

# Магнитоэлектрический эффект в пленках гранатов с наведенной магнитной анизотропией в неоднородном электрическом поле

А. Ф. Кабыченков, Ф. В. Лисовский<sup>1)</sup>, Е. Г. Мансветова

Фрязинский филиал Института радиотехники и электроники им. Котельникова РАН, 141190 Фрязино, Россия

Поступила в редакцию 16 января 2013 г.

После переработки 1 февраля 2013 г.

Предложен не связанный с наличием электрически заряженных доменных границ механизм возникновения сильного магнитоэлектрического эффекта в эпитаксиальных пленках магнитных гранатов, зависящий от кристаллографической ориентации последних и обусловленный влиянием неоднородного электрического поля на наведенную магнитную анизотропию.

DOI: 10.7868/S0370274X13050056

Недавно [1] сообщалось об обнаружении в эпитаксиальных пленках граната  $(\text{LuBi})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ , выращенных на подложках из  $\text{Gd}_3\text{Ga}_5\text{O}_{12}$ , нового сильного магнитоэлектрического (МЭ) эффекта. Он заключается в смещении доменных границ (ДГ) под действием внешнего электрического поля  $\mathbf{E}$ , создаваемого двумя металлическими электродами: контактирующей со свободной поверхностью пленки иглой и нанесенной на свободную поверхность подложки пленкой.

Эффект был нечетным по  $\mathbf{E}$ : все ДГ либо “притягивались” к иглообразному электроду, либо “отталкивались” от него в зависимости от полярности электрического поля. При фиксированной ориентации  $\mathbf{E}$  тип эффекта (“притяжение” или “отталкивание”) не зависел от направления нормальной к поверхности пленки  $M_z$ -компоненты вектора намагниченности в домене, над которым располагалась игла. Ярко выраженный эффект существовал только в пленках с (210)-ориентацией, гораздо более слабый – в пленках с (110)-ориентацией. В пленках с (111)-ориентацией эффект обнаружить не удалось. Более подробное описание явления дано в [2]. Там же приведен достаточно полный список публикаций по данной проблеме.

Авторы работ [1, 2] для объяснения наблюдаемых в экспериментах фактов привлекли предложенный в [3] механизм, в соответствии с которым в неоднородно намагниченной среде, где  $\mathbf{M} = \mathbf{M}(\mathbf{r})$ , возникает неоднородная электрическая поляризация  $\mathbf{P} = \mathbf{P}(\mathbf{r})$ , пространственное распределение которой определяется соотношением

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}) = k_{nu}\{\mathbf{M}(\mathbf{r})[\nabla\mathbf{M}(\mathbf{r})] - [\mathbf{M}(\mathbf{r})\nabla]\mathbf{M}(\mathbf{r})\}, \quad (1)$$

<sup>1)</sup>e-mail: lisf@df.ru

где  $k_{nu}$  – константа неоднородной МЭ-связи. Вследствие этого в среде создается неоднородное распределение электрического заряда, которое реагирует на внешнее электрическое поле. Согласно [3] блоховские ДГ в пленках не заряжаются, поскольку для них среднее (по толщине границы) значение  $\mathbf{P}$  обращается в нуль, в отличие от неелевских ДГ, которые становятся заряженными.

Однако использование описанного механизма для интерпретации приведенных в [1, 2] результатов вызывает определенные возражения.

Во-первых, при слабой ромбической анизотропии ДГ в эпитаксиальных пленках магнитных гранатов не принадлежат ни к неелевскому, ни к блоховскому типу, а являются скрученными [4]. Такие границы не обладают электрическим зарядом, что следует из симметрии распределения вектора  $\mathbf{M}$  и подтверждается прямым расчетом. Сильная ромбическая анизотропия подавляет скручивание [5]. Однако высказанное в [1] утверждение о том, что по этой причине ДГ в пленках с (210)-ориентацией становятся неелевскими, является теоретически не обоснованной и экспериментально не подтвержденной гипотезой.

