

# Electric-Field Modulation Effect on Magnetic Properties in Ni/PMN-PT Multiferroic Heterostructure

Ni Zhang, Weiwei Hou, Qingying Ye, Sen Han, Shuiyuan Chen\*, Zhigao Huang, Huiqin Zhang

Fujian Provincial Key Laboratory of Quantum Manipulation and New Energy Materials, College of Physics and Energy, Fujian Normal University, Fuzhou Fujian  
Email: \*sychen@fjnu.edu.cn

Received: Feb. 5<sup>th</sup>, 2017; accepted: Feb. 19<sup>th</sup>, 2017; published: Feb. 23<sup>rd</sup>, 2017

---

## Abstract

Ni/PMN-PT thin film was prepared by pulsed laser deposition (PLD) method. The crystal structure, magnetic properties and magnetoelectric effect were measured. The experimental results indicate that, the thin film presents obvious electric-field modulation effect on magnetic properties. Moreover, this modulation effect is non-volatile and presents temperature stability, which is benefit for the fields including information memory and sensor. Also, the modulation mechanism was investigated. For example, the electric field modulation effect on magnetic properties in Ni/PMN-PT thin film is attributed to the change of the magnetic anisotropy, which results from the ferroelectric polarizing induced-stress.

## Keywords

Nickel Thin Film, Ferroelectrics, Multiferroic Heterostructure, Magnetic Properties, Electric-Field Modulation

---

# Ni/PMN-PT多铁异质结中电场对磁性的调制

张 旒, 侯薇薇, 叶晴莹, 韩 森, 陈水源\*, 黄志高, 张慧钦

福建师范大学物理与能源学院, 福建省量子调控与新能源材料重点实验室, 福建 福州  
Email: \*sychen@fjnu.edu.cn

收稿日期: 2017年2月5日; 录用日期: 2017年2月19日; 发布日期: 2017年2月23日

---

\*通讯作者。

文章引用: 张旒, 侯薇薇, 叶晴莹, 韩森, 陈水源, 黄志高, 张慧钦. Ni/PMN-PT 多铁异质结中电场对磁性的调制[J]. 应用物理, 2017, 7(2): 31-36. <https://doi.org/10.12677/app.2017.72005>

## 摘要

采用脉冲激光沉积法制备Ni/PMN-PT复合磁电薄膜。对样品的结构、磁性和磁电效应测量表明,样品表现出明显的电场调制磁性效应,而且这种调制具有非易失性和良好的温度稳定性,因此在信息存储、传感器等领域有潜在应用前景。此外,论文还分析了电场调制机制,即通过在PMN-PT单晶里电场诱导铁电极化产生应力,进而通过磁弹效应对Ni薄膜晶格结构及磁相互作用的产生影响,从而获得此结构中电场对Ni薄膜磁特性的有效调制。

## 关键词

镍薄膜, 铁电体, 多铁异质结, 磁特性, 电场调制

Copyright © 2017 by authors and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

