

顺磁性 $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ 层对 $\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_3$ 薄膜多铁性能的影响

刘恩华 陈钊 温晓莉 陈长乐

Influence of paramagnetic $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ layer on the multiferroic property of $\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_3$ film

Liu En-Hua Chen Zhao Wen Xiao-Li Chen Chang-Le

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 65, 117701 (2016) DOI: 10.7498/aps.65.117701

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.117701>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2016/V65/I11>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

紫外光辐照对 TiO_2 纳米线电输运性能的影响及磁阻效应研究

Electronic transportation properties and magnetoresistance effects on single TiO_2 nanowire under ultra-violet irradiation

物理学报.2016, 65(9): 097301 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.097301>

$\text{Co}/\text{Co}_3\text{O}_4/\text{PZT}$ 多铁复合薄膜的交换偏置效应及其磁电耦合特性

Exchange bias effect and magnetoelectric coupling behaviors in multiferroic $\text{Co}/\text{Co}_3\text{O}_4/\text{PZT}$ composite thin films

物理学报.2015, 64(9): 097701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.097701>

YMnO_3 薄膜的铁电行为及其纳米尺度铁电畴的研究

Study on ferroelectric behaviors and ferroelectric nanodomains of YMnO_3 thin film

物理学报.2014, 63(18): 187701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.187701>

铁磁非铁磁夹层中电子自旋波的传输及应用

Transmission and application of electron spin wave function in alternating ferromagnetic and nonmagnetic layers

物理学报.2013, 62(22): 227701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.227701>

顺磁性 $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ 层对 $\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_3$ 薄膜多铁性能的影响*

刘恩华¹⁾ 陈钊^{1)†} 温晓莉²⁾ 陈长乐¹⁾

1)(西北工业大学理学院应用物理系, 教育部空间应用物理与化学重点实验室, 西安 710072)

2)(西北工业大学材料学院, 凝固技术国家重点实验室, 西安 710072)

(2016年1月20日收到; 2016年3月18日收到修改稿)

界面效应在提升异质结构材料的多铁性能方面有着重要的作用. 本文采用脉冲激光沉积技术在 SrTiO_3 (STO) 基片上制备了 $\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_3$ (BBFO)/ $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ (LSMO) 异质结. X-射线衍射图谱表明异质结呈现单相外延生长, 利用高分辨透射电镜进一步证实了 BBFO 为四方相结构. X-射线光电子能谱证实异质结中只存在 Fe^{3+} 离子, 没有产生价态的变化, 揭示了异质结铁电和铁磁性的增强与 BBFO/LSMO 的界面有关. 同时, 测试了磁电阻 (MR) 和磁介电 (MD), 当磁场强度为 0.8 T, 温度为 70 K 时, MR 约为 -42.2% , MD 约为 21.2% . 并且发现在 180 K 时出现磁相的转变. 实验结果揭示出异质界面效应在提升材料的多铁性和磁电耦合效应方面具有超常的优点, 是加快多铁材料实际应用的有效途径.

关键词: 多铁性, 磁电阻, 磁介电, 界面效应

PACS: 77.55.Nv, 73.43.Qt, 77.84.-s, 75.70.Cn

DOI: 10.7498/aps.65.117701

1 引言

钙钛矿金属氧化物 ABO_3 , 如锰酸盐 LaMnO_3 、铁酸盐 BiFeO_3 等都是电荷、自旋、轨道和晶格自由度强烈耦合的关联体系, 这些自由度及它们之间的强烈相互作用产生复杂的结构和电子相, 并使材料呈现出很多奇特的物理现象, 使得钙钛矿金属氧化物在自旋电子器件、磁电传感器、转换器、制动器以及高密度铁电存储器等方面有重要的应用^[1-3].

BiFeO_3 (BFO) 是目前在室温同时具有铁电性和 G 型反铁磁性的多铁性材料, 铁电性主要来源于 Bi 原子 6s 孤对电子与 O 原子 2p 轨道之间的杂化作用, 其铁电居里温度 (T_C) 大约为 1100 K^[4], 而铁磁性来源于相邻两个氧八面体分别沿顺时针方

向和逆时针方向旋转, 导致各个离子的磁矩相互抵消, 宏观上表现出弱的磁性, 其反铁磁奈耳温度 (T_N) 大约为 640 K^[5], 因此 BFO 具有实际应用的可能. 但是, BFO 应用到实际中还存在一些本质问题, 例如由于 Bi 具有挥发性, 使得很难得到单相的 BFO, 还伴随有大的漏电流及弱的磁性^[6-8]; 另外, 由于铁电铁磁来源于不同的单元, 使其磁电耦合较弱. 目前, 一种有效的方法是用碱性金属原子 (Ca, Sr, Ba) 替换 Bi 原子, Costa 等^[9] 发现一定比例的 Ca 掺杂能够提高 BFO 薄膜的铁电性能, Seidel 等^[10] 得出在高应变的 Ca 掺杂 BFO 薄膜中铁磁性也得到加强. 宋桂林等^[11] 通过 X-射线光电子能谱 (XPS) 证实 Ca^{2+} 掺杂增加了 Fe^{2+} 的含量, 使得 BFO 铁磁性增强. 离子掺杂虽然在一

* 国家自然科学基金 (批准号: 61078057, 61471301)、陕西省自然科学基金 (批准号: 2015JM5259, 2011GM6013)、西北工业大学基础科研基金 (批准号: JC20110270, 3102014JCQ01029)、兰州大学磁学与磁性材料教育部重点实验室开放课题 (批准号: LZUMMM2013001, LZUMMM2014007)、国家留学基金委 (批准号: 201303070058) 和高等学校博士学科点专项科研基金 (批准号: 20126102110045) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhaoch17@nwpu.edu.cn; zhaoch17@hotmail.com

一定程度上改变了材料的铁电和磁性能,但其改变程度受到制备条件的严重限制,同时弱的磁电耦合性仍然未能解决.此外通过增加铁磁层制备异质结来改善BFO的磁电耦合性能,Trassin等^[12]研究了BFO/Co_{0.9}Fe_{0.1}界面耦合的本质,由于在Co_{0.9}Fe_{0.1}内层交换耦合的约束,使得BFO薄膜中面内铁电极化和局部磁化共线排列,并且随着BFO膜厚的减小,界面耦合将会消失.Singamaneni等^[13]研究了BFO/La_{2/3}Sr_{1/3}MnO₃(LSMO)的铁电和磁性质,发现其具有良好的非易失的铁电性,并且铁电的转换产生明显的电阻差异,探索了BFO在未来低能耗自旋电子器件中的应用.

