

微纳尺度多铁异质结中电驱动磁反转

宋晓 高兴森 刘俊明

Electric field driven magnetic switching in nanoscale multiferroic heterostructures

Song Xiao Gao Xing-Sen Liu Jun-Ming

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 67, 157512 (2018) DOI: 10.7498/aps.67.20181219

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20181219>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2018/V67/I15>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

[Ruddlesden-Popper 结构杂化非本征铁电体及其多铁性](#)

Hybrid improper ferroelectricity and multiferroic in Ruddlesden-Popper structures

物理学报.2018, 67(15): 157503 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180317>

[基于磁电耦合效应的基本电路元件和非易失性存储器](#)

Fundamental circuit element and nonvolatile memory based on magnetoelectric effect

物理学报.2018, 67(12): 127501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20180712>

[引入界面耦合系数的长片型磁电层状复合材料的等效电路模型](#)

Equivalent circuit model for plate-type magnetoelectric laminate composite considering an interface coupling factor

物理学报.2018, 67(2): 027501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.67.20172080>

[多铁材料 \$\text{HoMnO}_3\$ 中光学吸收和畸变驱动的第一性原理研究](#)

Research on optical absorption and distortion driving in multiferroic HoMnO_3 from the first principles

物理学报.2013, 62(12): 127502 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.127502>

[Terfenol-D/PZT 磁电复合材料的磁电相位移动研究](#)

Phase drift of magnetoelectric effect in Terfenol-D/PZT composite materials

物理学报.2013, 62(1): 017501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.017501>

多铁性: 物理、材料及器件专题

微纳尺度多铁异质结中电驱动磁反转*

宋骁¹⁾ 高兴森^{1)†} 刘俊明²⁾

1) (华南师范大学, 先进材料研究所及量子调控工程与材料广东省重点实验室, 广州 510006)

2) (南京大学, 固体微结构国家实验室, 南京 210093)

(2018年6月24日收到; 2018年7月10日收到修改稿)

近年来, 多铁异质结中电控磁性研究引起了广泛关注, 已成为多铁领域的热点. 现代自旋电子学器件(如磁内存)通常利用电流产生的磁场或自旋转移扭矩效应驱动磁反转来实现数据擦写, 但这带来高额能耗和热量, 成为亟待解决的关键难题. 而利用多铁异质结实施电场驱动磁反转则有望大幅降低能耗, 从而实现高速、低能耗、高稳定性新型高密度磁存储、逻辑及其他自旋电子学器件. 在当前器件发展的微型化趋势下, 探索可集成化的微纳尺度电场驱动磁反转方案显得越发重要. 本文针对发展新型磁电器件所面临的微型化关键问题, 回顾了微纳尺度电场驱动磁反转研究的新进展, 主要关注小尺度多铁异质结中电控磁的新特点、新方法及相关物理机理的实验和理论成果, 讨论了进入纳米尺度将面临的挑战, 并对未来研究工作提出一些展望.

关键词: 电场驱动磁反转, 多铁性材料, 纳米磁体, 磁电随机存储器

PACS: 75.85.+t, 75.60.Jk, 77.80.-e, 77.90.+k

DOI: 10.7498/aps.67.20181219

1 引言

近20年来, 多铁性材料研究发展迅猛, 已成为凝聚态物理领域的重要内容. 有关多铁性材料所蕴含的电子-自旋-晶格相互交叉耦合所带来的丰富多彩的新颖物性及在器件上的潜在用途, 前人已有系统综述^[1-9]. 近年来, 利用多铁异质结进行电场调控磁性也引起了广泛关注^[10-12]. 在现代电子学器件(如磁内存, 磁随机存储器件)中, 主要依靠电流产生的磁场或者自旋转移扭矩 (spin transfer torque) 效应驱动磁反转来实现数据写入和擦除, 而这需要巨大电流密度 (10^6 — 10^8 A/cm²), 从而带来较大能耗、发热并导致复杂的器件架构^[13-17]. 如果采用多铁异质结实施电场驱动磁反转(见图1)^[5,18], 则有望大幅降低这类器件的能耗并简化器件架构, 形成新一代的磁电存储

(MERAM)、逻辑和自旋电子学器件. 随着当前大数据技术的飞速发展, 人们对高密度、高速、长寿命、低能耗信息存储和处理器件的需求日益增长, 对现有存储技术带来严峻的挑战, 而基于多铁异质结的电场驱动磁反转技术有望为未来数据存储和处理带来一种颠覆性的解决方案, 也因此短短几年成长为多铁性材料的研究热点^[10-12,19-24].

近十年来, 科学家们已探索了众多不同材料组分和结构的多铁性异质结体系, 取得了一系列激动人心的突破, 并揭示了多种新颖的电控磁机理, 主要可归纳为以下几类: 界面应力媒介型^[25]、界面磁交换耦合型^[26]、电荷媒介型^[27,28]、界面轨道杂化型^[29]. 这些发现为实现电场调控磁性提供了多种有效手段, 也为新一代磁电器件, 包括磁电内存、磁电逻辑、电辅助磁存储介质、电场可调微波器件等^[5,11,30]的开发应用提供了依据. 这些重要成果, 体现在国内外科学家发表的一系列综述论文

* 国家重点研发计划 (批准号: 2016YFA0201002)、国家重点基础研究发展计划 (批准号: 2015CB921202)、国家自然科学基金 (批准号: 11674108, 51272078)、广东高校珠江学者特聘教授计划 (2014)、广东省科技计划应用型资金专项 (批准号: 2015B090927006) 和广东省自然科学基金 (批准号: 2016A030308019) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: xingsengao@scnu.edu.cn

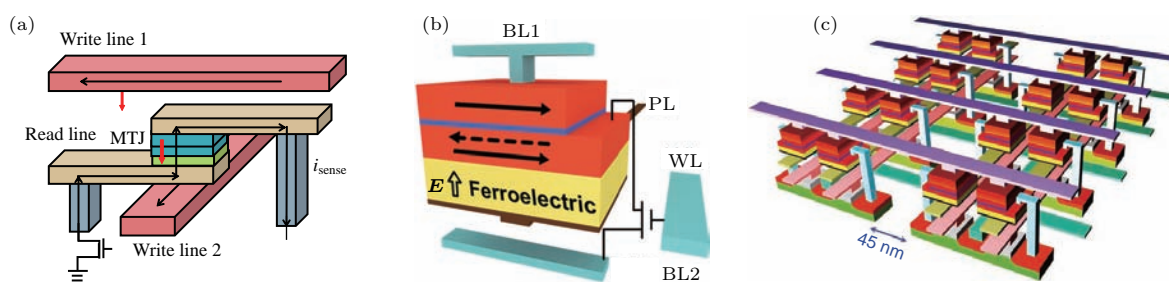


图1 磁存储器结构示意图 (a) 磁随机存储器单元结构; (b) 设想的基于电控磁的磁电随机存储器 (MERAM) 单元 [5]; (c) 磁电存储器阵列结构示意图 [18]

Fig. 1. Schematics of magnetic memory devices: (a) Simplified unit cell structure of magnetic random access memory; (b) unit cell structure of magnetoelectric memory device [5]; (c) crossbar architecture of a high-density magnetoelectric memory device [18].

之中 [24–37], 例如 Vaz [10]、Sun [11]、Ramesh [26]、南策文 [5,30]、刘俊明 [31]、段纯刚 [32]、张金星 [33]、宋成 [6]、高兴森 [34] 等课题组已从不同角度对该领域进展做了总结。

随着电控磁研究的快速发展, 开始向高密度器件应用研究推进, 微型化问题也变得越发重要, 尤为迫切的是探索微小尺度器件单元内电场驱动磁反转的行为. 而当磁性材料缩小到微纳尺度, 尺寸和表面效应作用凸显, 特别是形状各向异性(退磁化能)和畴壁能变大, 显著影响磁畴结构及磁反转行为. 这也导致微型化多铁异质结中电控磁反转行为表现出与传统薄膜或块体异质结不同的新特点 [38,39], 同时也带来了几种调控新方法, 如形状各向异性辅助应力调控以及基于交换耦合的电控磁翻转等, 并初步实现了微纳尺度电驱动往复磁反转. 这些进展为进一步建构电控磁器件打下了很好的实验和理论基础, 同时也需意识到微型化过程还面临诸多挑战, 因此有必要对该领域的研究进展和其中的关键挑战进行总结。

本文主要回顾了近年来微纳尺度多铁异质结的电场驱动磁反转的研究进展, 而有关薄膜和块体的电控磁研究已有系统总结 [24–39], 这里不再赘述. 本文着重介绍了微纳尺度电控磁的几种新特点、新方法和新机理, 最后针对器件化需求梳理了纳米尺度电控磁中面临的关键问题, 并对未来研究工作进行了展望。

2 应变媒介耦合机理驱动磁反转

当前, 通过多铁异质结的界面应变媒介耦合机理来进行电场调控磁性的方法已得到广泛研究。

这类异质结主要由压电层(如 $\text{Pb}(\text{Mg}_{2/3}\text{Nb}_{1/3})\text{-PbTiO}_3$ (PMN-PT) 的单晶衬底) 和铁磁层形成的双层或多层结构构成. 通过外加电场在铁电层产生压电应变并传递给铁磁层, 而后者则通过逆磁致伸缩效应来改变磁弹各向异性, 最终使得铁磁层的磁化强度产生变化或产生磁化翻转. 在薄膜或块体多铁异质结中, 通过应变媒介机理, 已实现了电场改变铁磁层的磁化强度 [40]、矫顽场 [41]、各向异性易磁轴 [42], 也实现了电驱动磁化方向 90° 翻转 [43–45]. 当尺度缩小后, 形状各向异性为这类电控磁提供了新的自由度和调控新方法, 下面分类介绍这方面的进展。

2.1 电场驱动 90° 磁化翻转

上面提到, 在薄膜或块体异质结中, 电场可通过应变媒介驱动磁各向异性易磁轴 90° 转动, 从而诱导磁化方向 90° 重定向. 微型化后, 其具体翻转特性则有所不同. 如 Finizio 等 [46] 在 (110) 取向的 PMN-PT 衬底上生长 $2 \mu\text{m}$ 大小的 Ni 微米点并观测了电控磁畴变化(如图 2(a) 和图 2(b) 所示). 可以看到, 由于退磁化作用, 初始磁畴显示出流量闭合涡旋状态; 在压电衬底施加正电压后, 衬底产生 x 方向拉伸, 易磁轴转向 y 轴方向; 而施加负电压后, 易磁轴转向 x 轴方向, 不过其整体铁磁畴还是保持流量闭合涡旋态。

由于器件小型化的需求, 研究更小尺度异质结的电控磁行为显得更为重要. Buzzi 等 [47] 利用电子束光刻技术, 在 (011) 取向的 PMN-PT 上, 制作了 $150 \text{ nm} \times 100 \text{ nm}$ 椭圆形的 Ni 纳米阵列结构, 如图 3(a) 和图 3(b) 所示. 由于尺寸的减少导致畴壁能增加可使纳米磁点呈单畴态. 当增大外电压使得