## 1. 引言

电场调控磁特性,也称为逆磁电效应,由于具有重要的基础物理意义和潜在的应用价值而引起了人们的广泛关注[1]-[7]。这一效应能使人们通过静电场的形式来改变磁特性,而无须外加磁场或电流。在具体应用中,这种方式将可以实现更低的能耗和器件的小型化[8] [9]。在具有逆磁电效应的材料中,铁磁/铁电复合体系中可观察到比单相多铁材料中更为明显的电场调制磁性。在已有的电场调控磁性研究中,大多是在铁电体相加原位电场进行调制[3] [4] [10] [11] [12],也就是测量铁磁相的磁、电特性的同时,在铁电相加电场。这种调控效应在撤去电场后会消失,也即称为易失性调制,不能应用于永久的信息存储或其它应用。因此,从应用的角度来看,实现电场对磁特性的非易失调制成为多铁磁电效应研究中的一个很重要的方向。目前,关于这种非易失的电场调控磁性及其与对外界条件的响应的研究比较少[5] [13]。而且很少开展在不同的外界条件如温度、磁场下电场对磁特性的非易失调制。此外,从耦合机制考虑,许多研究是基于选取具有较大磁致伸缩效应的铁磁性合金或铁氧体作为磁电复合材料中的铁磁相,在这类材料中可获得较大的压磁系数,进而可能获得大的磁电效应。我们知道,软磁材料是应用广泛且种类最多的一类磁性材料,在硬盘驱动器的读写磁头、传感器、微型电动机、接收机线圈和微机电系统等领域中都具有很好的应用价值。因此,将软磁材料作为多铁磁电复合材料中的铁磁相,研究其中电场对软磁材料中的磁特性的调制,从基础物理及实际应用角度,都具有重要的研究意义。基于以上分析,在本文中,我们选取具有很好软磁特性的Ni金属作为铁磁相,选取具有优异压电特性的 $0.71\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3-0.29\text{PbTiO}_3$ (简称为PMN-PT)单晶作为铁电相,开展了Ni/PMN-PT多铁异质结中电场对磁特性的调制研究。

## 2. 实验

### 2.1. 样品制备

采用脉冲激光沉积法在PMN-PT单晶衬底上沉积Ni磁性薄膜。薄膜厚度可以通过调节激光能量、脉冲数进行控制。实验的具体参数如下:本底真空度为 $2.0 \times 10^{-5}$  Pa,靶间距为4 cm,激光能量为450 mJ,频率为4 Hz。经过既定时间的脉冲沉积后即可得到一定厚度的Ni/PMN-PT复合磁电薄膜。

## 2.2. 结构及性能测试

采用 MiniFlex-II X 射线衍射仪(Cu 靶,  $K_{\alpha}$  线,  $\lambda = 0.15406$  nm)和扫描电镜(SEM)进行结构分析; 利用振动样品磁强计(VSM-VersaLab)及磁电效应综合测试系统分析薄膜的磁、电特性。

## 3. 结果与讨论

图 1 给出的是 Ni/PMN-PT 层状薄膜的 X 射线衍射结果。我们可以看到三个明显的衍射峰, 分别对应于 PMN-PT 单晶衬底的(001)、(002)、(003)晶面。而从图中右上角的局部放大图可以看出, 在(002)、(003)衍射峰边上分别伴随着一个强度略小的衍射峰。采用多峰拟合的方法可以对其进行分离, 如图中绿色和红色虚线所示; 此外, 从图中没有看到其它明显的衍射峰。这些结果表明了纯相结构的 Ni 薄膜很好地沿着 PMN-PT 单晶衬底 $\langle 001 \rangle$ 方向取向向外沿生长。

图 2 给出的是 Ni/PMN-PT 薄膜的表面形貌和断面形貌, 从形貌图中可以看出薄膜与单晶衬底界面清晰, 薄膜表面平整、致密, 没有明显的颗粒出现, 从断面形貌可以看出薄膜的厚度比较均匀, 薄膜厚度约为 50 nm。结合图 1 的 X 射线衍射结果及图 2 扫描电镜结果, 表明通过 PLD 方法可以在 PMN-PT 铁电单晶衬底上制备得到致密且平整的外延生长 Ni 薄膜。为后续开展电场对磁特性的调制研究提供很好的样品。

