

# УСИЛЕНИЕ МАГНИТОЕМКОСТНОГО ЭФФЕКТА ВО ВНЕШНЕМ ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ В ПЛЕНКАХ $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$

С. С. Аплеснин<sup>a,b\*</sup>, В. В. Кретинин<sup>a</sup>, А. М. Панасевич<sup>c</sup>, К. И. Янушкевич<sup>c</sup>

<sup>a</sup> Сибирский государственный аэрокосмический университет им. М. Ф. Решетнева  
660014, Красноярск, Россия

<sup>b</sup> Институт физики им. Л. В. Киренского Сибирского отделения Российской академии наук  
660036, Красноярск, Россия

<sup>c</sup> Научно-практический центр Национальной академии наук Беларуси по материаловедению  
220072, Минск, Беларусь

Поступила в редакцию 18 ноября 2014 г.

Цель работы — определить величину магнитоёмкости при замещении висмута лантаном в тонких пленках  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  и выяснить влияние внешнего электрического поля смещения на магнитоёмкостный эффект. Для этого на пленках  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  проведены измерения диэлектрической и магнитной проницаемостей, тангенса угла потерь в области температур  $100 \text{ K} < T < 1000 \text{ K}$  в магнитных полях до 8 кЭ. Обнаружены максимумы проницаемостей в области низких температур и зависимость магнитной проницаемости от предыстории образца. Найдено увеличение магнитоёмкости при замещении висмута лантаном, по сравнению с  $\text{BiFeO}_3$ . Обнаружено гигантское усиление магнитоёмкости во внешнем электрическом поле смещения. Эти эффекты объясняются перестройкой доменной структуры.

DOI: 10.7868/S0044451015090060

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Мультиферроики на основе  $\text{BiFeO}_3$  [1] широко и интенсивно исследуются как модельные объекты для исследования механизма взаимодействия между электрической и магнитной подсистемами, а также для возможного использования их в спиновой электронике [2]. Сосуществование магнитной и сегнетоэлектрической подсистем предполагает взаимодействие между ними. В средах с магнитным и электрическим упорядочением, помимо линейного эффекта, можно ожидать нелинейных эффектов более высокого порядка по электрическому и магнитному полям (квадратичных, кубических), а также переключения электрической поляризации магнитным полем [3] и, наоборот, переключения намагниченности электрическим полем [4].

Обширную группу мультиферроиков образуют среды с неоднородным распределением магнитного параметра порядка. Период пространственной модуляции намагниченностей подрешеток в таких веще-

ствах может на несколько порядков превышать размер элементарной ячейки. В этих соединениях магнитодиэлектрическое (МЭ) взаимодействие является неоднородным [5] и описывается линейными по электрической поляризации инвариантами. Неоднородное МЭ-взаимодействие проявляется в виде пространственно-модулированных спиновых структур наведенных электрической поляризацией. Модулированная структура (спиновая циклоида) в  $\text{BiFeO}_3$  с уменьшением толщины пленки меняется, возникает локальная намагниченность [6] и в зависимости от величины упругих напряжений на интерфейсе пленка-подложка [7] возможен переход от спиновой циклоиды к скошенному антиферромагнетику со слабым ферромагнитным моментом при некоторой толщине пленки. В результате возможно образование ферромагнитных доменов вследствие магнитостатического взаимодействия.

Электрическая поляризация может возникнуть в результате образования доменных границ, которыми можно управлять с помощью электрического поля [8]. Сегнетоэлектрические доменные границы и магнитные доменные границы в мультиферроиках оказываются взаимосвязанными [9]. Одним из воз-

