

05,06

## Эволюция вектора антиферромагнетизма мультиферроика $\text{BiFeO}_3$ в процессе переключения его сегнетоэлектрической поляризации

© А.А. Берзин<sup>1</sup>, Д.Л. Винокуров<sup>1</sup>, А.И. Морозов<sup>†,1,2</sup>

<sup>1</sup> Московский технологический университет (МИРЭА),  
Москва, Россия

<sup>2</sup> Московский физико-технический институт (государственный университет),  
Долгопрудный, Россия

<sup>†</sup> E-mail: mor-alexandr@yandex.ru

(Поступила в Редакцию 26 апреля 2016 г.)

Методом численного моделирования в рамках феноменологической модели для энергии магнитной анизотропии исследована эволюция вектора антиферромагнетизма мультиферроика  $\text{BiFeO}_3$  в процессе переключения его сегнетоэлектрической поляризации электрическим полем. Найдены оптимальные варианты среза электрочувствительного слоя  $\text{BiFeO}_3$ , деформации, созданной подложкой, и направления приложения электрического поля для создания прототипов магнорезистивной памяти нового поколения.

Работа частично поддержана Минобрнауки России и РФФИ (проект офи-м 16-29-14017).

### 1. Введение

Последние десятилетия происходит рост числа работ, посвященных материалам и наноструктурам, в которых наблюдается более одного типа упорядочения, в значительной степени из-за интереса к корреляции двух или более параметров порядка, которая может стать основой новых электронных устройств.

В частности, предполагается, что устройства магнорезистивной памяти нового поколения с записью электрическим полем (MERAM) будут обладать заметно меньшим энергопотреблением и в перспективе более высокой плотностью записи, чем все существующие типы магнорезистивной памяти. В недавнем обзоре [1] рассмотрены принципы, на которых могут быть основаны такие устройства.

Для переключения намагниченности одного из ферромагнитных слоев, входящих в магнитное туннельное соединение, используется дополнительный электрочувствительный слой, соседствующий с выбранным ферромагнитным слоем. Дальнейшее рассмотрение относится к случаю обменного механизма взаимодействия между спинами указанных слоев [2,3], когда направление вектора магнитного параметра порядка в электрочувствительном слое играет первостепенную роль. При этом в качестве электрочувствительного слоя необходимо использовать слой мультиферроика с магнитным и сегнетоэлектрическим упорядочением.

Для широкого технического применения необходимо, чтобы устройство функционировало при комнатных температурах. Требованию наличия магнитного и сегнетоэлектрического упорядочений при комнатной температуре удовлетворяют феррит висмута  $\text{BiFeO}_3$  (BFO), соединения на его основе [4,5] и недавно открытый альтернативный мультиферроик

$\text{Pb}(\text{Fe}_{0.5}\text{Ta}_{0.5})_{0.4}(\text{Zr}_{0.53}\text{Ti}_{0.47})_{0.6}\text{O}_3$  [6]. К сожалению, в отличие от BFO его свойства и ориентации параметров порядка на данный момент недостаточно изучены. Поэтому ограничимся рассмотрением мультиферроика BFO [5], широко известного ввиду больших экспериментальных успехов в выращивании тонких эпитаксиальных пленок.

В тонких пленках феррита висмута наблюдается антиферромагнитное упорядочение *G*-типа с двумя подрешетками, спины которых лежат в плоскостях типа (111). Спины, принадлежащие каждой из плоскостей типа (111), относятся к одной подрешетке, спины соседних плоскостей принадлежат различным подрешеткам. Циклоидальное упорядочение [7], существующее в объеме, в данном случае подавляется вследствие деформирующего влияния подложки. Взаимодействие Дзялошинского–Мория [8,9] приводит к возникновению слабого ферромагнетизма, т.е. вызывает слабый (порядка  $1^\circ$ ) скос намагниченностей антиферромагнитных подрешеток (в отсутствие взаимодействия с ферромагнитным слоем) [10].

Вектор спонтанной поляризации **P** направлен вдоль одного из восьми направлений типа [111], которое в отсутствие деформации, созданной подложкой, когда феррит висмута находится в ромбоэдрической фазе, является осью третьего порядка. Вектор антиферромагнетизма **L** лежит плоскости типа (111), ортогональной направлению **P**. Вектор слабого ферромагнетизма **M** также лежит в этой плоскости, ортогонален вектору **L** и образует с векторами **P** и **L** правую тройку векторов [11].