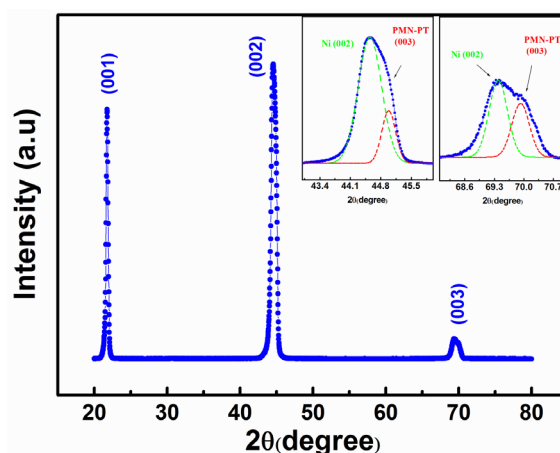


Figure 1. The XRD patterns of the Ni/PMN-PT thin film  
图 1. Ni/PMN-PT 的 X 射线衍射图

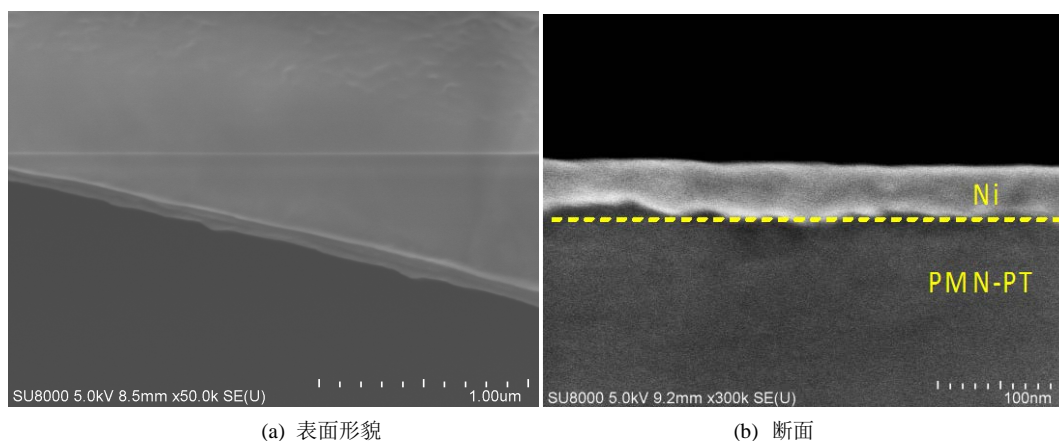


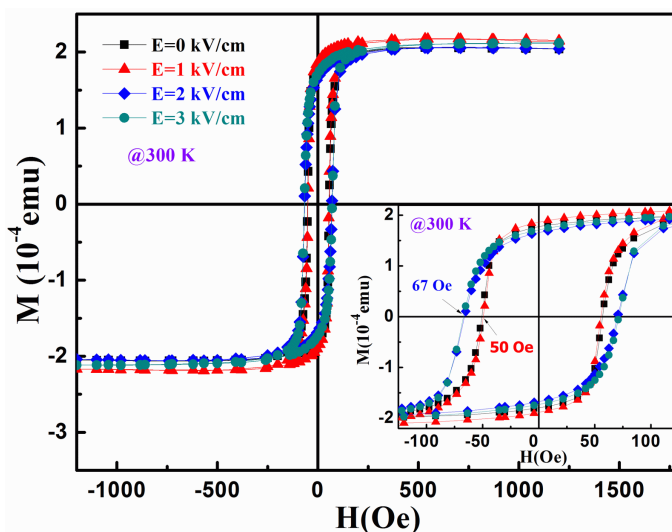
Figure 2. The surface (a) and cross-section (b) morphology of the Ni/PMN-PT thin film  
图 2. Ni/PMN-PT 薄膜的表面(a)和断面(b)形貌