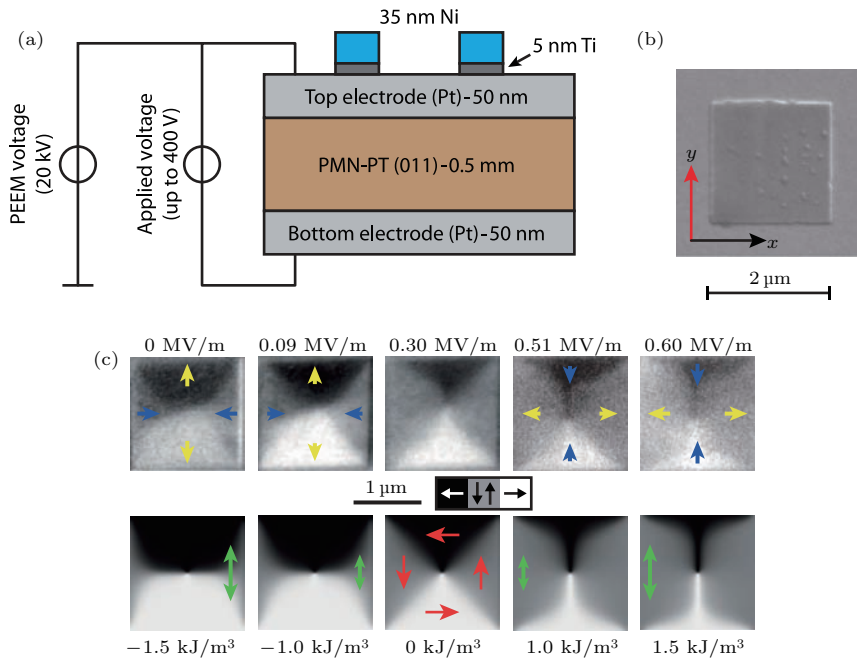


图2 Ni(微米磁点)/PMN-PT(压电单晶衬底)多铁异质结中电场调控磁畴变化^[46] (a) 样品结构示意图; (b) 方形Ni微米磁点的扫描电子显微镜像; (c) 施加不同电场后方形磁点的磁畴结构变化X射线磁圆二次色谱光电子显微镜(XMCD-PEEM)像(上排)和相应的微磁模拟衬度像(下排),其中上排图形中的箭头表示应力方向,下排箭头表示磁畴方向

Fig. 2. Electric field control of magnetic domains in a multiferroic heterostructure consisting of patterned micrometred Ni magnet on PMN-PT single crystal^[46]: (a) Schematic diagram of the multiferroic heterostructure; (b) scanning electron microscopy image of a 2 μm-wide Ni square magnet; (c) evolution of the magnetic domains imaged by XMCD-PEEM under various electric fields for the Ni magnet (upper panels), and the corresponding micromagnetic simulation images (bottom panels), in which the arrows indicate the directions of strain (upper panels) and orientations of local magnetic moments (lower panels).

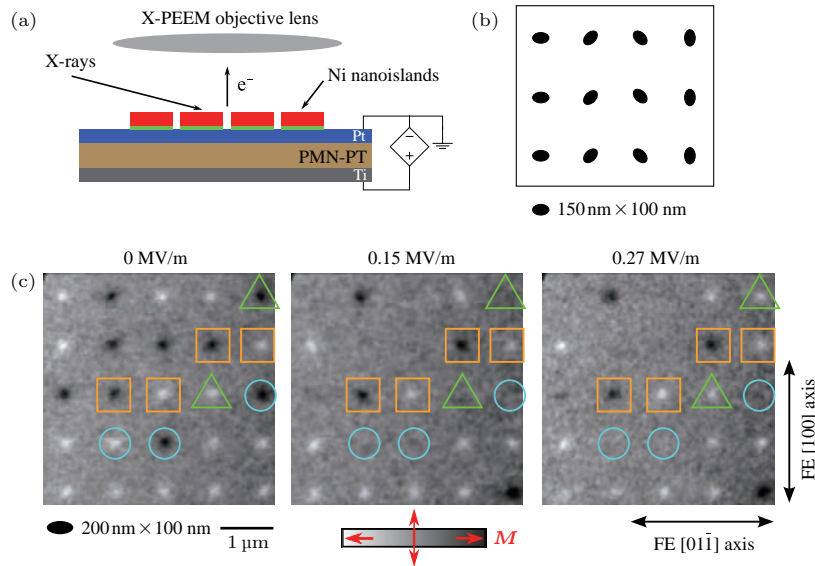


图3 Ni椭圆纳米岛/PMN-PT(110)多铁异质结中电场操纵磁畴翻转^[47] (a) 实验样品结构示意图; (b) 样品中椭圆Ni纳米岛阵列的形状和取向示意图; (c) 施加不同电场下Ni纳米岛阵列磁畴变化的XMCD-PEEM像,其中圆形、方形和三角形标记的纳米点显示出三种不同的磁翻转行为

Fig. 3. Electric-field control of magnetic switching of single domain nanomagnets in Ni/PMN-PT(110) multiferroic heterostructures^[47]: (a) Schematic of the structure of the heterostructure; (b) schematic of a Ni array of 150 nm × 100 nm nano-islands for the test region, in which long axis of the ellipses are aligned along 90°, -45°, 45°, and 0° directions; (c) the evolution of the XMCD-PEEM images of the magnetic domains for the Ni nano-ellipses under three different applied electric fields, in which the Ni nano-ellipses marked by circles, squares, and triangles respectively represent different types of magnetic switching behaviours.

各向异性易磁轴转向 90° 方向, 观察到部分椭圆Ni纳米岛(见绿色三角形标定)的磁畴也随着转动到 90° 磁化方向; 而当继续加大电压导致易磁轴转回原方向时, 一部分磁点也随着转到了 180° 方向, 但也有部分转回初始态, 或停留在 90° 方向, 如图3(c)所示. 这表明压电效应可以导致纳米尺度 90° 切换, 并具有一定的非易失性, 具备器件应用的潜力. 但不同的纳米点磁翻转行为并不一致, 不利于器件应用. 赵永刚研究组^[48]仔细研究了类似PMN-PT/微米磁盘结构中的电驱动磁畴翻转的不均匀性, 将其归结于PMN-PT衬底上不同区域存在不同铁电畴翻转模式所致. 为解决这一挑战, 还需探求新的方法, 如实现铁电衬底上均匀且确定性的畴翻转, 或利用非铁电的压电材料等.

2.2 电场驱动 180° 磁化反转

虽然电压可诱导产生 90° 的磁畴旋转, 但在磁存储器件中(如磁随机存储器件), 较为理想的是 180° 确定性的磁化反转. 然而仅仅依靠常规应变调控, 难以获得可控超过 90° 的往复翻转. 2014年, 李晓光研究组^[49]在PMN-PT/Co多层膜异质结中,

通过衬底侧面施加电压产生的应变来诱导磁各向异性轴 90° 转动, 在加电场同时辅助以微弱的动态磁场(~ 5 Oe, $1 \text{ Oe} = 10^3/(4\pi) \text{ A/m}$), 实现了可控的 180° 往复磁化反转, 迈出了重要一步. 然而, 施加微弱磁场也增加了器件的复杂性, 纯电场驱动 180° 磁畴反转依旧是电控磁研究追求的核心目标. 基于微纳磁体的形状各向异性, 人们提出了几种纯电场驱动 180° 磁反转的调控方案.

1) 动力学调控方案. 我们知道, 由于施加纯应变难以打破时间反演对称, 无法驱动 180° 磁反转, 然而通过高速应变脉冲可产生非平衡过程, 则有可能打破时间反演对称^[50-52]. 如通过施加高速应力脉冲使易磁轴转向垂直方向, 这导致磁化转向并开始围绕新平衡点做阻尼进动, 当磁矩方向反向偏离平衡点时撤销脉冲, 磁矩就会顺着惯性转到 180° 方向. 南策文课题组^[53]利用微磁学模拟, 验证了Ni(纳米结构)/PZT异质结中这种动力学反转的可行性(如图4), 发现通过精确控制电压、脉冲等参数, 可实现纯电场驱动磁化 180° 反转多次. 该课题组也设计了在PZT上生长制备CoFeB椭圆磁点,

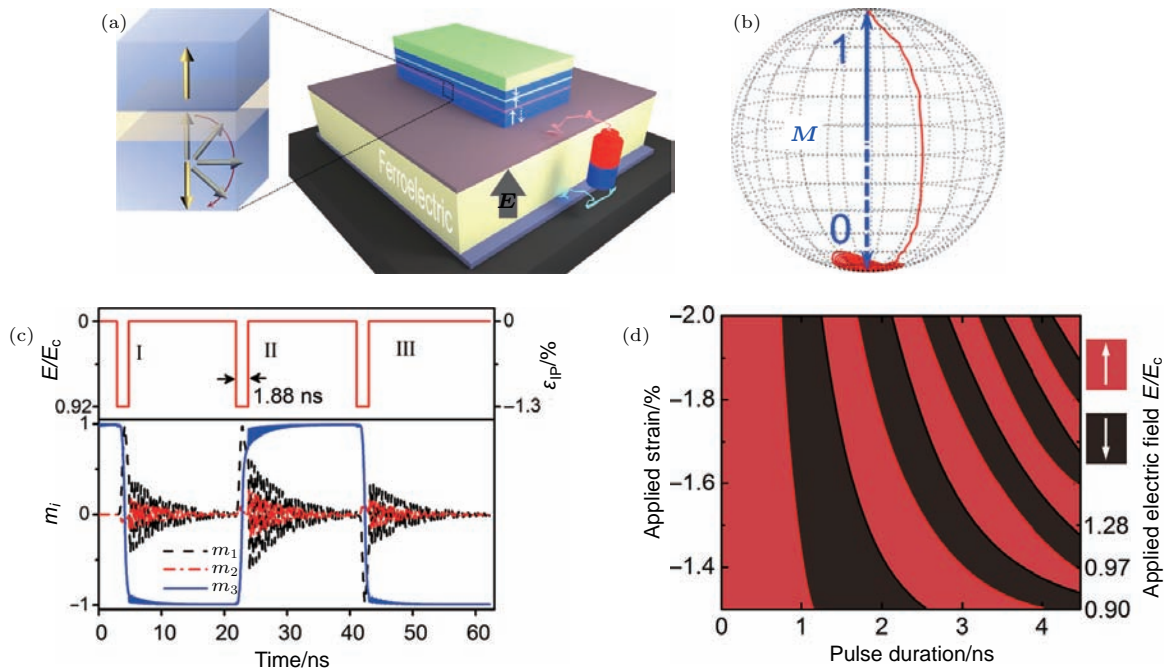


图4 通过动力学阻尼进动调控实现纯电场驱动 180° 磁化反转的相场模拟^[53] (a) 具面外磁化的Ni(纳米磁点)/PZT异质结构的磁反转示意图; (b) 磁化反转轨迹; (c) 多个周期的磁化反转过程中不同方向的磁矩分量随时间的变化; (d) 磁化反转实现条件窗口-应力和脉冲宽度关系的相图

Fig. 4. Purely electric-field-driven full 180° magnetization reversal via successive precession in multiferroic heterostructure by phase-field simulation^[53]: (a) Schematic of the Ni (nanomagnet)/PZT heterostructure; (b) magnetic precession reversal path of the Ni nanomagnet; (c) evolution of the three components of the magnetization as a sequence of time during the repeatable 180° magnetization reversal driven by square-waves electric field; (d) the phase diagram of the switching windows as function of strain and pulse-width.

利用微磁学模拟展示了水平施加电场导致面内磁矩 [54] 以及面外磁矩 180° 反转 [55]. 类似结果在 Co/PMN-PT [56] 也有报道, 但也发现翻转中容易陷入磁涡旋态而导致反转失败, 需要精准设计各项参数才可绕过涡旋态顺利实现 180° 反转. 最近, Preobrazhensky 等 [57] 也模拟了利用这种方法构建器件并计算了器件性能, 指出这种器件具有超低耗能特性, 当磁点尺度为 50 nm, 读写能耗可小至 5 aJ/bit. 然而, 这种磁翻转必须在一个严苛的实验条件下实现, 即需要精确地设计和控制各种参数 (如电脉冲时间需要控制在 1 ns 精度), 因此实验操作上还存在着巨大挑战.