\*E-mail: apl@iph.krasn.ru

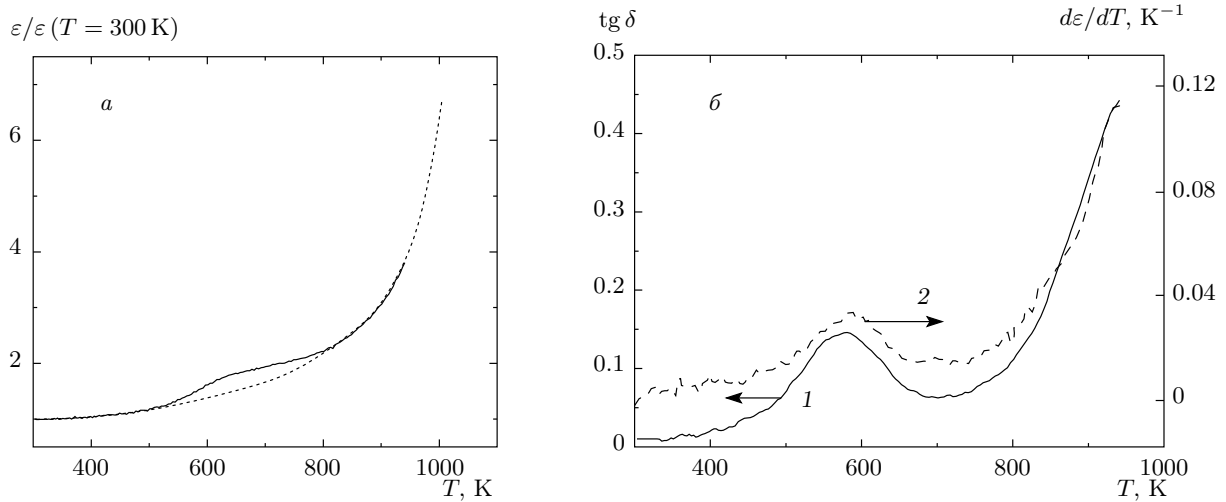


Рис. 1. Диэлектрическая проницаемость, нормированная на величину проницаемости при  $T = 300$  К (а), тангенс угла потерь (1), производная диэлектрической проницаемости по температуре (2) (б) для  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  для состава с  $x = 0.1$  на частоте  $10^5$  Гц в зависимости от температуры

можных механизмов такой связи в мультиферроиках является флексомагнитоэлектрический эффект. Скачок электрической поляризации на границах сегнетоэлектрических доменов должен приводить к скачку пространственной производной от магнитного параметра порядка [10], что проявляется в виде неоднородностей в магнитной структуре на границах. Если в материале сосуществуют магнитная (антиферромагнитная) и сегнетоэлектрическая доменные структуры, то указанный эффект может проявляться в виде пиннинга (закрепления) магнитных доменных границ на сегнетоэлектрических доменных границах [11].

Небольшие механические напряжения могут привести к разрушению спиновой циклоиды [12] в результате снятия вырождения в базисной плоскости по направлениям пространственной модуляции. Замещение ионов висмута в кристалле  $\text{BiFeO}_3$  ионами с разными ионными радиусами варьирует величину магнитоэлектрической связи [13] и образует намагниченность. Управляющие напряжения до 10 В перестраивают магнитную доменную структуру из лабиринтной в полосовую [14]. Возможность электрического управления намагниченностью материала при комнатной температуре представляет интерес с точки зрения его использования в элементах компьютерной памяти с электрической записью и магнитным считыванием.

Цель работы — определить изменение магнитоёмкостного эффекта под действием внешнего электрического поля смещения и при замещении висмута

лантаном в тонких пленках  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  и установить корреляцию температурных аномалий диэлектрических свойств в магнитном поле с перестройкой доменной структуры, которая наблюдалась в пленках  $\text{BiFeO}_3$ .

## 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Пленки  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  ( $x = 0.1$ ) твердых растворов феррита висмута получены напылением заранее синтезированных твердых растворов на предметные стекла методом вспышки. Прекурсоры представляли собой порошки зернистостью от 0.1 до 0.3 мм. Напыление проводилось в вакуумной установке для напыления пленок типа УВН-71Р-2. Давление в реакционной камере во время напыления составляло  $10^{-3}$ – $10^{-2}$  Па. Температура танталового испарителя поддерживалась около  $2000^\circ\text{C}$ . Подложки располагались на расстоянии 10 см от испарителя. Температура подложек менялась в интервале  $250$ – $300^\circ\text{C}$ . Толщина пленок составляла 160 нм.

Для выяснения влияния замещения ионов висмута лантаном на магнитные и диэлектрические свойства исследуем диэлектрическую и магнитную проницаемость в области температур  $100\text{ K} < T < 1000\text{ K}$ . На рис. 1 представлены температурные зависимости диэлектрической проницаемости, нормированной на величину проницаемости при  $T = 300$  К, и тангенса угла диэлектрических потерь в  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  для состава с  $x = 0.1$ . Производная  $d\epsilon/dT$  (рис. 1б) демонстрирует максимум при

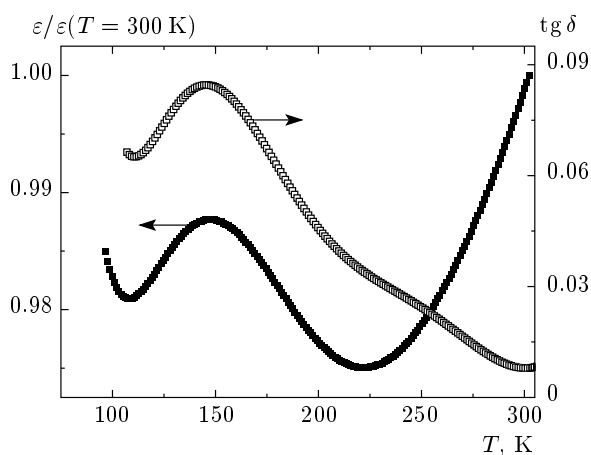


Рис. 2. Диэлектрическая проницаемость и тангенс угла потерь для  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  для состава с  $x = 0.1$  на частоте  $10^5$  Гц в зависимости от температуры

