# 05

# Магнитная структура компенсированной границы раздела ферромагнетик–мультиферроик

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

<sup>1</sup> Московский государственный технический университет радиотехники, электроники и автоматики, Москва, Россия <sup>2</sup> Московский физико-технический институт,

Долгопрудный, Московская обл., Россия

E-mail: mor-alexandr@yandex.ru

# (Поступила в Редакцию 9 апреля 2013 г.)

Рассмотрена магнитная структура компенсированной границы раздела ферромагнетик—мультиферроик. Найден закон убывания искажений магнитных параметров порядка по мере удаления от границы раздела. Получено выражение для энергии межслоевого взаимодействия магнитных параметров порядка и показано, что ее величина определяется обменным взаимодействием. Сформулировано условие переключения намагниченности ферромагнитного слоя электрическим полем, приложенным к слою мультиферроика. Продемонстрировано, что наличие магнитоэлектрического эффекта и слабого ферромагнетизма не является необходимым условием для создания магниторезистивной памяти, переключаемой электрическим полем.

Работа поддержана Минобрнауки России, проект 2.2775.2011.

# 1. Введение

Проблемам переключения намагниченности в магнитных гетероструктурах путем приложения электрического поля и вопросам создания магнитной памяти на основе указанного принципа посвящено большое число работ (см., например, обзор [1]). Одним из наиболее перспективных примеров является магниторезистивная память на основе нанослоев мультиферроика BiFeO<sub>3</sub> с записью при помощи электрического поля, функционирующая при комнатной температуре [2,3]. После решения ряда проблем такая память сможет заменить существующие устройства памяти. Одной из основных проблем при разработке такой памяти считается малая величина слабого ферромагнитного момента, непригодная для применения в реальных устройствах спинтроники [4].

В объемном BiFeO<sub>3</sub> присутствует пространственномодулированная структура [5], что приводит к исчезновению магнитоэлектрического эффекта вследствие его усреднения. Однако в тонких (< 500 nm) пленках феррита висмута пространственно-модулированная структура подавляется [6], и реализуется антиферромагнитное упорядочение *G*-типа со слабым ферромагнетизмом, обусловленным взаимодействием Дзялошинского-Мориа.

Аналогичного эффекта можно достичь путем замещения висмута стронцием [7] или редкоземельными элементами [8–10].

Вектор спонтанной сегнетоэлектрической поляризации феррита висмута Р направлен вдоль одной из осей типа [111] ромбоэдрически искаженной перовскитоподобной структуры.

Магнитные моменты железа лежат в плоскостях типа (111), перпендикулярных направлению спонтанной поляризации. Спины атомов, принадлежащих такой плоскости, направлены параллельно друг другу, то есть принадлежат одной антиферромагнитной подрешетке. Атомы соседних плоскостей принадлежат разным подрешеткам [11].

Согласно работе [12], вектор антиферромагнетизма L лежит в плоскости типа (111), перпендикулярной вектору **P**, и в упругосжатом слое BiFeO<sub>3</sub> направлен параллельно одному из трех кристаллографических направлений типа [11 $\overline{2}$ ]. Вектор слабого ферромагнетизма **M** лежит в той же плоскости и ортогонален вектору L, то есть параллелен кристаллографическому направлению типа [1 $\overline{10}$ ] (рис. 1) и образует с векторами **P** и L правую тройку векторов [11]. В случае деформации растяжения ситуация изменяется на противоположную: легкие направления для векторов **M** и L меняются местами [12].

Обусловленное взаимодействием с подложкой сжатие слоя  $BiFeO_3$  приводит к тому, что из трех возможных ориентаций вектора L в плоскости (111) наименьшей энергией обладает состояние с наименьшей проекцией вектора L на плоскость слоя [12].

В работе [13] было показано, что для создания магниторезистивной памяти с записью электрическим полем наиболее перспективны слои BiFeO<sub>3</sub> на подложке SrTiO<sub>3</sub>, вырезанные параллельно скомпенсированным атомным плоскостям (001). Последнее согласуется с экспериментом [14]. Однако процесс переключения такой памяти, обусловленный магнитным взаимодействием на границе раздела слоев, требует дополнительного исследования [1]. Настоящая работа посвящена расчету энергии взаимодействия слоев ферромагнетика и мультиферроика.