Во-вторых, спонтанное нарушение симметрии (все ДГ заряжены одинаково: положительно или отрицательно) не может быть объяснено в рамках представлений о неоднородном МЭ-эффекте [3]. Попытка сделать это, предпринятая в [6], основана на использовании модели Широкова для безграничной среды [7], не имеющей никакого отношения к ДС в пленках. Это приводит к противоречию с результатами компьютерного моделирования распределения  $\mathbf{M}(\mathbf{r})$  в таких объектах, которые свидетельствуют о противоположной киральности соседних ДГ (см., например, [8, 9]).

В-третьих, описываемый формулой [3] неоднородный магнитоэлектрический эффект должен быть слабым, поскольку он по механизму возникновения аналогичен однородному магнитоэлектрическому эффекту в нецентросимметричных средах и отличается от последнего лишь локальным характером нарушения центросимметричности кристалла в областях с неоднородным распределением магнитного момента, например в местах расположения ДГ.

Все это наводит на мысль о том, что причины существования столь ярко выраженного магнитоэлектрического эффекта, допускающего прямое визуальное наблюдение влияния электрического поля на распределение намагниченности в магнитной пленке, следует искать не только в кристаллографической ориентации подложки, но и в условиях проведения описанных в [1, 2] экспериментов.

Известно, что ориентация подложки оказывает сильное влияние на возникающую в процессе эпитаксии из-за некубического упорядочения ионов наведенную магнитную анизотропию, плотность энергии которой описывается соотношением [10]

$$w^{(i)} = K_u(\mathbf{m}\mathbf{n}_u)^2 + K_p(\mathbf{m}\mathbf{n}_p)^2, \quad (2)$$

где  $K_u$  и  $K_p$  – константы одноосной и ромбической анизотропии соответственно,  $\mathbf{m} = \mathbf{M}/|\mathbf{M}|$  – нормированный вектор намагниченности,  $\mathbf{n}_u$  – орт вдоль оси легчайшего намагничивания (ОЛН), а  $\mathbf{n}_p$  – орт вдоль направления легкого (при  $K_p > 0$ ) или трудного (при  $K_p < 0$ ) намагничивания в плоскости, перпендикулярной  $\mathbf{n}_u$ . Для полного описания наведенной анизотропии нужно знать константы  $K_u$  и  $K_p$ , угол  $\vartheta_u$  отклонения ОЛН от нормали  $\mathbf{n}$  к поверхности пленки и азимутальные углы  $\varphi_u$  и  $\varphi_p$ , определяющие положение проекций ортов  $\mathbf{n}_u$  и  $\mathbf{n}_p$  на поверхность пленки.

Природу наведенной анизотропии лучше отображает так называемая двухпараметрическая модель, при использовании которой  $w^{(i)}$  представляется в следующем виде [11]:

$$w^{(i)} = A \sum_i (\mathbf{m}\mathbf{n}_i)^2 (\mathbf{n}\mathbf{n}_i)^2 + B \sum_{i \neq j} (\mathbf{m}\mathbf{n}_i)(\mathbf{m}\mathbf{n}_j)(\mathbf{n}\mathbf{n}_i)(\mathbf{n}\mathbf{n}_j), \quad (3)$$

где  $i, j = 1, 2, 3$ ,  $A$  и  $B$  – феноменологические константы,  $\mathbf{n}_1$ ,  $\mathbf{n}_2$  и  $\mathbf{n}_3$  – орты вдоль кристаллографических осей [001], [010] и [100] соответственно,  $\mathbf{n}$  – орт вдоль нормали к поверхности. Запись  $w^{(i)}$  в форме (3) подчеркивает тот факт, что в кубическом кристалле существует некое выделенное направление,

которое может иметь произвольное расположение относительно ребер элементарной ячейки.