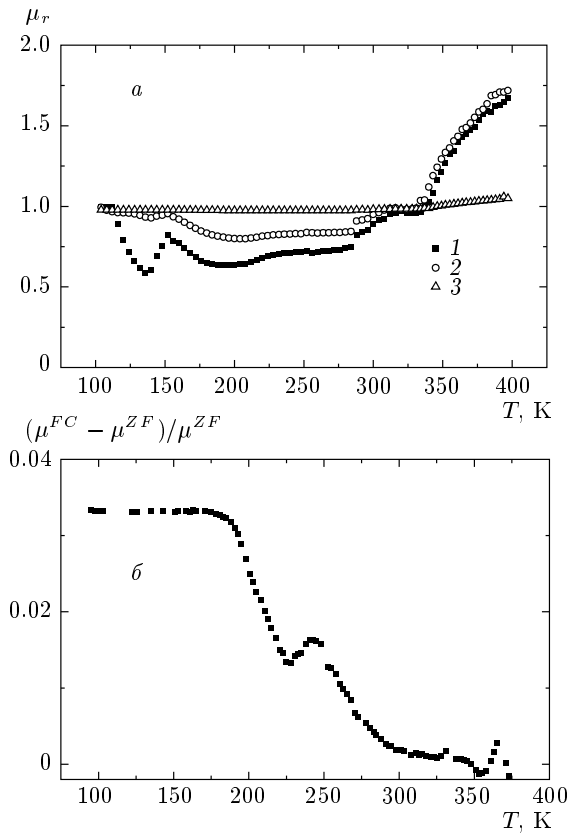
температуре  $T_1 = 583$  К и излом при  $T_1 = 835$  К. В объемных образцах  $\text{BiFeO}_3$  ниже температуры Нееля  $T_N = 646$  К ( $x = 0$ ) коэффициент теплового расширения имеет пик при  $T = 533$  К и перегиб в температурной зависимости теплоемкости при  $T = 540$  К [15], который обусловлен структурным переходом. Вклад в диэлектрическую проницаемость за счет магнитного упорядочения определим из аппроксимации температурной зависимости  $\varepsilon(T)$  на участках 300 К–450 К и 850 К–950 К степенной функцией, изображенной на рис. 1а пунктирной линией. Разность диэлектрических проницаемостей ( $\varepsilon^{ex} - \varepsilon^{th}$ ) обусловлена магнитоэлектрическим вкладом, максимальная величина которой достигается при  $T = 640$  К в окрестности температуры перехода в магнитоупорядоченное состояние. При приближении к сегнетоэлектрическому переходу резко возрастают диэлектрическая проницаемость и диэлектрические потери. При температуре  $T_1 = 835$  К, возможно, происходят изменения в кристаллической структуре, связанные с переходом в орторомбическую фазу.

В области низких температур найдены максимум в диэлектрической проницаемости при  $T = 145$  К и минимум при  $T = 220$  К (рис. 2). Диэлектрические потери в образце  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  также максимальны при  $T = 145$  К и существует перегиб в температурной зависимости  $\text{tg } \delta(T)$  при  $T = 220$  К. Низкотемпературная аномалия в диэлектрических, структурных характеристиках наблюдалась в нанотрубках феррита висмута  $\text{BiFeO}_3$  [16] и отсутствует в объемных образцах. Так, меняется наклон частоты

рамановских фоновых мод на зависимости от температуры при  $T = 140$  К. Частота фоновой моды  $E$ -типа увеличивается на  $14 \text{ см}^{-1}$ . Растет диссипация ультразвука, наблюдаются скачок импеданса (который обусловлен ростом емкости) и изменение объема элементарной ячейки при  $T = 150$  К. Все эти изменения характеристик связываются с поверхностными структурными и магнитными фазовыми переходами [17, 18]. Пирозлектрический ток имеет резкий максимум при  $T = 150$  К, температура которого смещается в сторону низких температур при охлаждении образца в магнитном поле. Ток индуцирован электронами, расположенными в ловушках. Изменение концентрации электронов фиксируется по асимметрии формы линии ЭПР-сигнала [16]. Таким образом, механизм наблюдаемой диэлектрической аномалии в образце  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  обусловлен делокализацией электронов проводимости в доменных стенках сегнетоэлектрического и магнитного типов. В области температур 150–200 К электроны локализируются в окрестности доменных границ.