因此,利用界面处电子、轨道、晶格和自旋的奇异特性实现异质结构的人工多铁材料,将是探索多铁材料应用的有效途径.为此,本文在SrTiO₃(STO)基片上制备了Bi_{0.8}Ba_{0.2}FeO₃(BBFO)/LSMO异质结,来研究BBFO/LSMO界面对BBFO的铁电性和铁磁性的影响,通过测试磁电阻和磁介电来反映磁电关系的变化情况.

2 实验方法

BBFO陶瓷靶材通过传统固相反应法制成.按化学计量比将99.9%纯度的Bi₂O₃, Fe₂O₃和BaO混合均匀并充分研磨,考虑到Bi元素的挥发,称量时多加入5% mol Bi₂O₃以得到单相的BBFO.充分研磨的粉末被压成直径4 cm的圆片,首先在空气中700 °C煅烧10 h,然后敲碎并充分研磨,重新压成直径4 cm的圆片,在空气中800 °C煅烧3 h,得到实验所需的单相陶瓷靶.随后,利用所制靶材和借助脉冲激光沉积PLD技术进行BBFO/LSMO异质结的制备.所用激光器为KrF脉冲激光器,波长为248 nm,脉宽约为20 ns.沉积薄膜的能量均为2 J/cm².首先在STO基片上沉积LSMO薄膜,沉积温度为800 °C,沉积氧压75 mTorr,沉积完成后用掩膜板遮挡一半,在其上沉积BBFO薄膜,沉积温度700 °C,沉积氧压37 mTorr,沉积后在1 atm氧氛围中原位退火1 h,再自然降温到室温.

采用D/max2200PC型X-射线衍射仪(XRD, Cu K_α线, λ = 0.15405 nm)分析BBFO/LSMO异质结的晶体结构;利用高分辨场发射透射电子显微镜(HRTEM, FEI Tecnai G2 F30)在纳米尺度分析晶体的形貌和结构;利用美国Asylum Research

公司生产的MFP-3D型原子力显微镜(AFM)观察和分析双层薄膜的表面形貌和压电图像,所用探针为Olympus AC240TM.室温下BBFO/LSMO异质结的磁滞回线由振动样品磁强计(VSM)测得.为测量电性能,用掩膜片遮掩,在表面溅射直径为0.2 mm的Pt作为顶电极.用精密的LCR表测量BBFO/LSMO异质结的介电性能.用标准的铁电分析仪Radiant Precision LC测量BBFO/LSMO异质结的电滞回线.在东方晨景的ET9000系统上测量异质结的不同磁场下的电性能随温度的变化曲线.

3 实验结果与讨论

图1(a)为BBFO/LSMO异质结的XRD图谱.从图中可以看出没有出现第二相或者界面反应物,异质结均沿(001)择优取向,表明异质结呈现出良好的外延生长.从XRD图中的(002)衍射峰,可以计算出BBFO薄膜的c方向晶格常数约为4.1 Å,比陶瓷的晶格常数大,从插图中可以看出BBFO薄膜的衍射峰明显向低角度偏移,这是由于BBFO和LSMO晶格的失配导致BBFO薄膜在面内被压缩,沿c轴扩展^[14].

为进一步确定薄膜的生长方式及异质结的结构,测量了薄膜横截面的STEM图和HRTEM图,如图1(b)和图1(c)所示.图1(b)中,各层薄膜的界限分明,呈线状分布,表面平整,可以测量出BBFO和LSMO层的厚度分别为136 nm和70 nm.从图1(c)能得到BBFO和LSMO的晶面取向是[001],再次证明异质结是外延生长的.图1(c)中的插图为沿[100]晶带轴电子衍射图,可以发现BBFO薄膜是外延生长的四方相结构^[15].

图2(a)为异质结上的AFM表面形貌图,可以看出薄膜表面颗粒细小,分布均匀致密,并未发现明显的裂痕存在.同时借助Igor软件分析得到薄膜的平均表面粗糙度(RMS)约为2.747 nm,表面平整.这一结果从图2(b)AFM 3D表面形貌图可以得到进一步印证.

在块体BFO中的铁电性是由于Bi³⁺相对于Fe-O八面体中心运动产生相对位移而产生的,因此铁电极化沿着主对角线(⟨111⟩)且极化方向在71°, 108°, 180°改变^[16].然而,如果晶体结构是四