2) 形状辅助多步磁翻转. 为克服动态调控对脉冲时间等参数苛刻的精度要求, 人们还发展了几何

形状调控和多步翻转相结合的方法, 即设计特殊几何形状的磁结构 (产生多轴磁各向异性), 然后施加准静态的电脉冲, 通过两步 (或多步) 翻转办法实现 180° 翻转. 2014 年, 南策文和陈龙庆等 [58] 合作在 PMN-PT 衬底上设计出花瓣状具有四重对称的纳米磁结构, 并通过相场模拟预测了通过 2 步翻转可实现 180° 反转 (如图 5 所示). 首先施加正电压, 由于衬底应变作用导致易磁化轴转向略小于 90°, 使得磁化方向也随着易磁化轴旋转 90°, 而撤掉电压后磁化方向则松弛到 90° 方向的形状各向异性易磁轴; 然后再施加负电压脉冲, 磁畴依类似过程旋转 90° 达到 180° 方向. 这里, 每次易磁轴转向都小于 90°, 可使磁化方向随着易磁轴一起转向夹角小于 90° 的易磁轴方向, 确保每次转向都是沿确定方向.

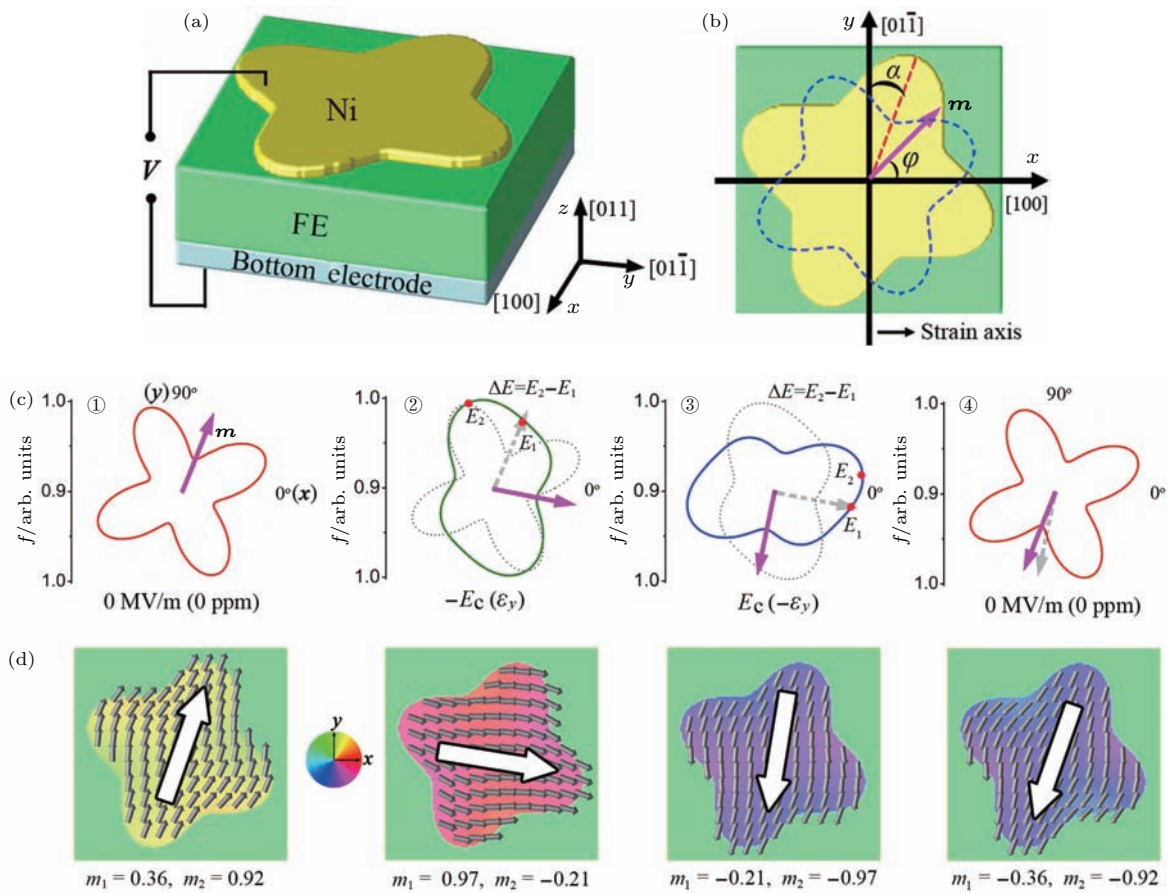


图 5 人工形状辅助电驱动磁反转方法的相场模拟 [58] (a) 在 (011) 方向的 PMN-PT 单晶上生长四重对称的“花瓣状”Ni 纳米磁体的磁电异质结构示意图; (b) Ni 纳米磁体各向异性极坐标图; (c), (d) 两步翻转实现 180° 磁反转机理, (c) Ni 纳米磁体在不同电压下的总各向异性变化极坐标图和 (d) 相应的磁畴结构演变图, 其中箭头表示净磁矩方向

Fig. 5. Phase-field simulation approach of electric-field driven magnetization reversal assisted by “flower”-shaped patterned magnet [58]. (a) Schematic of the heterostructure of a flower-shaped patterned nanomagnet with four-fold shape symmetry grown on a ferroelectric layer (011)-PMN-PT. (b) Shape anisotropy of a nanomagnet. (c), (d) Evolution of total anisotropy and magnetic states at four different electric fields, illustrating the reversal mechanism: total anisotropy (c) and corresponding magnetic states (d), in which the arrows present the orientation of net magnetization.

为实现脉冲 180° 翻转, 还设计了一种独特的花生状纳米结构^[59], 如图6所示. 这种结构的形状各向异性, 具有主轴和次轴, 其磁矩主方向沿着主轴方向而两端界面处磁矩则向次轴向弯曲. 当施加电压引起易磁轴转向时, 磁矩转 90° 两端磁矩依旧向次轴向弯曲(保持顺时针). 当撤销电场, 易磁轴转回到主轴方向, 由于受两端磁矩弯曲影响磁化方向继续沿顺时针转 90° , 最终达到 180° 反转. 这种“次轴设计”起非常重要的作用, 确保施加电场前后磁矩总沿顺时针方向转动而并不会回转, 类似风车转动, 实现确定性的 180° 转动. 利用这种方法, 还可通过设计四重对称轴磁体, 使得磁畴在四个方向切换, 从而产生“四态存储”概念^[60]. 这种方法是一种准静态方法, 对脉冲时间控制精度要求并不高, 然而增加了器件微加工精度要求和操作复杂性.

3) 多轴电场脉冲驱动磁反转. 此外, 还发展了通过施加多个方向的电场产生多轴应变来驱动磁翻转的方法, 即通过施加不同方向的电场, 产生不同方向各向异性, 驱动产生 180° 磁翻转.

2013年, Cui等^[61]在Ni/PZT异质结中Ni磁点周围的PZT上生长了两对垂直纳米电极, 通过不同电极分别施加不同方向的水平电场, 可在Ni磁岛上产生不同方向各向异性导致不同方向的磁转动.

2017年, Biswas等^[62]用实验验证了这种方法. 如图7所示, 在PMN-PT上面制备两对交叉电极, 而电极中间是Co椭圆纳米磁点. 当通过一对电极(AA'或BB')施加水平电场, 电极正下方的压电材料沿着电场方向拉伸, 产生与电极方向垂直的易磁轴, 导致磁矩转动一个角度. 在该脉冲还没结束时, 通过在另一对电极上施加不同方向的脉冲, 使得磁畴继续转动一个角度. 当脉冲结束时, 磁畴可松弛到 180° 方向. 值得一提的是, 由于两电极的轴线与纳米点长轴有一个 30° 的夹角, 使得易磁轴每次转动都小于 90° , 保证磁化转动都沿着同一个方向进行. 这种方法是一种准静态过程, 对脉冲时间和实验参数的控制精度要求没有动力学调控法那么苛刻, 在实验上易于实现. 遗憾的是由于界面钉扎作用以及电畴不均匀性, 只有部分磁点可以 180° 翻转, 还需努力提高磁反转的一致性.

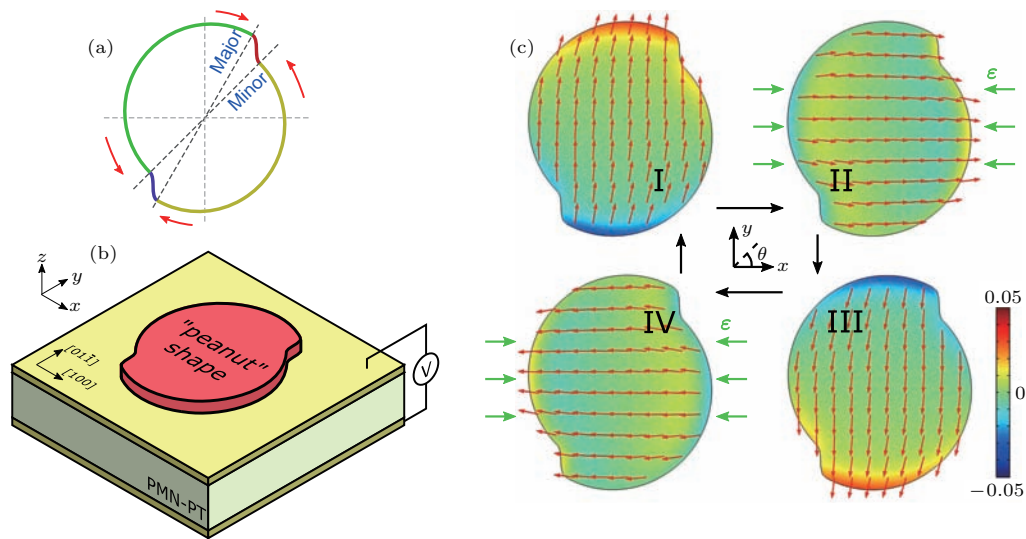


图6 利用“花生”状纳米磁体辅助电驱动 180° 磁转^[59] (a) 纳米磁结构设计, 其中不对称凹口的椭圆形状导致产生各向异性的主轴和次轴; (b) 异质结的结构示意图, 主要为PMN-PT衬底生长“花生”状纳米磁体; (c) 在单脉冲电场下驱动 180° 往复翻转中微磁畴演化图, 通过施加单个电场脉冲可导致顺时针 90° 翻转, 而电脉冲撤销后可继续转 90° 松弛到 180° , 而再施加相同脉冲后则再转 180° 回到初始状态, 其中特殊设计的次轴可确保只发生顺时针单向转动

Fig. 6. A theoretical approach of electric driven magnetization reversal assisted by “peanut” shaped nanomagnet^[59]: (a) Schematic diagram for the design of the “peanut” shaped nanomagnet, in which an ellipse shape with two notches give rise to both a major and a minor easy axis of shape anisotropy; (b) schematic of the device structure, consisting of the “peanut” shaped nanomagnet on a PMN-PT substrate; (c) the evolution of micromagnetic states of the nanomagnet demonstrates a back and forth cycle of 180° reversal triggered by using a single electric pulse; here, a single electric can rotate the magnetization for 90° first and then relax to 180° direction after removing the field, and second electric can switch the magnetic state back, in which special designed minor axis can help ensure that the magnetic state rotation is only along clockwise direction.

