Физика твердого тела, 2012, том 54, вып. 5

Доменная структура в сегнетоферромагнитных пленках

© С.А. Аль Рифаи[1], Б.М. Даринский[1], А.П. Лазарев[2], А.С. Сигов[3]

[1] Воронежский государственный университет,
Воронеж, Россия
[2] ООО „Росбиоквант“,
Воронеж, Россия
[3] Московский государственный технический университет радиотехники, электроники и автоматики,
Москва, Россия
E-mail: me144@phys.vsu.ru

Рассмотрены условия фазового перехода в сегнетомагнитную фазу в пленках сегнетоферромагнетиков по механизму потери устойчивости исходного однородного состояния. Определены геометрия доменной структуры и температура перехода в неоднородное состояние. Установлено условие фазового перехода в сегнетомагнитную фазу, определяемое соотношением между температурно-зависимыми коэффициентами разложения термодинамического потенциала в ряд по компонентам векторов поляризации и намагниченности. Исследовано влияние свободных носителей заряда на геометрию доменной структуры и температуру перехода. Обсуждается возможность реализации монодоменного состояния. Определено значение диэлектрической проницаемости полидоменного образца. Указано на возможность использования изучаемого материала для неразрушающей записи и считывания информации.

Работа выполнена при поддержке ФЦП, ГК № 16.513.11.3014 от 8.04.2011 г.

Фазовый переход в сегнетомагнитную фазу сопровождается появлением магнитоэлектрического эффекта, обусловленного существованием в кристаллах сегнетоферромагнетиков спонтанных сегнетоэлектрических и магнитных моментов, наличие которых отличает сегнетомагнетики от обычных магнитоэлектриков [1]. Наличие линейного магнитоэлектрического эффекта описывается инвариантным по обращению времени членом в термодинамическом потенциале, линейным как по электрическому, так и по магнитному полю, который для сегнетоферромагнетиков записывается в виде $\gamma_{ij}P_iM_j$, где γ_{ij} — несимметричный T-нечетный аксиальный тензор магнитоэлектрического взаимодействия, компоненты которого определяются магнитной симметрией кристалла [2], P_i — компонента T-четного вектора поляризации, M_j — компонента T-нечетного аксиального вектора намагниченности.

Рассмотрение фазового перехода удобно провести на примере типичного кристалла сегнетоферромагнетика — Ni–I-борацита ($Ni_3B_7O_{13}I$), который при температуре $T < 65\,K$ принадлежит к магнитному классу $m'm2'$ и является одновременно сегнетоэлектриком и слабым ферромагнетиком, спонтанные поляризации и намагниченность которого направлены по разным осям симметрии [1].

Термодинамический потенциал Φ исходного состояния (парафазы) пленочного образца сегнетоферромагнетика запишем в виде

$$\Phi = \frac{\alpha_{ij}}{2}P_iP_j + \frac{\beta_{ij}}{2}M_iM_j + \gamma_{ij}P_iM_j, \qquad (1)$$

где α_{ij}, β_{ij} — температурно-зависимые тензорные коэффициенты разложения термодинамического потенциала Φ по степеням P_i и M_i соответственно. Из компонент тензоров α_{ij}, β_{ij}, γ_{ij} составляется тензор $\mathbf{A}$, характеристическое уравнение которого $|\tilde{\lambda}\mathbf{I}-\mathbf{A}| = 0$ ($\mathbf{I}$ — единичная матрица) позволяет определить компоненты P_i и M_i, не равные нулю при фазовом переходе, и соответствующую температуру перехода в неоднородное состояние.

Компоненты тензоров α_{ij}, β_{ij}, γ_{ij} для Ni–I-борацита представляются в виде матрицы $\mathbf{A}$ шестого ранга

$$\mathbf{A} = \begin{bmatrix} \alpha_{11} & 0 & 0 & 0 & \gamma_{12} & 0 \\ 0 & \alpha_{22} & 0 & \gamma_{21} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \alpha_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \gamma_{21} & 0 & \beta_{11} & 0 & 0 \\ \gamma_{12} & 0 & 0 & 0 & \beta_{22} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \beta_{33} \end{bmatrix}. \qquad (2)$$

Температуру фазового перехода определяет условие обращения в нуль одного из собственных значений $\tilde{\lambda}$ матрицы $\mathbf{A}$, в качестве которого удобно принять равенство нулю определителя, составленного из вторых производных от термодинамического потенциала по компонентам векторов поляризации и намагниченности,

$$\alpha_{11}\beta_{22} - \gamma_{12}^2 = 0,$$
$$\alpha_{22}\beta_{11} - \gamma_{21}^2 = 0. \qquad (3)$$