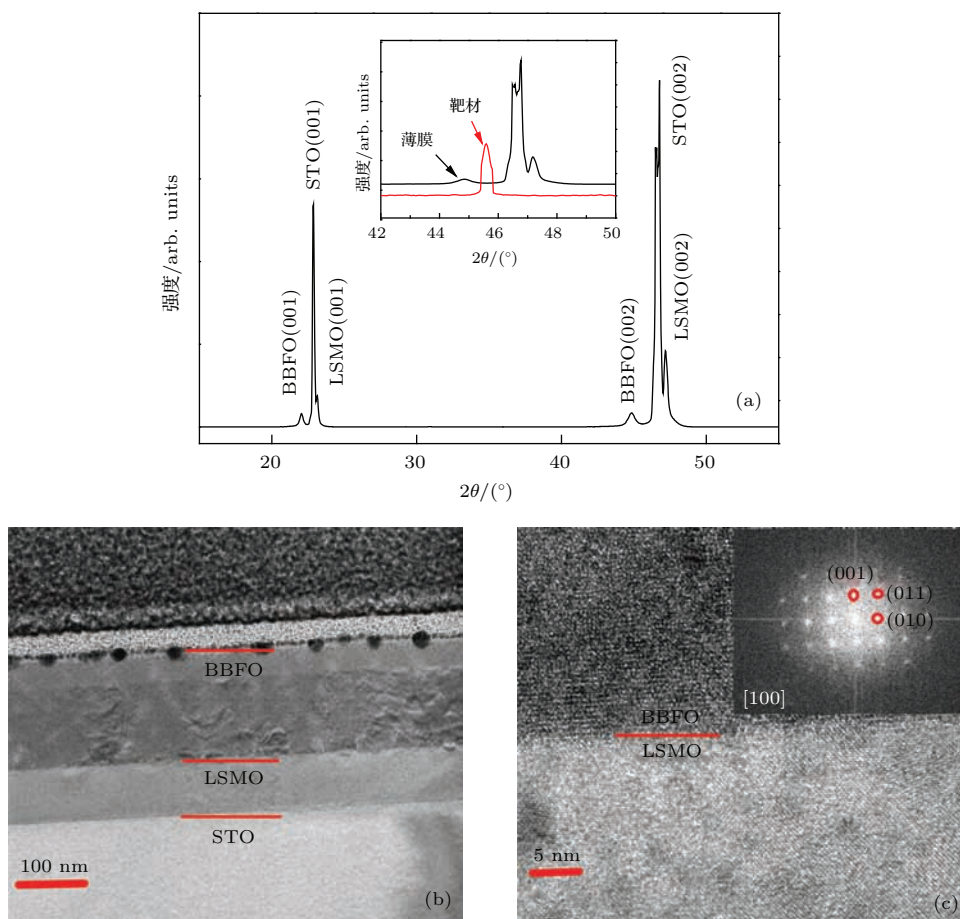


图1 (网刊彩色) (a) BBFO/LSMO 异质结的 XRD 图谱, 插图为薄膜和陶瓷在 2θ 为 42° — 48° 的放大 XRD 图; (b) 薄膜横截面的透射电镜 (TEM) 图; (c) BBFO/LSMO 界面的 HRTEM 图, 插图为沿 [100] 晶带轴的电子衍射图像
 Fig. 1. (color online) (a) XRD patterns for BBFO/LSMO thin film, the inset shows the enlarged view of XRD patterns with 2θ between 42° and 48° for thin film and BBFO ceramics; (b) the TEM cross-section image of thin film; (c) HRTEM image of BBFO/LSMO interface, the inset shows the correspondent [100] zone axis diffraction pattern.

方相的, 那么极化将可能沿着 $\langle(001)\rangle$. 若是单斜的斜方六面体中, 极化将更可能接近 $\langle(111)\rangle$. 图 2(c) 是 BBFO/LSMO 异质结表面 BBFO 薄膜的压电力显微镜 (PFM) 图, PFM 通常被用来分析极化方向和畴结构, 从图中可以看出有三种不同的颜色 (图 2(c) 中用红圈标注), 其代表了不同的极化. 对比三种颜色的占有比例可以发现, 在一个方向上的极化较其他方向明显增强, 这从前面的沿 [100] 晶带轴电子衍射图得到晶体结构为四方相, 说明极化将沿着 $\langle(001)\rangle$, 同时 LSMO 层对 BBFO 层的压应力导致结构的畸变, 加强了 BBFO 薄膜的铁电性^[13]. 为了进一步证实薄膜的铁电性, 我们施加一个直流扫描电压 (0 V—+8 V—-8 V—0 V) 在 PFM 针尖上, 测得了压电蝴蝶曲线图如 2(d) 的黑线以及电滞回线如图 2(d) 中的蓝线, 发现在 5 V 时电滞回线达到了饱和, 达到

85 a.u, 这和 Bea 等^[17] 测得的结果基本一致. 然而电滞回线向正电压方向出现了明显偏移, 这主要归因于 BBFO 和 LSMO 层之间的界面势垒引起的自发极化.

已证实了异质结中铁电性的存在, 为了更好地研究铁电性能, 在 300 K 和 2 kHz 的条件下对异质结的电滞回线 (P - E) 进行了测量, 如图 3(a). 实验发现, 在所加偏压从 1 V 增加到 4 V 的过程中, 电滞回线都未呈现饱和状态, 进一步加大电压, 将导致样品被击穿, 这主要是由于薄膜中氧空位的存在或者铁离子的价态变化产生了大的漏电流; 并且回线不对称, 发生了畸变, 是由于底电极 LSMO 和 BBFO 界面形成 p-n 结以及上下电极的功函数不同. 随着电场的增大, 异质结的剩余极化 $2P_r$ 和矫顽力 $2E_c$ 都增大, 在 133 kV/cm 时, 剩余极化 $2P_r$ 为 $3.25 \mu\text{C}/\text{cm}^2$, 矫顽力 $2E_c$ 为 52.6 kV/cm, 这比

Yan 等^[18]测得 BFO/SRO/STO 的值要大, 主要是由于 Ba^{2+} 和 Bi^{3+} 半径的不同导致 BFO 薄膜的晶体结构发生变化^[19], 增强了材料的铁电性, 同时 Ba^{2+} 的引入会破坏螺旋性自旋结构, 导致磁性增强, 还有 BBFO/LSMO 界面, 通过磁电耦合导致铁

电性的增强^[13,20].

