

УДК 537.622.4

## СПИНОВЫЕ ЦИКЛОИДЫ И КОНУСНЫЕ МОДУЛИРОВАННЫЕ СТРУКТУРЫ В (110)-ЭПИТАКСИАЛЬНЫХ ПЛЕНКАХ ФЕРРИТА ВИСМУТА

© 2019 г. И. Р. Каюмов<sup>1</sup>, К. А. Звездин<sup>2</sup>, З. В. Гареева<sup>1,3,\*</sup>, А. П. Пятаков<sup>4</sup>, А. К. Звездин<sup>2,5</sup>

<sup>1</sup>Институт физики молекул и кристаллов – обособленное структурное подразделение  
Федерального государственного бюджетного научного учреждения Уфимского федерального  
исследовательского центра Российской академии наук, Уфа, Россия

<sup>2</sup>Федеральное государственное бюджетное учреждение науки Институт общей физики имени А.М. Прохорова  
Российской академии наук, Москва, Россия

<sup>3</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования  
“Башкирский государственный университет”, Уфа, Россия

<sup>4</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования  
“Московский государственный университет имени М.В. Ломоносова”, Москва, Россия

<sup>5</sup>Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования  
“Национальный исследовательский университет “Высшая школа экономики”, Москва, Россия

\*E-mail: gzv@anrb.ru

Поступила в редакцию 07.09.2018 г.

После доработки 31.01.2019 г.

Принята к публикации 27.06.2019 г.

В работе исследованы пространственно модулированные спиновые структуры (ПМСС) в (110)-ориентированных пленках  $\text{BiFeO}_3$ . Показано, что в результате действия напряжений в эпитаксиальных пленках  $\text{BiFeO}_3$  выделяются ПМСС с определенным направлением спиновой модуляции; продемонстрирована возможность реализации модулированных фаз циклоидного и конусного вида. Рассчитаны условия переходов между модулированными состояниями, индуцированные изменением эффективной магнитной анизотропии, зависящей от механических напряжений.

DOI: 10.1134/S0367676519100168

### ВВЕДЕНИЕ

Магнитоэлектрические материалы привлекают активное внимание исследователей, что связано с широкими перспективами их применения в энергосберегающих технологиях, основанных на использовании высокотехнологичных спинтронных устройств, СВЧ-технике, устройствах записи и хранения информации, технологиях MRAM. Исследование магнитоэлектриков и мультиферроиков имеет большое фундаментальное значение, поскольку наличие нескольких взаимодействующих параметров порядка приводит к новым физическим эффектам, а также модификации магнитных свойств мультиферроиков по сравнению с классическими магнетиками.

В связи с активным развитием стрейнтроники – нового направления микроэлектроники, связанного с исследованием физических эффектов, обусловленных механическими деформациями, в частности в магнетиках, интерес к исследованию тонкопленочных структур непрерывно

растет. Проявление физических свойств в пленках мультиферроиков имеет особенности по сравнению с объемными кристаллами. Целью данной работы является исследование особенностей пространственно-модулированных структур в эпитаксиальных пленках феррита висмута, а также переходов между модулированными состояниями при изменении магнитной анизотропии, индуцированной механическими напряжениями.

Феррит висмута  $\text{BiFeO}_3$  является слабым ферромагнетиком ромбоэдрической симметрии. Кристаллическая структура  $\text{BiFeO}_3$  характеризуется пространственной группой симметрии  $R3c$ , элементарная ячейка  $\text{BiFeO}_3$  представляет собой удвоенную и деформированную ячейку кристаллов перовскита. Основным магнитным состоянием  $\text{BiFeO}_3$  является пространственно модулированная структура циклоидного типа, которая была обнаружена в ходе нейтронографических исследований в 1982 г. [1]. Теоретическое обоснование существования несоизмерных фаз в

$\text{BiFeO}_3$  на основе учета инварианта Лифшица, разрешенного симметрией  $\text{BiFeO}_3$ , предложено в 1995 г. [2]. Экспериментальные исследования [3–8] показали, что спиновую циклоиду можно трансформировать и разрушать при приложении сильных магнитных полей [3, 4], механических деформаций в пленках [5, 6], изменении температуры и легировании [7, 8]. Возможные переходы между циклоидными фазами и однородными состояниями в кристаллах  $\text{BiFeO}_3$  теоретически исследованы в [9–12].