Последовательная картина обменного взаимодействия и обусловленного им обменного сдвига на границе ферромагнетика с компенсированной поверхностью коллинеарного двухподрешеточного антиферромагнетика была предложена Кооном [15]. С выходом за рамки обменного приближения и учетом энергии одноионной анизотропии этот вопрос исследован в работе [16]. Согласно теории Коона обменное взаимодействие между спинами ферро- и антиферромагнетика приводит к скосу спинов антиферромагнетика и возникновению в антиферромагнетике вблизи границы раздела наведенного ферромагнитного момента. Аналогично в ферромагнетике в результате отклонений спинов возникает наведенный антиферромагнитный момент. Вектор антиферромагнетизма ортогонален вектору намагниченности ферромагнетика (спин-флоп-ориентация). Аналитически закон убывания наведенных магнитных параметров порядка в глубь соответствующих слоев для компенсированной границы раздела ферромагнетик-антиферромагнетик найден одним из авторов [17]. Быстрота убывания искажений определяется типом кристаллической структуры и видом среза поверхности, их разделяющей.

## 2. Постановка задачи

В отличие от рассмотрения, проведенного в работах [15-17], в случае среза (001) ВіFeO<sub>3</sub> вектор антиферромагнетизма не лежит в плоскости границы раздела слоев. Кроме того, вследствие слабого ферромагнетизма этого соединения имеет место слабый (порядка 1°) скос антиферромагнитных подрешеток в отсутствие взаимодействия слоев [18]. Величина угла скоса вблизи поверхности отличается от своего объемного значения. Отличия максимальны на поверхности и, осциллируя, экспоненциально спадают в глубь образца [19]. Нам необходимо рассчитать энергию взаимодействия слоев с учетом указанных обстоятельств и определить условия, когда она оказывается достаточной для разворота вектора намагниченности ферромагнитного слоя на  $90^\circ$  при развороте вектора поляризации BiFeO<sub>3</sub> из положения 1 (рис. 1, a) в положение 2 (рис. 1, b). Начальное положение вектора намагниченности ферромагнетика отвечает записи нуля, а конечное — записи единицы.

Рассмотрим дискретную решетку спинов для системы ферромагнетик—мультиферроик при температуре  $T \ll T_N$  и  $T \ll T_C$ , когда модули локализованных спинов можно считать неизменными. Будем предполагать, что слои выращены эпитаксиально, то есть кристаллическая решетка ферромагнитного слоя продолжает кристаллическую решетку мультиферроика. Пронумеруем компенсированные атомные плоскости, параллельные границе раздела, индексами *i* и *j* для мультиферроика и ферромагнетика соответственно, начиная с поверхности. В приближении взаимодействия ближайших соседей обменное поле ферромагнетика действует только на один атомный слой спинов мультиферроика (рис. 2).

В отсутствие внешнего поля в обменном приближении вектор намагниченности ферромагнетика ориентируется перпендикулярно вектору антиферромагнетизма мультиферроика, на компенсированную поверхность которого нанесен ферромагнитный слой. Пусть в плоско-



**Рис. 1.** Ориентация векторов поляризации, антиферромагнетизма и слабого ферромагнитного момента в феррите висмута до (a) и после (b) переключения электрическим полем.



**Рис. 2.** Ориентация спинов вблизи границы раздела  $BiFeO_3$  (*AF*)-ферромагнетик (*F*). Все спины принадлежат плоскостям (111), штриховая плоскость соответствует границе раздела.



**Рис. 3.** Ориентация спинов вблизи границы раздела  $BiFeO_3$  (*AF*)-ферромагнетик (*F*). Изображены соседние плоскости (111), штриховая линия соответствует границе раздела.