图 3(b) 为在 300 K 下 BBFO/LSMO 异质结的磁滞回线 ($M-H$ 曲线). 图中的红线和黑线分别对应于测量磁场平行和垂直于薄膜表面的测试结果. 可以看出, 当异质结表面平行于磁场时, $M-H$ 曲线

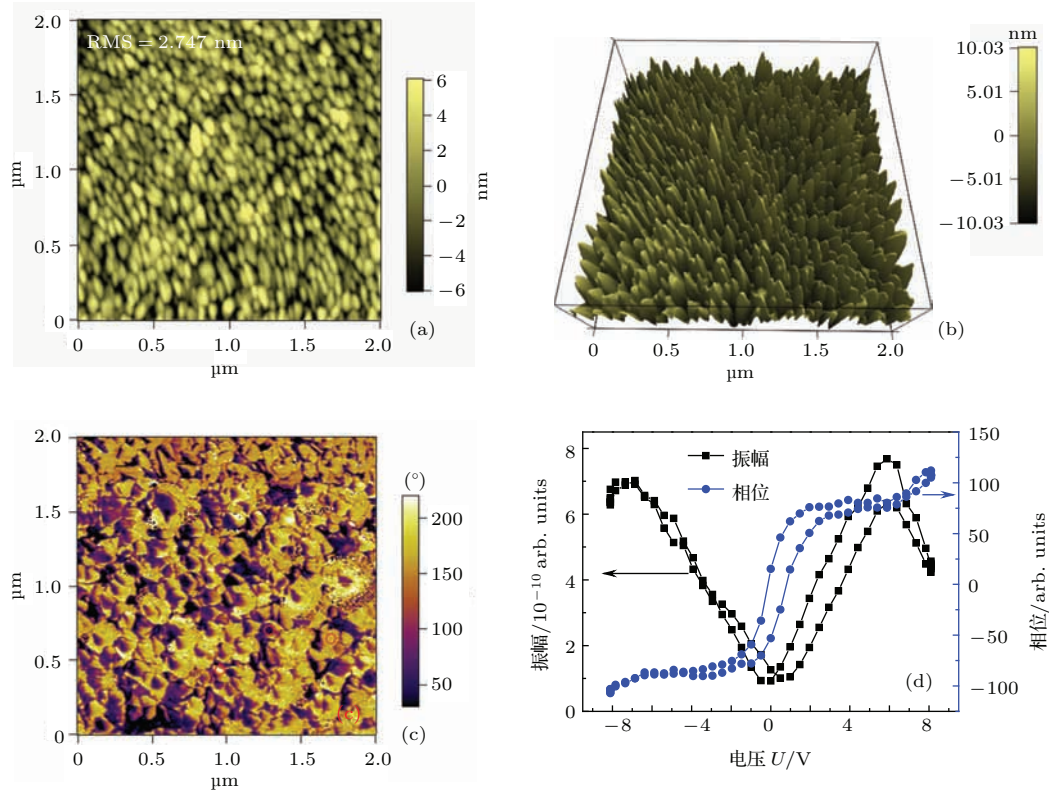


图 2 (网刊彩色) (a) BBFO/LSMO 薄膜的 AFM 表面形貌; (b) BBFO/LSMO 薄膜的 3D 表面形貌; (c) BBFO/LSMO 薄膜的 PFM 图; (d) 扫描的蝴蝶曲线 (黑线) 以及电滞回线 (蓝线)

Fig. 2. (color online) (a) AFM surface image of BBFO/LSMO thin film; (b) 3D surface image of BBFO/LSMO thin film; (c) PFM image of BBFO/LSMO thin film; (d) butterfly curve (black) and ferroelectric hysteresis loop (blue).

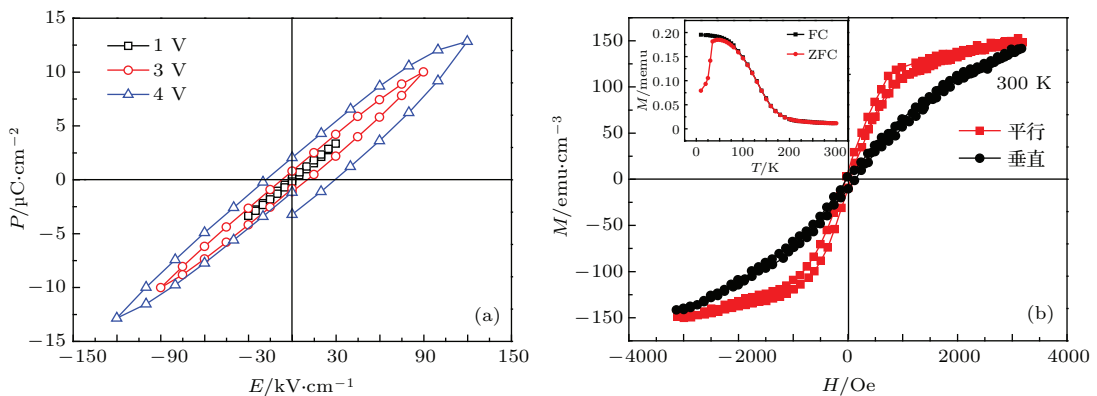


图 3 (网刊彩色) (a) 在 2 kHz, 不同电场下的电滞回线; (b) 在 300 K 下, 平行和垂直磁场的磁滞回线; 插图为 LSMO 的 ZFC/FC 磁化强度随温度的变化曲线

Fig. 3. (color online) (a) Ferroelectric hysteresis loop under different voltages for a frequency of 2 kHz; (b) in-plane (red) and out-of-plane (black) magnetic hysteresis loops measured at 300 K. The inset shows the change of ZFC/FC of LSMO with temperature.