Для создания MERAM одним из важнейших вопросов является эволюция векторов **L** и **M** в процессе изменения направления вектора поляризации **P** под действием электрического поля, что в конечном счете определяет возможность переключения намагниченности ферромагнитного слоя. Именно этому вопросу посвящена настоящая работа.

## 2. Описание модели

Спин-орбитальное взаимодействие ориентирует вектор антиферромагнетизма перпендикулярно вектору спонтанной поляризации. Вклад  $\Phi_1$  данного взаимодействия в энергию Гиббса можно выразить через соответствующий инвариант

$$\Phi_1 = \alpha(\mathbf{pl})^2, \quad (1)$$

где  $\alpha > 0$ , а единичные векторы  $\mathbf{p}$  и  $\mathbf{l}$  задают направления векторов  $\mathbf{P}$  и  $\mathbf{L}$  соответственно.

Наряду с указанной одноосной анизотропией учтем вклад  $\Phi_2$  кубической анизотропии в виде

$$\Phi_2 = -\beta(l_x^4 + l_y^4 + l_z^4), \quad (2)$$

где  $\beta$  — константа кубической анизотропии,  $l_x, l_y, l_z$  — координаты вектора  $\mathbf{l}$ .

В работе [11] на основании данных экспериментов по рентгеновскому линейному дихроизму–фотоэмиссионной электронной микроскопии (XLD–PEEM) сделан вывод, что в упруго сжатом слое BFO вектор антиферромагнетизма  $\mathbf{L}$ , лежащий в плоскости типа (111), ортогональной направлению  $\mathbf{P}$ , ориентирован так, что его проекция на плоскость слоя минимальна. В случае растянутого слоя указанная проекция максимальна. Сжимающими являются подложки  $(\text{LaAlO}_3)_{0.3}(\text{Sr}_2\text{AlTaO}_6)_{0.7}$  и  $\text{SrTiO}_3$ , а растягивающими — подложки  $\text{NdScO}_3$  или  $\text{PrScO}_3$  [12].

Существует альтернативная точка зрения, основанная на экспериментальном наблюдении корреляции между проекцией векторов  $\mathbf{M}$  и  $\mathbf{P}$  на плоскость среза [13–16], согласно которой приведенные выше ориентации вектора  $\mathbf{L}$  для сжимающей и растягивающей подложек необходимо поменять местами.

Дальнейшее изложение основывается на ориентации векторов  $\mathbf{L}$  и  $\mathbf{M}$ , предложенной в работе [11].

Соответствующий вклад  $\Phi_3$  магнитоупругого взаимодействия в энергию Гиббса записывается в виде

$$\Phi_3 = -\gamma(\mathbf{nl})^2, \quad (3)$$

где  $\mathbf{n}$  — единичный вектор нормали к плоскости слоя, а константа взаимодействия  $\gamma$  положительна в случае сжимающих и отрицательна в случае растягивающих подложек.

Ввиду слабости взаимодействия Дзялошинского–Мория не будем учитывать его вклад в энергию. Суммарная энергия Гиббса мультиферроика, таким образом, равна

$$\Phi = \Phi_1 + \Phi_2 + \Phi_3. \quad (4)$$

Будем предполагать, что разворот вектора поляризации происходит квазистатически, и положение вектора  $\mathbf{l}$ , соответствующее текущему направлению вектора  $\mathbf{p}$ , можно найти путем минимизации выражения (4) при заданных векторах  $\mathbf{n}$  и  $\mathbf{p}$ .

Как показано в работах [17,18], для осуществления поворота намагниченности ферромагнитного слоя на угол порядка  $\pi$  атомные плоскости BFO, граничащие с ферромагнетиком, должны быть скомпенсированными, т.е. содержать одинаковое число атомов двух антиферромагнитных подрешеток.

Моделирование проводилось для срезов (001) и (110) псевдокубической решетки BFO. Задание направления приложенного к слою электрического поля и начального положения вектора  $\mathbf{p}$  определяло траекторию разворота данного вектора и его конечное положение, что позволяло найти траекторию конца вектора  $\mathbf{l}$  на единичной сфере в пространстве направлений вектора антиферромагнетизма. Направление вектора слабого ферромагнетизма определяется векторным произведением  $[\mathbf{pl}]$ . Вычисления проводились с помощью пакета Wolfram Mathematica для значений  $\alpha = 1$ ,  $\beta = 0$ ,  $\pm 0.01$  и  $\gamma = \pm 0.01$ .