сти ферромагнитного слоя существуют две легкие оси: [110] и [110], и вектор намагниченности ферромагнетика параллелен направлению [110]. Вектор антиферромагнетизма мультиферроика лежит в плоскости (111) и параллелен направлению  $[\bar{1}\bar{1}2]$  (рис. 1, *a*). Обменное взаимодействие спинов нижнего слоя ферромагнетика со спинами верхнего слоя мультиферроика приводит к развороту спинов ферромагнетика на углы  $\pm \phi_i$  в плоскости (111) от направления [110] (рис. 3) и к дополнительному скосу намагниченностей подрешеток мультиферроика. Скос намагниченностей антиферромагнитных подрешеток на угол  $\theta_i$ , отсчитываемый от направлений [112] и [112], происходит в этой же плоскости (рис. 3). Таким образом, в ферромагнетике наводится антиферромагнитный параметр порядка, а в антиферромагнетике — ферромагнитный.

Пусть обменные интегралы  $J_f$ ,  $J_{af}$  и  $J_{f,af}$  описывают обменные взаимодействия соседних спинов ферромагнетика, мультиферроика и спинов разных слоев на границе раздела соответственно. Тип кристаллической решетки и вид среза определяет соотношение числа *a* ближайших к данному спину соседей, расположенных в соседней атомной плоскости, и числа *b* ближайших соседей в своей атомной плоскости для семейства плоскостей, параллельных границе раздела. В случае среза (001) BiFeO<sub>3</sub> a = 1, b = 4.

При заданных *a* и *b* выражение для энергии обменного взаимодействия на границе ферромагнетикмультиферроик имеет вид

$$W_{f,af}^{ex} = -aN|J_{f,af}|S_f S_{af} \sin(\theta_1 + \varphi_1), \qquad (1)$$

где  $S_f$  и  $S_{af}$  — средние значения спинов атомов ферромагнетика и мультиферроика, N — число ато-

мов атомной плоскости,  $\theta_1$  — угол скоса подрешеток в верхней атомной плоскости мультиферроика,  $\varphi_1$  угол отворота спинов на нижней атомной плоскости ферромагнетика. От знака  $J_{f,af}$  зависит только направление скоса: при  $J_{f,af} > 0$  направление вектора намагниченности верхнего слоя мультиферроика совпадает с направлением намагниченности ферромагнетика, а при  $J_{f,af} < 0$  эти вектора являются противоположно направленными.

Энергии обменного взаимодействия в слоях ферромагнетика и мультиферроика равны соответственно

$$W_{f}^{ex} = -\frac{NJ_{f}S_{f}^{2}}{2} \left\{ a \cos(\varphi_{1} - \varphi_{2}) + b \cos 2\varphi_{1} + \sum_{j \ge 2}^{\infty} [a \cos(\varphi_{j} - \varphi_{j-1}) + a \cos(\varphi_{j} - \varphi_{j+1}) + b \cos 2\varphi_{j}] \right\},$$
(2)

$$W_{af}^{ex} = -\frac{N|J_{af}|S_{af}^{2}}{2} \left\{ a \cos(\theta_{1} + \theta_{2}) + b \cos 2\theta_{1} + \sum_{i\geq 2}^{\infty} [a \cos(\theta_{i} + \theta_{i-1}) + a \cos(\theta_{i} + \theta_{i+1}) + b \cos 2\theta_{i}] \right\}.$$
(3)

Энергии анизотропии в плоскости (111) для ферромагнетика и мультиферроика имеют вид

$$W_f^{an} = -KN \sum_{j=1}^{\infty} \cos 6\varphi_j, \qquad (4)$$

$$W_{af}^{an} = -AN \sum_{i=1}^{\infty} \cos 6\theta_i, \qquad (5)$$

где K, A > 0 — константы анизотропии для ферромагнетика и мультиферроика соответственно.

Энергия антисимметричного обмена Дзялошинского-Мориа [20,21] в мультиферроике представляется в виде

$$W_{af}^{DM} = -\frac{NDS_{af}^2}{2} \left\{ a \sin(\theta_1 + \theta_2) + b \sin 2\theta_1 + \sum_{i \ge 2}^{\infty} [a \sin(\theta_i + \theta_{i-1}) + a \sin(\theta_i + \theta_{i+1}) + b \sin 2\theta_i] \right\},$$
(6)

где *D* — модуль вектора Дзялошинского.