Для пленок с (210)-ориентацией выражение (3) для плотности энергии наведенной анизотропии в системе координат  $x, y, z$  с осями вдоль кристаллографических осей  $[\bar{1}20]$ , [001] и [210] имеет вид [12]

$$w^{(i)} = 0.04[-(13A + 6B) \sin^2 \vartheta + (B - 2A) \times (3 \sin 2\vartheta \cos \varphi - 2 \sin^2 \vartheta \cos 2\varphi)], \quad (4)$$

где  $\vartheta = \arccos m_z$ ,  $\varphi = \arctg(m_y/m_x)$ .

Анализ результатов определения характеризующих анизотропию параметров (включая и константу кубической анизотропии  $K_c$ ) для пленок состава  $(\text{LuBi})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$  методом однородного зарождения доменов (при  $\vartheta_u \ll 1$ ) или магнитооптическим методом (при любых значениях  $\vartheta_u$ ) показал, что если для (111)- и (100)-ориентаций преобладает одноосная анизотропия и отклонение ОЛН от нормали не превышает единиц градусов, то для (110)- и (210)-ориентаций в большинстве случаев доминирующей является ромбическая анизотропия, а значение  $\vartheta_u$  может достигать до  $60^\circ$  [12–15]. В последних двух случаях (и особенно в пленках с (210)-ориентацией) направление вектора  $\mathbf{M}$  в доменах заметно отличается от нормали к поверхности и может сильно изменяться при определенных внешних воздействиях [12].

Это подтверждает приведенная на рис. 1 теоретическая диаграмма однородных магнитных состояний таких пленок на плоскости  $(A'B')$ , где

$$A' = 2 + \frac{A}{\pi M^2}; \quad B' = 4 + \frac{B}{\pi M^2},$$

построенная в предположении  $K_c \ll \min\{K_u, K_p\}$ . Диаграмма отображает результаты, полученные путем минимизации выражения для плотности полной энергии

$$w = -2\pi M^2 \sin^2 \vartheta + w^{(i)},$$

которое с учетом (4) может быть представлено в виде [12]

$$w = (C_1 \cos^2 \varphi - C_2 - 2\pi M^2) \sin^2 \vartheta + C_3 \sin 2\vartheta \cos \varphi,$$

где  $C_1 = 0.16(2A - B)$ ,  $C_2 = 0.04(17A + 4B)$  и  $C_3 = 0.12(B - 2A)$ . Выбор переменных  $A'$  и  $B'$  в качестве абсциссы и ординаты диаграммы обусловлен тем, что в данном представлении равновесным значениям углов  $\vartheta = \text{const}$  соответствуют прямые линии