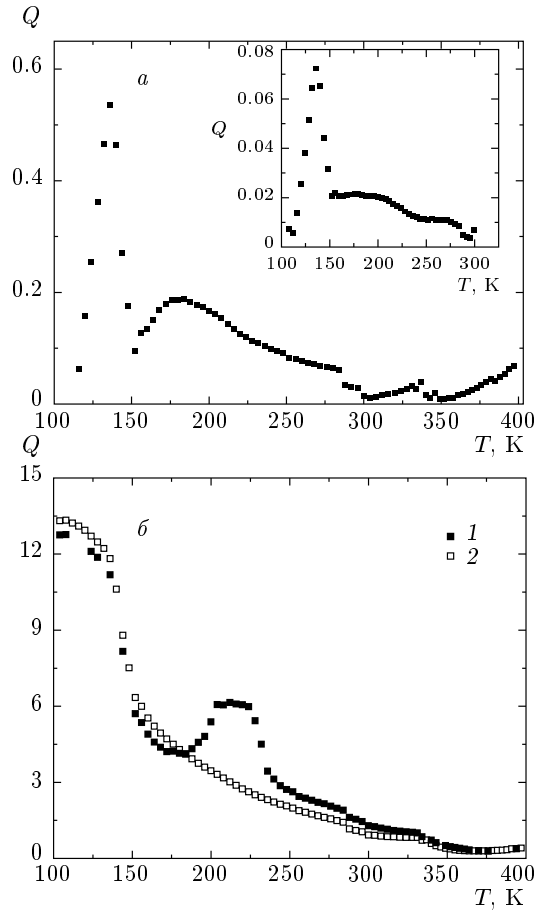
Магнитная проницаемость пленки  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  определялась из индуктивности соленоида с внутренним диаметром  $d = 2$  мм и длиной 10 мм, внутрь которого помещалась пленка. Измерялась индуктивность катушки с образцом ( $L_f$ ) и без образца ( $L_s$ ). Поскольку индуктивность соленоида пропорциональна  $L = n^2 \mu_0 V$ , магнитную проницаемость  $\mu_r$  пленки объемом  $V_f$  найдем как  $\mu_r = (L_f - L_s)/L_s + 1$ . Проницаемость  $\mu_r$  на частотах меньше и включая 10 кГц (рис. 3) имеет максимум в окрестности температуры  $T = 150$  К, ниже которой наблюдается резкий рост добротности (рис. 4). Магнитная проницаемость в магнитном поле  $H = 2.5$  кЭ обнаруживает небольшой скачок при  $T = 280$  К. Вблизи этой температуры при  $T = 276$  К пирозлектрический ток в  $\text{BiFeO}_3$  резко возрастает во внешнем электрическом поле с  $U = 450$  В и не меняется в отсутствие поля [16]. При дальнейшем нагревании проницаемость резко возрастает.

Наблюдаемые аномалии динамических характеристик объясняются изменением конфигурации доменной структуры. Ферроэлектрические доменные границы являются заряженными и заряд экранируется электронами с донорных уровней иона лантана. При низких температурах электроны локализованы на примесных уровнях и жестко держат доменную границу. Изменение направления доменов во внешнем поле при  $T = 280$  К уменьшает активационный барьер, обусловленный взаимодействием доменных стенок с электронами, и индуцирует электрический ток.



**Рис. 3.** Магнитная проницаемость  $\mu_r = (L_f - L_s)/L_s + 1$  пленки  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  с объемом  $V_f$  в магнитном поле  $H = 2.5$  кЭ на частотах 0.1 кГц (1), 1 кГц (2), 10 кГц (3) в зависимости от температуры (а). Относительное изменение магнитной проницаемости пленки, охлажденной в магнитном поле  $H = 2.5$  кЭ и в нулевом поле на частоте 10 кГц, в зависимости от температуры (б)

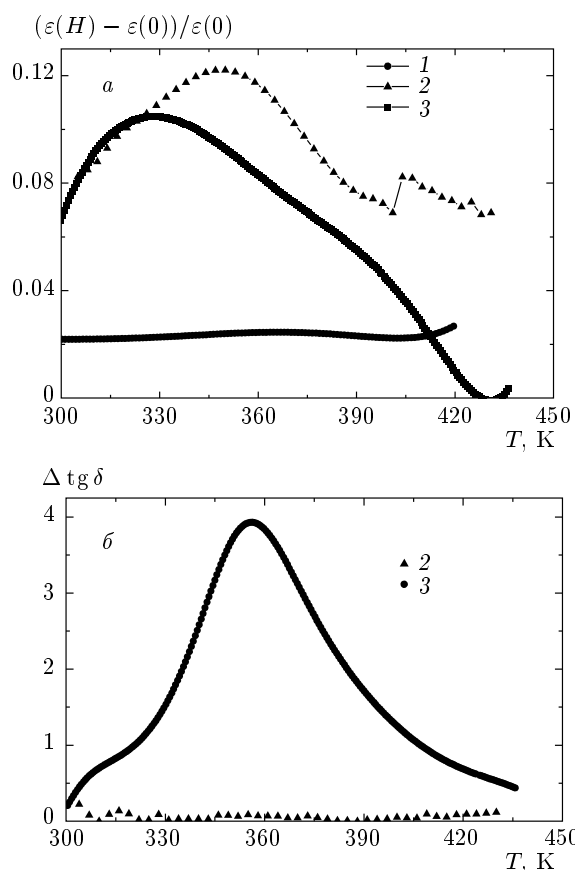
Согласно расчетам функционала электронной плотности для заряженных вакансий ионов висмута энергия локализованных электронных состояний находится вблизи энергии Ферми [16]. Этот механизм подтверждается измерением магнитной проницаемости пленки, охлажденной в нулевом магнитном поле и в поле 2.5 кЭ, представленной на рис. 3б. В магнитном поле намагниченность домена, направленная по полю, увеличивается и магнитные проницаемости пленок при охлаждении в магнитном поле и без поля при  $T < 280$  К различаются. Дальнейшее понижение температуры индуцирует локализацию электронов при  $T = 225$  К, что коррелирует с температурой  $T = 220$  К максимума пирозлектрического тока в пленках  $\text{BiFeO}_3$  [16]. В этой области температур добротность магнитных колебаний также имеет максимум при охлаждении в магнитном



**Рис. 4.** Добротность пленки  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  с  $x = 0.1$  на частотах 1 кГц (а); 10 кГц (1, 2), охлажденной в магнитном поле  $H = 2.5$  кЭ (1) и в нулевом поле (2), в зависимости от температуры (б). Вставка: добротность на частоте 0.1 кГц в зависимости от температуры

поле на частоте  $\omega = 10$  кГц.