# 3. Результаты расчетов

В работе [19] найдено объемное значение угла скоса подрешеток

$$\theta_0 = \frac{DS_{af}^2(b+2a)}{2(b+2a)|J_{af}|S_{af}^2+36A}.$$
(7)

Введем отклонение угла скоса намагниченностей подрешеток от объемного значения

$$\theta_i = \theta_0 + \chi_i \tag{8}$$

и в дальнейшем будем обозначать индексом ноль объемные значения энергий, без учета поверхностных искажений.

Избыточная энергия мультиферроика, связанная с разворотом спинов, равна

$$\Delta W_{af} = W_{af}^{ex} - W_{af,0}^{ex} + W_{af}^{an} - W_{af,0}^{an} + W_{af}^{DM} - W_{af,0}^{DM}.$$
 (9)

Минимизируя выражение (9) по  $\chi_i$  при  $i \ge 2$ , получим для малых ( $\chi_i \ll 1$ ) углов скоса следующее рекуррентное соотношение:

$$2\chi_i \left( 18 \frac{A}{|J_{af}|S_{af}^2} + a + b \right) + a\chi_{i-1} + a\chi_{i+1} = 0.$$
 (10)

Решение уравнения (10) будем искать в виде геометрической прогрессии

$$\chi_i = -\varkappa_{af} \chi_{i-1}. \tag{11}$$

Подстановка решения (11) в (10) приводит к квадратному уравнению, решением которого является

$$\varkappa_{af} = \frac{b}{a} + 1 + \frac{18A}{a|J_{af}|S_{af}^2} - \sqrt{\left(\frac{b}{a} + 1 + \frac{18A}{a|J_{af}|S_{af}^2}\right)^2 - 1}.$$
 (12)

Знаменатель прогрессии совпадает с полученным в предыдущей работе [19].

Избыточная энергия ферромагнетика, связанная с разворотом спинов, имеет вид

$$\Delta W_f = W_f^{ex} - W_{f,0}^{ex} + W_f^{an} - W_{f,0}^{an}.$$
 (13)

Минимизируя (13) по  $\varphi_j$  при  $j \ge 2$ , в случае  $\varphi_j \ll 1$  имеем следующее рекуррентное соотношение:

$$2\varphi_j \left(18 \frac{K}{J_j S_j^2} + a + b\right) - a\varphi_{j+1} - a\varphi_{j-1} = 0.$$
 (14)

Полагая

$$\varphi_j = \varkappa_f \varphi_{j-1}, \tag{15}$$

находим

$$\varkappa_f = \frac{b}{a} + 1 + \frac{18K}{aJ_f S_f^2} - \sqrt{\left(\frac{b}{a} + 1 + \frac{18K}{aJ_f S_f^2}\right)^2 - 1}.$$
(16)

При K = A = 0 имеем

$$\varkappa_f = \varkappa_{af} = \frac{b}{a} + 1 - \sqrt{\frac{b}{a} \left(\frac{b}{a} + 2\right)},\tag{17}$$

что совпадает с результатом, полученным в работе [17].

Минимизируя полную энергию взаимодействия слоев W

$$W = \Delta W_f + \Delta W_{af} + W_{f,af}^{ex} \tag{18}$$

по  $\chi_1$  и  $\varphi_1$  и подставляя значения (12) и (16), находим соответствующие значения углов

$$\chi_{1} = \frac{a}{\gamma_{af}} \left[ \frac{|J_{f,af}|S_{f}}{|J_{af}|S_{af}} - \frac{18AD}{|J_{af}|[18A + (b + 2A)|J_{af}|S_{af}^{2}]} \right],$$
(19)
$$\varphi_{1} = \frac{a}{\gamma_{f}} \frac{|J_{f,af}|S_{af}}{J_{f}S_{f}},$$
(20)

где

$$y_{af} = b + \frac{18A}{|J_{af}|S_{af}^2} + \sqrt{\left(b + a + \frac{18A}{|J_{af}|S_{af}^2}\right)^2 - a^2},$$
(21)

$$\gamma_f = b + \frac{18K}{J_f S_f^2} + \sqrt{\left(b + a + \frac{18K}{J_f S_f^2}\right) - a^2}.$$
 (22)