接下来, 我们通过在 PMN-PT 衬底上外加不同电场时, 测量 Ni/PMN-PT 薄膜的磁滞回线(M-H)和磁化曲线(M-T)来研究样品中的逆磁电效应。在测量时, 我们首先在 PMN-PT 衬底上外加电场, 使其极化, 之后撤去电场, 再进行 M-H 或 M-T 测试。也就是在进行样品的磁特性测量时, 电场已不再作用于单晶衬底上。我们称这种方式为非原位测试, 区别于加电场的同时测试磁性(即原位测试)。基于这种方式, 我们测试了不同电场作用后 Ni/PMN-PT 薄膜的磁滞回线和磁化曲线。图 3 给出了电场(E)分别为 0、1 kV/cm、2 kV/cm、3 kV/cm 时样品的磁滞回线测量结果。从图中 E=0 时的 M-H 曲线可以看到, 样品表现出强的铁磁性和较小的矫顽力( $H_c = 50$  Oe)。当在 PMN-PT 衬底上加电场后, 可以看到样品磁特性发生明显的变化。从图中可以看到, Ni 薄膜的饱和磁化强度( $M_s$ ), 剩余磁化强度( $M_r$ )和  $H_c$  均发生了变化。但这种变化并不是单调和线性的, 这与衬底的铁电极化、应力与外加电场的关系不是线性的这一特征有关。当电场增大时,  $M_s$  及  $M_r$  先增加后减小; E = 1 kV/cm 时, 磁化强度变化率达到最大值, 即  $\Delta M/M(E=0) = 8.6\%$ 。这种电场对磁化强度的调制来源于应力诱导的磁弹效应。我们知道, 当在 PMN-PT 铁电单晶上加上一一定的电场并保持一段时间, 单晶便处于某一铁电极化状态, 并有一定的形状变化, 这将对沉积在表面的 Ni 薄膜有应力的作用, 从而产生磁弹效应, 即铁电极化诱导应变引起的铁磁相中的磁弹效应, 这种效应引起磁性材料中的磁各向异性发生变化, 进而改变样品的磁特性[14] [15]。这里的磁弹效应可以用磁弹能(magnetoelastic energy,  $E_{me}$ )来表示。它代表着在磁性材料中应力对磁各向异性的作用效果, 可以表示为:

$$E_{me} \propto -\frac{3}{2}\lambda_s\sigma\cos^2\theta \quad (1)$$

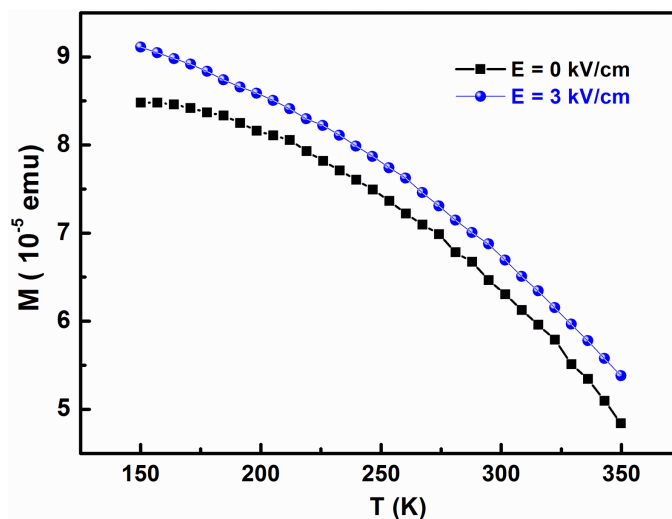
其中  $\lambda_s$  是磁致伸缩系数,  $\theta$  是磁化强度与应力之间的夹角。因此, 应力可以改变磁弹能  $E_{me}$ 。我们知道, 体系的磁自由能包含磁相互作用能、磁晶各向异性能、磁弹性能、Zeeman 能等。这样, 应力将会改变体系的总磁自由能  $E_{tot}$ , 进而改变由  $E_{tot}$  极值决定的体系的磁化强度。

从图 3 中低磁场区的局部放大部分可以看到, 电场对矫顽力的影响更为明显, 3 kV/cm 的电场强度使得  $H_c$  从 50 Oe 增加到 67 Oe, 变化率达到 32%。由电场诱导铁电极化而在 Ni 薄膜上产生的应力将会改变其易磁化轴方向。也可以认为应力在薄膜上产生附加各向异性。这样, 若要使得剩余磁化强度减小到