## 3. Результаты расчетов

3.1. Срез (001). Будем прикладывать электрическое поле либо параллельно ребру псевдокубической ячейки BFO (параллельно и перпендикулярно срезу), либо вдоль диагонали грани этой ячейки в плоскости среза. Если электрическое поле образует острый угол с начальным положением вектора поляризации, в котором он параллелен одному из направлений типа [111], то ориентация вектора  $\mathbf{p}$  является оптимальной. В противном случае происходит разворот вектора поляризации под действием электрического поля. Пусть луч  $OA$ , проведенный из центра псевдокубической ячейки вдоль исходного направления вектора  $\mathbf{p}$ , проходит через вершину  $A$  этой ячейки (рис. 1, *a*). Если вектор напряженности  $\mathbf{E}$  приложенного электрического поля параллелен направлению  $AA'$ , то луч  $OA'$  задает конечное направление вектора  $\mathbf{p}$  (имеет место его разворот на  $71^\circ$ ), а его эволюция в процессе реполяризации происходит таким образом, чтобы луч, задающий его мгновенное направление, последовательно пересекал точки отрезка  $AA'$  (рис. 1, *a*).

Если же вектор  $\mathbf{E}$  параллелен направлению  $AC$ , то конечное направление вектора  $\mathbf{p}$  соответствует лучу  $OC$  (происходит его разворот на  $109^\circ$ ), а его эволюцию в процессе реполяризации можно представить как последовательные развороты из положения  $OA$  в положение  $OB$ , а затем из положения  $OB$  в положение  $OC$  (рис. 1, *b*).

Результаты расчетов для данного среза приведены в табл. 1. Легко видеть, что в случае упруго сжатого слоя приложение перпендикулярного поля не сопровождается разворотом вектора  $\mathbf{M}$ . А именно, параллельно ему направлена поверхностная намагниченность BFO, обусловленная обменным взаимодействием с ферромагнетиком при спин-флоп-ориентации магнитных параметров порядка на границе раздела [2,3]. Из этого следует, что

Таблица 1. Срез (001)

№ п/п	Вид деформации	Направление электрического поля	Исходное направление вектора <b>P</b>	Конечное направление вектора <b>P</b>	Исходное направление вектора <b>L</b>	Конечное направление вектора <b>L</b>	Исходное направление вектора <b>M</b>	Конечное направление вектора <b>M</b>
1	Сжатие	В плоскости слоя, параллельно $[\bar{1}00]$	$[111]$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	$[\bar{1}\bar{1}2]$	$[1\bar{1}2]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$	$[110]$
2	»	В плоскости слоя, параллельно $[\bar{1}\bar{1}0]$	$[111]$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	$[\bar{1}\bar{1}2]$	$[112]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$
3	»	Перпендикулярно слою, параллельно $[00\bar{1}]$	$[111]$	$[11\bar{1}]$	$[\bar{1}\bar{1}2]$	$[112]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$	$[1\bar{1}0]$
4	Растяжение	В плоскости слоя, параллельно $[\bar{1}00]$	$[111]$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$	$[\bar{1}\bar{1}2]$	$[1\bar{1}2]$
5	»	В плоскости слоя, параллельно $[\bar{1}\bar{1}0]$	$[111]$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$	$[1\bar{1}0]$	$[\bar{1}\bar{1}2]$	$[112]$
6	»	Перпендикулярно слою, параллельно $[00\bar{1}]$	$[111]$	$[11\bar{1}]$	$[1\bar{1}0]$	$[1\bar{1}0]$	$[11\bar{2}]$	$[\bar{1}\bar{1}\bar{2}]$

Таблица 2. Срез (110)