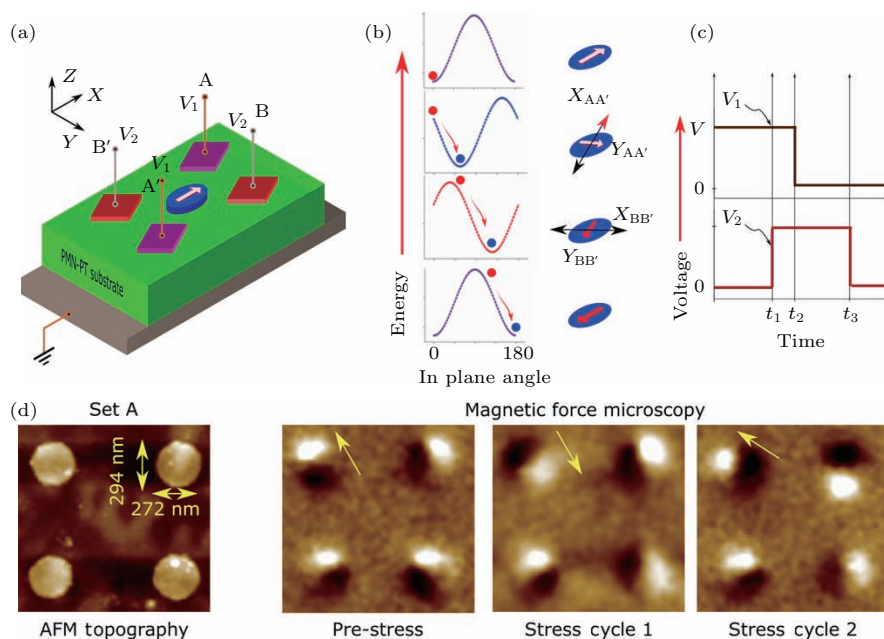


图7 双电场方法诱导180°磁化反转的实验^[62] (a) PMN-PT衬底生长椭圆磁性Co点的结构示意图,其中衬底制备两组电极AA'和BB'用于施加水平方向电场,电场方向与椭圆磁点主轴成+30°和-30°夹角;(b)施加电场过程中系统的能量(左)和磁畴(右)演化示意图;(c)驱动磁反转使用的两个连续电脉冲示意图;(d)电场驱动磁反转后磁畴的磁力显微镜(MFM),从左到右分别为磁性Co点的原子形貌像以及初始状态、第一次双电场驱动反转和第二次反转后的MFM像,图中箭头标出磁矩方向

Fig. 7. Experimental approach of strain-induced complete 180° magnetization reversal by using two in-plane electric field pulses^[62]: (a) The schematic diagram of the multiferroic heterostructure consisting of elliptical Co nanomagnets on PMN-PT single crystal substrate, in which 2 pairs of electrodes were also fabricated on the PMN-PT that allow applying in-plane electric field along AA' and BB' directions, with angles of +30° and -30° respectively to the major axis of the elliptical nanomagnet; (b) the schematic diagram for the evolution of potential energy (left) and domain states (right), where the electric field generate an anisotropy with easy axis perpendicular to the electric fields; (c) the timing diagram of the voltage pulses at the two electrode pairs; (d) atomic force microscopy (AFM) image at initial state, MFM images at initial state, after the first reversal, and second reversal; the arrows in the MFM images mark the net magnetization orientations of the nanomagnets; MFM images show the domain changes before and after electric driven magnetization reversal for four nanomagnets.

3 界面交换耦合驱动

界面自旋交换耦合也是近年来受到广泛关注的电控磁机理,主要通过铁电反铁磁/铁磁层异质结中界面自旋的交换耦合来实现电控磁性.近年来,在基于铁酸铋(BiFeO₃, BFO)/铁磁微米结构组成的多铁异质结中,通过交换耦合驱动磁翻转研究取得了一系列重要进展. BFO是一种罕见的单相室温多铁材料,具有优越的铁电性(居里点820 °C)及反铁磁性(奈尔温度为370 °C),引起了广泛研究.实验表明BFO的反铁磁畴与铁电畴紧密耦合,因此可通过电场改变极化来调控反铁磁畴,进而操控BFO上生长的铁磁层的畴结构.如Zhao等^[63]用XMCD-PEEM观测到铁电畴和反铁磁畴紧密耦合的证据,并可以通过电驱动极化109°反转导致反铁磁畴变化. Martin等^[64,65]则研究了BFO/铁磁薄膜之间的交换偏置,发现BFO的109°

畴可以产生明显交换偏置作用,而71°条带畴却只能产生矫顽场增强而无交换偏置. Wu等^[66]研究了BFO/(La,Sr)MnO₃(LSMO)之间的交换偏置的电场调控作用,发现在低温下,其交换偏置场可在电场驱动下多次反复反转,这主要归因于界面杂化使得交换偏置增强的缘故.然而,目前利用BFO的交换偏置来调控磁翻转努力并不成功,主要由于109°畴在电场下不稳定而容易变化成没有交换偏置的71°畴,而全氧化物异质结(如BFO/LSMO)虽能获得更强更可控的交换偏置场,但工作温度远低于室温.

另一方面,通过不具有交换偏置的交换耦合来驱动磁反转则取得多项突破.由于BFO自旋的Dzyaloshinskii-Moriya (DM)相互作用,自旋序形成一种特殊的倾角反铁磁(canting antiferromagnetic)结构,其反铁磁序的两个相反方向的自旋带有一定小倾角,使磁矩不能完全抵消形成微小倾角磁矩^[67].通常在BFO块体中,自旋序呈螺旋状,导

致倾角小磁矩也相互抵消, 净磁矩几乎为零. 但在薄膜中, 螺旋序受到不同程度的抑制, 可产生微小的净倾角磁矩 (M_c). 如在BFO薄膜上生长软磁膜形成多铁异质结, 界面层附近 M_c 与软磁膜具有一定的交换耦合作用^[68], 相当于在软磁膜中产生了方向与 M_c 一致的交换耦合场, 也因此可通过外加电场调控这一界面耦合来驱动软磁层磁化反转. 下文主要介绍BFO-基多铁异质结中电控磁反转研究进展.

3.1 水平电场驱动磁翻转

早在2008年, 朱英豪和Ramesh研究组^[69]便尝试利用BFO对铁磁微米点进行调控, 实现了 90° 磁化翻转并初步揭示了界面耦合机理. 主要在具条带畴的BFO薄膜上生长软磁 $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}$ (CoFe) 微米点, 通过水平方向施加电场实现了电场诱导磁点的净磁矩 90° 往复翻转(见图8), 这也引发了人们对BFO基异质结电控磁的关注. 2011年, Ramesh研究组^[70]进一步在具 71° 条带畴的BFO薄膜上生长的CoFe微米磁结构中观测到电控净磁矩 180°

反转切换. 研究表明, 该BFO基底是由两组相互间 71° 夹角条带畴交叠而成, 其水平分量夹角 90° . 在外加水平电场后, 虽然每组电畴水平分量只旋转 90° (71° 铁弹翻转), 但是总的水平净极化产生了 180° 反转(图9). 由于BFO净磁矩 M_c 垂直于电极化, 其水平的净磁矩也一样产生 180° 反转, 从而导致上方软磁膜也产生 180° 净磁化反转. 这种翻转模式与文献^[69]报道的 90° 磁化翻转的机理有点类似, 都是通过交换耦合实现电控磁, 但两者导致的效果却明显不同, 其中主要原因是两者极化反转方式的不同. 在文献^[69]的工作中, BFO是生长在(001)取向的 SrTiO_3 (STO)衬底上, 而施加电场后反转区域的条带畴总体取向产生了改变, 导致叠加后净极化水平分量只转动 90° . 而文献^[70]则采用(110)取向的 DyScO_3 (DSO)衬底, 由于衬底面内 a , b 两轴与BFO薄膜晶面失配度不同产生的挟持应力抑制了条带畴总体取向的改变, 但条带畴内部面内分量却产生了 90° 转动, 导致叠加后净极化水平分量产生了 180° 转动. 这两种不同的极化反转模式也导致了以上两种不同的电控磁翻转行为.

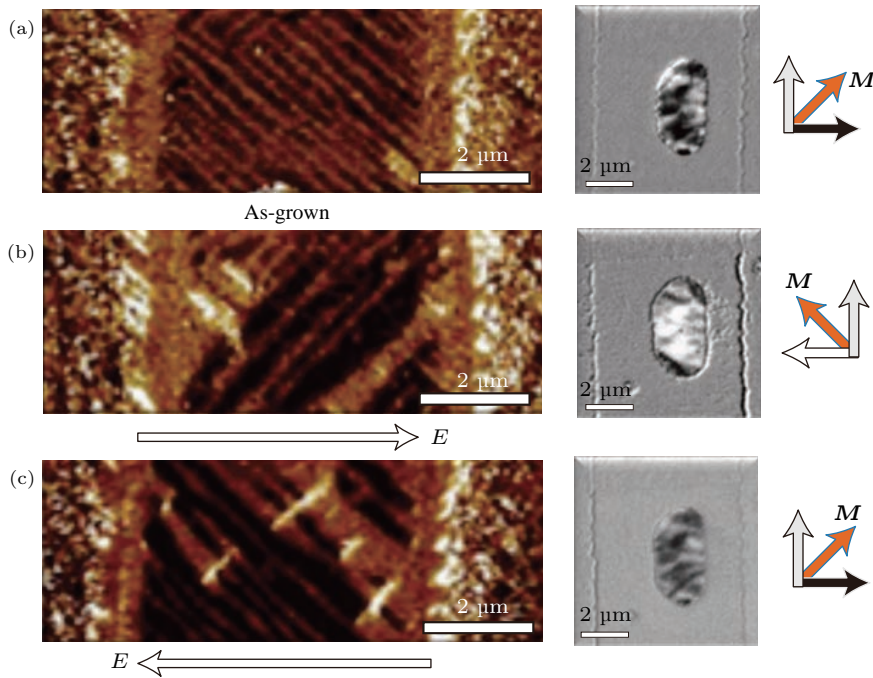


图8 (001)取向STO衬底上的BFO/CoFe微米磁点多铁异质结中施加水平电场驱动磁畴往复 90° 翻转^[69] (a)–(c) 施加电场前后BFO铁电畴(左)和相对应的CoFe磁点的磁畴XMCD-PEEM像(右)的变化图(初始状态(a), 施加水平电场后净磁矩旋转 90° (b), 施加反向电场后磁矩转回初始方向(c))

Fig. 8. Electric-field driven 90° magnetization rotation in multiferroic heterostructure consisting of CoFe micromagnets on BFO film on STO substrate^[69]: (a)–(c) Reversible switching of both ferroelectric polarization in BFO film and magnetic states of the micromagnet induced by applying in-plane electric fields, as indicated by the lateral piezoresponse force microscopy and XMCD-PEEM images, for the initial state (a), after applied an electric field that rotates the net magnetization of the micromagnet for 90° (b), and after applied a reversed electric field to switch the magnetization back (c).

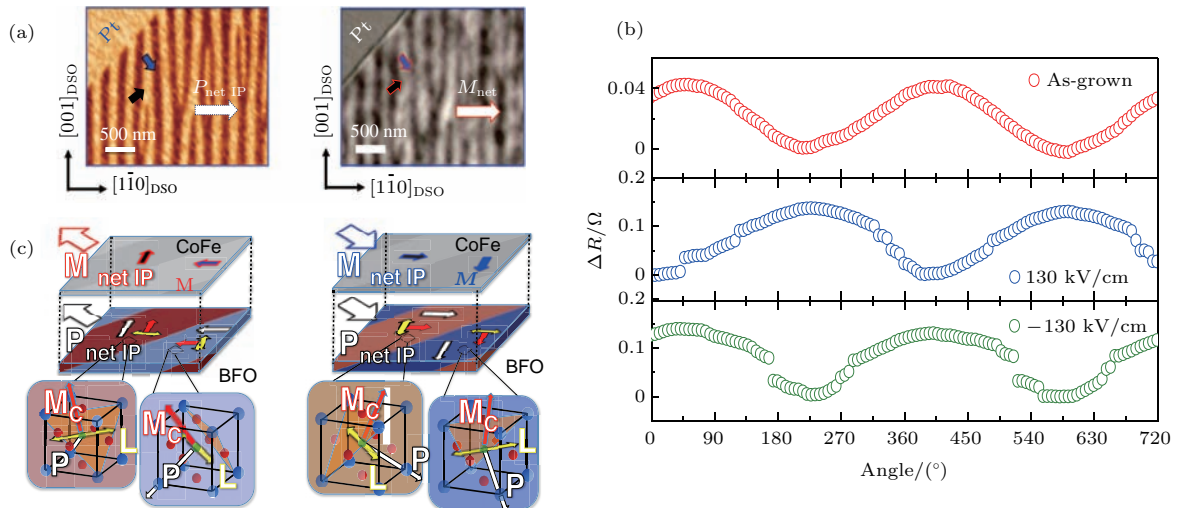


图9 (110)取向DSO衬底上生长BFO/CoFe微米结构形成多铁异质结构中电场诱导180°净磁化反转^[70] (a) BFO铁电畴的水平方向压电响应力显微镜(PFM)像,及在之上生长CoFe层的磁畴XMCD-PEEM像; (b) 施加不同电场后异质结中CoFe微米磁体的各向异性电阻-角度关系曲线,表明电场驱动往复180°磁化反转; (c) 电场通过界面耦合驱动磁反转机理示意图,其中上方为施加电场前后净极化和净磁化反转对应关系示意图,下方为BFO晶胞结构中反铁磁矩和净磁矩在极化反转后变化示意图,其中 P 代表极化, L 表示反铁磁轴, M_c 为微小倾角磁矩

Fig. 9. Electric-field-induced net-magnetization 180° reversal in BFO/CoFe heterostructure on (110) DSO substrate^[70]: (a) Lateral PFM image of BFO (left) and corresponding XMCD-PEEM images of the magnetic layer on top of BFO (right), in which a well-recognized one-one correlation between the ferroelectric/magnetic domain can be identified; (b) electric driven 180° magnetization reversal reflected by angular dependent anisotropic resistance; (c) schematic diagrams revealing the mechanism of exchange coupling mediated magnetization reversal, including correlation between net polarization and net magnetization (upper), and the relations between net M_c , antiferromagnetic vector L , and polarization P in BFO atomic unit cell (lower), before and after applying an electric field.