$$B = 1.5A \frac{-3\text{tg} 2\vartheta \mp 4}{4\text{tg} 2\vartheta \mp 3},$$

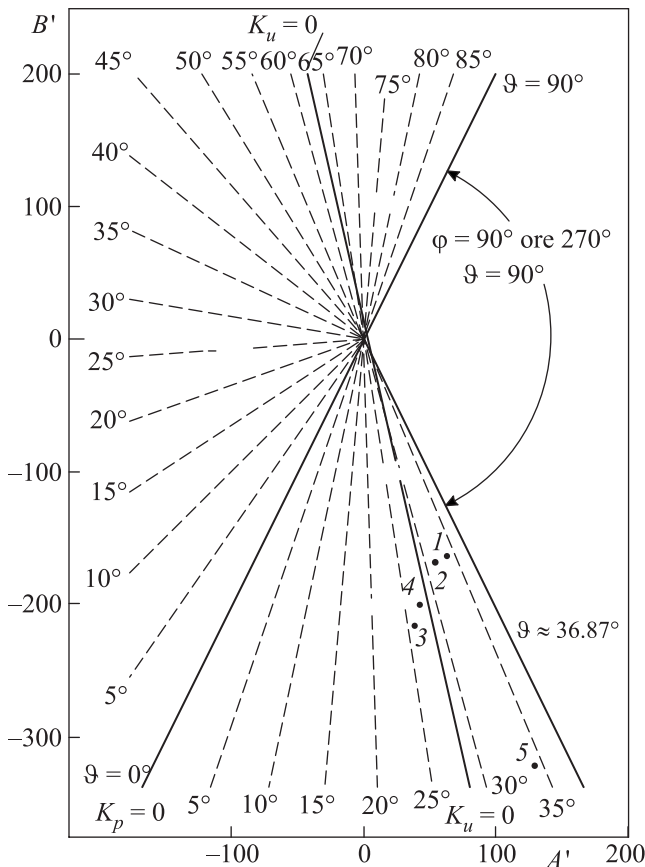


Рис. 1. Теоретическая диаграмма однородных магнитных состояний пленок с (210)-ориентацией на плоскости ( $A'B'$ )

проходящие через начало координат. В области диаграммы вне сектора, соответствующего значениям  $\varphi = 90^\circ$  или  $270^\circ$ , угол  $\vartheta$  равен  $0^\circ$  или  $180^\circ$ .

Точками в четвертом квадранте диаграммы обозначены значения  $A'$  и  $B'$  для пяти исследованных пленок, рассчитанные по измеренным величинам  $K_u$  и  $K_p$  по формулам [12]

$$A' = 2 + \frac{K_p - K_u}{\pi M^2}; \quad B' = 4 - \frac{17K_p + 8K_u}{4\pi M^2},$$

которые вытекают из требования тождественности представлений  $w^{(i)}$  в форме (2) и в форме (3). Видно, что пленки выбранного состава с ориентацией (210) действительно обладают повышенной чувствительностью к таким внешним воздействиям, которые оказывают влияние на константы наведенной анизотропии, так как точки 1–5 на диаграмме располагаются вблизи линии, разделяющей состояния со значениями  $\vartheta = 0^\circ$  ( $180^\circ$ ) и  $\vartheta \geq 36.87^\circ$ .

Прямое влияние однородного внешнего электрического поля на константы кристаллографической магнитной анизотропии ранее теоретически рассмат-

ривалось и привлекалось для объяснения существования магнитоэлектрических эффектов в монокристаллах магнетита и литиевого феррита [16, 17]. В эпитаксиальных пленках железо-иттриевого граната с ДС при локальном зондировании наблюдалось значительное усиление квадратичного магнитоэлектрического эффекта в однородном электрическом поле вблизи ДГ [18].

Об обнаружении влияния однородного внешнего электрического поля на наведенную анизотропию в пленках гранатов состава  $(YBiLaPr)_3(FeGa)_5O_{12}$  с (210)-ориентацией сообщалось более 20 лет назад в работе [19], озаглавленной “Гигантский линейный магнитоэлектрический эффект в пленках ферритов-гранатов”. Гигантским он был назван в связи с тем, что определенное по результатам экспериментов значение константы линейной магнитоэлектрической связи оказалось на порядок больше, чем у  $Cr_2O_3$ , и на три порядка превосходило значение константы квадратичной магнитоэлектрической связи в массивных монокристаллах ферритов-гранатов. Оценка влияния электрического поля с напряженностью 12 кВ/см на характеризующие наведенную анизотропию параметры показала, что последние испытывают ничтожно малые изменения: эффективное поле одноосной анизотропии изменилось на 0.00375%, а угол отклонения ОЛН от нормали – на 0.24 угловых секунды. Это объясняется тем, что при поляризации ионного кристаллического диэлектрика в однородном электрическом поле все однотипные ионы смещаются практически одинаково и при этом не усугубляется возникшее в процессе выращивания пленок некубическое упорядочение ионов. Ситуация коренным образом меняется при поляризации диэлектрика в сильно неоднородном электрическом поле, когда однотипные ионы испытывают разное смещение.

