

BaTiO₃/La_{0.67}Sr_{0.33}MnO_{3-δ} 复合薄膜的磁致电极化和磁介电特性研究

王建元 白健英 罗炳成 王拴虎 金克新 陈长乐

Magneto-induced polarization enhancement and magneto-dielectric properties in oxygen deficient La_{0.67}Sr_{0.33}MnO_{3-δ}/BaTiO₃ composite film

Wang Jian-Yuan Bai Jian-Ying Luo Bing-Cheng Wang Shuan-Hu Jin Ke-Xin Chen Chang-Le

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 017701 (2018) DOI: 10.7498/aps.20172019

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20172019>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I1>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

顺磁性 La_{2/3}Sr_{1/3}MnO₃ 层对 Bi_{0.8}Ba_{0.2}FeO₃ 薄膜多铁性能的影响

Influence of paramagnetic La_{2/3}Sr_{1/3}MnO₃ layer on the multiferroic property of Bi_{0.8}Ba_{0.2}FeO₃ film

物理学报.2016, 65(11): 117701 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.65.117701>

紫外光辐照对 TiO₂ 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 TiO₂ nanowire under ultra-violet irradiation

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

Co/Co₃O₄/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 Co/Co₃O₄/PZT composite thin films

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

YMnO₃ 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 YMnO₃ 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>

BaTiO₃/La_{0.67}Sr_{0.33}MnO_{3-δ} 复合薄膜的磁致电极化和磁介电特性研究*

王建元[†] 白健英 罗炳成 王拴虎 金克新 陈长乐

(西北工业大学理学院, 超常条件材料物理与化学教育部重点实验室, 西安 710072)

(2017年9月12日收到; 2017年11月19日收到修改稿)

采用脉冲激光沉积法制备了BaTiO₃(BTO)与缺氧的铁磁绝缘态La_{0.67}Sr_{0.33}MnO_{3-δ}(LSMO)构成的磁电复合薄膜,研究了20—300 K温度区间内磁场对电极化特性和介电特性的影响.研究发现,施加磁场使得电滞回线的剩余极化强度和矫顽场均增大,其变化率峰值分别为111.9%和89.6%,峰值温度分别为40 K和60 K.异质结具有显著的磁介电效应,在测量温度区间内,磁场使得介电常数增大,介电损耗减小.在0.8 T场强下,介电常数的最大磁致变化率出现在60 K,达到了300%,而介电损耗也在此温度实现了最大变化,减小为零场时的50.9%.该磁电复合薄膜的磁致电极化和磁介电特性的极值均出现在LSMO层的磁电阻峰值温度附近,这说明磁场对电滞回线和介电参数的调制应该源自电荷相关的耦合作用.其可能的机理是磁场使得锰氧化物中的Mn离子局域磁矩趋于有序排列,并通过自旋-轨道耦合以及界面效应间接影响了BTO的电极化特性.研究结果对于多铁器件的开发和应用具有重要意义.

关键词: 锰氧化物, 多铁, 磁介电

PACS: 77.55.Nv, 73.43.Qt, 75.70.Cn

DOI: 10.7498/aps.67.20172019

1 引言

磁电复合薄膜是多铁家族中的重要成员,其主要的构成形式是铁磁层和铁电层的逐层二维生长^[1-3].通过工艺控制,可以获得高度择优取向的晶格结构,并且可以实现对界面和各层厚度在原子级尺度上的精确控制,有效降低界面损失,实现材料的精确构造和性能控制^[4,5].研究者基于传统的铁磁体和铁电体,进行了多种磁电复合薄膜的制备及性质研究^[6-12],如:Co_{0.9}Zn_{0.1}Fe₂O₄/Pb(Zr_{0.52}Ti_{0.48})O₃^[6],Fe₃O₄/BTO^[7].近年来,具有丰富磁电特性的混合价态锰氧化物R_{1-x}A_xMnO₃(R为稀土元素,A为碱土元素)的深入研究^[13],为磁电多层复合薄膜研究注入了新的活力.锰氧化