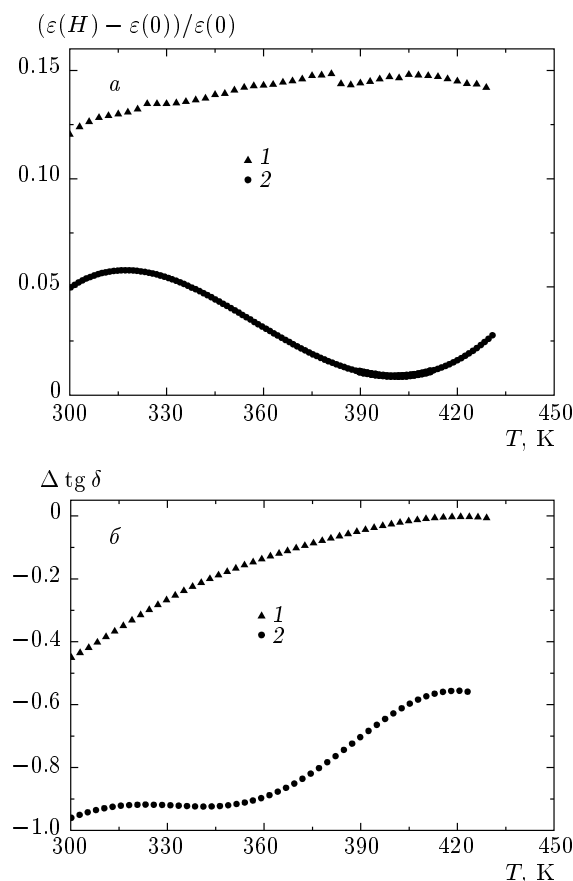
Диэлектрическую проницаемость в магнитном поле  $H = 8$  кЭ измерим на двух частотах  $\omega = 10$  кГц, 100 кГц в интервале температур  $300 \text{ K} < T < 450 \text{ K}$ . Магнитное поле направлено параллельно пластинам конденсатора и перпендикулярно электрическому полю. В отсутствие электрического поля смещения диэлектрическая проницаемость монотонно растет при нагревании и увеличивается на 2.5% в магнитном поле, что превышает значение магнитоёмкости  $\text{BiFeO}_3$  [15]. Магнитоёмкость пленки  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  определена для двух значений напряжений  $U = 0.5$  В,  $U = 1$  В. В полях смещения диэлектрическая проницаемость незначительно уменьшается при нагревании, проходит через минимум при  $T = 355$  К,  $U = 0.5$  В и при  $T = 325$  К,  $U = 1$  В и растет. Температурные зависи-



**Рис. 5.** Магнитоемкость пленки  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  с  $x = 0.1$  на частоте  $10^5$  Гц в магнитном поле  $H = 8$  кЭ с напряжением смещения  $U = 0$  (1), 0.5 В (2), 1 В (3) в зависимости от температуры. Относительное изменение тангенса угла диэлектрических потерь  $\Delta \text{tg } \delta = (\text{tg } \delta(H) - \text{tg } \delta(0)) / \text{tg } \delta(0)$  с  $U = 0.5$  В (2),  $U = 1$  В (3) в магнитном поле в зависимости от температуры

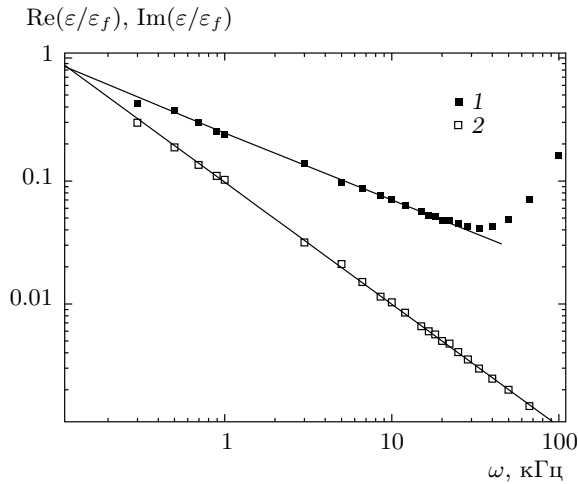
ности магнитоемкости даны на рис. 5а. Магнитоемкость  $(\varepsilon(H) - \varepsilon(0)) / \varepsilon(0)$  имеет максимум, величина которого в пять раз превышает значение магнитоемкости без внешнего электрического поля (рис. 5а). С ростом электрического поля смещения магнитоемкость уменьшается и исчезает при  $T = 430$  К в поле смещения  $U = 1$  В.