№ п/п	Вид деформации	Направление электрического поля	Исходное направление вектора <b>P</b>	Конечное направление вектора <b>P</b>	Исходное направление вектора <b>L</b>	Конечное направление вектора <b>L</b>	Исходное направление вектора <b>M</b>	Конечное направление вектора <b>M</b>
1	Сжатие	В плоскости слоя, параллельно $[00\bar{1}]$	$[111]$	$[11\bar{1}]$	$[11\bar{2}]$	$[\bar{1}\bar{1}\bar{2}]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$
2	»	Перпендикулярно слою, параллельно $[\bar{1}\bar{1}0]$	$[111]$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	$[11\bar{2}]$	$[112]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$
3	»	В плоскости слоя, параллельно $[00\bar{1}]$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	$[110]$	$[110]$	$[\bar{1}\bar{1}\bar{2}]$	$[1\bar{1}\bar{2}]$
4	»	В плоскости слоя, параллельно $[1\bar{1}0]$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	$[1\bar{1}1]$	$[110]$	$[110]$	$[\bar{1}\bar{1}\bar{2}]$	$[\bar{1}\bar{1}2]$
5	Растяжение	В плоскости слоя, параллельно $[00\bar{1}]$	$[111]$	$[11\bar{1}]$	$[1\bar{1}0]$	$[1\bar{1}0]$	$[11\bar{2}]$	$[\bar{1}\bar{1}\bar{2}]$
6	»	Перпендикулярно слою, параллельно $[\bar{1}\bar{1}0]$	$[111]$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	$[1\bar{1}0]$	$[1\bar{1}0]$	$[11\bar{2}]$	$[112]$
7	»	В плоскости слоя, параллельно $[00\bar{1}]$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	$[\bar{1}\bar{1}\bar{2}]$	$[1\bar{1}\bar{2}]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$
8	»	В плоскости слоя, параллельно $[1\bar{1}0]$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	$[1\bar{1}1]$	$[\bar{1}\bar{1}\bar{2}]$	$[\bar{1}\bar{1}2]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$	$[\bar{1}\bar{1}0]$

такое сочетание срез–деформация–направление поля не приведет к переключению намагниченности ферромагнитного слоя.

Прикладывая электрическое поле параллельно ребру и диагонали грани в плоскости упруго сжатого слоя, можно развернуть вектор **M**, лежащий в плоскости слоя, на 90 и 180° соответственно. Именно такая ориентация была предложена для создания MERAM в работе [17]. Типичная траектория конца вектора **I** на единичной сфере для случая 90° разворота вектора **M** изображена на рис. 2. Поскольку в крайних положениях вектора **p** выражение, стоящее в скобках в правой части формулы (2), равно 1/2 и не зависит от ориентации вектора **I**, значение β влияет на форму траектории, но не на положение ее концов.

В случае упруго растянутого слоя приложение электрического поля в плоскости слоя также переключает

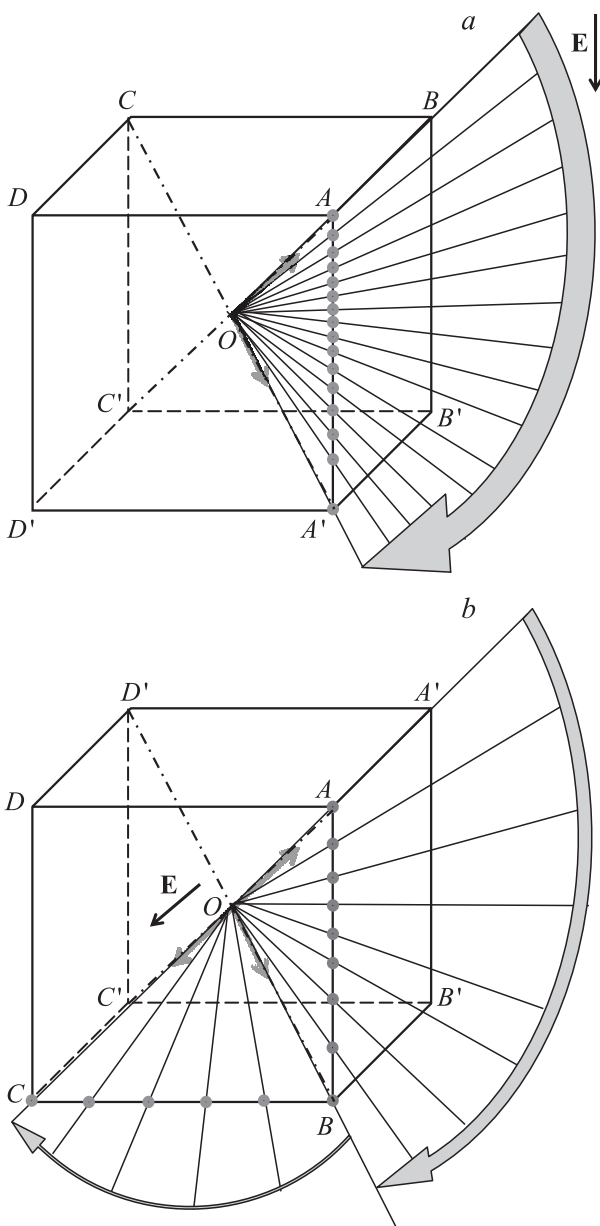
латеральную составляющую вектора **M** на 90 и 180°, однако составляющая, перпендикулярная слою, остается при этом неизменной. Это делает такую конфигурацию срез–деформация–направление поля не самой перспективной. Приложение поля перпендикулярно слою, как видно из табл. 1, оставляет неизменным вектор **L**, переключает на 180° латеральную составляющую вектора **M**, но оставляет неизменной перпендикулярную слою компоненту этого вектора. Последний недостаток компенсируется возможностью использования перпендикулярного слою напряжения.