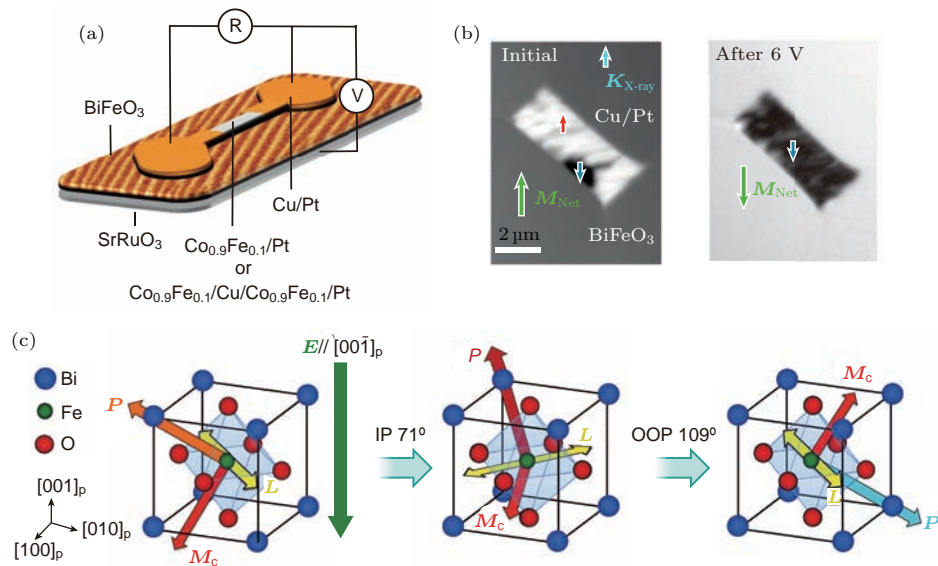


图10 在BFO/CoFe基异质结中利用垂直加电场法实现了180°磁化反转^[71] (a) 样品的结构示意图,其中BFO上的Co_{0.9}Fe_{0.1}层为单层或自旋阀结构,可通过磁电流来读出磁化方向; (b) 施加6 V电压导致净磁矩反转的XMCD-PEEM成像,其中黑白衬度代表 y 轴方向的磁矩分量; (c) 磁反转过程中BFO原子晶胞自旋结构变化示意图,分别经历了71°和109°极化翻转,其中 P 代表极化, L 表示反铁磁轴, M_c 为净磁矩

Fig. 10. Deterministic 180° switching of magnetization triggered by an out-of-plane electric field in BFO/CoFe heterostructure^[71]: (a) Schematic diagrams of the heterostructure in this work, in which the micromagnet is either single layered Co_{0.9}Fe_{0.1} or spin valve multilayer structure used for magnetoresistance measurement; (b) XMCD-PEEM image of magnetic domain before and after applying an electric field, in which the dark-bright contrast indicates the orientation of y -component of the local magnetic moment; (c) schematics of atomic unit cells structure illustrating the mechanism of multi-step switching of polarization and M_c .

3.2 垂直电场驱动磁翻转

上述 180° 反转操作简单, 实验上有较大的可行性, 然而需要在磁点旁制备电极来施加水平电场, 同时也需要施加较高的驱动电压, 不利于高密度器件应用. 为克服这一困难, 2014 年 Ramesh 研究组 [71] 在 BFO/CoFe 异质结中进行了面外加电场实验, 在微米级磁结构中获得了电驱动净磁矩 180° 往复磁反转, 并用 XCDM-PEEM 成像和各向异性磁电阻对磁反转进行了细致观察 (见图 10).

研究发现, 在施加电压驱动磁反转过程中, BFO 的电畴发生了 180° 非铁弹反转, 却也出乎意料地导致了磁反转. 研究表明, 在 BFO 中铁电极化与倾斜磁矩 M_c 相互垂直, 单纯 180° 极化反转并不能转动 M_c , 而只有铁弹性极化翻转 (如 71° 和 109°) 才可改变 M_c 方向. 经过深入研究, 发现实际上这种 180° 极化反转是分步进行的, 经历了多步 71° 或 109° 翻动. 由于每步铁电性翻转都可保持 M_c 和铁磁的净磁矩很好地耦合并可连续过渡 (图 10 (b)),

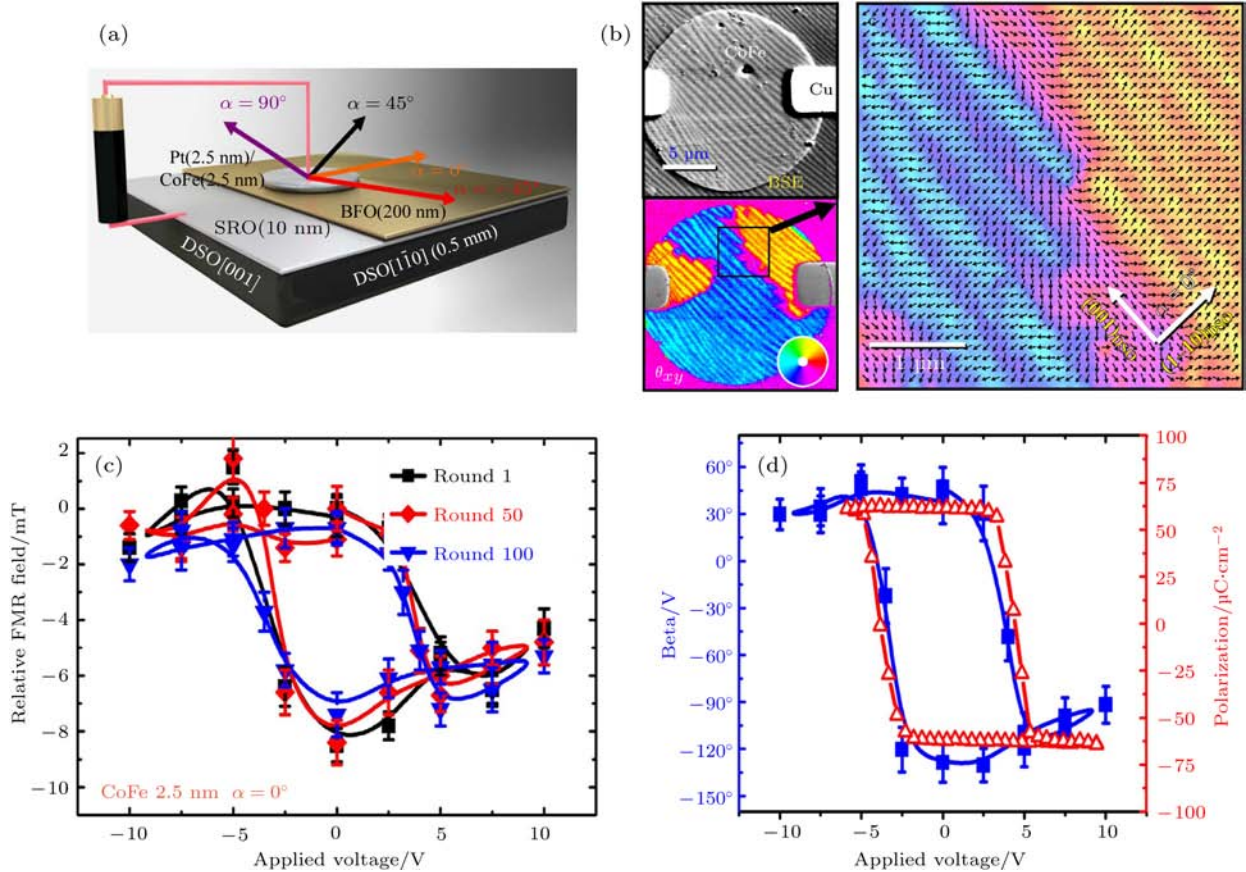


图 11 利用 FMR 探测 CoFe/BFO 异质结中电控磁化反转过程中交换耦合场的变化 [72] (a) CoFe(2.5 nm)/BFO(200 nm) 多铁异质结构示意图, 其中箭头表示 FMR 测试中加磁场的角度方向; (b) 异质结中样品的铁电畴和铁磁畴结构, 其中铁电畴通过扫描电子显微镜的背散射技术探测, 而 CoFe 磁微米盘的磁畴分布则通过扫描电子显微镜的极化分析探测 (SEMPA), 结果发现水平方向微观磁矩与电畴有很好耦合关系 (平行或反平行); (c) 施加不同电压后 FMR 的相对共振磁场随电压变化回线, 可稳定反转 100 个周期; (d) 导出的 BFO 净磁矩方向随电压变化回线与极化反转回线较为符合. 经分析, 有效耦合场大小为 57 Oe, 而极化反转后 BFO 净磁矩方向变化近 178°

Fig. 11. Probing of exchange coupling that mediates the electric driven magnetic reversal in CoFe/BFO heterostructure by using ferromagnetic resonance (FMR) technique [72]: (a) Schematic of CoFe(2.5 nm)/BFO(200 nm) multiferroic heterostructure for the FMR measurements; (b) ferroelectric domain structure of BFO and ferromagnetic domain structure of CoFe detected by scanning electron microscopy based back scattering electrons and polarization analysis (SEMPA) technique, respectively, in which the enlarged SEMPA image indicates that the lateral component of local magnetic moments show either parallel or antiparallel to that of the polarization orientation; (c), (d) hysteresis loops of relative resonance magnetic field (c) and orientation angle of net canted magnetic moment of BFO (d) as a function of driven electric field; it was found that the effective exchange-coupling field can be quantified as 57 Oe, and net canted moment of BFO can be rotated for around 178° upon polarization switching.

最终也导致产生电控 180° 磁翻转, 并可多次往复切换. 这种通过面外施加电场的架构可大幅降低反转电压 (10 V 以内), 并可很好地与高密度器件工艺相兼容, 推动了电控磁器件的应用. 然而, 目前得到的可控翻转次数只有 3 个循环, 可能是因为软磁 CoFe 在高电场下容易氧化的缘故, 并不足达到器件要求.

为了进一步研究 BFO 的 M_c 与铁磁畴耦合机理, Zhou 等 [72] 细致研究了 CoFe 微米盘/BFO 异质结中的畴结构和铁磁共振 (FMR) 特征. 通过细致分析角度分辨 FMR 共振磁场变化 (见图 11), 发现在施加电压进行极化反转后交换耦合场角度可偏转接近 180°, 并且偏转角度-电压回线关系与极化电滞回线行为相吻合. 这种界面交换耦合场的面内

分量在 2.5 nm 的 CoFe 层中大约 57 Oe, 并可在电场驱动下往复反转 100 多次, 显示出稳定、可重复的、非易失性的特征, 在高密度磁电存储和可调微波器件中有很好的应用前景.