物/BTO(BaTiO₃)成为关注的热点之一.研究发现Pr_{0.85}Ca_{0.15}MnO₃/Ba_{1-x}Sr_xTiO₃复合薄膜中,锰氧化物层的磁电阻受到铁电层的影响而显著增大^[14];La_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃/Ba_{1-x}Sr_xTiO₃体系中出现了磁电容现象,并且磁电容的最大值出现在铁电层相转变温度附近^[15].Lee等^[16]研究发现,La_{0.7}Ca_{0.3}MnO₃/BTO,和La_{0.7}Sr_{0.3}MnO₃(LSMO)/BTO双层薄膜的磁特性,面内的双轴拉应力导致了锰氧化物磁转变温度的升高.Wang等^[17]在La-Sr-Mn-O/BTO双层薄膜中发现,界面极化对低频下的电压调控具有决定作用.Li等^[18,19]发现在SrTiO₃基底上制备的La-Sr-Mn-O/BTO复合薄膜的磁电耦合系数达到了263 mV·cm⁻¹·Oe⁻¹.基于锰氧化物的磁电复合薄膜的特殊之处在于:钙钛矿结构锰氧化物是电荷、轨道、自旋和晶格等自由度的强烈耦合体系,这些

* 国家自然科学基金(批准号: 51402240, 51471134, 11604265)和西北工业大学“翱翔新星”计划资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: wangjy@nwpu.edu.cn

自由度之间的动态平衡导致其出现相应的电、磁相态和物理特性^[13], 锰氧化物的元素替代和氧空位浓度可以极大地调控其磁电复合体系的性质. 然而, 目前的研究主要是基于氧正分的锰氧化物复合体系, 即薄膜中不存在显著的氧缺陷, 对氧空位型锰氧化物磁电复合薄膜的研究较少.

因此, 本文通过沉积条件的控制, 制备了缺氧的绝缘态 LSMO 与 BTO 组成的磁电复合薄膜, 研究了磁场对该异质结构电极化特性和介电特性的影响, 并对相关机理进行了讨论.

2 实验方法

采用脉冲激光沉积法在 001 晶面的 LaAlO₃(LAO) 单晶衬底上依次生长了 LSMO 和 BTO 薄膜, 样品结构如图 1(a) 插图所示. 脉冲激光的波长为 248 nm, 脉冲宽度为 30 ns. 本底真空度优于 5×10^{-5} Pa, LSMO 沉积氧压为 5 Pa, 衬底温度 800 °C, 脉冲能量 140 mJ, 频率 1 Hz, 沉积时间 60 min. BTO 沉积氧压为 15 Pa, 衬底温

度 800 °C, 脉冲能量 140 mJ, 频率 2 Hz, 沉积时间 60 min. 采用 SpecEI-2000-VIS 椭偏仪测量 LSMO 与 BTO 层厚分别为 100 nm 和 200 nm. 采用 X 射线衍射仪 (XRD) 检测样品的晶体结构. 采用 Asylum 的 MFP-3d 原子力显微镜 (AFM) 检测薄膜的表面形貌. 在薄膜上沉积直径 200 μm 的圆形 Au 电极. 样品的电输运特性采用 Keithley 6487 精密伏安电表测量. 电滞回线采用 Radiant Precision-LC 薄膜铁电分析仪测量. 样品放置于 VFP-475 低温恒温器内, 可以实现 20—300 K 的温度控制. 采用 MPMS XL-7 超导量子干涉仪 (SQUID) 测量薄膜的磁化特性.

3 结果与讨论

3.1 复合薄膜的结构

复合薄膜的 XRD 图样如图 1(a) 所示, LSMO 和 BTO 的衍射峰均只出现在衬底 LAO 峰附近, 显示出良好的外延生长特性. 上层 BTO 薄膜的表面形貌如图 1(b) 所示, 均方根粗糙度为 1.02 nm.