Если внешнее воздействие обладает инвариантностью по отношению к поворотам вокруг параллельной нормали  $\mathbf{n}$  к поверхности пленки оси  $z$ , как, например, неоднородное электрическое поле вида  $\mathbf{E}(z, \rho)$  в системе электродов на рис. 2, то оно не создает отличных от  $\mathbf{n}$  выделенных направлений. Локальное изменение констант  $A$  и  $B$  под действием такого поля может быть описано выражениями

$$\delta A = \sum_{i,j} A_{ij} \frac{\partial E_i}{\partial x_j}; \quad \delta B = \sum_{i,j} B_{ij} \frac{\partial E_i}{\partial x_j}.$$

Здесь  $\rho$  и  $\varphi$  – радиус-вектор и азимутальный угол в плоскости пленки соответственно,  $x_1 = \rho \cos \varphi$ ,  $x_2 = \rho \sin \varphi$  и  $x_3 = z$ . Такие локальные изменения констант создают в пленке неоднородности энергии на-

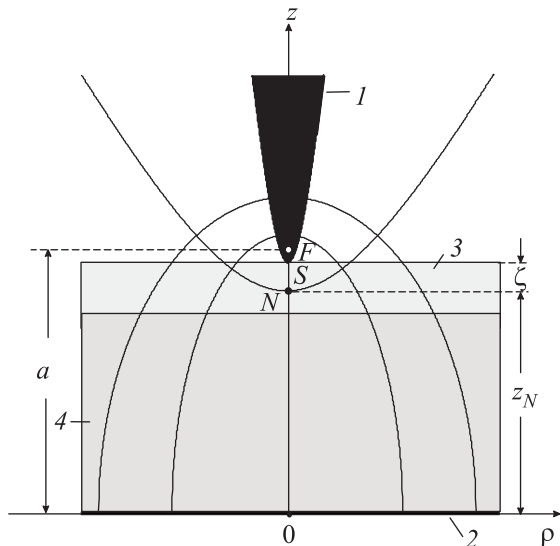


Рис. 2. К расчету электрического поля в системе электродов игла–плоскость: 1 – верхний иглообразный электрод, 2 – нижний плоский электрод, 3 – магнитная пленка, 4 – немагнитная подложка. На оси симметрии координаты точки фокуса, кончика иглы и текущей расчетной точки обозначены, соответственно, буквами  $F$ ,  $S$  и  $N$

веденной анизотропии типа кратеров, пиков или седловых поверхностей, которые могут притягивать или отталкивать ДГ, причем при изменении знака  $\mathbf{E}$  притяжение будет заменяться отталкиванием, и наоборот.

Возникающую в системе электродов типа игла–плоскость неоднородность электрического поля можно оценить, пользуясь результатами работы [20]. В ней расчеты были выполнены с применением вытянутой эллипсоидальной системы координат  $(\vartheta\eta\varphi)$ , связь которой с декартовой системой  $(xyz)$  дается соотношениями

$$x = a \sin \vartheta \sinh \eta \cos \varphi,$$

$$y = a \sin \vartheta \sinh \eta \sin \varphi,$$

$$z = a \cos \vartheta \cosh \eta,$$

где  $a$  – половина фокусного расстояния,  $0 \leq \vartheta \leq \pi$ ,  $1 \leq \eta \leq \infty$ ,  $0 \leq \varphi \leq 2\pi$ . Поверхности  $\vartheta = \text{const}$  образуют семейство двухполостных гиперболоидов, поверхности  $\eta = \text{const}$  – семейство софокусных вытянутых вдоль оси  $z$  эллипсоидов, а поверхности  $\varphi = \text{const}$  – семейство плоскостей, проходящих через ось  $z$ . Если геометрия электродов такова, что ось  $z$  является поворотной осью симметрии бесконечно го порядка, то вытянутая эллипсоидальная система