В данной работе исследованы пространственно-модулированные спиновые структуры (ПМСС) в тонких пленках мультиферроика  $\text{BiFeO}_3$ . В рамках псевдоморфного приближения рассчитаны основные характеристики модулированных фаз в (110)-ориентированных пленках  $\text{BiFeO}_3$ , по которым проводятся активные экспериментальные исследования [13]. Показана возможность реализации ПМСС различной топологии (циклоиды и конусной фазы), исследованы фазовые переходы между ПМСС при изменении эффективной магнитной анизотропии, индуцированной механическими напряжениями в пленках.

## ОСНОВНЫЕ УРАВНЕНИЯ

Для анализа возможных магнитных конфигураций в пленках феррита висмута рассмотрим термодинамический потенциал системы, в котором учтены энергия неоднородного обменного взаимодействия, энергия магнитной анизотропии, энергия неоднородного магнитоэлектрического взаимодействия и энергия Зеемана [12]:

$$E = -\frac{\chi_{\perp}}{2} \left( \vec{H}_{eff}^2 - (\vec{H}_{eff}, \vec{l})^2 \right) + A(\nabla \vec{l})^2 + \gamma \vec{p} \cdot (\nabla, \vec{l}) \vec{l} - \vec{l} \cdot (\nabla, \vec{l}) + K_1 (\vec{n}_u, \vec{l})^2 + K_2 (\vec{n}_z, \vec{l})^2, \quad (1)$$

где  $\chi_{\perp}$  – поперечная магнитная восприимчивость,  $\vec{H}_{eff} = \vec{H} + [\vec{l}, \vec{H}_D]$ ,  $A$  – константа неоднородного обменного взаимодействия,  $K_1, K_2$  – константы орторомбической магнитной анизотропии,  $\vec{n}_u \parallel [110]$ ,  $\vec{n}_z \parallel [1\bar{1}0]$  – единичные вектора, ориентированные вдоль нормали и в плоскости (110) – ориентированной пленки,  $\vec{l}$  – вектор антиферромагнетизма,  $\gamma$  – константа магнитоэлектрического взаимодействия,  $\vec{p}$  – единичный вектор электрической поляризации,  $\vec{H}_D$  – поле Дзялошинского,  $\vec{H}$  – магнитное поле. Отметим, что учет упругих напряжений, возникающих в пленках, дает дополнительный вклад в энергию магнитной анизотропии, что приводит к перенормировке констант  $K_i^{eff} = K_i + K_i^{def}$ ,  $i = 1, 2$ ;  $K_1^{def} = \left( \frac{B_1}{2} - \frac{B_2}{4} \right) u_0$ ,

$K_2^{def} = -\frac{B_2}{2} u_0$  [14], где  $B_1, B_2$  – константы магнито-

упругого взаимодействия,  $u_0 = \frac{a_s - a_{\text{BiFeO}_3}}{a_{\text{BiFeO}_3}}$  параметр

рассогласования,  $a_s, a_{\text{BiFeO}_3}$  – параметры решетки пленки и подложки.