3.2. Срез (110). В данном случае электрическое поле прикладывалось перпендикулярно слою параллельно направлению  $[\bar{1}\bar{1}0]$  и в плоскости слоя параллельно направлениям  $[00\bar{1}]$  и  $[1\bar{1}0]$ . Результаты моделирования приведены в табл. 2. В случаях, соответствующих стро-

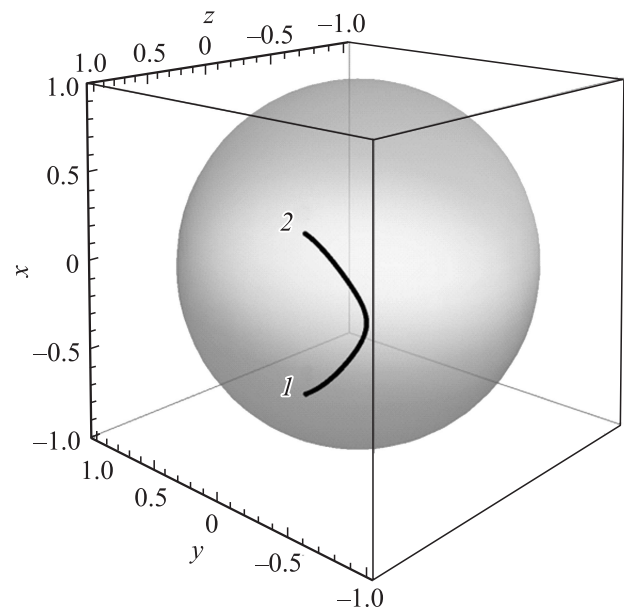
кам 1, 2, 7 и 8 таблицы, не происходит поворота вектора  $\mathbf{M}$ , и они не представляют интереса для создания магнитной памяти.

В случае упруго сжатого слоя и поля, приложенного в плоскости слоя, вектор  $\mathbf{L}$  остается неизменным и перпендикулярным слою, а вектор  $\mathbf{M}$ , лежащий в плоскости слоя, разворачивается на  $71$  или  $109^\circ$  в зависимости от направления поля.

В случае упруго растянутого слоя приложение поля в плоскости слоя вдоль направления  $[00\bar{1}]$  изменяет знак перпендикулярной составляющей вектора  $\mathbf{M}$ , оставляя латеральную составляющую неизменной. Такая конфигурация срез–деформация–направление поля перспективна



**Рис. 1.** Разворот вектора поляризации под действием электрического поля, приложенного параллельно ребру (а) и диагонали грани (b) псевдокубической решетки ВFO.



**Рис. 2.** Траектория конца вектора  $\mathbf{I}$  на единичной сфере для конфигурации, соответствующей строке 1 табл. 1 и  $\alpha = 1$ ;  $\beta = \gamma = 0.01$ . Цифрами 1 и 2 обозначены начальное и конечное положение вектора.

для создания памяти с перпендикулярной записью, т. е. с намагниченностями ферромагнитных слоев туннельного соединения, перпендикулярными слоям. Если же поле приложено перпендикулярно слою, то, как и в случае среза (001), при неизменном векторе  $\mathbf{L}$  и перпендикулярной составляющей вектора  $\mathbf{M}$  происходит разворот на  $180^\circ$  латеральной составляющей вектора  $\mathbf{M}$ . На перспективность данной конфигурации было обращено внимание в недавней работе [19].

#### 4. Заключение

Предложена феноменологическая модель для энергии магнитной анизотропии слоя  $\text{ViFeO}_3$  на сжимающей и растягивающей подложках.

Исследована эволюция вектора антиферромагнетизма в процессе переключения вектора поляризации ВFO внешним электрическим полем.