Тангенс угла диэлектрических потерь в пленке с напряжением смещения  $U = 0.5$  В практически не зависит от внешнего магнитного поля и плавно растет при нагревании, в то время как в поле смещения  $U = 1$  В диэлектрические потери минимальны при  $T = 360$  К и сильно возрастают во внешнем магнитном поле. Относительное изменение потерь в магнитном поле в зависимости от температуры имеет максимум и исчезает в области высоких температур (рис. 5б).



**Рис. 6.** Магнитоемкость пленки  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  с  $x = 0.1$  на частоте  $10^4$  Гц в магнитном поле  $H = 8$  кЭ с напряжением смещения  $U = 0.5$  В (1),  $U = 1$  В (2) в зависимости от температуры. Относительное изменение тангенса угла диэлектрических потерь  $\Delta \text{tg } \delta = (\text{tg } \delta(H) - \text{tg } \delta(0)) / \text{tg } \delta(0)$  с  $U = 0.5$  В (1),  $U = 1$  В (2) в магнитном поле в зависимости от температуры

Температурные зависимости магнитоемкости на частотах  $\omega = 100$  кГц и  $\omega = 10$  кГц, представленные на рис. 6, качественно совпадают, тогда как диэлектрические потери в магнитном поле уменьшаются (рис. 6б) на частоте 10 кГц и с ростом температуры влияние магнитного поля ослабевает и полностью исчезает при приложении напряжения смещения  $U = 0.5$  В. Ослабление и усиление диэлектрических потерь в магнитном поле на двух частотах связано с механизмом релаксации, который определим из частотной зависимости диэлектрической проницаемости, изображенной на рис. 7. Частотная зависимость действительной части диэлектрической проницаемости не описывается моделью Дебая. Причина такого расхождения заключается в том, что соотношение Дебая не учитывает наличие свобод-



**Рис. 7.** Вещественная (1) и мнимая (2) части диэлектрической проницаемости пленки  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$  с  $x = 0.1$ , нормированные на величину проницаемости на частоте 0.1 кГц, в зависимости от частоты при комнатной температуре. Подгоночная функция  $\text{Im}(\varepsilon(\omega))/\text{Im}(\varepsilon(\omega = 100 \text{ Гц})) = 100/\omega$  (сплошная линия)

ных электрических зарядов. Мнимая часть диэлектрической проницаемости на всем интервале частот  $0.1 \text{ кГц} < \omega < 100 \text{ кГц}$  описывается в модели Дебая выражением  $\text{Im}(\varepsilon) = \chi_d(0)(\omega\tau)/(1 + (\omega\tau)^2)$ . Подгоночная функция  $\text{Im}(\varepsilon(\omega))/\text{Im}(\varepsilon(\omega = 100 \text{ Гц})) = 100/\omega$ , представленная на рис. 7, полностью согласуется с экспериментальными данными.

В исследуемой пленке в окрестности доменных границ присутствуют свободные заряды. В этом случае диэлектрическая проницаемость обусловлена эффективным дипольным моментом, создаваемым заряженной доменной границей и электронами. В случае  $\omega_r < \omega$  представим нормированную величину действительной части диэлектрической проницаемости как сумму двух вкладов от электронов проводимости и резонансного слагаемого от доменной стенки в виде

$$\begin{aligned} \text{Re}(\varepsilon)/\text{Re}(\varepsilon(\omega = 100 \text{ Гц})) = \\ = A + B/\omega^n + C/(\omega_0^2 - \omega^2). \end{aligned} \quad (1)$$

Данная функция хорошо описывает экспериментальные данные с параметрами  $n = 0.8$ ,  $\omega_0 = 200 \text{ кГц}$ . Какова физическая причина взаимодействия дипольного электрического и магнитного моментов в тонких пленках  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$ ?

Образование магнитной неоднородности при замещении висмута лантаном приводит к возникновению электрической поляризации, симметрия про-

странственного распределения которой определяется симметрией магнитной неоднородности. Неоднородный магнитоэлектрический эффект имеет место в магнитных кристаллах любой симметрии. Наличие пространственной модуляции магнитного параметра порядка в материале приводит к возникновению электрической поляризации, в свою очередь, электрическое поле изменяет неоднородное магнитное упорядочение.

В феррите висмута  $\text{BiFeO}_3$  ферроэлектрическая поляризация направлена по диагонали куба и имеет восемь возможных ориентаций, соответствующих положительным и отрицательным направлениям четырех диагоналей куба. Под действием внешнего электрического поля сегнетоэлектрический вектор поляризации дискретно поворачивается на углы  $180^\circ$ ,  $109^\circ$  и  $71^\circ$  [19]. Состояние поляризации после ориентационного перехода является стабильным и сохраняется после удаления поля. В тонких пленках  $\text{BiFeO}_3$  спины перпендикулярны к ромбоэдрической оси [20]. Кроме того, в плоскости [111] наблюдается шестикратное вырождение, которое может быть снято под действием внешнего электрического поля, что может привести к ориентационным фазовым переходам.