В приближении малых углов разворота избыточные энергии ферро- и антиферромагнетика, связанные с разворотом их спинов преобразуются к виду

$$\Delta W_{f} = NJ_{f}S_{f}^{2}\varphi_{1}^{2}\frac{2b + a(1 - \varkappa_{f})^{2}}{2(1 - \varkappa_{f}^{2})} + 18KN\varphi_{1}^{2}\frac{1}{1 - \varkappa_{f}^{2}},$$
(23)
$$\Delta W_{af} = N|J_{af}|S_{af}^{2}\chi_{1}$$

$$\times \left\{\frac{2(a + b - a\varkappa_{af})\theta_{0}}{1 + \varkappa_{af}} + \frac{[2b + a(1 - \varkappa_{af})^{2}]\chi_{1}}{2(1 - \varkappa_{af}^{2})}\right\}$$

$$+ 18AN\chi_{1}\left\{\frac{2\theta_{0}(1 - \varkappa_{af}) + \chi_{1}}{1 - \varkappa_{af}^{2}}\right\}$$

$$- NDS_{af}^{2}\chi_{1}\left\{\frac{(1 - \varkappa_{af})a + b}{1 + \varkappa_{af}}\right\}.$$
(24)

Тогда энергия взаимодействия слоев W с учетом соотношений (12), (16), (19)–(22) в случае  $K \ll J_f$ ;  $A, D \ll |J_{af}|$  равна

$$W = -\frac{a^2 N |J_{f,af}|^2 S_{af}^2 S_f^2}{2(b + \sqrt{b(b+2a)})} \left\{ \frac{1}{J_f S_f^2} + \frac{1}{|J_{af}| S_{af}^2} - \frac{a}{b(b+2a-2\sqrt{b(b+2a)})} \left( \frac{18K}{J_f^2 S_f^4} + \frac{18A}{|J_{af}|^2 S_{af}^4} \right) + \frac{2\theta_0 \left( b + \sqrt{b(b+2a)} \right)}{a |J_{f,af}| S_f S_{af}} \right\}.$$
(25)

При  $K, A, \theta_0$  равных нулю полученный результат совпадает с выражением для энергии взаимодействия слоев в системе ферромагнетик-антиферромагнетик [17].

В случае преобладания обменной энергии над остальными вкладами можно ограничиться первыми двумя слагаемыми в фигурных скобках в правой части выражения (25). Легко видеть, что энергия взаимодействия слоев определяется наиболее мягкой подсистемой: больший вклад дает слой, в котором обменная жесткость ниже, а наведенный параметр порядка больше.

Приближение малых углов соответствует случаю  $|J_{f,af}| \ll |J_{af}|, J_f$ . Из формул (19), (20) следует, что при сравнимых значениях обменных интегралов углы  $\chi_1$  и  $\varphi_1$  не малы. Взаимодействие намагниченности ферромагнетика со слабым ферромагнитным моментом BiFeO<sub>3</sub> описывается последним, линейным по  $|J_{f,af}|$  слагаемым в правой части выражения (25). Легко видеть, что наличие слабого ферромагнетизма сказывается несущественно на величине W, а малая величина слабого ферромагнитного момента не препятствует сильному взаимодействию слоев.

Сравним энергию взаимодействия слоев с потенциальным барьером, создаваемым энергией анизотропии ферромагнетика для разворота его намагниченности в плоскости (001) на угол 90°. Энергия анизотропии имеет вид

$$W_f^{an} = -CNn\cos 4\psi, \tag{26}$$

где C > 0 — константа анизотропии, n — число плоскостей в слое ферромагнетика, а  $\psi$  — угол между намагниченностью и легкой осью.