В первом случае парафаза будет существовать при условиях $\alpha_{11} > 0$, $\beta_{22} > 0$ и $\alpha_{11}\beta_{22}-\gamma_{12}^2 > 0$. При изменении температуры образца, коэффициенты, входящие в (3), могут меняться по величине и в результате этого выходить на поверхность (3) в трехмерном пространстве коэффициентов α_{11}, β_{22}, γ_{12}. При этом происходит потеря устойчивости симметричной фазы и возникает сегнетомагнитная фаза, в которой соотношение между компонентами поляризации и намагниченности будет определяться местонахождением точки фазового перехода на поверхности (3):

$$P_1 \sim \beta_{22}(T_0), \quad M_2 \sim \gamma_{12}(T_0). \qquad (4)$$

В результате не равными нулю собственными векторами матрицы **A** оказываются два двухкомпонентных вектора (P_1, M_2) и $(P_2, M_1$; 1 и 2 — соответствующие направления в кристалле.

Далее рассматривается фазовый переход с образованием спонтанной поляризации P_1 и намагниченности M_2 в образце, имеющем форму тонкой пластины толщиной $2L$, плоскость которой перпендикулярна оси 1. Аналогично переходам в сегнетоэлектрике в рассматриваемом случае фазовый переход происходит в неоднородное состояние по механизму потери устойчивости. Поэтому для нахождения характеристик неоднородного состояния низкосимметричной фазы достаточно сохранить в термодинамическом потенциале члены разложения не выше второй степени P и M:

$$\Phi = \frac{\alpha_{33}}{2} P_3^2 - \frac{\alpha_{11}}{2} P_1^2 + \frac{\beta_{33}}{2} M_3^2 - \frac{\beta_{22}}{2} M_2^2 + \frac{\kappa_P}{2}\left(\frac{\partial P_1}{\partial x_3}\right)^3 + \frac{\kappa_M}{2}\left(\frac{\partial M_2}{\partial x_3}\right)^3 + \frac{E^2}{8\pi} + \frac{H^2}{8\pi} + \gamma_{12} P_1 M_2. \quad (5)$$

В (5) ось 3 ориентирована вдоль поверхности пленки; $\mathbf{E} = (E_1, E_3)$ — деполяризующее поле, $\mathbf{H} = (H_2, H_3)$ — размагничивающее поле, $\kappa \sim a^2$ (a — параметр решетки) — коэффициент разложения Φ по степеням компонент P_i и M_i. Рассматривается случай выхода на поверхность пластины сегнетомагнетика компоненты вектора поляризации P_1.

Минимизация Φ по компонентам векторов **P**, **M** с последующим добавлением уравнений электро- и магнитостатики

$$\mathbf{E} = -\nabla\varphi_C, \quad \operatorname{div}\mathbf{D} = -\frac{4\pi e^2 n_0}{kT}, \quad (6)$$

$$\mathbf{H} = -\nabla\varphi_M, \quad \operatorname{div}\mathbf{B} = 0 \quad (7)$$

(где φ_C, φ_M — потенциалы деполяризующего и размагничивающего полей, $\mathbf{D} = \mathbf{E} = 4\pi\mathbf{P}$, $\mathbf{B} = \mathbf{H} + 4\pi\mathbf{M}$, e — элементарный заряд, n_0 — концентрация свободных носителей, k — постоянная Больцмана) дает выражение для потенциала φ_C в виде гармонической функции

$$\varphi_c = C\sin\left[\left(\frac{\varepsilon_{33}q^2 + \lambda^{-2}}{\frac{4\pi(\beta_{22}-\kappa_M q^2)}{(\alpha_{11}-\kappa_P q^2)(\beta_{22}-\kappa_M q^2)-\gamma_{12}^2} - 1}\right)^{1/2} x\right], \quad (8)$$

где q — волновое число, определяющее периодичность волны поляризации с намагниченностью в направлении оси 3, C — коэффициент, $\lambda = (kT/4\pi e^2 n_0)^{1/2}$ — длина экранирования, $\varepsilon_{33} = 1 + 4\pi/\alpha_{33}$.