有关 BFO 基异质结中电控磁性, 南策文研究组 [73] 也建立了理论模型, 并使用相场模拟计算了铁电极化反转和磁畴变化关系, 揭示了界面交换耦合场和 BFO 条带畴的剪切应变共同影响了电控磁反转行为. Wang 等 [74] 还计算了在 (110) 取向的 BFO 上生长的铁磁纳米点电驱动磁反转的动力学特征, 发现铁电畴 180° 反转也是分步进行, 也可诱导产生 180° 磁反转, 而磁翻转速度主要决定于铁电极化翻转速度. 如果把 BFO 薄膜刻蚀成纳米岛则

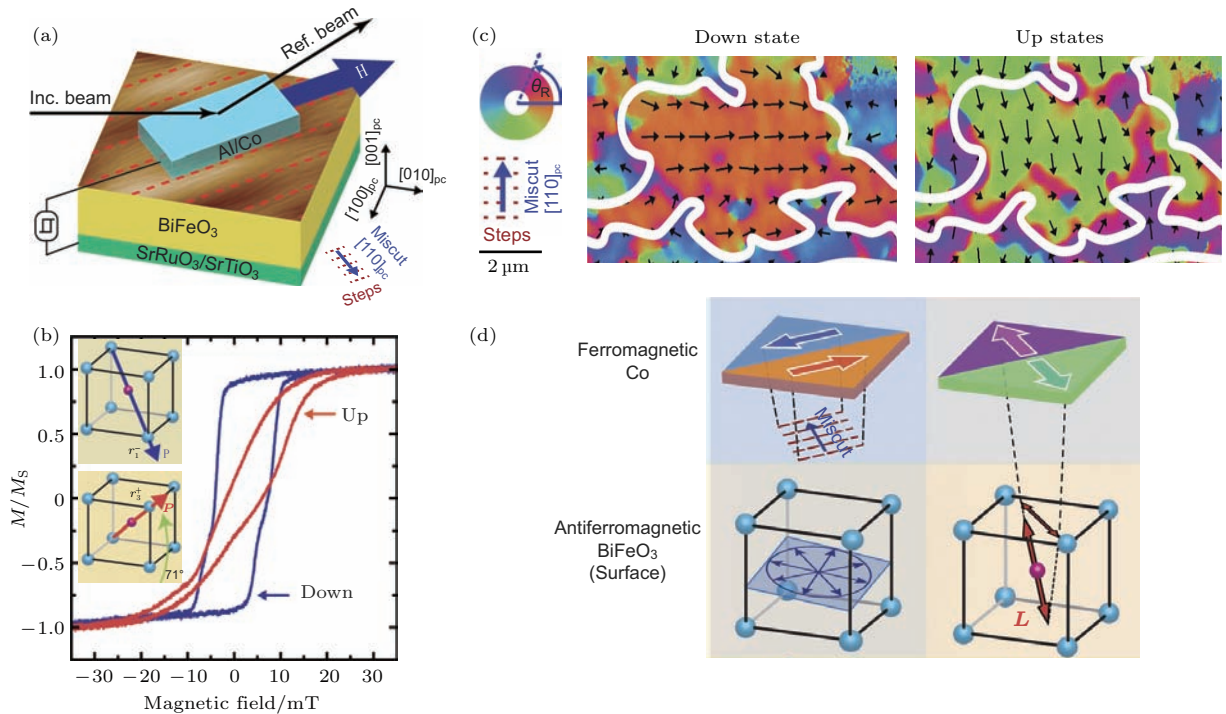


图 12 基于单畴 BFO 多铁异质结构中电驱动自旋结构改变诱导 90° 磁翻转 [75] (a) BFO/Co 异质结构示意图, 其中所用的 STO 衬底经过沿 (110) 方向斜切; (b) 不同极化方向的磁滞回线, 表明极化反转导致各向异性发生 90° 转动; (c) 极化反转导致 Co 层中磁结构发生改变的 XMCD-PEEM 成像; (d) 极化反转前后各向异性改变的机理和对应的原子单胞自旋结构示意图, 初始极化朝下时自旋结构为螺旋序 (各向异性主要由斜切角带来的), 而极化朝上时界面自旋畴变为共线反铁磁序从而导致产生垂直方向各向异性.

Fig. 12. Magnetization reversal driven by the changing of spin structure of BFO during polarization switching in BFO/Co heterostructures [75]: (a) Schematic diagram of the heterostructured device based on monodomain BFO and Co films, in which the STO substrate of heterostructure was miscuted along (110) direction before deposition of BFO film; (b) M - H hysteresis loops of Co layer before and after polarization switching, indicating the apparent switching of anisotropy easy axis; (c) the local magnetic domain structure measured by XMCD-PEEM, indicating an 90° rotation of magnetic orientation after polarization switching; (d) schematic diagrams for the switching mechanism; the spin states of BFO shows spiral structure at downward polarization and a collinear spin structure at upward polarization; at downward polarization state the interface anisotropy is dominated by miscut strain producing an easy axis along miscut direction, while the occurrence of collinear antiferromagnetic spin structure at upward polarization state produce an easy axis along perpendicular direction, perpendicular to the initial state.

可释放衬底和周边薄膜挟持效应, 导致电压驱动下铁电畴只翻转 109° , 但也可导致水平方向 180° 磁翻转. 这些成果揭示了基于 BFO 异质结的磁翻转的界面交换耦合动力学过程, 为进一步剪裁微尺度下的电控磁反转奠定了理论和实验基础.

以上讨论薄膜的交换作用时, 还没有考虑到自旋序结构的改变. 现已发现螺旋序存在于单晶和薄膜中, 在施加电场后有可能产生自旋结构的改变, 并对界面耦合产生影响. 如 Saenrang 等 [75] 在 2017 年发现, 在一种 (110) 方向斜切的单电畴 BFO 薄膜中可出现螺旋序结构, 而施加电场诱导极化反转后则在表面层出现了一种共线反铁磁序, 并导致各向异性易磁轴 90° 翻转 (见图 12). 这可能归因于在施加电场前各向异性主要由衬底斜切带来应变, 而施加电场后新产生的共线反铁磁序改变了各向异性轴, 从而导致铁磁层产生 90° 翻转, 并表现出很好的稳定性和耐受性. 这些新的交换耦合机理的发现, 为电控磁提供了新思路.

4 走向纳米尺度的挑战

由于高密度器件需求存储单元缩小到纳米尺度 [26], 如磁随机存储器件中纳米点已小至 $(60\text{--}70)\text{ nm} \times 180\text{ nm}$, 因此发展 100 nm 尺度、可稳定重复的电控磁反转是开发磁电器件面临的关键挑战. 虽然目前电控磁研究已有大量的成果, 但主要集中在薄膜和微米尺度, 走向纳米尺度还面

临不少困难. 我们知道, 当尺度从薄膜缩小到微米, 电控磁行为会出现诸多新特点, 这时原来大尺度下获得的规律就不一定适用, 如形状各向异性可导致矫顽场增加从而增加调控难度, 而热涨落也开始影响磁畴的稳定性. 因此还需大力探索纳米尺度异质结制备的新工艺, 发展调控和探测的新手段, 探索电控磁反转新规律、新机理及新理论. 为了清楚地观测和调控纳米尺度磁畴, 还需发展高分辨纳米磁畴观测和原位施加电场调控手段, 目前常用观测手段如 XCDM-PEEM 和磁光克尔效应等有很好的灵敏度, 但在纳米尺度分辨率较低; 其他磁畴探测手段如 SEMPA、洛伦兹透射电子显微镜探测手段可达到纳米尺度, 不过也面临原位加电场的困难; 而 MFM 可获得较高的分辨率 ($30\text{--}50\text{ nm}$), 并较为方便地对单个纳米点施加电场, 虽成像速度较慢, 但不失为一种较简便的小尺度磁畴探测和调控手段.

2016 年, 高兴森研究组 [76] 利用 MFM 和针尖原位加场法探索了小尺度的有序 BFO/CoFe₂O₄/SrRuO₃ 外延纳米点 (直径约 60 nm) 阵列的电控磁性 (如图 13 (a) 所示). 这种 0-0 型结构可减少薄膜和界面的挟持效应, 显著提高磁电耦合特性. 同时, 利用针尖施加电场, 可导致部分纳米点的磁化反转, 表现为 MFM 衬度改变 (如图 13 (c) 所示). 这种电控磁阵列结构可达到近 100 Gbit/inch^2 的密度, 与集成器件工艺较为兼容, 有望用于磁电存储. 然而, 器件中电控磁翻转并不可控, 还不能实现往复翻转, 有待进一步提高.

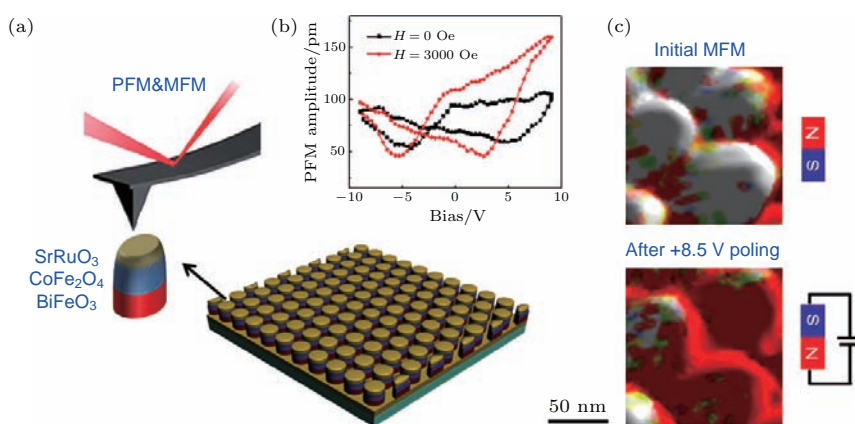


图 13 高密度外延阵列的 BFO/CoFe₂O₄/SrRuO₃ 异质结构纳米点的磁电耦合特性 [76] (a) 纳米点阵列的示意图及基于 MFM 和 PFM 测试系统简化示意图; (b) 单个纳米点中磁场对压电性能的影响; (c) 通过原子力显微镜探头施加 $\pm 8.5\text{ V}$ 偏置电压后导致 MFM 像衬度明显改变, 表明电场可驱动部分纳米点的磁畴翻转

Fig. 13. Magnetoelectric couplings in well-ordered array of epitaxial BFO/CoFe₂O₄/SrRuO₃ heterostructured nanodots ($\sim 60\text{ nm}$) [76]: (a) Schematic diagrams of nanodot array and testing system based on PFM and MFM; (b) effect of magnetic fields on piezoelectric properties of a selected nanodot; (c) MFM images of the nanodots before and after applying an scanning electric bias through atomic force microscopy probe, indicating the occurrence of magnetization reversal in some nanodots.