**Figure 3.** The room-temperature M-H loops of the Ni/PMN-PT thin film with different *ex situ* E-field. The inset presents locally enlarged image of M-H loops in low H region

**图 3.** 室温下 Ni/PMN-PT 薄膜在不同外加电场作用后的 M-H 曲线。插图是在较低磁场区的局部放大图



**Figure 4.** Magnetization as a function of temperature (M-T) with different electric fields and  $H=100$  Oe for the Ni/PMN-PT thin film

**图 4.** Ni/PMN-PT 薄膜中在不同电场下磁化强度随温度的变化关系 ( $H=100$  Oe)

零，就必需附加额外的外磁场，从而使得矫顽力增大。

从实际应用角度，器件性能必须具有一定范围的温度稳定性。因此，为了研究不同外界环境下电场调制磁化强度的情况，我们测量了在不同温度和电场作用下的磁化强度。图 4 给出了在电场分别为零和 3 kV/cm 下样品的磁化强度随温度的变化。从图中可以看到，在所选择的温度变化区域内，电场对 Ni 薄膜的磁化强度均有明显的调制。特别地，在室温附近，这种电场调制磁化强度特性仍然很明显。而且从实验测试方式来看(即先加电场使铁电衬底处于不同极化状态，然后再测试磁化强度)，这种电场调制是非易失的。这样，电场调制磁性的温度稳定性和非易失性使得这一结构材料在信息存储及传感器件方面有着潜在的应用。

#### 4. 结论

采用脉冲激光沉积法在 PMN-PT 单晶衬底上制备得到 Ni 薄膜，研究电场对 Ni/PMN-PT 复合磁电材料磁性的调制效应。在实验上获得了磁电复合薄膜中电场对 Ni 薄膜磁特性的有效调制，这种调制效应在包含室温的很宽温区均表现明显。当电场为 1 kV/cm 时，磁化强度变化率达到了 8.6%；而 3 kV/cm 的电场使得矫顽力变化率达到了 32%。通过电场诱导铁电极化产生应力，进而通过磁弹效应及附加磁各向异性分析了电场调制磁特性的机制。本研究工作表明，通过静电场可以实现对材料的磁性进行调制。从应用角度，这种具有非易失性和良好的温度稳定性的电场调制磁性效应在信息存储及传感器件等方面有着很好的应用前景。

#### 基金项目

本论文得到国家自然科学基金(11004031)、福建省自然科学基金(2016J01007)、福建省新世纪优秀人才计划(JA12054)和福建省教育厅重点项目(JA15100)的资助。

#### 参考文献 (References)

- [1] Nan, C.-W., Bichurin, M., Dong, S., Viehland, D. and Srinivasan, G. (2008) Multiferroic Magnetoelectric Composites: Historical Perspective, Status, and Future Directions. *Journal of Applied Physics*, **103**, Article ID: 031101.