表现出明显的磁滞现象, 矫顽力和饱和磁化强度分别为 50 Oe 和 112 emu/cm³, 比 Wang 等 [21] 的测量值要大. 铁磁性的增强可能归因于以下几个方面: 首先, 由于 Ba²⁺ 的掺入, 为了满足电荷守恒, 将产生氧空位, 形成 Fe²⁺, 破坏了空间螺旋自旋结构 [22]; 其次, 由于 Ba²⁺ 和 Bi³⁺ 的半径不同, 使得 BFO 的结构发生扭曲, 进而改变了 Fe—O—Fe 的键角, 使得反铁磁结构倾斜 [23,24]; 第三, 根据 Goodenough-Kanamori-Anderson 规则 [25], Fe³⁺ 与 Mn³⁺ 及 Fe³⁺ 与 Mn⁴⁺ 之间的超交换相互作用是铁磁耦合的, 在 BBFO/LSMO 界面处形成铁磁态 [20]. 从图 3 (b) 的插图中可以看出, LSMO 在 300 K 时为顺磁性的, 即测得的磁滞现象并没有 LSMO 层的贡献. 而异质结表面垂直于磁场时, 没有表现出明显的磁滞现象, 说明异质结存在磁各向异性, 这正是材料内在铁磁特性的证明. 磁各向异性的产生可能是由于 BBFO 和 LSMO 之间的交换耦合引起的, Rao 等 [26] 通过插入一层很薄的无磁性 STO 层, 使得磁交换的各向异性消失, 证明了这一原因.

从上面的分析可知, 铁的价态的变化能够影响异质结的电磁性能. 为此测试了异质结中 Fe 元素的 XPS 能谱, 如图 4. Fe 2p 能级因自旋-轨道耦合分裂成的 2p_{3/2} 能级和 2p_{1/2} 能级分别为 711 eV 和 724.6 eV, 且它们之间的能量差为 13.6 eV, 这与 Fe³⁺ 的能谱相一致 [27,28], 所以在异质结中只有 Fe³⁺, 也就是说异质结磁电性能的变化与铁的价态变化无关.

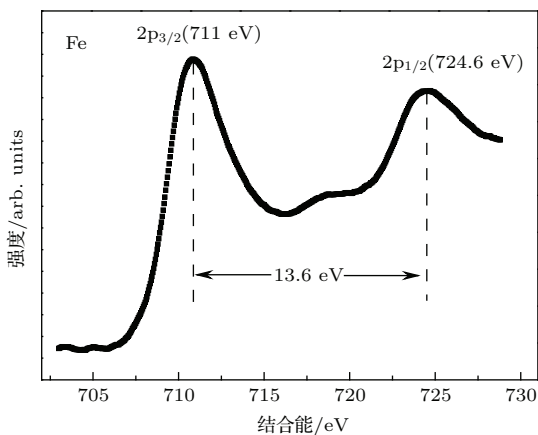


图 4 BBFO/LSMO 异质结中 Fe 元素的 XPS 能谱
Fig. 4. XPS spectra of BBFO/LSMO thin film in Fe site.

电阻很敏感地依赖于多层膜系统的电子结构, 因此电阻或磁电阻的测量能够提供关于多

层膜的电和磁的重要信息 [29,30]. 定义磁电阻 $MR = (R_H - R_0)/R_0 \times 100\%$, 其中 R_H 是磁场下的电阻, R_0 是无外磁场时的电阻. 图 5 (a) 为在外加磁场 H (0, 0.1, 0.4, 0.8 T) 下测量的 BBFO/LSMO 结电阻随温度 T 的变化. 可明显发现在不同磁场作用下, 结电阻随温度的变化趋势是相同的, 都表现出负温度系数的关系, 并且在一定温度下, 随着外加磁场的增加而减小, 是由于外加磁场使得磁性的自旋玻璃态的有序度提高, 导致磁空间无序的程度减弱, 从而有利于电子的退局域化, 引起电阻的明显降低.

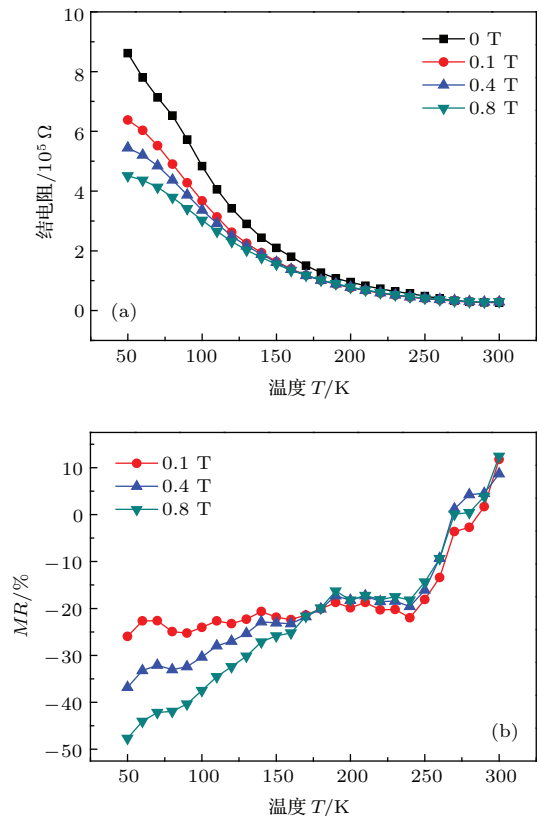


图 5 (网刊彩色) (a) 不同外加磁场下 BBFO/LSMO 结的电阻随温度的变化; (b) 不同外加磁场下 BBFO/LSMO 结的磁电阻随温度的变化

Fig. 5. (color online) (a) Temperature dependence of the resistance of BBFO/LSMO under different magnetic fields; (b) temperature dependence of the magnetoresistance of BBFO/LSMO under different magnetic fields.