В результате взаимодействия сегнетоэлектрических и магнитных доменов меняется магнитная структура в антиферромагнитной доменной границе — спины выходят из плоскости вращения в окрестности сегнетоэлектрических доменных границ, и антиферромагнитная доменная граница попадает в потенциальную яму, образованную сегнетоэлектрическими доменами. Это вызывает уменьшение подвижности доменных границ и меняет их динамические свойства.

На существование намагниченности в окрестности сегнетоэлектрических доменных границ указывают теоретические расчеты [21, 22] и экспериментальные исследования на пленках  $\text{BiFeO}_3$  [23]. Намагниченность доменного происхождения, связанная с неоднородным магнитоэлектрическим эффектом, имеет величину  $M \sim 3 \text{ Гс}$  [24], которая сопоставима с вкладом в намагниченность, обусловленным взаимодействием Дзялошинского–Мория, составляющим примерно  $2 \text{ Гс}$  [25]. Учет этих факторов увеличивает результирующую намагниченность в пленке феррита висмута и приводит к высокой чувствительности магнитной и ферроэлектрической восприимчивостей к внешним воздействиям. Так, при приложении коэрцитивного напряжения  $5 \text{ В}$  вектор поляризации переключается на  $109^\circ$  или  $180^\circ$  относительно первоначального положения [26].

Итак, наблюдаемые явления можно связать с доменами и доменными границами. Три типа доменов имеют разные коэрцитивные поля и разные частоты колебаний. Переключение ферроэлектрических доменов в электрическом поле в пленках  $\text{BiFeO}_3$  толщиной 600 нм на  $109^\circ$  наблюдалось при  $T > 300$  К методом силовой пьезоэлектрической спектроскопии с поворотом антиферромагнитных доменов на  $90^\circ$ , определенных методом фотоэмиссионной электронной микроскопии с линейным дихроизмом рентгеновского излучения, а переключение доменов на  $71^\circ$  происходит при более высокой температуре  $T = 380$  К [19]. Время переключения составляет  $10^{-5}$  с [27].

Во внешних полях, приложенных под углом к оси поляризации или намагниченности домена, частоты расщепляются. В общем случае реализуется неколлинеарное расположение доменов с частотой колебаний  $\omega_0 = \gamma H_A - H$ , где  $H_A$  — поле анизотропии,  $H$  — внешнее магнитное поле. Намагниченность и поляризация также растут во внешних магнитных и электрических полях за счет смещения доменных границ и поворота доменов, что приводит к росту динамической диэлектрической и магнитной восприимчивостей:

$$\begin{aligned} \text{Re } \chi &= \chi_0 / (1 + (\omega\tau)^2) + \chi_0 / (\omega_0^2 - \omega^2 + \beta^2), \\ \text{Im } \chi &= \chi_0 \omega \tau / (1 + (\omega\tau)^2) + \beta \chi_0 / (\omega_0^2 - \omega^2 + \beta^2). \end{aligned} \quad (2)$$

Частоту релаксации ферроэлектрических доменов запишем аналогично времени релаксации в суперпарамагнетике  $\tau = \tau_0 \exp(E_a/k_B(T - T_0))$ , где  $T_0$  — температура блокировки доменов,  $E_a$  — энергия активации. Магнитоёмкость и тангенс угла диэлектрических потерь на частоте 100 кГц вызваны близостью к резонансной частоте колебаний доменных границ. Типичное значение резонансной частоты  $\omega_0 \approx 10^6$  Гц и если ширина линии резонансного поглощения  $\beta = \Delta\omega < (\omega_0 - \omega)$ ,  $\text{Im } \chi > 1$ , то изменение тангенса угла диэлектрических потерь в магнитном поле можно выразить в виде  $\text{tg } \delta_H / \text{tg } \delta_0 = \beta_H \chi_H / \beta_0 \chi_0$ . В магнитном поле энергия активации уменьшается,  $E_a(H) = E_a - \Delta E$ , и диэлектрические потери возрастают,  $\beta \approx 1/\tau$ ,  $\beta_H/\beta_0 = \exp(\Delta E/(k_B(T - T_0))) > 1$ , и достигают максимума при  $T_0 = 355$  К в окрестности переключения доменов на  $71^\circ$ .

В низкочастотной области преобладает релаксация дипольных моментов, описываемая в модели Дебая. Добротность магнитных колебаний на частотах  $\omega < 10$  кГц при  $T > 288$  К становится меньше единицы и спектр приобретает релаксационный характер. Частота релаксации доменной границы  $\omega_r =$

$= 2M_0^2/\chi da$  [28], где  $M_0$  — намагниченность пленки,  $\chi$  — статическая восприимчивость,  $d$  — толщина домена,  $\alpha$  — коэффициент затухания, он обратно пропорционален толщине домена. Смещение границы между доменами происходит в результате поворотов векторов намагниченности или поляризации. Во внешнем электрическом поле толщина доменов и восприимчивость увеличиваются, и соответственно уменьшается частота релаксации. Изменение диэлектрических потерь в магнитном поле в модели Дебая пропорционально  $\text{Im}(\varepsilon(H) - \varepsilon(0))/\text{Im}(\varepsilon(0)) = (\tau(0) - \tau(H))/\tau(H) = \chi(0)d(0)/\chi(H)d(H) - 1 < 0$ .

