korean Ceram. Soc.*, Vol. 55, No. 5, pp. 419-439, 2018.
- [14] H. Palneedi, V. Annapureddy, H. Y. Lee, J. J. Choi, S. Y. Choi, S. Y. Chung, S. J. L. Kang, and J. Ryu, "Strong and anisotropic magnetoelectricity in composites of magnetostrictive Ni and solid-state grown lead-free piezoelectric BZT-BCT single crystals", *J. Asian Ceram. Soc.*, Vol. 5, No. 1, pp. 36-41, 2017.
- [15] P. Berik, W. Y. Chang, and X. Jiang, "Piezoelectric  $d_{36}$  in-plane shear-mode of lead-free BZT-BCT single crystals for torsion actuation", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 110, No. 5, pp. 052902(1)-052902(4), 2017.
- [16] P. Ci, G. Liu, Z. Chen, S. Zhang, and S. Dong, "High-order face-shear modes of relaxor-PbTiO<sub>3</sub> crystals for piezoelectric motor applications", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 104, No. 24, pp. 242911(1)-242911(4), 2014.
- [17] D. R. Patil, R. C. Kambale, Y. Chai, W. H. Yoon, D. Y. Jeong, D. S. Park, J. W. Kim, J. J. Choi, C. W. Ahn, B. D. Hhan, S. Zhang, K. H. Kim, and J. Ryu, "Multiple broadband magnetoelectric response in thickness-controlled Ni/[011] Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> single crystal/ Ni laminates", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 103, No. 5, pp. 052907(1)-052907(4), 2013.
- [18] S. Zhang, W. Jiang, R. J. Meyer, F. Li, J. Luo, and W. Cao, "Measurement of face shear properties in relaxor-PbTiO<sub>3</sub> single crystals", *J. Appl. Phys.*, Vol. 110, No. 6, pp. 064106(1)-064106(6), 2011.
- [19] F. Li, S. Zhang, Z. Xu, X. Wei, and T. R. Shrout, "Critical Property in Relaxor- PbTiO<sub>3</sub> Single Crystals – Shear Piezoelectric Response", *Adv. Funct. Mater.*, Vol. 21, No. 11, pp. 2118-2128, 2011.
- [20] S. Zhang, J. Luo, W. Hackenberger, N. P. Sherlock, R. J. Meyer, and T. R. Shrout, "Electromechanical characterization of Pb(In<sub>0.5</sub>Nb<sub>0.5</sub>)O<sub>3</sub>-Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub> crystals as a function of crystallographic orientation and temperature", *J. Appl. Phys.*, Vol. 105, No. 10, pp. 104506(1)-104506(5), 2009.
- [21] A. Kumar and A. Arockiarajan, "Temperature dependent magnetoelectric (ME) response in press-fit FeNi/PZT/Ni self-biased ring composite", *J. Appl. Phys.*, Vol. 126, No. 9, pp. 094102(1)-094102(13), 2019.
- [22] S. N. Babu, A. Siddeshwar, K. Srinivas, S. V. Suryanarayana, and T. Bhimasankaram, "Magnetoelectric properties of Ni/PZT/Ni layered composite for low field applications", *J. Mater. Sci.*, Vol. 44, pp. 3948-3951, 2009.
- [23] D. A. Pan, Y. Bai, W. Y. Chu, and L. J. Qiao, "Ni-PZT-Ni trilayered magnetoelectric composites synthesized by electro-deposition", *J. Phys. Condens. Matter*, Vol. 20, No. 2, pp. 025203(1)-025203(4), 2008.
- [24] H. Wan, C. Xu, and X. Z. Wu, "Magnetoelectric Effect in Ni/PZT Laminate Composites", *Proc. of 2006 1st IEEE International Conference on Nano/Micro Engineered and Molecular Systems*, pp. 287-290, Zhuhai, China, 2006.
- [25] H. T. Oh, H. J. Joo, M. C. Kim, and H. Y. Lee, "Thickness-Dependent Properties of Undoped and Mn-doped (001) PMN-29PT [Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-29PbTiO<sub>3</sub>] Single Crystals", *J. Korean Ceram. Soc.*, Vol. 55, No. 3, pp. 290-298, 2018.
- [26] H. T. Oh, H. J. Joo, M. C. Kim, and H. Y. Lee, "Effect of Mn on Dielectric and Piezoelectric Properties of 71PMN-29PT [71Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-29PbTiO<sub>3</sub>] Single Crystals and Polycrystalline Ceramics", *J. Korean Ceram. Soc.*, Vol. 55, No. 2, pp. 166-173, 2018.
- [27] H. T. Oh, J. Y. Lee, and H. Y. Lee, "Mn-Modified PMN-PZT [Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub>] Single Crystals for High Power Piezoelectric Transducers", *J. Korean Ceram. Soc.*, Vol. 54, No. 2, pp. 150-157, 2017.
- [28] S. Park, M. Peddigari, G.-T. Hwang, W.-H. Yoon, A. Kumar, and J. Ryu, "Face-shear 36-mode magnetoelectric composites with piezoelectric single crystal and Metglas laminate", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 115, No. 10, pp. 102901(1)-102901(4), 2019.
- [29] K. H. Cho and S. Priya, "Direct and converse effect in magnetoelectric laminate composites", *Appl. Phys. Lett.*, Vol. 98, No. 23, pp. 232904(1)-232904(3), 2011.
- [30] M. Djamal and R. Ramli, *Giant Magnetoresistance Sensors Based on Ferrite Material and Its Applications*, Intech Open, pp. 111-132, 2017.