Основные магнитные состояния отвечают минимуму свободной энергии и могут быть определены на основе решения уравнений Эйлера–Лагранжа, минимизирующих (1), которые при условии сохранения модуля вектора  $\vec{l}$  имеют вид уравнений типа Брауна [15]:

$$\left[ \vec{l}, \frac{\delta E}{\delta \vec{l}} \right] = 0. \quad (2)$$

Введем кинетический момент  $\vec{\mu} = \left[ \vec{l}, \frac{\partial \vec{l}}{\partial x} \right]$  [10] и перепишем уравнения (2) в виде системы:

$$\begin{cases} \frac{\partial l_x}{\partial x} = \mu_y l_z - \mu_z l_y, & \frac{\partial \mu_x}{\partial x} = 2\sqrt{\frac{2}{3}} l_z (l_z \mu_y - l_y \mu_z) + l_y h_{anz} - l_z h_{any}, \\ \frac{\partial l_y}{\partial x} = -\mu_x l_z + \mu_z l_x, & \frac{\partial \mu_y}{\partial x} = 2\sqrt{\frac{2}{3}} l_z (l_x \mu_z - l_z \mu_x) + l_z h_{anx} - l_x h_{anz}, \\ \frac{\partial l_z}{\partial x} = \mu_x l_y - \mu_y l_x, & \frac{\partial \mu_z}{\partial x} = 2\sqrt{\frac{2}{3}} l_z (l_y \mu_x - l_x \mu_y) + l_x h_{any} - l_y h_{anx}, \\ \begin{cases} h_{anx} = \frac{\sqrt{2}}{3} \kappa_{d0} (l_y - \sqrt{2} l_x), \\ h_{any} = (\kappa_1 + \kappa_m h_{110}^2) l_y - \frac{\kappa_{d0}}{3} (l_y - \sqrt{2} l_x), \\ h_{anz} = \kappa_2 l_z + \sqrt{\frac{\kappa_{d0} \kappa_m}{3}} h_{110} - \kappa_{d0} l_z, \end{cases} \end{cases} \quad (3)$$

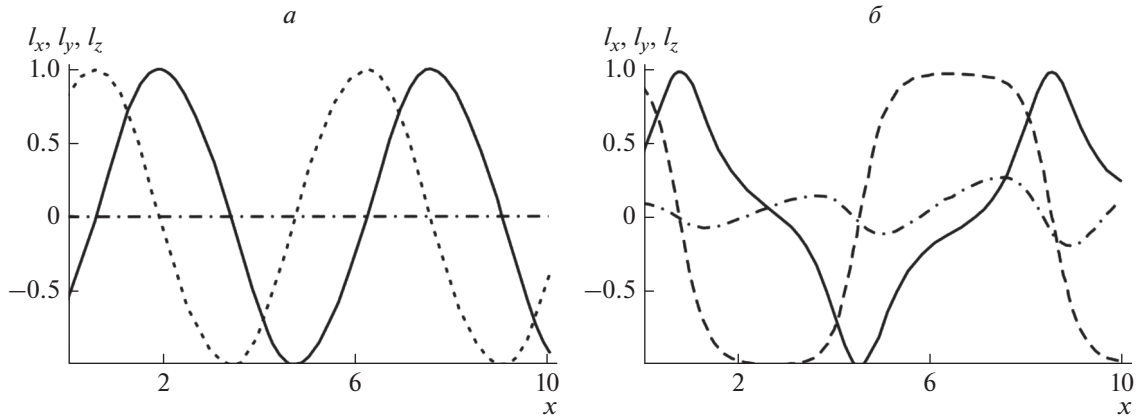


Рис. 1. Зависимость компонент  $\vec{l}(x)$  для циклоидной структуры при  $\kappa_m = 2.28 \cdot 10^{-5}$ ,  $\kappa_{d0} = 0.556$ ,  $h = 0$ . Штриховая линия –  $l_x(x)$ ; сплошная –  $l_y(x)$ ; штрих-пунктирная –  $l_z(x)$ : а) циклоида  $\kappa_1 = 0$ , б) конусная фаза  $\kappa_1 = 3$ .