Таким образом, диэлектрическая релаксация обусловлена движением доменных границ и переключением ориентаций ферроэлектрических доменов в интервале температур 280 К–360 К под действием внешнего электрического поля и в низкочастотной области описывается в модели Дебая. В области высоких частот при приближении к резонансной частоте доменных границ диэлектрические потери связаны с передачей энергии колебаний доменных границ электронам проводимости в пленке  $\text{La}_x\text{Bi}_{1-x}\text{FeO}_3$ .

### 3. ВЫВОДЫ

В низкотемпературной области обнаружены максимумы в магнитной и диэлектрической проницаемостях, связанные с пиннингом электронов в доменной стенке. В области температур 275 К–285 К производные магнитной и диэлектрической проницаемостей по температуре достигают максимальных значений, связанных с переключением доменов на  $109^\circ$ . Диэлектрическая релаксация описывается в модели Дебая на частотах меньших 10 кГц. Усиление магнитоёмкости во внешнем электрическом поле с максимальным значением в интервале температур 350 К–380 К обусловлено переключением доменов, обнаруженных в пленках  $\text{BiFeO}_3$ , на  $71^\circ$  [19]. Уменьшение диэлектрических потерь на частотах порядка 10 кГц вызвано увеличением времени релаксации доменных границ в магнитном поле в модели Дебая. На более высоких частотах, 100 кГц, диэлектрические потери возрастают в магнитном поле в результате уменьшения времени релаксации и энергии активации вращения доменов в интервале температур переключения доменов.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (грант № 12-02-00125-а) и Государственного задания № 114090470016.

## ЛИТЕРАТУРА

1. А. П. Пятаков, А. К. Звездин, УФН **182**, 583 (2012).
2. W. Eerenstein, N. D. Mathur, and J. F. Scott, Nature **442**, 759 (2006).
3. Ю. Ф. Попов, А. П. Пятаков, А. М. Кадомцева и др., ЖЭТФ **138**, 226 (2010).
4. Y. J. Choi, C. L. Zhang, N. Lee, and S.-W. Cheong, Phys. Rev. Lett. **105**, 097201 (2010).
5. M. Fiebig, J. Phys. **38**, 123 (2005).
6. I. Sosnowska, T. Peterlin-Neumaier, and E. J. Steichele, Phys. C **15**, 4835 (1982).
7. D. Sando, A. Agbelele, D. Rahmedov et al., Nature Mater. **12**, 641 (2013).
8. I. E. Dzyaloshinskii, Europhys. Lett. **83**, 67001 (2008).
9. M. Fiebig, Th. Lottermoser, D. Fröhlich et al., Nature **419**, 818 (2002).
10. Z. V. Gareeva and A. K. Zvezdin, Europhys. Lett. **91**, 47006 (2010).
11. З. В. Гареева, А. К. Звездин, ФТТ **52**, 1595 (2010).
12. M. Ramazanoglu, W. Ratcliff, H. T. Yi et al., Phys. Rev. Lett. **107**, 067203 (2011).
13. V. R. Palkar and K. Prashanthi, Appl. Phys. Lett. **93**, 132906 (2008).
14. W. M. Lane and S. Bandyopadhyay, Appl. Phys. Lett. **97**, 173105 (2010).
15. О. Н. Разумовская, Л. А. Резниченко, Л. А. Шилкина и др., ФТТ **51**, 1123 (2009).
16. R. Jarrier, X. Marti, J. Herrero-Albillos et al., Phys. Rev. B **85**, 184104 (2012).
17. M. K. Singh, R. S. Katiyar, and J. F. Scott, J. Phys: Condens. Matter. **20**, 252203 (2008).
18. M. K. Singh, W. Prellier, M. P. Singh, R. S. Katiyar, and J. F. Scott, Phys. Rev. B **77**, 144403 (2008).
19. T. Zhao, A. Scholl, F. Zavaliche et al., Nature Mater. **5**, 823 (2006).
20. C. Ederer and N. A. Spaldin, Phys. Rev. B **71**, 060401(R) (2005).
21. B. M. Tanygin, J. Magn. Magn. Mater. **323**, 616 (2011).
22. K. L. Livesey, Phys. Rev. B **82**, 064408 (2010).
23. Q. He, Y.-H. Chu, J. T. Heron et al., Nature Comm. **225**, 1 (2011).
24. A. K. Zvezdin and A. P. Pyatakov, Phys. Stat. Sol. b **249**, 1956 (2009).
25. З. В. Гареева, автореферат дисс. ... докт. физ.-матем. наук, ИФМК УНЦ РАН, Уфа (2011).
26. F. Zavaliche, P. Shafer, and R. Ramesh, App. Phys. Lett. **87**, 252902 (2005).
27. T. H. Kim, S. H. Baek, S. M. Yang et al., Appl. Phys. Lett. **95**, 262902 (2009).
28. А. Г. Гуревич, *Магнитный резонанс в ферритах и антиферромагнетиках*, Наука, Москва (1973).