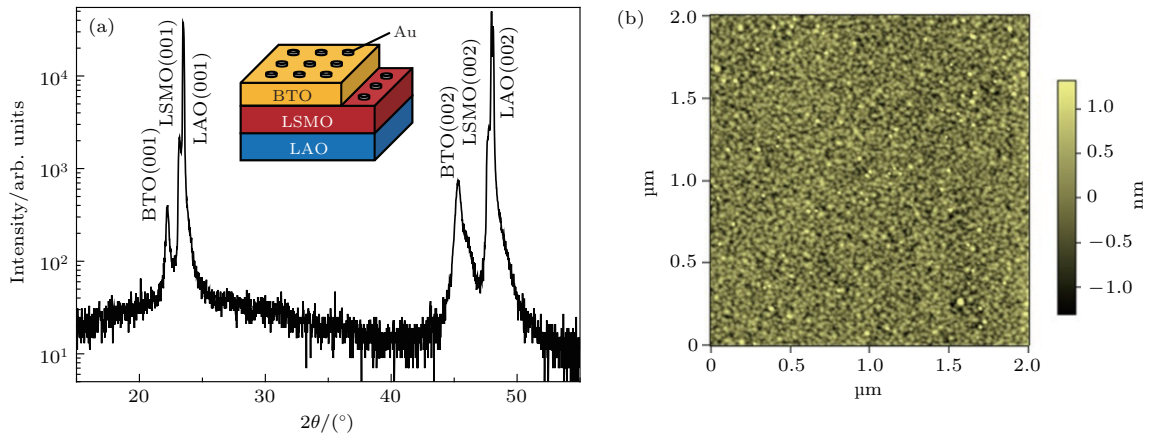


图 1 复合薄膜的晶体结构与表面形貌 (a) 薄膜的 XRD 衍射图, 插图为样品结构示意图; (b) BTO 薄膜表面 AFM 测试图

Fig. 1. Morphology and crystal structure of the heterojunction: (a) XRD pattern of the sample, the inset is the schematic of the sample; (b) topography of the BTO film.

3.2 磁场下的电输运特性

LSMO 层的电输运特性和磁状态会受到氧空位的显著调控. 本文在较低氧气压力下沉积 LSMO, 构造缺氧态 LSMO 层. 首先测量了 LSMO 层在 0 T 和 0.8 T 条件下的面内电阻随温度的变化, 测量温度范围 20—300 K. 如图 2(a) 所示, 在零磁场条件下, LSMO 层的电阻随着温度的升高而减

小, 由 20 K 时的 5.6 MΩ 变为 300 K 时的 18.5 kΩ, 在整个温度区间内显示出半导体特性, 而未呈现氧正分条件下的低温金属态. 在 0.8 T 磁场下, LSMO 显示出负的磁电阻效应. 其磁致电阻变化率定义为

$$MR = (R_{0.8 T} - R_{0 T}) / R_{0 T}, \quad (1)$$

其中 $R_{0 T}$ 和 $R_{0.8 T}$ 分别为 0 T 和 0.8 T 磁场下 LSMO 的面内电阻. MR 在室温下仅为 -0.33%, 但随着温度的降低逐渐升高, 在 40 K 达到最大值