Вне пленки сегнетомагнетика потенциал φ_C определяется уравнением Лапласа $\nabla^2\varphi = 0$, решение которого имеет вид

$$\varphi_1 = C_1 \exp(-qx_1). \quad (9)$$

Связь между температурно-зависимой величиной $y = \alpha_{11}\beta_{22} - \gamma_{12}^2$ и волновым числом q определяется граничными условиями на потенциал φ_C в виде

$$\varphi_c = \varphi_1 \Big|_{x_1=L},$$

$$\frac{\partial\varphi_c}{\partial x_1} - \frac{\partial\varphi_1}{\partial x_1} = 4\pi P_1 \Big|_{x_1=L}. \quad (10)$$

Система уравнений (10) имеет нетривиальное решение в случае равенства нулю определителя, составленного из выражений при коэффициентах C и C_1. В результате искомая связь между y и q имеет вид:

$$y = \frac{\gamma_{12}^2\kappa_M + \beta_{22}^2\kappa_P}{\beta_{22} - \kappa_M q^2} + \frac{\pi^3\beta_{22}}{(\varepsilon_{33}q^2 + \lambda^{-2})L^2 + \frac{\pi^2}{4}}. \quad (11)$$

Условие $\frac{\partial y}{\partial q} = 0$ дает значение $q_{\min}$, отвечающее $y_{\min}$,

$$q^2 = \frac{\pi^3\beta_{22}^2}{\left(\varepsilon_{33}(\gamma_{12}^2\kappa_M + \beta_{22}^2\kappa_P)\right)^{1/2} L} - \frac{1}{\varepsilon_{33}^2\lambda^2}. \quad (12)$$

В отсутствие магнитоэлектрического эффекта ($\gamma = 0$) получается выражение для q, совпадающее с аналогичным выражением для сегнетоэлектрика со свободными зарядами [3].

В отсутствие экранирования ($\lambda \to \infty$ при $\eta_0 = 0$) выражение (12) переходит в выражение для q в сегнетомагнетике без свободных зарядов при $\operatorname{div}\mathbf{D} = 0$. При наличии свободных зарядов период d доменной структуры растет при уменьшении q ($d = \pi/q$) вследствие уменьшения величины λ с ростом n_0 и при значении

$$\lambda^2 = \frac{(\gamma_{12}^2\kappa_M + \beta_{22}^2\kappa_P)^{1/2} L}{(\pi^3\varepsilon_{33})^{1/2}\beta_{22}}, \quad (13)$$

отвечающем концентрации η_0 свободных зарядов

$$n_0 = \frac{(\pi\varepsilon_{33})^{1/2}\beta_{22}kT}{4e^2L(\gamma_{12}^2\kappa_M + \beta_{22}^2\kappa_P)^{1/2}}, \quad (14)$$

обращается в бесконечность, что соответствует переходу в монодоменное состояние ($q = 0$).

При обычных значениях ε_{33}, κ, β_{22}, e, γ, $T \sim 300$ K, $L \sim 10^{-5}$–10^{-7} cm концентрация n_0 свободных носителей, обеспечивающая монодоменное состояние, составляет величину $\sim 10^{16}$–10^{18} cm^3. Соответствующая характеристика переохлаждения образца

$$y = \left(\frac{\pi}{\varepsilon_{33}}\right)^{1/2} \frac{(\gamma_{12}^2\kappa_M + \beta_{22}^2\kappa_P)^{1/2}}{L}. \quad (15)$$

Выражения (13)–(15) в отсутствие магнитоэлектрического эффекта ($\gamma_{12} = 0$) совпадают с аналогичными выражениями для сегнетоэлектрической пластины.

Пусть теперь на поверхность сегнетомагнитной пленки выходит компонента вектора M_2 (ось 2 ориентирована перпендикулярно поверхности пленки, ось 3 направлена параллельно поверхности пленки, компонента P_1 направлена перпендикулярно плоскости, содержащей оси 2 и 3).

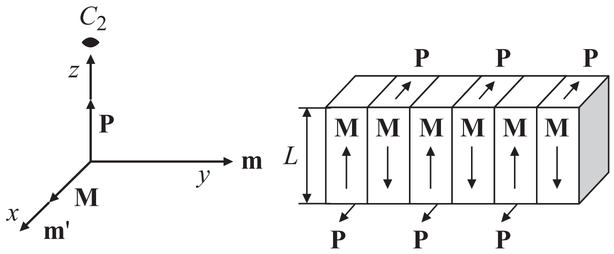

Рис. 1. Ориентация осей координат, элементов симметрии, компонент векторов **P** и **M** в пленке сегнетомагнетика Ni–I-борацит.

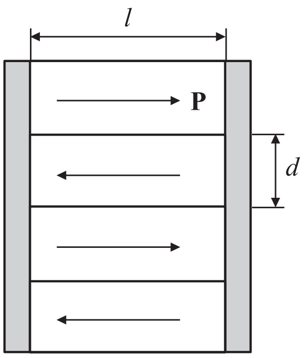

Рис. 2. Ориентация электродов сегнетомагнитной пленки.