图 5 (b) 为外加磁场下 (0.1, 0.4, 0.8 T) 异质结的磁电阻 MR 随温度 T 的变化曲线. 在温度大于 290 K 时, 出现正磁电阻, 这与 LSMO/STO 之间形成 p-n 结有关, Jin 等 [31], Chen 等 [32] 也发现了正的磁电阻现象. 在 50—290 K 为负磁电阻现象, 并且发现在 180 K 左右三条曲线出现明显的分

离,这可能是由于BFO在180 K出现新的磁相^[33],对外磁场的敏感性增强.随着温度的降低,在BBFO层中的反铁磁绝缘相被外磁场改变,并且BBFO/LSMO和LSMO/STO界面的电阻也发生变化,产生更大的负磁电阻.在外加磁场强度为0.8 T,温度为70 K时,MR达到-42.2%.

磁电耦合效应是多铁材料未来应用的一个主要途径,外加磁场作用下,介电常数的变化

可以很好地反映材料的磁电耦合特性.磁介电系数(MD , magneto-dielectric coefficient)定义为 $MD = (\epsilon_H - \epsilon_0)/\epsilon_0 \times 100\%$,其中 ϵ_0, ϵ_H 分别为零场和外场下的介电常数.这是因为当给多铁材料施加外磁场时,材料的磁畴将会发生改变,使得材料的微观区域产生应力的作用,导致铁电畴结构的改变,进一步影响到自发极化,介电常数也因此得到改变^[34,35].

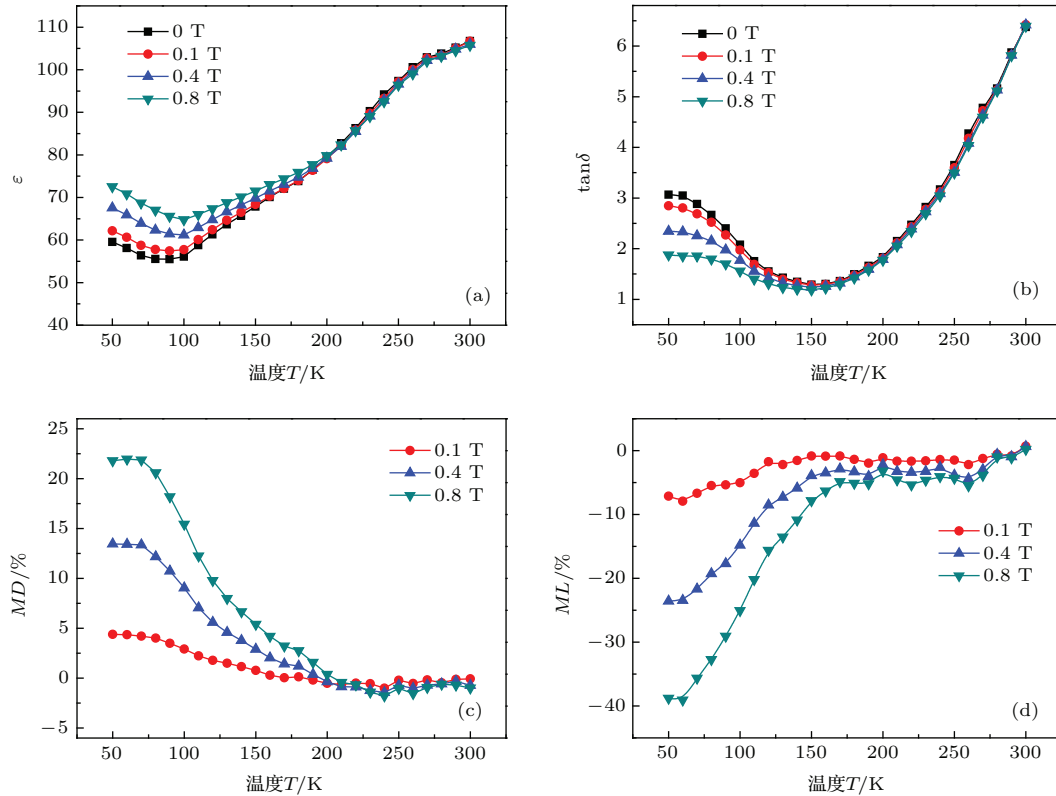


图6 (网刊彩色) 在1 kHz 频率、不同磁场下BBFO/LSMO结的介电常数 ϵ (a)、损耗 $\tan\delta$ (b)和磁介电系数 MD (c)、磁损耗 ML (d)随温度 T 的变化

Fig. 6. (color online) Temperature dependent dielectric properties for BBFO/LSMO thin film under different magnetic fields, respectively, dielectric constant (a), dielectric loss (b) and MD (c), ML (d).

图6给出了1 kHz下, 50—300 K温度区间内, 不同磁场下(0, 0.1, 0.4, 0.8 T)的介电常数 ϵ 、损耗 $\tan\delta$ 、磁介电系数 MD . 从图6(a)可以看出, 不同磁场强度下的介电常数随温度的变化趋势具有相同的规律: 在高于100 K的温度区间内都是随着温度的升高而变大, 主要是界面极化起着主要的作用, 而在大约100 K开始随着温度的降低而变大, 此时偶极子起主要的作用. 图6(c)表明, 在低温区域, 磁介电系数 MD 随着温度的降低而迅速变大, 当温度降到70 K时磁介电系数的变化趋势变缓, 0.8 T磁场的磁介电系数值最大, 达到21.9%, 对比之下0.1 T时仅为4.2%. 同时发现温度低于

180 K时, 不同外磁场的磁介电系数开始出现明显分离, 这与磁电阻表现出的规律相同, 再次说明在此温度发生了相变, Singh等^[33]也发现在200 K时BiFeO₃单晶出现新的磁相变, 我们的相变点较低, 可能是由于Ba²⁺的掺入破坏了晶体的自旋结构^[23].