- <https://doi.org/10.1063/1.2836410>
- [2] Ma, J., Hu, J., Li, Z. and Nan, C.-W. (2011) Recent Progress in Multiferroic Magnetoelectric Composites: From Bulk to Thin Films. *Advanced Materials*, **23**, 1062-1084. <https://doi.org/10.1002/adma.201003636>
- [3] Weiler, M., Brandlmaier, A., Geprägs, S., *et al.* (2009) Voltage Controlled Inversion of Magnetic Anisotropy in a Ferromagnetic Thin Film at Room Temperature. *New Journal of Physics*, **11**, Article ID: 013021. <https://doi.org/10.1088/1367-2630/11/1/013021>
- [4] Lee, Y., Liu, Z., Heron, J., *et al.* (2015) Large Resistivity Modulation in Mixed-Phase Metallic Systems. *Nature Communications*, **6**, Article No. 6959. <https://doi.org/10.1038/ncomms6959>
- [5] Liu, M. and Sun, N.X. (2014) Voltage Control of Magnetism in Multiferroic Heterostructures. *Philosophical Transactions of the Royal Society A*, **372**, Article ID: 20120439. <https://doi.org/10.1098/rsta.2012.0439>
- [6] Baek, S., Jang, H., Folkman, C., *et al.* (2010) Ferroelastic Switching for Nanoscale Non-Volatile Magnetoelectric Devices. *Nature Materials*, **9**, 309-314. <https://doi.org/10.1038/nmat2703>
- [7] Fusil, S., Garcia, V., Barthélémy, A. and Bibes, M. (2014) Magnetoelectric Devices for Spintronics. *Annual Review of Materials Research*, **44**, 91-116. <https://doi.org/10.1146/annurev-matsci-070813-113315>
- [8] Chiba, D., Fukami, S., Shimamura, K., Ishiwata, N., Kobayashi, K. and Ono, T. (2011) Electrical Control of the Ferromagnetic Phase Transition in Cobalt at Room Temperature. *Nature Materials*, **10**, 853-856. <https://doi.org/10.1038/nmat3130>
- [9] Yang, Y.T., Zhang, Q.M., Wang, D.H., *et al.* (2015) Electrical Controlled Magnetism in FePt Film with the Coexistence of Two Phases. *Applied Physics Letters*, **103**, Article ID: 082404. <https://doi.org/10.1063/1.4819459>
- [10] Zhou, W., Li, Q., Xiong, Y., *et al.* (2014) Electric Field Manipulation of Magnetic and Transport Properties in SrRuO<sub>3</sub>/Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub> Heterostructure. *Scientific Reports*, **4**, Article No. 6991. <https://doi.org/10.1038/srep06991>
- [11] Hu, J.-M., Li, Z., Chen, L.-Q. and Nan, C.-W. (2011) High-Density Magnetoresistive Random Access Memory Operating at Ultralow Voltage at Room Temperature. *Nature Communications*, **2**, Article No. 553. <https://doi.org/10.1038/ncomms1564>
- [12] Cherifi, R., Ivanovskaya, V., Phillips, L., *et al.* (2014) Electric-Field Control of Magnetic Order above Room Temperature. *Nature Materials*, **13**, 345-351. <https://doi.org/10.1038/nmat3870>
- [13] Nan, T.X., Liu, M., Ren, W., Ye, Z.-G. and Sun, N.X. (2014) Voltage Control of Metal-Insulator Transition and Non-Volatile Ferroelastic Switching of Resistance in VO<sub>x</sub>/PMN-PT Heterostructures. *Scientific Reports*, **4**, Article No. 5931. <https://doi.org/10.1038/srep05931>
- [14] Brandlmaier, A., Geprägs, S., Weiler, M., *et al.* (2008) *In Situ* Manipulation of Magnetic Anisotropy in Magnetite Thin Films. *Physical Review B*, **77**, Article ID: 104445. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.77.104445>
- [15] Wu, T., Bur, A., Zhao, P., *et al.* (2011) Giant Electric-Field-Induced Reversible and Permanent Magnetization Reorientation on Magnetoelectric Ni/(011)Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-PbTiO<sub>3</sub> Heterostructure. *Applied Physics Letters*, **98**, Article ID: 012504. <https://doi.org/10.1063/1.3534788>



**期刊投稿者将享受如下服务：**

1. 投稿前咨询服务 (QQ、微信、邮箱皆可)
2. 为您匹配最合适的期刊
3. 24 小时以内解答您的所有疑问
4. 友好的在线投稿界面
5. 专业的同行评审
6. 知网检索
7. 全网络覆盖式推广您的研究

投稿请点击：<http://www.hanspub.org/Submission.aspx>

期刊邮箱：[app@hanspub.org](mailto:app@hanspub.org)