где введены нормированные константы:  $\kappa_1 = -\frac{4K_1A}{\beta^2}$ ,  $\kappa_2 = -\frac{4K_2A}{\beta^2}$ ,  $\kappa_m = \frac{2A}{\beta^2 P^2} M_0^2$ ,  $\kappa_{d0} = \kappa_m \left( \frac{\chi_{\perp} H_D}{M_0} \right)^2$ ,  $h_{110} = \frac{4M_s A H}{\gamma^2}$ ,  $x = \frac{\beta}{2A} X$ ,  $y = \frac{\beta}{2A} Y$ ,  $z = \frac{\beta}{2A} Z$ ,  $\beta = \gamma P$ , система координат  $OX \parallel [001]$ ,  $OY \parallel [110]$ ,  $OZ \parallel [1\bar{1}0]$ . В феррите висмута  $A = (2-4) \times 10^{-7}$  эрг  $\cdot$  см $^{-1}$ ,  $10^4 < K_1 < 10^6$  эрг  $\cdot$  см $^{-3}$ ,  $M_0 = 5$  эрг  $\cdot$  Гс $^{-1}$   $\cdot$  см $^{-3}$ ,  $\gamma = 0.6$ ;  $H_D = 1.2 \cdot 10^5$  Э,  $\chi_{\perp} = 4 \cdot 10^{-5}$  [3, 12].

Устойчивые магнитные конфигурации определим на основе численного решения системы уравнений (3). Отметим, что в тонких пленках (толщиной  $D \ll \lambda \sim 62$  нм) мы пренебрегаем вариацией вектора  $\vec{l}$  в направлении нормали к пленке  $\partial \vec{l} / \partial y = 0$ , в этом случае в (110)-ориентированных пленках  $\text{BiFeO}_3$  реализуются ПМСС с вектором модуляции  $\vec{q} \parallel [001]$ .

Проведенные численные расчеты показывают возможность существования в (110)-пленках  $\text{BiFeO}_3$  двух топологически различных ПМСС: циклоиды с плоскостью разворота спинов ( $1\bar{1}0$ ) (рис. 1а) и конической фазы (рис. 1б). Решение вида плоской циклоиды (рис. 1а) реализуется в (110)-пленках  $\text{BiFeO}_3$  при отсутствии магнитного поля в диапазоне изменения параметра  $\kappa_1$ :  $-2.05 < \kappa_1 < 1$ . В области значений  $1 < \kappa_1 < 4.2$  при  $\vec{H} = 0$  реализуется решение, описывающее коническую фазу (рис. 1б); отметим, что в пленках рассмотренной кристаллографической ориентации коническая фаза также реализует основное магнитное состояние при включении магнитного поля. При

$\vec{H} = 0$  в области значений  $\kappa_1 > 4.2$  устойчивым состоянием является однородная угловая фаза.

Таким образом, в области положительных значений параметра  $\kappa_1$ , соответствующих деформациям растяжения, плоская циклоида существует вплоть до критического предела  $\kappa_{c2} \sim 1$ , при котором происходит фазовый переход в модулированную фазу конического типа. В отсутствие магнитного поля при увеличении параметра  $\kappa > \kappa_{c2}$ , а также при включении магнитного поля спины выходят из плоскости циклоиды, она трансформируется в коническую ПМСС. В области отрицательных значений  $\kappa_1$ , соответствующих деформациям сжатия, при увеличении  $|\kappa_1|$  и приближении к критическому значению  $\kappa_1$  период циклоиды неограниченно возрастает, что указывает на фазовый переход в новое магнитное состояние. В этом случае возникают домены новой однородной фазы с  $\vec{\phi} = \frac{\pi}{2} + \phi + \gamma \rightarrow \frac{\pi}{n}$ , границы между ними сужаются, модулированная структура плавно исчезает, и при достижении критического значения  $\kappa_{c2} \sim -2.05$  происходит фазовый переход в одномерно-намагниченное состояние – угловую фазу.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В мультиферроике феррите висмута пространственно модулированные структуры стабилизируются неоднородным магнитоэлектрическим взаимодействием и в отсутствии внешних воздействий являются основным магнитным состоянием. Действие магнитного поля, напряжения, возникающие в процессе эпитаксиального роста пленок, воздействуют на магнитную подсистему и приводят к трансформациям модулированных фаз.