Предложены конфигурации срез–деформация–направление поля, наиболее перспективные для создания МЕРAM:

- для продольной записи с приложением электрического напряжения в плоскости слоя наиболее предпочтительны конфигурации, указанные в строках 1 и 2 табл. 1;
- для продольной записи с приложением электрического напряжения перпендикулярно слою перспективны конфигурации, соответствующие строкам 6 в табл. 1 и 2;
- для перпендикулярной записи с приложением электрического напряжения в плоскости слоя оптимальна конфигурация, приведенная в строке 5 табл. 2.

## Список литературы

- [1] А.И. Морозов. ФТТ **56**, 833 (2014).
- [2] Д.Л. Винокуров, А.И. Морозов. ФТТ **55**, 2135 (2013).
- [3] Д.Л. Винокуров, А.И. Морозов. ФТТ **57**, 1736 (2015).
- [4] G. Catalan, J.F. Scott. Adv. Mater. **21**, 2463 (2009).
- [5] G. Lawes, G. Srinivasan. J. Phys. D **44**, 243001 (2011).
- [6] J. Schiemer, M.A. Carpenter, D.M. Evans, J.M. Gregg, A. Schilling, M. Arredondo, M. Alexe, D. Sanchez, N. Ortega, R.S. Katiyar, M. Echizen, E. Colliver, S. Dutton, J.F. Scott. Adv. Funct. Mater. **24**, 2993 (2014).
- [7] F. Bai, J. Wang, M. Wuttig, J.F. Li, N. Wang, A.P. Pyatakov, A.K. Zvezdin, L.E. Cross, D. Viehland. Appl. Phys. Lett. **86**, 032511 (2005).
- [8] И.Е. Дзялошинский. ЖЭТФ **32**, 1547 (1957).
- [9] T. Moriya. Phys. Rev. **120**, 91 (1960).
- [10] M. Ramazanoglu, M. Laver, W. Ratcliff II, S.M. Watson, W.C. Chen, A. Jackson, K. Kothapalli, S. Lee, S.-W. Cheong, V. Kiryukhin. Phys. Rev. Lett. **107**, 207206 (2011).
- [11] M.B. Holcomb, L.W. Martin, A. Scholl, Q. He, P. Yu, C.-H. Yang, S.Y. Yang, P.-A. Glans, M. Valvidares, M. Huijben, J.B. Kortright, J. Guo, Y.-H. Chu, R. Ramesh. Phys. Rev. B **81**, 134406 (2010).
- [12] D. Sando, A. Agbelele, D. Rahmedov, J. Liu, P. Rovillain, C. Toulouse, I.C. Infante, A.P. Pyatakov, S. Fusil, E. Jacquet, C. Carrétéro, C. Deranlot, S. Lisenkov, D. Wang, J.-M. Le Breton, M. Cazayous, A. Sacuto, J. Juraszek, A.K. Zvezdin, L. Bellaiche, B. Dkhil, A. Barthélémy, M. Bibes. Nature Mater. **12**, 641 (2013).
- [13] T. Zhao, A. Scholl, F. Zavaliche, K. Lee, M. Barry, A. Doran, M.P. Cruz, Y.H. Chu, C. Ederer, N.A. Spaldin, R.R. Das, D.M. Kim, S.H. Baek, C.B. Eom, R. Ramesh. Nature Mater. **5**, 823 (2006).
- [14] Y.-H. Chu, L.W. Martin, M.B. Holcomb, M. Gajek, S.-J. Han, Q. He, N. Balke, C.-H. Yang, D. Lee, W. Hu, Q. Zhan, P.-L. Yang, A. Fraile-Rodriguez, A. Scholl, S.X. Wang, R. Ramesh. Nature Mater. **7**, 478 (2008).
- [15] S.M. Wu, S.A. Cybart, P. Yu, M.D. Rossell, J.X. Zhang, R. Ramesh, R.C. Dynes. Nature Mater. **9**, 756 (2010).
- [16] J.T. Heron, M. Trassin, K. Ashraf, M. Gajek, Q. He, S.Y. Yang, D.E. Nikonov, Y.-H. Chu, S. Salahuddin, R. Ramesh. Phys. Rev. Lett. **107**, 217202 (2011).
- [17] А.И. Морозов, А.С. Сигов. Нано- и микросистемная техника **10**, 10 (2012).
- [18] A.I. Morosov, A.S. Sigov. J. Magn. Magn. Mater. **383**, 242 (2015).
- [19] J.J. Wang, J.M. Hu, Ren-Ci Peng, Y. Gao, Y. Shen, L.Q. Chen, C.W. Nan. Sci. Rep. **5**, 10459 (2015).