координат переходит в вытянутую сфероидальную систему (см. рис. 2), для которой

$$\rho = a \sin \vartheta \sinh \eta, \quad z = a \cos \vartheta \cosh \eta, \quad (5)$$

где  $\rho = (x^2 + y^2)^{1/2}$ . Гиперболы на рис. 2 представляют собой эквипотенциалы, а эллипсы – силовые линии. Выражение для модуля напряженности электрического поля в системе координат  $(\vartheta\eta)$  записывается следующим образом [20]:

$$E(\vartheta, \eta) = \frac{C}{a \sin \vartheta (\cosh^2 \eta - \cos^2 \vartheta)^{1/2}}, \quad (6)$$

где  $C$  – константа, зависящая от приложенного напряжения  $V$ . Если кончик иглообразного электрода достаточно острый, то вблизи него, где угол  $\vartheta = \epsilon \ll 1$ , напряженность электрического поля в цилиндрической системе координат приобретает вид

$$E(\rho, z) = \frac{C}{a[\gamma(1 + 2\gamma - \alpha)]^{1/2}}, \quad (7)$$

а значение константы  $C$  составляет

$$C = \frac{V}{\ln[2(a/r)^{1/2}]},$$

где  $r = a \sin^2 \vartheta / \cos \vartheta \approx a\epsilon^2$  – радиус кривизны гиперболы,  $\alpha = (z^2 + \rho^2)/a^2$  и  $\gamma = [(1/4)(1 - \alpha^2)^2 + (\rho/a)^2]^{1/2}$ .

Основной вклад в магнитоэлектрические эффекты для используемой геометрии эксперимента (см. рис. 2) дает электрическое поле вблизи острия иглообразного электрода. Его модуль, как следует из (7), при  $\zeta \ll r$  и  $\rho \ll r$  определяется соотношением

$$E(\zeta, \rho) = \frac{C}{r} \left[ 1 - \frac{2\zeta}{r} + \frac{2\zeta^2 - 3\rho^2}{2r^2} \right], \quad (8)$$

где  $\zeta = a - z_N - r/2$  – координата точки внутри пленки, отсчитываемая по нормали от конца острия. Максимум поля достигается на острие и составляет

$$E(\zeta = 0, \rho = 0) = \frac{2V}{r \ln(4a/r)},$$

а скорость изменения поля вблизи острия описывается соотношениями

$$\frac{\partial E}{\partial \zeta} \simeq -\frac{2C}{r^2} \left( 1 - \frac{\zeta}{r} \right); \quad \frac{\partial E}{\partial \rho} \simeq -\frac{3C\rho}{r^3}.$$

Произведем некоторые численные оценки, относящиеся к распределению напряженности электрического поля, создаваемого системой электродов типа игла–плоскость в свободном пространстве, без учета пленки с подложкой. Это не может приводить к существенному изменению оценок из-за малой ( $\epsilon_0 \approx 5$ )

относительной диэлектрической проницаемости гранатов [21].

При толщине подложки  $5 \cdot 10^{-2}$  см, толщине пленки  $10^{-3}$  см и радиусе кривизны острия иглы  $r/2 = 10^{-3}$  см величина  $a = 5 \cdot 10^{-2}$  см и константа  $C = V/2.3$ . Для  $V = 10^3$  В максимальное поле  $E_{\max} \simeq 2 \cdot 10^5$  В/см, максимальное значение  $\partial E/\partial z \simeq 2 \cdot 10^8$  В/см<sup>2</sup>, а максимальное (для  $\rho = r/2$ ) значение  $\partial E/\partial \rho \simeq 1.6 \cdot 10^8$  В/см<sup>2</sup>.