В работе исследованы ПМСС в пленках  $\text{BiFeO}_3$ . Показано, что в тонких (110)-пленках  $\text{BiFeO}_3$  выделяются циклоиды с направлением спиновой модуляции  $\vec{q} \parallel [001]$ . В отсутствие магнитного поля в (110) пленках реализуются ПМСС циклоидного и конического типа, причем плоскость разворота спинов ( $1\bar{1}0$ ) в циклоиде не содержит вектор электрической поляризации, что является одним из характерных отличий циклоид в пленках от объемных циклоид.

При изменении магнитной анизотропии и включении магнитного поля происходит трансформация ПМСС. Действие магнитного поля приводит к выходу спинов из плоскости разворота циклоиды, циклоида трансформируется в коническую фазу. Переход в коническую фазу может быть также реализован и в отсутствие магнитного поля при изменении магнитной анизотропии. В определенном диапазоне изменения внешних параметров имеет место фазовый переход в состояние однородной намагниченности. В работе рассчитаны параметры перехода между ПМСС разной топологии и условия перехода в однородное магнитное состояние.

Работа поддержана РФФИ (проекты №№ 16-29-14037-офи\_м, 18-52-80028-БРИКС\_т).

#### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Sosnowska I., Neumaier T.P., Steichele E.* // J. Phys. C. 1982. V. 15. № 23. P. 4835.
2. *Sosnowska I., Zvezdin A.K.* // J. Magn. Magn. Mater. 1995. № 140. P. 167.
3. *Popov Y.F., Zvezdin A.K., Vorob'ev G.P. et al.* // JETP Lett. 1993. V. 57. P. 69.
4. *Tokunaga M.* // Front. Physics. 2012. № 7. P. 386.
5. *Sando D., Agbelele A., Rahmedov D. et al.* // Nat. Mater. 2013. V. 12. № 7. P. 641.
6. *Agbelele A., Sando D., Toulouse C. et al.* // Adv. Mater. 2017. V. 29. № 9.
7. *Zalesskii A.V., Zvezdin A.K., Frolov A.A. et al.* // JETP. 2000. V. 71. № 11. P. 465.
8. *Mao W., Chen W., Wang X. et al.* // Ceram. Int. 2016. V. 42. № 11. Art. № 12838.
9. *Tehranchi M-M., Kubrakov N.F., Zvezdin A.K.* // Ferroelectrics. 1997. V. 204. № 1. P. 181.
10. *Kulagin N.E., Popkov A.F., Zvezdin A.K.* // Phys. Sol. St. 2011. V. 53. № 5. P. 970.
11. *Popkov A.F., Solov'ev S.V., Kulagin N.E. et al.* // Semicond. 2012. V. 46. № 13. P. 1568.
12. *Gareeva Z.V., Popkov A.F., Soloviov S.V. et al.* // Phys. Rev. B. 2013. V. 87. № 21. Art. № 214413.
13. *Sharma Y., Agarwal R., Phatak C. et al.* // Sci. Rep. 2017. V. 8. P. 4857.
14. *Liang J.T., Song J.M., Dai X.H. et al.* // Mater. Lett. 2018. V. 229. P. 312.
15. *Meng C.M., Tian B., Wang H. et al.* // Ceram. Int. 2018. V. 44. № 8. P. 9053.
16. *Gareeva Z.V., Zvezdin K.A., Kayumov I.R. et al.* // J. Supercond. Novel Magn. 2018. V. 31. № 12. P. 1.
17. *Звездин А.К., Мухин А.А.* // Кр. сообщ. по физ. ФИАН. 1981. № 12. С. 10.