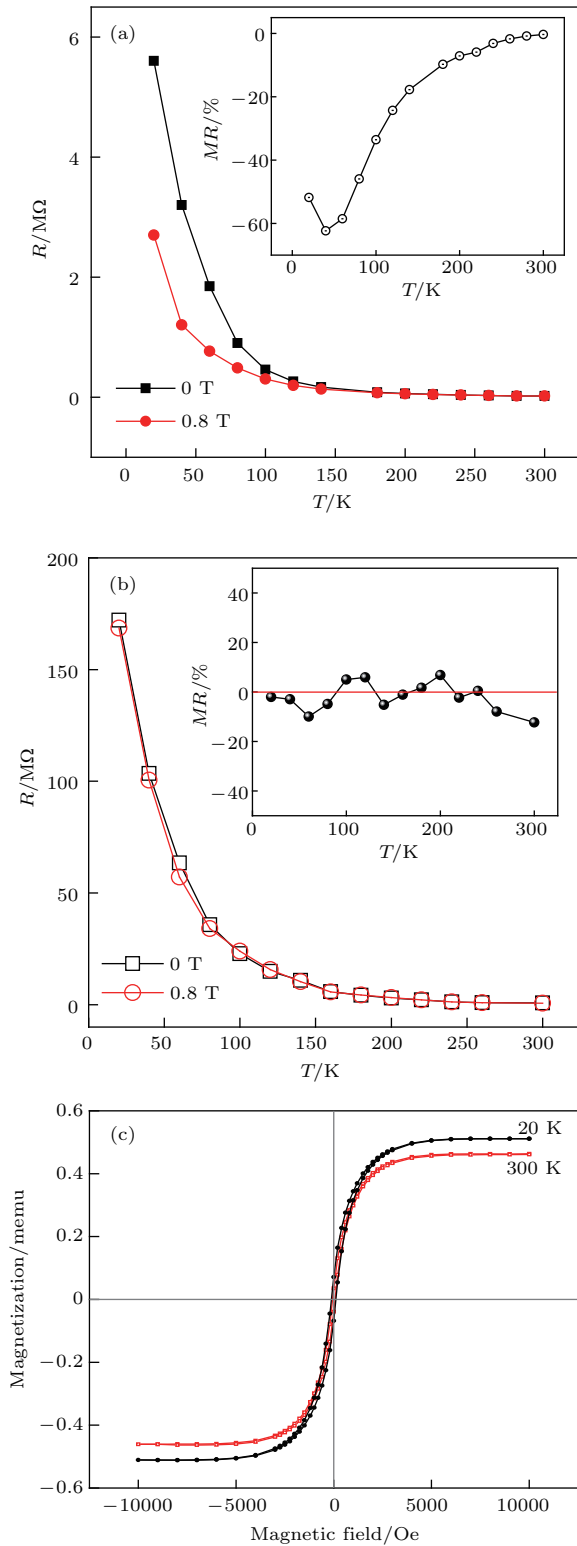


图2 复合薄膜输运特性 (0 T 和 0.8 T) 以及磁化特性 (a) LSMO 面内电阻随温度的变化, 插图为磁致电阻变化率 MR; (b) 异质结电阻随温度的变化, 插图为磁致变化率 MR; (c) 薄膜在 20 K 和 300 K 下的磁化曲线

Fig. 2. Transportation properties of the films: (a) In-plane resistance of LSMO film, the inset is the change rate; (b) resistance of the heterojunction, the inset is the change rate; (c) magnetic hysteresis loop at 20 and 300 K.

-62.4%, 随后下降至 20 K 时的 -51.8%, 如图 2(a) 插图所示. 由于 LSMO 在低温下的电阻达到了 MΩ 级, 必须测量 BTO/LSMO 异质结的总电阻, 以考察作为底电极的 LSMO 在研究 BTO 铁电性时造成的电压损耗. 测量结果如图 2(b) 所示, 异质结的电阻由 20 K 时的 172 MΩ 下降至 300 K 的 0.815 MΩ, 计算可知, LSMO 电阻占异质结总电阻的 2%—3%. 另外, 在 0.8 T 的磁场下, 异质结也未出现显著的磁致电阻变化, 如图 2(b) 插图所示. 可以看出, LSMO 层的分压对 BTO 电极化特性的影响可以忽略. 采用 SQUID 测量了 20 K 和 300 K 时复合薄膜的磁化曲线. 如图 2(c) 所示, 复合薄膜在 20 K 和 300 K 温度下均显示出磁化强度饱和现象, 两者的饱和磁化强度差距不大, 分别为 0.317 和 0.286 memu, 并且均存在一定的磁滞现象. 这说明复合薄膜在 20—300 K 温度区间内显示出铁磁性.

3.3 磁场对复合薄膜铁电性的调控

在 20—300 K 温度区间内测量了 BTO 在 0 T 和 0.8 T 磁场下的电滞回线. 图 3(a)—(c) 给出了 40, 140, 260 K 的电滞回线, 可以看出, 在同样的驱动电场区间内, 极化曲线随温度发生了很大改变. 在高温下, 极化曲线的剩余极化强度 (P_r) 和矫顽场 (E_c) 均大于低温下. 而磁场对电滞回线的作用也受到温度的强烈影响. 40 K 温度下, 施加 0.8 T 磁场时, 曲线的剩余极化强度和矫顽场显著增大; 而在 260 K, 磁场对电滞回线的影响不显著.

为了量化磁场对电滞回线的影响, 统计了不同温度时 0 T 和 0.8 T 磁场下的 P_r 和 E_c , 以及相对变化率, 如图 4 所示. 其中, P_r 和 E_c 的相对变化率分别定义为

$$\eta_P = \frac{P_{r0.8T} - P_{r0T}}{P_{r0T}} \times 100\%, \quad (2)$$

$$\eta_E = \frac{E_{c0.8T} - E_{c0T}}{E_{c0T}} \times 100\%, \quad (3)$$

式中, P_{r0T} 和 $P_{r0.8T}$ 分别为 0 T 和 0.8 T 磁场下的剩余极化强度, E_{c0T} 和 $E_{c0.8T}$ 分别为 0 T 和 0.8 T 磁场下的矫顽场. 从图 4(a) 可以看出, 无磁场时, 剩余极化强度随着温度的升高而单调递增, 从 20 K 的 $0.385 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ 逐渐上升到 300 K 的 $10.96 \mu\text{C}/\text{cm}^2$. 而 0.8 T 磁场下, 剩余极化强度随温度的变化趋势与零场下一致, 并显示出正的磁致变化率. 其变化率 η_P 随着温度的升高并非单

调变化, 从 20 K 到 40 K, η_P 由 86.7% 上升到峰值 111.9%, 而后剧烈下降, 在 300 K 时仅为 0.3%. 而矫顽场也出现了与剩余极化强度类似的随温度和磁场的变化趋势, 如图 4(b) 所示. 0 T 和 0.8 T 磁场下, 矫顽场均随着温度单调上升, 其变化率 η_E 在 60 K 温度时达到峰值 89.6%, 在 300 K 时几乎为零.