Видно, что в системе электродов игла–плоскость вблизи кончика иглы существует сильно неоднородное электрическое поле, создающее в магнитных пленках область с неоднородной наведенной магнитной анизотропией, которая и может приводить к наблюдаемой в экспериментах [1, 2] модификации распределения намагниченности  $\mathbf{M}(\mathbf{r})$  в окрестности игольчатого электрода. Чтобы такая модификация была ощутимой, необходимо, чтобы пленки обладали большим отклонением ОЛН от нормали и эффективное поле одноосной анизотропии не являлось доминирующим по отношению к эффективному полю ромбической анизотропии. Если эти условия не выполняются, как, например, в пленках с (111)-ориентацией, то распределение  $\mathbf{M}(\mathbf{r})$  практически полностью определяется эффективными полями одноосной анизотропии и неоднородного обменного взаимодействия и не реагирует на малые изменения наведенной под действием внешнего электрического поля анизотропии.

Отдельные результаты работы ранее были кратко опубликованы в [22].

1. А. С. Логгинов, Г. А. Мешков, А. В. Николаев и др., Письма в ЖЭТФ **86**, 124 (2007).
2. А. К. Звездин, А. П. Пятаков, УФН **179**, 897 (2009).
3. В. Г. Барьяхтар, В. А. Львов, Д. А. Яблонский, Письма в ЖЭТФ **37**, 565 (1983).
4. E. Schlomann, J. Appl. Phys. **44**, 1837 (1973).

5. E. Schlomann, J. Appl. Phys. **47**, 1142 (1976).
6. A. P. Pyatakov, D. E. Sechin, and A. S. Sergeev, EPL **93**, 17001 (2011).
7. М. Я. Ширококов, ЖЭТФ **15**, 57 (1945).
8. А. Хуберт, *Теория доменных стенок в упорядоченных средах*, М.: Мир, 1977, 306 с. [A. Hubert, *Theorie der domänenwände in geordneten medien*, Berlin, Heidelberg, N.Y., Springer-Verlag, 1974, 377 s.).
9. Л. И. Антонов, Е. В. Лукашева, Е. А. Мухина, ФММ **80**, 5 (1995).
10. A. Hubert, A. F. Malozemoff, and J. C. De Luca, J. Appl. Phys. **45**, 3562 (1974).
11. L. Neel, Comptes Rendus Acad. Sci. **237**, 1468 (1953).
12. А. М. Балбашов, Ф. В. Лисовский, Е. Г. Мансветова и др., *Свойства пленок ферритов-гранатов с (210)-ориентацией*, препринт # 25(500), М.: ИРЭ АН СССР, 1988, 26 с.
13. И. Е. Дикштейн, Ф. В. Лисовский, Е. Г. Мансветова и др., Микроэлектроника **13**, 337 (1984).
14. А. М. Балбашов, Ф. В. Лисовский, Е. Г. Мансветова и др., Микроэлектроника **18**, 274 (1989).
15. А. М. Балбашов, И. Е. Дикштейн, Ф. В. Лисовский и др., Микроэлектроника **19**, 45 (1990).
16. G. T. Rado and J. M. Ferrari, Phys. Rev. B **15**, 290 (1977).
17. G. Aubert, J. of Magnetism & Magnetic Materials **19**, 290 (1980).
18. V. E. Koronovsky, S. M. Ryabchenko, and V. F. Kovalenko, Phys. Rev. B **71**, 172402 (2005).
19. Б. Б. Кричевцов, В. В. Павлов, Р. В. Писарев, Письма в ЖЭТФ **49**, 466 (1989).
20. R. Coehlo and J. Debeau, J. Phys. D: Appl. Phys. **4**, 1266 (1971).
21. S. Wittekoek, T. J. A. Popma, and J. M. Robertson, Phys. Rev. B **12**, 2777 (1975).
22. А. Ф. Кабыченков, Ф. В. Лисовский, Е. Г. Мансветова, в Сб. трудов XXII Международной конференции “Новое в магнетизме и магнитных материалах”, Астрахань, Издательский дом “Астраханский университет”, 2012, с. 604.