从图6(b)介电损耗 $\tan\delta$ 随温度的变化曲线发现在300 K到150 K, 介电损耗 $\tan\delta$ 随温度降低而降低, 然后在150 K到50 K, 随温度降低而升高, 并且在50 K左右变化很缓慢. 由于实验条件限制, 我们未测量50 K以下的值. 外加磁场降低了电极化畴翻转的激活能^[36,37], 使得损耗减小, 但损

耗相对实际应用还很大. 为了更好地研究异质结的磁介电性能, 我们比较了不同磁场下的磁损耗 magnetoloss ($ML = (D_H - D_0)/D_0 \times 100\%$, 其中 D_0 , D_H 分别为零场和外场下的损耗) 随温度的变化, 如图 6(d). 发现磁损耗 ML 在低温下为负值, 与磁介电 MD 的值刚好相反, 这预示着磁介电的变化是由 Maxwell-Wagner 效应和磁电阻引起的^[38].

4 结 论

采用 PLD 技术在 STO 基片上制备了 BBFO/LSMO 异质结, 各层膜均呈现出单相外延生长, 同时实现了将 LSMO 的铁磁转变温度控制在 70 K. LSMO 层的引入有效地提高了 BBFO 薄膜的室温铁电性和铁磁性. 分析表明异质结铁磁性的增强与 BBFO 中铁的价态变化没有关系, 主要归因于 BBFO/LSMO 的界面效应的贡献. 50—300 K 的磁电阻和磁介电的测试发现, 当 $H = 0.8$ T, 温度为 70 K 时, MR 约为 -42.2% , MD 约为 21.9% . 磁损耗和磁介电随温度的变化相反, 这主要由于 Maxwell-Wagner 效应和磁电阻的变化. 这些结果阐明了利用异质结的界面效应是提高多铁材料的铁电性、磁特性和加强磁电耦合的有效途径, 为加快多铁材料实际应用奠定基础.

参考文献

- [1] Bell A J 2008 *J. Eur. Ceram. Soc.* **28** 1307
- [2] Valencia S, Crassous A, Bocher L, Garcia V, Moya X, Cherifi R O, Deranlot C, Bouzouhouane K, Fusil S, Zobellic A, Gloter A, Mathur N D, Gaupp A, Abruñan R, Radu F, Barthélemy A, Bibes M 2011 *Nat. Mater.* **10** 753
- [3] Xu Y, Zhang Z Y, Jin Z M, Pan Q F, Lin X, Ma G H, Cheng Z X 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 117801 (in Chinese) [徐悦, 张泽宇, 金钻明, 潘群峰, 林贤, 马国宏, 程振祥 2014 物理学报 **63** 117801]
- [4] Kimura T, Goto T, Shintani H, Ishizaka K, Arima T, Tokura Y 2003 *Nature* **426** 55
- [5] Lebeugle D, Colson D, Forget A, Viret M, Bataille A M, Gukasov A 2008 *Phys. Rev. Lett.* **100** 227602
- [6] Annapu Reddy V, Pathak N, Nath R 2013 *Solid State Commun.* **171** 40
- [7] Qi X D, Dho J, Tomov R, Blamire M G, MacManus-Driscoll J L 2005 *Appl. Phys. Lett.* **86** 2903
- [8] Hwang J S, Cho J Y, Park S Y, Yoo Y J, Yoo P S, Lee B W, Lee Y P 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 062902
- [9] Costa L V, Deus R C, Foschini C R, Longo E, Cilense M, Simões A Z 2014 *Mater. Chem. Phys.* **144** 476
- [10] Seidel J, Trassin M, Zhang Y, Maksymovych P, Uhlir T, Pan X 2014 *Adv. Mater.* **26** 4376
- [11] Song G L, Su J, Zhang N, Chang F G 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 088101 (in Chinese) [宋桂林, 苏健, 张娜, 常方高 2015 物理学报 **64** 088101]
- [12] Trassin M, Clarkson J D, Bowden S R, Liu J, Heron J T, Paull R J, Arenholz E, Pierce D T, Unguris J 2013 *Phys. Rev. B* **87** 134426
- [13] Singamaneni S R, Prater J T, Nori S, Kumar D, Narayan J 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 17D908
- [14] Deng H L, Zhang M, Wei J Z, Chu S J, Du M Y, Yan H 2015 *Solid-State Electron.* **109** 73
- [15] Li M, Ning M, Ma Y, Wu Q, Ong C K 2007 *J. Phys. D* **40** 1603
- [16] Yang J C, Huang Y L, He Q, Chu Y H 2014 *J. Appl. Phys.* **116** 066801
- [17] Béa H, Gajek M, Bibes M, Barthélemy A 2008 *J. Phys.: Condens. Matter* **20** 434221
- [18] Yan F, Xing G Z, Li L 2014 *Appl. Phys. Lett.* **104** 132904
- [19] Yin L H, Song W H, Jiao X L, Wu W B, Zhu X B, Sun Y P 2009 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42** 205402
- [20] Yu P, Lee J S, Okamoto S, Rossell M D, Huijben M, Yang C H, Ramasse Q M 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 027201
- [21] Wang J, Neaton J B, Zheng H, Nagarajan V, Ogale S B, Spaldin N A 2003 *Science* **299** 1721
- [22] Das R, Mandal K 2012 *J. Magn. Magn. Mater.* **324** 1914
- [23] Wang D H, Goh W C, Ning M, Ong C K 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 2907
- [24] Yang C, Jiang J S, Qian F Z, Jiang D M, Wang C M, Zhang W G 2010 *J. Alloys Compd.* **507** 30
- [25] Anderson P W 1950 *Phys. Rev.* **79** 350
- [26] Rao S S, Prater J T, Wu F, Shelton C T, Maria J P, Narayan J 2013 *Nano Lett.* **13** 5814
- [27] Singh S K, Ishiwara H, Maruyama K 2006 *J. Appl. Phys.* **100** 064102
- [28] Wen X L, Chen Z, Lin X, Niu L W, Duan M M, Zhang Y J, Chen C L 2014 *Chin. Phys. B* **23** 117703
- [29] Liu Y K, Yao Y P, Dong S N, Yang S W, Li X G 2012 *Phys. Rev. B* **86** 075113
- [30] Majumdar S, Dijken S V 2013 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **47** 034010
- [31] Jin K J, Lu H B, Zhou Q L, Zhao K, Cheng B L, Chen Z H 2005 *Phys. Rev. B* **71** 184428
- [32] Chen P, Xing D Y, Du Y W 2001 *Phys. Rev. B* **64** 104402
- [33] Scott J F, Singh M K, Katiyar R S 2008 *J. Phys.: Condens. Matter* **20** 322203
- [34] Mandal P R, Nath T K 2014 *J. Alloys Compd.* **599** 71
- [35] Ren P, Liu P, Xia B, Zou X, You L, Wang J L, Wang L 2012 *AIP Adv.* **2** 022133
- [36] Singh H, Kumar A, Yadav K L 2011 *Mater. Sci. Eng. B* **176** 542
- [37] Uniyal P, Yadav K L 2012 *J. Alloys Compd.* **511** 149
- [38] Liu Y K, Yao Y P, Dong S N, Jiang T, Yang S W, Li X G 2012 *Thin Solid Films* **520** 5775