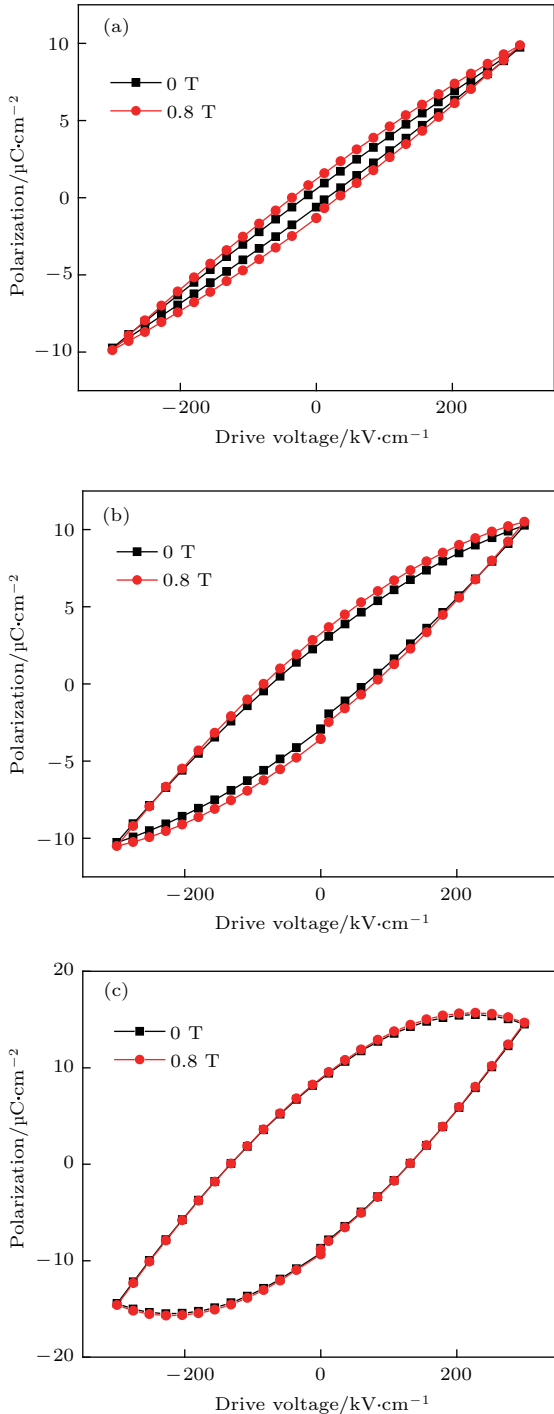


图3 不同温度下 0 T 和 0.8 T 磁场时 BTO 的电滞回线 (a) 40 K; (b) 140 K; (c) 260 K
Fig. 3. Ferroelectric hysteresis loop with and without magnetic field: (a) 40 K; (b) 140 K; (c) 260 K.