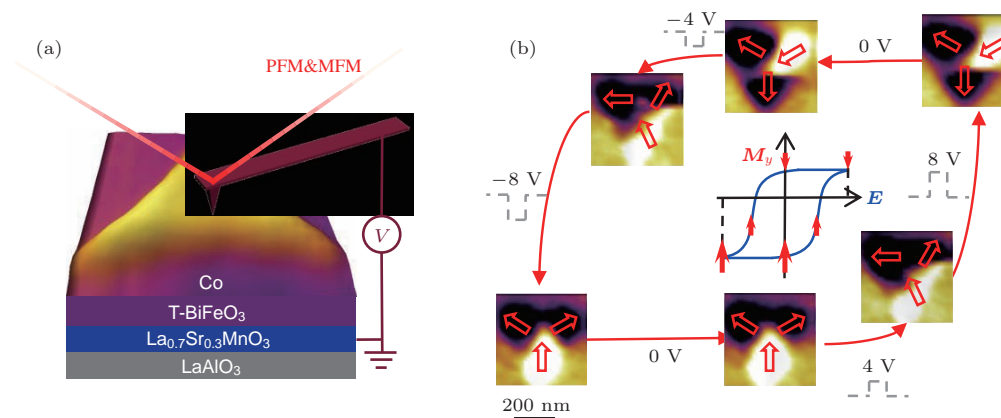


图 14 由类三角形纳米 Co 点和四方相 BFO 组成的多铁异质结中电压驱动 120° 往复磁反转^[77] (a) 多铁异质结结构示意图; (b) 在不同电压驱动下纳米磁点的磁畴态演化图, 类似磁畴态电场 ($M-E$) 的回线

Fig. 14. Electric field driven 120° magnetic state reversal in multiferroic heterostructure consisting of triangular shape Co nanomagnets on super-tetragonal phase BFO film^[77]: (a) The schematic of a device structure; (b) magnetic state evolution of the triangular nanomagnets driven by various voltages, analogue to a $M-E$ hysteresis loop.

为了提高纳米尺度磁反转的可控性, 2018年, 该研究组^[77]还设计了超四方相BFO/类三角形纳米Co点阵列构成的异质结(见图14). 发现施加垂直电场, 可导致电场驱动 120° 磁翻转, 并可多次往复反转. 这种可控反转被认为归因于界面交换耦合和应变协同作用的结果, 并通过微磁学模拟验证了这种多机理协同调控磁反转的可行性. 有意义的是, 这种结构还允许通过施加10 V脉冲长度10 ns的高速电脉冲来驱动磁反转, 并表现出很高的稳定性, 具备与高密度集成工艺相兼容的架构. 这些成果提供了一种建构可高速读写的高密度磁存储器件的新途径, 但为实现磁存储器件的用途, 还需发展更小尺度的电驱动 180° 磁反转, 提高读写次数(如 $> 10^6$ 次), 解决整个器件阵列的反转成功率等问题.

5 展望和总结

过去十年, 电场驱动磁翻转已经取得很大突破, 科学家们已提出了多种有效的调控机理和方案, 并实现了 90° 或 180° 电驱动磁翻转, 然而与高密度器件应用的要求还有不少差距, 还面临诸多挑战. 除了前面讨论的小尺度的挑战外, 下面列举其他部分关键挑战并对今后研究工作做出展望.

1) 新机理和新方法的探索. 纳米尺度电控磁反转的新机理和新方法有待进一步探索, 如利用界面电荷、界面电化学反应驱动机理, 以及多场耦合协同驱动机理. 最近, Yi等^[78]对电

荷媒介的电控磁翻转开展了理论尝试, 设计了Pt/FePt/MgO异质结(其中磁点为椭圆结构), 并利用第一性原理结合变温动力学微磁模拟进行计算, 发现施加短脉冲电场可改变界面电荷并诱导产生磁各向异性, 从而驱动磁畴产生阻尼进动导致 180° 磁反转, 类似应力驱动作用. Bauer等^[79]在 $\text{SiO}_2/\text{Ta}/\text{Pt}/\text{Co}/\text{GdO}_x$ 异质结中发现, 通过施加电场可导致界面Co的氧化还原反应, 导致磁各向异性的往复切换. Nawaoka等^[80]还发现, 在Au/Fe/MgO中施加电场, 还可诱导产生自旋DM相互作用. 刘明研究组^[81]还通过胶体电解质施加电场调控了人工反铁磁多层膜的Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida相互作用. 这些新颖的调控机理, 给纳米尺度电控磁器件带来更多选择方案. 另外, 与单一机理调控相比, 多机理联合可综合各自优势, 获得更强的驱动动力. 如, Gao等^[82]利用应变和交换偏置协同作用, 实现电控磁 135° 反复反转. 而上节也谈到, 利用BFO中应变和交换耦合作用, 也可有效驱动三角状纳米磁点产生高速、高稳定性的磁反转^[77], 也表明了多机理联合可成为一种调控磁反转的有效途径.

另一方面, 电场驱动奇异磁畴结构也产生了一些有趣的现象, 值得引起关注. 如微米/纳米环中会出现Onion磁畴态及涡旋态, 并可以通过衬底应变控制Onion畴壁移动, 实现 90° 或不同角度的可控磁旋转^[83,84]. 值得一提的是, 也有报道利用电场反转涡旋畴的手性^[85], 通过应力和电场调控斯格明子(skyrmion)形态^[86-89]. 这些研究有望开启一些

新现象、新机理、新的调控方法、以及新器件用途的大门。

2) 原型器件开发及关键指标问题. 为推进器件应用, 原型器件研究也需要进一步推进. 磁反转可导致很好的写入, 而如何高效读出也是一个重要问题, 如Ramesh研究组^[71]已经尝试制造用自旋阀结构 (spin vale) 读出磁方向. 另外, 器件相关保持特性等指标的提高也势在必行. 目前铁磁畴的稳定性较好, 但大多电控磁器件重复性还不太好, 如基于垂直BFO异质结的电控磁, 只能往复反转3个循环, 还需大力提高其反转的重复性. 另外, 在多次反转下, BFO面内畴难以保持确定性反转, 也会影响交换耦合的重复. 为此, 可以采用单畴BFO薄膜或外延纳米岛, 便于提高电畴反转确定性和重复性. 此外, 在存储单元阵列中, 不同器件单元的磁反转成功率也很重要, 虽然目前还未得到较多关注. 如在文献^[61]中, 施加同样应变于多个纳米磁点, 只有部分磁点可以发生反转, 这可能是电畴不均匀性或局部钉扎效应所致. 因此, 提高畴反转的均匀性和一致性也成为器件化亟待解决的问题.

总之, 本文针对电控磁器件化发展的关键问题, 对微纳米尺度电控磁反转研究的最新进展做了一些回顾, 主要对当前主流应力耦合驱动磁反转, 以及基于BFO异质结交换偏置驱动电控磁的一些重要进展进行了梳理, 讨论了器件化进程需要解决的关键问题, 并对今后研究工作提出了一些展望. 希望本文能对从事相关领域研究的研究生和科研工作者有所帮助.

参考文献

- [1] Fiebig M 2005 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **38** R123
- [2] Eerenstein W, Mathur N D, Scott J F 2006 *Nature* **442** 759
- [3] Ramesh R, Spaldin N A 2007 *Nature Mater.* **6** 20
- [4] Vaz C A F, Hoffman J, Ahn C H, Ramesh R 2010 *Adv. Mater.* **22** 2900
- [5] Hu J M, Chen L Q, Nan C W 2016 *Adv. Mater.* **28** 15
- [6] Song C, Cui B, Li F, Zhou X, Pan F 2017 *Prog. Mater. Sci.* **87** 33
- [7] Ma J, Hu J, Li Z, Nan C W 2011 *Adv. Mater.* **23** 1062
- [8] Wang K F, Liu J M, Ren Z F 2009 *Adv. Phys.* **58** 321
- [9] Dong S, Liu J M, Cheong S W, Ren Z F 2015 *Adv. Phys.* **64** 519
- [10] Vaz C A F 2012 *J. Phys.: Condens. Matter* **24** 333201
- [11] Sun N X, Srinivasan G 2012 *Spin* (Singapore: World Scientific Publishing Company) **2**(03) 1240004
- [12] Taniyama T 2015 *J. Phys.: Condens. Matter* **27** 504001
- [13] Worledge D C, Hu G, Abraham D W, Sun J Z, Trouiloud P L, Nowak J, Brown S, Gaidis M C, O'Sullivan E J, Robertazzi R P 2011 *Appl. Phys. Lett.* **98** 022501
- [14] Katine J A, Fullerton E E 2008 *J. Magn. Magn. Mater.* **320** 1217
- [15] Durlam M, Naji P J, Omair A, Durlam M, Naji P J, Omair A, DeHerrera M, Calder J, Slaughter J M, Engel B N, Rizzo N D, Grynkewich G, Butcher B, Tracy C, Smith K, Kyler K W, Ren J J, Molla J A, Feil W A, Williams R G, Tehrani S 2003 *IEEE J. Solid-State Circuits* **38** 769
- [16] Liu L, Lee O J, Gudmundsen T J, Ralph D C, Buhrman R A 2012 *Phys. Rev. Lett.* **109** 096602
- [17] Miron I M, Garello K, Gaudin G, Zermatten P J, Costache M V, Auffret S, Bandiera S, Rodmacq B, Schuhl A, Gambardella P 2011 *Nature* **476** 189
- [18] Hu J M, Li Z, Chen L Q, Nan C W 2011 *Nat. Commun.* **2** 553
- [19] Barthélémy A, Bibes M 2008 *Nature Mater.* **7** 425
- [20] Amiri P K, Alzate J G, Cai X Q, Ebrahimi F, Hu Y, Wong K, Grèzes C, Lee H, Yu G Q, Li X, Akyol M, Shao Q M, Katine J A, Langer J, Ocker B, Wang K L 2015 *IEEE Trans. Magn.* **5** 1
- [21] Zhou W, Xiong Y Q, Zhang Z M, Wang D H, Tan W S, Cao Q Q, Qian Z H, Du Y W 2016 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **8** 5424
- [22] Kosub T, Kopte M, Hühne R, Appel P, Shields B, Maletinsky P, Hühne R, Liedke M O, Fassbender J, Schmidt O G, Makarov D 2017 *Nat. Commun.* **8** 13985
- [23] Jaiswal A, Roy K 2017 *Sci. Rep.* **7** 39793
- [24] Zheng R K, Li X G 2013 *Prog. Phys.* **33** 359 (in Chinese) [郑仁奎, 李晓光 2013 物理学进展 **33** 359]
- [25] Yang J J, Zhao Y G, Tian H F, Luo L B, Zhang H Y, He Y J, Luo H S 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 212504
- [26] Heron J T, Schlom D G, Ramesh R 2014 *Appl. Phys. Rev.* **1** 021303
- [27] Weisheit M, Fahler S, Marty A, Souche Y, Poin C, Givord D 2007 *Science* **315** 349
- [28] Maruyama T, Shiota Y, Nozaki T, Ohta K, Toda N, Mizuguchi M, Tulapurkar A A, Shinjo T, Shiraishi M, Mizukami S, Ando Y, Suzuki Y 2009 *Nat. Nanotechnol.* **4** 158
- [29] 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
- [30] Nan C W 2015 *Sci. Sin.: Tech.* **45** 339 (in Chinese) [南策文 2015 中国科学: 技术科学 **45** 339]
- [31] Liu J M, Nan C W 2014 *Physics* **43** 88 (in Chinese) [刘俊明, 南策文 2014 物理 **43** 88]
- [32] Duan C G 2009 *Prog. Phys.* **3** 215 (in Chinese) [段纯刚 2009 物理学进展 **3** 215]
- [33] Yao X, Ma J, Lin Y, Nan C W, Zhang J 2015 *Sci. China: Mater.* **58** 143
- [34] Gao X S, Zeng M, Liu J M 2014 *Physics* **43** 246 (in Chinese) [高兴森, 曾敏, 刘俊明 2014 物理 **43** 246]