Аналогичные вычисления по изложенной выше схеме дают следующую зависимость $y(q)$:

$$y = \frac{\gamma_{12}^2\kappa_P + \alpha_{11}^2\kappa_M}{\alpha_{11} - \kappa_M q^2} + \frac{\pi^3\alpha_{11}}{\mu_{33}(qL)^2 + \frac{\pi^2}{4}}, \tag{16}$$

где $\mu_{33} = 1 + 4\pi/\beta_{33}$.

В выражение (16) не входит величина λ, что означает независимость волнового вектора q, *а* следовательно, и периода d доменной структуры сегнетомагнетика от концентрации свободных носителей заряда n_0 при выходе на поверхность образца компоненты M_2. Выражение для q при этом есть

$$q^2 = \frac{\pi^3\alpha_{11}}{\left(\mu_{33}(\gamma_{12}^2\kappa_P + \alpha_{11}^2\kappa_M)\right)^{1/2}L}. \tag{17}$$

Соответствующий сдвиг T_C определяется выражением

$$y = \frac{2\pi^{3/2}(\gamma_{12}^2\kappa_P + \alpha_{11}^2\kappa_M)^{1/2}}{\mu_{33}^{1/2}L}. \tag{18}$$

Как следует из выражений (11), (17), переход в однородное состояние с $q = 0$ в отсутствие магнитоэлектрического взаимодействия ($\gamma = 0$) в пленочном образце происходит при значении $\alpha = -4\pi$, соответствующем обычному случаю однородной поляризованности внутри бесконечной диэлектрической пластины. Рассмотрение случая, когда при фазовом переходе ненулевыми остаются компоненты P_2 и M_1, проводится аналогично.

Проведем оценку диэлектрической проницаемости в пленке сегнетомагнетика с установившейся доменной структурой ($T \ll T_C$).

Большое значение диэлектрической проницаемости будет достигаться при ориентации монокристаллической пластины, представленной на рис. 1. Электроды в этой пластине вытянуты вдоль оси y (рис. 2). При этом выполняется условие $d \ll L \ll l$. Тогда электрическое поле будет направлено вдоль вектора спонтанной поляризации.

Под действием этого поля возникает давление на доменную границу $p = 2(\mathbf{EP}_0)$, приводящее к ее смещению на расстояние $Kx = p = 2EP_0$ (K — жесткость доменной границы).

Диэлектрическая поляризация δP пленки находится по формуле

$$\delta P = \frac{2EP_0}{K}\,2P_0\,\frac{x}{d} = \frac{4P_0^2}{Kd}E. \tag{19}$$

Отсюда

$$\varepsilon = 1 + \frac{16\pi P_0^2}{Kd}. \tag{20}$$

Поскольку $d \ll l$, электрическое поле деполяризации будет локализовано вблизи электродов, и его влиянием на податливость доменной границы можно пренебречь.

Ведущим фактором в создании возвращающих сил является магнитное поле, возникающее при смещении границ. Плотность его энергии $U = H^2/8\pi$, $H = -4\pi\delta M_0/(1 + 4\pi\chi)$, где χ — восприимчивость, $\delta M_0 = M_0 x/d$ — изменение намагниченности пленки из-за смещения доменных границ.

С учетом этого получаем окончательное выражение для ε

$$\varepsilon = 1 + \frac{4\pi P_0^2}{M_0^2}(1 + 4\pi\chi)^2. \tag{21}$$

В заключение отметим, что сегнетоферромагнитные материалы могут быть использованы в качестве компонентов в запоминающих устройствах, функционирующих на основе новых физических эффектов. Например, в качестве управляющего сигнала может быть использовано электрическое поле, превосходящее коэрцитивное, а для регистрации поляризации элемента памяти — магнитооптический эффект, возникающий при отражении поляризованного света. Поскольку при считывании состояния поляризации не происходит его изменения, процесс проходит безынерционно и не требует переполяризации. Это является важным преимуществом данного способа считывания.

Список литературы

[1] Физика сегнетоэлектрических явлений / Под ред. Г.А. Смоленского. Наука, Л. (1985). 395 с.
[2] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Электродинамика сплошных сред. ФИЗМАТЛИТ, М. (2003). 651 с.
[3] Б.М. Даринский, А.П. Лазарев, А.С. Сидоркин. Кристаллография. **36**, 757 (1991).