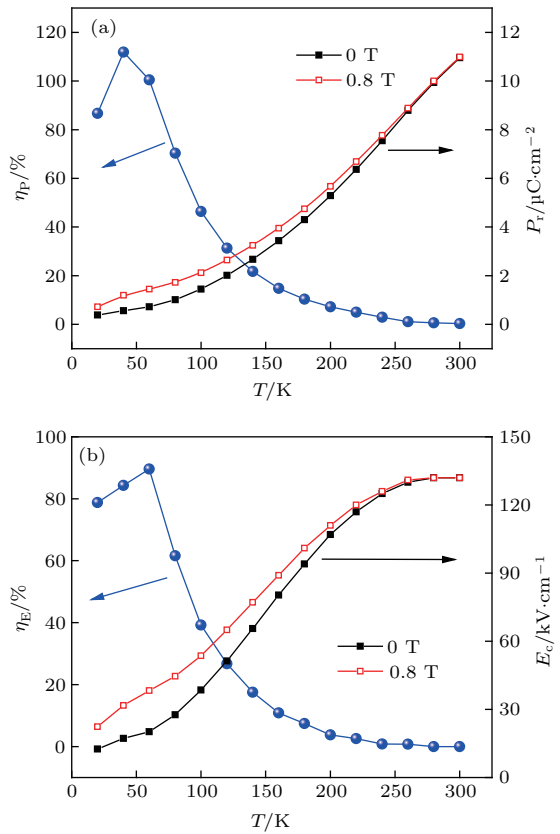


图4 0 T, 0.8 T 磁场下 BTO 电滞回线的参数统计 (a) 剩余极化强度 P_r 及其磁致变化率 η_P ; (b) 矫顽场 E_c 及其磁致变化率 η_E
Fig. 4. Parameters of the ferroelectric hysteresis loop with 0 T and 0.8 T magnetic field: (a) Remanent polarization P_r and the magneto-induced rate of change; (b) coercive electric field E_c and the magneto-induced rate of change.

这表明在低温下, BTO/LSMO 复合薄膜表现出较强的磁电耦合效应, 磁场使得 BTO 剩余极化强度和矫顽场增大. 而在高温下, 磁场对 BTO 的电极化特性影响极小. 对于铁磁材料和铁电材料组成的磁电复合薄膜, 磁电耦合的机理之一是应力诱导 [20,21]. 即铁磁层的磁致伸缩作用导致了铁电层的晶格畸变, 从而影响了铁电层的电极化行为. 本文的复合薄膜中, LSMO 层的厚度为 100 nm, 由于受到衬底的束缚作用, 铁磁性的 LSMO 层膜所能产生的磁致伸缩作用是十分有限的. 从磁化率与温度的关系来看, 由 20 K 到 300 K, 饱和磁化强度从 0.511 memu 减小到 0.461 memu, 变化率仅为 9.8%. 而 η_P , η_E 受到温度的强烈影响, 低温下的最大值分别为 111.9% 和 89.6%, 在 300 K 时变化率均趋于 0. 因此磁致伸缩作用不是该复合薄膜磁电耦合作用的主要诱导因素. 考虑到 LSMO 层在 40 K 时出现磁电阻效应的最大值, 而在高温区域磁电阻效应十

分微弱. 这与磁致电极化特性随温度的变化趋势是一致的, 因此本文磁场对电滞回线的调制主要源自电荷相关的耦合作用^[22]. 由于LSMO中的载流子是自旋极化的, 因此施加磁场时 Mn^{3+} 离子和 Mn^{4+} 离子的局域磁矩趋于平行排列, 并可能影响其轨道的排列. 最终通过双层薄膜的界面效应影响了BTO的电极化特性.

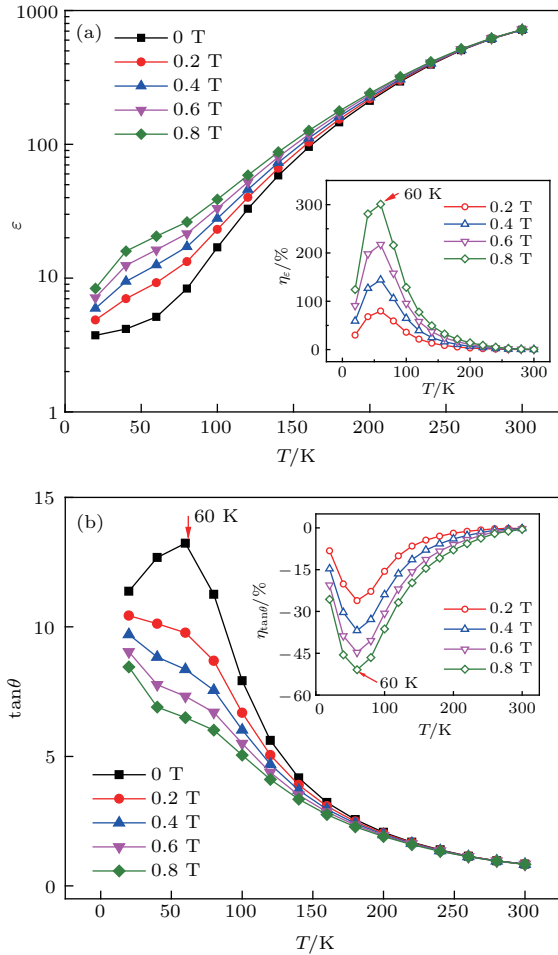


图5 不同磁场强度下的介电特性 (a) 介电常数 ϵ 随温度的变化, 插图是磁致介电常数变化率 η_ϵ ; (b) 介电损耗 $\tan \theta$ 随温度的变化, 插图是磁致介电损耗变化率 $\eta_{\tan \theta}$