- [35] Dong S, Liu J M 2010 *Physics* **39** 714 (in Chinese) [董帅, 刘俊明 2010 物理 **39** 714]
- [36] Duan C G, Zhao Y G 2014 *Physics* **43** 99 (in Chinese) [段纯刚, 赵永刚 2014 物理 **43** 99]
- [37] He H C, Lin Y H, Nan C W 2008 *Chin. Sci. Bull.* **53** 1136 (in Chinese) [何泓材, 林元华, 南策文 2008 科学通报 **53** 1136]
- [38] Weiler M, Brandlmaier A, Geprägs S, Althammer M, Opel M, Bihler C, Huebel H, Brandt M S, Gross R, Goennenwein S T B 2009 *New J. Phys.* **11** 013021
- [39] Xie Y, Ma J, Ganguly S, Ghosh A W 2017 *J. Comput. Electron.* **16** 1201
- [40] Thiele C, Dörr K, Bilani O, Rödel J, Schultz L 2007 *Phys. Rev. B* **75** 054408
- [41] Venkataiah G, Shirahata Y, Itoh M, Taniyama T 2011 *Appl. Phys. Lett.* **99** 102506
- [42] Sander D 1999 *Rep. Prog. Phys.* **62** 809
- [43] Pertsev N A 2008 *Phys. Rev. B* **78** 212102
- [44] Hu J M, Nan C W 2009 *Phys. Rev. B* **80** 224416
- [45] Hu J M, Nan C W, Chen L Q 2011 *Phys. Rev. B* **83** 134408
- [46] Finizio S, Foerster M, Buzzi M, Krüger B, Jourdan M, Vaz C A, Hockel J, Miyawaki T, Tkach A, Valencia S, Kronast F, Carman G P, Nolting F, Kläui M 2014 *Phys. Rev. Appl.* **1** 021001
- [47] Buzzi M, Chopdekar R V, Hockel J L, Bur A, Wu T, Pilet N, Warnicke P, Carman G P, Heyderman L J, Nolting F 2013 *Phys. Rev. Lett.* **111** 027204
- [48] Ba Y, Liu Y, Li P, Wu L, Unguris J, Pierce D T, Yang D, Feng C, Zhang Y, Wu H, Li D, Chang Y, Zhang J X, Han X F, Cai J W, Nan C W, Zhao Y G 2018 *Adv. Funct. Mater.* **28** 1706448
- [49] Yang S W, Peng R C, Jiang T, Liu Y K, Feng L, Wang J J, Chen L Q, Li X G, Nan C W 2014 *Adv. Mater.* **26** 7091
- [50] Ghidini M, Pellicelli R, Prieto J L, Moya X, Soussi J, Briscoe J, Dunn S, Mathur N D 2013 *Nat. Commun.* **4** 1453
- [51] Li X, Carka D, Liang C Y, Sepulveda A E, Keller S M, Amiri P K, Carman G P, Lynch C S 2015 *J. Appl. Phys.* **118** 014101
- [52] Gao Y, Hu J M, Wu L, Nan C W 2015 *J. Phys.: Condens. Matter* **27** 504005
- [53] Hu J M, Yang T, Wang J, Huang H, Zhang J, Chen L Q, Nan C W 2015 *Nano Lett.* **15** 616
- [54] Peng R C, Hu J M, Momeni K, Wang J J, Chen L Q, Nan C W 2016 *Sci. Rep.* **6** 27561
- [55] Peng R C, Hu J M, Chen L Q, Nan C W 2017 *NPG Asia Mater.* **9** e404
- [56] Yi M, Xu B X, Müller R, Gross D 2017 *Acta Mech.* **10** 1007
- [57] Preobrazhensky V, Klimov A, Tiercelin N, Duschb Y, Giordanob S, Churbanovd A, Mathurinb T, Pernodp P, Sigov A 2018 *J. Magn. Magn. Mater.* **459** 66
- [58] Wang J J, Hu J M, Ma J, Zhang J X, Chen L Q, Nan C W 2014 *Sci. Rep.* **4** 7507
- [59] Cui J, Keller S M, Liang C Y, Carman G P, Lynch C S 2017 *Nanotechnology* **28** 08LT01
- [60] Salehi-Fashami M, D'Souza N 2017 *J. Magn. Magn. Mater.* **438** 76
- [61] Cui J, Hockel J L, Nordeen P K, Pisani D M, Liang C Y, Carman G P, Lynch C S 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 232905
- [62] Biswas A K, Ahmad H, Atulasimha J, Bandyopadhyay S 2017 *Nano Lett.* **17** 3478
- [63] Zhao T, Scholl A, Zavaliche F, Lee K, Barry M, Doran A, Cruz M P, Chu Y H, Ederer C, Spaldin N A, Das R R, Kim D M, Baek S H, Eom C B, Ramesh R 2006 *Nature Mater.* **5** 823
- [64] Martin L W, Chu Y H, Ramesh R 2010 *Mater. Sci. Eng.* **68** 89
- [65] Martin L W, Chu Y H, Holcomb M B, Huijben M, Yu P, Han S J, Lee D, Wang S X, Ramesh R 2008 *Nano Lett.* **8** 2050
- [66] Wu S M, Cybart S A, Yu P, Rossell M D, Zhang J X, Ramesh R, Dynes R C 2010 *Nature Mater.* **9** 756
- [67] Popkov A F, Kulagin N E, Soloviov S V, Sukmanova K S, Gareeva Z V, Zvezdin A K 2015 *Phys. Rev. B* **92** 140414
- [68] Elzo M, Moubah R, Blouzon C, Sacchi M, Grenier S, Belkhou R, Dhési S, Colson D, Torres F, Kiwi M, Viret M, Jaouen N 2015 *Phys. Rev. B* **91** 014402
- [69] Chu Y H, Martin L W, Holcomb M B, Gajek M, Han S J, He Q, Balke N, Yang C H, Lee D, Hu W, Zhan Q, Yang P L, Arantxa F R, Scholl A, Wang S X, Ramesh R 2008 *Nat. Mater.* **7** 478
- [70] Heron J T, Trassin M, Ashraf K, Gajek M, He Q, Yang S Y, Nikonov D E, Chu Y H, Salahuddin S, Ramesh R 2011 *Phys. Rev. Lett.* **107** 217202
- [71] Heron J T, Bosse J L, He Q, Gao Y, Trassin M, Ye L, Clarkson J D, Wang C, Liu J, Salahuddin S, Ralph D C, Schlom D G, Iniguez J, Huey B D, Ramesh R 2014 *Nature* **516** 370
- [72] Zhou Z, Trassin M, Gao Y, Gao Y, Qiu D, Ashraf K, Nan T, Yang X, Bowden S R, Pierce D T, Stiles M D, Unguris J, Liu M, Howe B M, Brown G J, Salahuddin S, Ramesh R, Sun N X 2015 *Nat. Commun.* **6** 6082
- [73] Wang J J, Hu J M, Yang T N, Wang, Feng M, Zhang J X, Chen L Q, Nan C W 2014 *Sci. Rep.* **4** 4553
- [74] Wang J J, Hu J M, Peng R C, Gao Y, Shen Y, Chen L Q, Nan C W 2015 *Sci. Rep.* **5** 10459
- [75] Saenrang W, Davidson B A, Maccherozzi F, Podkaminer J P, Irwin J, Johnson R D, Freeland J W, Íñiguez J, Schad J L, Reiersen K, Frederick J C, Vaz C A F, Howald L, Kim T H, Ryu S, Veenendaal M V, Radaelli P G, Dhési S S, Rzechowski M S, Eom C B 2017 *Nat. Commun.* **8** 1583
- [76] Tian G, Zhang F, Yao J, Fan H, Li P, Li Z, Song X, Zhang X, Qin M, Zeng M, Zhang Zh, Yao J, Gao X, Liu J 2016 *ACS Nano*. **10** 1025
- [77] Yao J X, Song X, Gao X S, Tian G, Li P L, Fan H, Huang Z F, Yang W D, Chen D Y, Fan Z, Zeng M, Liu J M 2018 *ACS Nano* DOI: 10.1021/acsnano.8b01936

- [78] Yi M, Zhang H, Xu B X C 2017 *npj Comput. Mater.* **3** 38
- [79] Bauer U, Yao L, Tan A J, Agrawal P, Emori S, Tuller H L, Dijken S, Beach G 2015 *Nat. Mater.* **14** 174
- [80] Nawaoka K, Miwa S, Shiota Y, Mizuochi N, Suzuki Y 2015 *Appl. Phys. Express* **8** 063004
- [81] Yang Q, Zhou Z, Wang L, Zhang H, Cheng Y, Hu Z, Peng B, Liu M 2018 *Adv. Mater.* **30** 1800449
- [82] Gao Y, Hu J M, Nelson C T, Yang T N, Shen Y, Chen L Q, Ramesh R, Nan C W 2016 *Sci. Rep.* **6** 23696
- [83] Hu J M, Yang T, Momeni K, Cheng X, Chen L, Lei S, Zhang S, Susan T M, Gopalan V, Carman G P, Nan C W, Chen L Q 2016 *Nano Lett.* **16** 2341
- [84] Xiao Z, Conte R L, Chen C, Liang C Y, Sepulveda A, Bokor J, Carman G P, Candler R N 2018 *Sci. Rep.* **8** 5207
- [85] Li Q, Tan A, Scholl A, Young A T, Yang M, Hwang C, Diaye A T N, Arenholz E, Li J, Qiu Z Q 2017 *Appl. Phys. Lett.* **110** 262405
- [86] Shibata K, Iwasaki J, Kanazawa N, Aizawa S, Tanigaki T, Shirai M, Nakajima T, Kubota M, Kawasaki M, Park H S, Shindo D, Nagaosa N, Tokura Y 2015 *Nat. Nanotechnol.* **10** 589
- [87] Upadhyaya P, Yu G, Amiri P K, Wang K L 2015 *Phys. Rev. B* **92** 134411
- [88] Zhang X, Zhou Y, Ezawa M, Zhao G P, Zhao W 2015 *Sci. Rep.* **5** 11369
- [89] Nakatani Y, Hayashi M, Kanai S, Fukami S, Ohno H 2016 *Appl. Phys. Lett.* **108** 152403

SPECIAL TOPIC — Multiferroicity: Physics, materials, and devices

Electric field driven magnetic switching in nanoscale multiferroic heterostructures*

Song Xiao¹⁾ Gao Xing-Sen^{1)†} Liu Jun-Ming²⁾

1) (*Institute for Advanced Materials and Guangdong Provincial Key Laboratory of Quantum Engineering and Quantum Materials, South China Normal University, Guangzhou 510006, China*)

2) (*National Laboratory of Solid State Microstructures, Nanjing University, Nanjing 210093, China*)

(Received 24 June 2018; revised manuscript received 10 July 2018)

Abstract

Recently, there has been a surge of research interest in the electric field control of magnetism due to its promising application in spintronic and memory devices, which has become a hot topic in the field of multiferroic research. In current spintronic technology, magnetic reversal is usually driven by a large electric current via current generated magnetic field or spin-torque effect to write/erase a magnetic bit, and thus producing large power consumption and heat dissipation. While using insulating multiferroic materials, the reversal of magnetization can be triggered by applying an electric field instead of current, hence dramatically reducing the energy consumption and heat dissipation. With the current miniature trend in microelectronic technology, it is very essential to explore the electric field driven magnetic reversal (EFMS) behaviours in a micro/nanometer scale. In this article we briefly review the new progress in the field of EFMS based on multiferroic heterostructures, including some new features arising from size reduction, as well as some recent experimental and theoretical advances towards nanoscale EFMS, e.g. strain-mediated coupling, or spin exchange coupling in BiFeO₃-based heterostructures, and their associated mechanisms. Finally, some key challenges in developing future EFMS based magnetoelectric devices, and some prospects for future research are also discussed.

Keywords: electric driven magnetic switching, multiferroics, nanomagnets, magnetoelectric random access memory

PACS: 75.85.+t, 75.60.Jk, 77.80.-e, 77.90.+k

DOI: 10.7498/aps.67.20181219

* Project supported by the Key Research and Development Program of China (Grant No. 2016YFA0201002), the National Basic Research Program of China (Grant No. 2015CB921202), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11674108, 51272078), the Project for Guangdong Province Universities and Colleges Pearl River Scholar Funded Scheme, China (2014), the Science and Technology Planning Project of Guangdong Province, China (Grant No. 2015B090927006), and the Natural Science Foundation of Guangdong Province, China (Grant No. 2016A030308019).

† Corresponding author. E-mail: xingsengao@scnu.edu.cn