Influence of paramagnetic $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ layer on the multiferroic property of $\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_3$ film*

Liu En-Hua¹⁾ Chen Zhao^{1)†} Wen Xiao-Li²⁾ Chen Chang-Le¹⁾

1) (Key Laboratory of Space Applied Physics and Chemistry (Ministry of Education), School of Science, North-western Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

2) (State Key Laboratory of Solidification Processing, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China)
(Received 20 January 2016; revised manuscript received 18 March 2016)

Abstract

Multiferroics simultaneously exhibit several order parameters such as ferroelectricity and antiferromagnetism, representing an appealing class of multifunctional material. As the only multiferroics above room temperature, BiFeO_3 (BFO) becomes an attractive choice for a wide variety of applications in the areas of sensors and spintronic devices. The coexistence of several order parameters brings about novel physical phenomena, for example, the magnetoelectric coupling effect. It allows the reversal of ferroelectric polarization by a magnetic field or the control of magnetic order parameter by an electric field. Heterostructure interface plays an important role in enhancing the ferroelectric and magnetic properties of multiferroic materials. Furthermore, the magnetoelectric coupling at the interface between the antiferromagnetism BFO and a ferromagnetic film has the close relation with achieving a functional multiferroic-ferromagnetic heterostructure.

In order to determine the relationship between the multiferroic property and the interface experimentally, we prepare the $\text{Bi}_{0.8}\text{Ba}_{0.2}\text{FeO}_3$ (BBFO)/ $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ (LSMO) heterostructure on an SrTiO_3 (STO) substrate by pulsed laser deposition, and the structure characteristics and ferroelectric and magnetic properties are investigated. X-ray diffraction analysis shows that BBFO and LSMO films are epitaxially grown as single-phase. The further study by high-resolution transmission electron microscopy determines that the BBFO film has a tetragonal structure. The ferroelectric and magnetic measurements show that the magnetic and the ferroelectric properties are simultaneously improved, and the maximum values of the remnant polarization ($2P_r$) and the saturation magnetization of the heterostructure at room temperature are about $3.25 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ and $112 \text{ emu}/\text{cm}^3$, respectively. The reasons for enhancing the ferroelectric and ferromagnetic properties of heterostructure are demonstrated by X-ray photoelectron spectrum that shows being unrelated to the valence states of Fe element. On the contrary, interface effect plays a major role. In addition, the magnetic resistivities and dielectric properties of BBFO/LSMO heterostructure are investigated at temperatures in a range of 50 K to 300 K, finding that magnetoresistance (MR) and magnetodielectric (MD) are respectively about -42.2% and 21.9% at 70 K with a magnetic field of 0.8 T, and the transition of magnetic phase takes place near 180 K. Furthermore, the temperature dependences of magnetodielectric and magnetoloss (ML) present opposite tendencies, suggesting that magnetodielectric is caused by Maxwell-Wagner effect and the magnetoresistance. Experimental results reveal that heterogeneous interface effect shows the exceptional advantages in enhancing multiferroic property and magnetoelectric coupling effect of complex heterostructure material. It is an effective way to speed up the application of multiferroic materials.

Keywords: multiferroics, magnetoresistance, magnetodielectric, interface effects

PACS: 77.55.Nv, 73.43.Qt, 77.84.-s, 75.70.Cn

DOI: 10.7498/aps.65.117701

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61078057, 61471301), Natural Science Foundation of Shanxi Province, China (Grant Nos. 2015JM5259, 2011GM6013), Foundation for Fundamental Research, Northwestern Polytechnical University, China (Grant Nos. JC20110270, 3102014JCQ01029), Open Project of Key Laboratory for Magnetism and Magnetic Materials of the Ministry of Education, Lanzhou University, China (Grant Nos. LZUMMM2013001, LZUMMM2014007), the China Scholarship Council (Grant No. 201303070058), and the Ph. D. Programs Foundation of Ministry of Education of China (Grant No. 20126102110045).

† Corresponding author. E-mail: zhaoch17@nwpu.edu.cn; zhaoch17@hotmail.com