图5是不同磁场下复合薄膜的介电常数 ϵ 与介电损耗 $\tan \theta$ 随温度的变化. 如图5(a)所示, 在不同磁场强度下, 介电常数均随着温度的升高而升高. 在低温下, 出现了显著的磁致介电常数增大现象, 最大相对变化率出现在60 K, 达到了约300% (图5(a)插图). 而在高温区域, 磁场对介电常数的影响微弱. 介电损耗也受到磁场的强烈影响, 如

图5(b)所示, 无磁场时, 介电损耗在60 K出现峰值; 施加0.2 T的磁场时, 介电损耗在测量区间内随温度的升高单调减小. 随着磁场的增大, 曲线的单调性更加显著, 损耗也进一步减小, 最大变化率出现在60 K (图5(b)插图).

4 结 论

本文采用脉冲激光沉积法在LAO单晶衬底上制备了BTO与全半导体态LSMO构成的磁电复合薄膜, 薄膜显示出良好的外延生长特性和较低的粗糙度. 研究了20—300 K温度区间内磁场对电极化特性和介电特性的影响. 研究发现, 施加磁场使得电滞回线的剩余极化强度和矫顽场均增大, 其磁致变化率在低温区域较为显著, 其峰值分别达到了111.9%和89.6%, 峰值温度分别为40 K和60 K. 异质结的介电特性也受到磁场的强烈影响, 在所测量的温度区间内, 磁场使得介电常数增大, 最大变化率出现在60 K. 该磁电复合薄膜的磁致电极化和磁介电特性的极值均出现在LSMO层的磁电阻峰值温度附近, 这说明磁场对电滞回线的调制应该源自电荷相关的耦合作用. 其可能的机理是磁场使得锰氧化物中的Mn离子局域磁矩趋于有序排列, 并通过自旋轨道耦合以及界面效应间接影响了BTO的电极化特性. 本文的研究对于多铁器件的开发和应用具有重要意义.

参考文献

- [1] Li Q, Wang D H, Cao Q Q, Du Y W 2017 *Chin. Phys. B* **26** 097502
- [2] Wang J Y, Luo B C, Wang S H, Xing H, Zhai W 2018 *Mater. Lett.* **212** 151
- [3] Wang J Y, Liu G, Sando D, Nagarajan V, Seidel J 2017 *Appl. Phys. Lett.* **111** 092902
- [4] Li Y C, Zhou H, Pan D F, Zhang H, Wan J G 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 099701 (in Chinese) [李永超, 周航, 潘丹峰, 张浩, 万建国 2015 物理学报 **64** 099701]
- [5] Liu E H, Chen Z, Wen X L, Chen C L 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 117701 (in Chinese) [刘恩华, 陈钊, 温晓莉, 陈长乐 2015 物理学报 **64** 117701]
- [6] He H C, Wang J, Zhou J P, Nan C W 2007 *Adv. Funct. Mater.* **17** 1333
- [7] Geprägs S, Mannix D, Opel M 2013 *Phys. Rev. B* **88** 054412
- [8] Zhou J P, He H C, Shi Z, Nan C W 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 013111

- [9] Chopdekar R V, Suzuki Y 2006 *Appl. Phys. Lett.* **89** 182506
- [10] Deng C, Zhang Y, Ma J, Lin Y, Wen C W 2007 *J. Appl. Phys.* **102** 074114
- [11] Valencia S, Crassous A, Bocher L, Garcia V, Moya X, Cherifi R O, Deranlot C, Bouzehouane K, Fusil S, Zobelli A, Gloter A, Mathur N D, Gaupp A, Abrudan R, Radu F, Barthélémy A, Bibes M 2011 *Nat. Mater.* **10** 753
- [12] Jedrecy N, von Bardeleben H J, Badjeck V, Demaille D, Stanescu D, Magnan H, Barbier A 2013 *Phys. Rev. B* **88** 121409
- [13] Liu J M, Wang K F 2005 *Prog. Phys.* **25** 82 (in Chinese)
[刘俊明, 王克锋 2005 物理学进展 **25** 82]
- [14] Murugavel P, Padhan P, Prellier W 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 4992
- [15] Singh M P, Prellier W, Mechin L, Raveau B 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 012903
- [16] Lee Y P, Park S Y, Hyun Y H, Kim J B, Prokhorov V G, Komashko V A, Svetchnikov V L 2006 *Phys. Rev. B* **73** 224413
- [17] Wang C C, He M, Yang F, Wen J, Liu G Z, Lu H B 2007 *Appl. Phys. Lett.* **90** 192904
- [18] Li T X, Zhang M, Hua Z, Yan H 2001 *Solid. State. Commun.* **151** 1659
- [19] Li T X, Zhang M, Yu F J, Hu Z, Li K S, Yu D B, Yan H 2012 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **45** 085002
- [20] Fiebig M 2005 *J. Phys. D* **38** R123
- [21] Thiele C, Dorr K, Bilani O, Rodel J, Schultz L 2007 *Phys. Rev. B* **75** 054408
- [22] Molegraaf H J A, Hoffman J, Vaz C A F, Gariglio S, van der Marel D, Ahn C H, Triscone J M 2009 *Adv. Mater.* **21** 3470