Оси трудного намагничивания ориентированы вдоль направлений типа [100]. Величина потенциального барьера, создаваемого энергией анизотропии, равна

$$\Delta W_f^{an} = 2nCN. \tag{27}$$

Отсюда следует условие переключения магнитного момента ферромагнитного слоя в плоскости (001) электрическим полем, приложенным к слою мультиферроика

$$\frac{a^2 |J_{f,af}|^2 S_{af}^2 S_f^2}{2(b + \sqrt{b(b+2a)})} \left\{ \frac{1}{J_f S_f^2} + \frac{1}{|J_{af}| S_{af}^2} \right\} > 2nC.$$
(28)

#### 4. Выводы

— Перемагничивание слоя ферромагнетика в системе ферромагнетик-мультиферроик полностью определяется обменным взаимодействием. Электрическое поле приводит к развороту вектора поляризации и связанного с ним вектора антиферромагнетизма в слое мультиферроика, что, в свою очередь, приводит к развороту намагниченности ферромагнитного слоя на 90° за счет обменного взаимодействия на границе раздела ферромагнетикмультиферроик.

 Основной вклад в энергию взаимодействия слоев связан с наведенным параметром порядка в слое с меньшей энергией обменного взаимодействия.

— Значения углов разворота спинов на компенсированной границе раздела ферромагнетик-мультиферроик при сравнимых значениях обменных интегралов межслоевого и внутрислоевого взаимодействий не малы, как считалось ранее, а составляют величину порядка  $\pi/2$ .

 Искажения параметров порядка слоев вблизи границы раздела убывают на атомных масштабах. Закон их убывания в глубь слоев определяется видом среза и типом кристаллической решетки.

— Наличие слабого ферромагнетизма и линейного магнитоэлектрического эффекта не является необходимым для реализации магниторезистивной памяти на основе нанослоев мультиферроика, переключаемой электрическим полем. Ключевым моментом является то, что переориентация вектора поляризации, вызванная электрическим полем, влечет за собой переориентацию вектора антиферромагнетизма.

# Список литературы

- [1] C.A. Vaz. J. Phys.: Cond. Matter 24, 333 201 (2012).
- [2] G. Catalan, J.F. Scott. Adv. Matter 21, 2463 (2009).
- [3] G. Lawes, G. Srinivasan. J. Phys. D 44, 243 001 (2011).
- [4] Q. He, Y.-H. Chu, J.T. Heron, S.Y. Yang, W.I. Liang, H.J. Lin, P. Yu, C. W. Liang, R.J. Zeches, W.C. Kuo, J.Y. Juang, C.T. Chen, E. Arenholz, A. Scholl, R. Ramesh. Nature Commun. 2, 225 (2011).
- [5] I. Sosnowska, T.P. Neumaier, E. Steichele. J. Phys. C 15, 4835 (1982).
- [6] F. Bai, J. Wang, M. Wutting, J.F. Li, N. Wang, A.P. Pyatakov, A.K. Zvezdin, L.E. Cross, D. Viehland. Appl. Phys. Lett. 86, 032 511 (2005).
- [7] В.С. Покатилов, А.С. Сигов, В.В. Покатилов, А.О. Коновалова. Изв. РАН. Сер. физ. 74, 1166 (2010).
- [8] P. Uniyal, K.L. Yadav. J. Phys.: Cond. Matter 21, 012 205 (2009).
- [9] J.A.M. Cagigas, D.S. Candela, E. Bagio-Saitovitch. J. Phys.: Conf. Ser. 200, 012 134 (2010).
- [10] В.С. Покатилов, В.В. Покатилов, А.С. Сигов. ФТТ 51, 518 (2009).
- [11] C. Dearer, N.A. Spaldin. Phys. Rev. B 71, 060 401 (R) (2005).
- [12] 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, 134 406 (2010).
- [13] А.И. Морозов, А.С. Сигов. Нано- и микросистемная техника **10**, 10 (2012).
- [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] N.C. Koon. Phys. Rev. Lett. 78, 4865 (1997).
- [16] А.И. Морозов, А.С. Сигов. ФТТ 54, 209 (2012).
- [17] А.И. Морозов. ФТТ 45, 1847 (2003).
- [18] 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**, 207 206 (2011).
- [19] Д.Л. Винокуров, А.И. Морозов. ФТТ 55, 907 (2013).
- [20] И.Е. Дзялошинский. ЖЭТФ 32, 1547 (1957).
- [21] T. Moriya. Phys. Rev. 120, 91 (1960).