Magneto-induced polarization enhancement and magneto-dielectric properties in oxygen deficient $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_{3-\delta}/\text{BaTiO}_3$ composite film*

Wang Jian-Yuan[†] Bai Jian-Ying Luo Bing-Cheng Wang Shuan-Hu
Jin Ke-Xin Chen Chang-Le

(MOE Key Laboratory of Materials Physics and Chemistry under Extraordinary Conditions, Northwestern Polytechnical University, Xi'an 710072, China)

(Received 12 September 2017; revised manuscript received 19 November 2017)

Abstract

Magnetoelectric composite film is an important type of multiferroic materials, which is usually composed of typical ferromagnetic and ferroelectric materials. For the ferroelectric layer, BaTiO_3 (BTO) attracts much attention due to its lead-free characteristic. For the ferromagnetic layer, doped manganite ($R_{1-x}A_x\text{MnO}_3$) has been a good candidate for designing the advanced multiferroic films. Multiple interactions among the freedom degrees of charge, orbital, spin and lattice inside the doped manganite bring many additional properties into the manganite based composite films. At present, most of researches of manganite/BTO focus on the stoichiometric oxygen ion in manganite. Considering the fact that the oxygen deficiency can remarkably adjust the properties of manganite itself and relevant heterostructure by the interface effect, abnormal magnetoelectric properties are expected in an oxygen deficient manganite/BTO composite film.

In this work, a composite film composed of BTO and oxygen deficient $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_{3-\delta}$ (LSMO) is deposited on LaAlO_3 001 substrate by the pulsed laser deposition method, and the effects of magnetic field on the properties of polarization and dielectric in a temperature range of 20–300 K are investigated. The X-ray diffraction pattern reveals good epitaxial growth of this bilayer film. The upper LSMO film exhibits semiconductive characteristic ($dR/dT < 0$) in a temperature range of 20–300 K. Magnetization curves indicate that the LSMO keeps ferromagnetic state without any magnetic phase transition in this temperature range. When applying a magnetic fields of 0.8 T, the resistance in LSMO is observed to decrease. The changing rate $MR = |R_{0.8\text{ T}} - R_{0\text{ T}}|/R_{0\text{ T}}$ decreases from 45.28% at 30 K to 0.15% at 300 K. This composite film exhibits remarkable temperature-dependent magneto-induced ferroelectric and dielectric change. It is found that the remanent polarization (P_r) and coercive electric field (E_c) are enhanced by the 0.8 T magnetic field. The maximum changing rates of P_r and E_c are 111.9% and 89.6% at the temperatures of 40 K and 60 K, respectively. The magnetic field enhances the dielectric constant ε , but suppresses the dielectric loss $\tan\theta$. The maximum changing rates of ε and $\tan\theta$ both occur at 60 K with the values of 300% and 50.9%. The temperature at which appear the maximum magneto-induced relative changes of polarization and dielectric parameters is accordant with the temperature at which occurs the peak value of magnetoresistance, which indicates a charge-based coupling in this heterojunction. A potential mechanism is that the magnetic field promotes the degree of parallelism of local spin magnetic moment of Mn ion, and produces an indirect effect on BTO layer by the spin-orbital coupling and interface effect. Our findings make the oxygen deficient LSMO/ BTO heterojunction promising for the design of multiferroic devices.

Keywords: manganite, multiferroic, magneto-dielectrics

PACS: 77.55.Nv, 73.43.Qt, 75.70.Cn

DOI: 10.7498/aps.67.20172019

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51402240, 51471134, 11604265) and the “Ao Xiang Xin Xing” Foundation in NWPU, China.

[†] Corresponding author. E-mail: wangjy@nwpu.edu.cn