# УСИЛЕНИЕ МАГНИТОЕМКОСТНОГО ЭФФЕКТА ВО ВНЕШНЕМ ЭЛЕКТРИЧЕСКОМ ПОЛЕ В ПЛЕНКАХ $La_x Bi_{1-x} FeO_3$

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

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

Поступила в редакцию 18 ноября 2014 г.

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

**DOI**: 10.7868/S0044451015090060

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Мультиферроики на основе BiFeO<sub>3</sub> [1] широко и интенсивно с 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 веществах может на несколько порядков превышать размер элементарной ячейки. В этих соединениях магнитодиэлектрическое (MЭ) 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 BiFeO<sub>3</sub> 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-

<sup>&</sup>lt;sup>\*</sup>E-mail: apl@iph.krasn.ru



Рис. 1. Диэлектрическая проницаемость, нормированная на величину проницаемости при T = 300 K (*a*), тангенс угла потерь (1), производная диэлектрической проницаемости по температуре (2) (*б*) для  $La_xBi_{1-x}FeO_3$  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 BiFeO<sub>3</sub> 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 магнитоемкостного эффекта под действием внешнего электрического поля смещения и при замещении висмута лантаном в тонких пленках  $La_x Bi_{1-x} FeO_3$  и установить корреляцию температурных аномалий диэлектрических свойств в магнитном поле с перестройкой доменной структуры, которая наблюдалась в пленках  $BiFeO_3$ .

#### 2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Пленки La<sub>x</sub>Bi<sub>1-x</sub>FeO<sub>3</sub> (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 °С. Подложки располагались на расстоянии 10 см от испарителя. Температура подложек менялась в интервале 250–300 °С. 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 К < T < < 1000 К. На рис. 1 представлены температурные зависимости диэлектрической проницаемости, нормированной на величину проницаемости при T = 300 К, и тангенса угла диэлектрических потерь в La<sub>x</sub>Bi<sub>1-x</sub>FeO<sub>3</sub> для состава с x = 0.1. Производная  $d\varepsilon/dT$  (рис. 16) демонстрирует максимум при



Рис.2. Диэлектрическая проницаемость и тангенс угла потерь для  $La_x Bi_{1-x} FeO_3$  для состава с x = 0.1 на частоте  $10^5 \Gamma$ ц в зависимости от температуры

температуре  $T_1 = 583$  К и излом при  $T_1 = 835$  К. В объемных образцах BiFeO<sub>3</sub> 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. 1 а 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  $T_1 = 835$  K, 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  $La_x Bi_{1-x} FeO_3$  также максимальны при T = 145 К и существует перегиб в температурной зависимости  $tg \delta(T)$  при T = 220 К. Низкотемпературная аномалия в диэлектрических, структурных характеристиках наблюдалась в нанотрубках феррита висмута BiFeO<sub>3</sub> [16] и отсутствует в объемных образцах. Так, меняется наклон часто-

ты рамановских фононных мод на зависимости от температуры при T = 140 К. Частота фононной моды E-типа увеличивается на 14 см<sup>-1</sup>. Растет диссипация ультразвука, наблюдаются скачок импеданса (который обусловлен ростом емкости) и изменение объема элементарной ячейки при T = 150 K. Все эти изменения характеристик связываются с поверхностными структурными и магнитными фазовыми переходами [17, 18]. Пироэлектрический ток имеет резкий максимум при T = 150 K, 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 La<sub>x</sub>Bi<sub>1-x</sub>FeO<sub>3</sub> обусловлен делокализацией электронов проводимости в доменных стенках сегнетоэлектрического и магнитного типов. В области температур 150-200 К электроны локализуются в окрестности доменных границ.

Магнитная проницаемость пленки  $\mathrm{La}_{x}\mathrm{Bi}_{1-x}\mathrm{FeO}_{3}$ 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  $L = n^2 \mu \mu_0 V$ , 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 к $\Im$ обнаруживает небольшой скачок при T = 280 К. Вблизи этой температуры при T = 276 К пироэлектрический ток в  ${\rm BiFeO_3}$  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 (a). 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. 36. 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 K, что коррелирует с температурой T = 220 К максимума пироэлектрического тока в пленках BiFeO<sub>3</sub> [16]. В этой области температур добротность магнитных колебаний также имеет максимум при охлаждении в магнитном



Рис.4. Добротность пленки  $La_x Bi_{1-x} FeO_3$  с x = 0.1 на частотах 1 кГц (a); 10 кГц (1, 2), охлажденной в магнитном поле H = 2.5 кЭ (1) и в нулевом поле (2), в зависимости от температуры ( $\delta$ ). 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 К << T < 450 К. 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 магнитоемкости BiFeO<sub>3</sub> [15]. Магнитоемкость пленки La<sub>x</sub>Bi<sub>1-x</sub>FeO<sub>3</sub> определена для двух значений напряжений U = 0.5 B, U = 1 B. В полях смещения диэлектрическая проницаемость незначительно уменьшается при нагревании, проходит через минимум при T = 355 K, U = 0.5 В и при T == 325 K, U = 1 B и растет. Температурные зависи-



Рис. 5. Магнитоемкость пленки  $La_x Bi_{1-x} FeO_3$  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  $\Delta tg = (tg \delta(H) - tg \delta(0))/tg \delta(0)$  с U = 0.5 В (2), U = 1 В (3) в магнитном поле в зависимости от температуры

мости магнитоемкости даны на рис. 5*а*. Магнитоемкость ( $\varepsilon(H) - \varepsilon(0)$ )/ $\varepsilon(0)$  имеет максимум, величина которого в пять раз превышает значение магнитоемкости без внешнего электрического поля (рис. 5*a*). С ростом электрического поля смещения магнитоемкость уменьшается и исчезает при T = 430 K 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. 56).



Рис. 6. Магнитоемкость пленки  $La_x Bi_{1-x} FeO_3$  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  $\Delta tg = (tg \, \delta(H) - tg \, \delta(0))/tg \, \delta(0)$  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  $La_x Bi_{1-x} FeO_3$  с x = 0.1, нормированные на величину проницаемости на частоте 0.1 кГц, в зависимости от частоты при комнатной температуре. Подгоночная функция  $Im(\varepsilon(\omega))/Im(\varepsilon(\omega = 100 \ {\rm Fg})) = 100/\omega$  (сплошная линия)

ных электрических зарядов. Мнимая часть диэлектрической проницаемости на всем интервале частот 0.1 кГц  $< \omega < 100$  кГц описывается в модели Дебая выражением  $\text{Im}(\varepsilon) = \chi_d(0)(\omega \tau)/(1 + (\omega \tau)^2)$ . Подгоночная функция  $\text{Im}(\varepsilon(\omega))/\text{Im}(\varepsilon(\omega = 100 \ \Gamma_{\text{H}})) = 100/\omega$ , 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

$$\operatorname{Re}(\varepsilon)/\operatorname{Re}(\varepsilon(\omega = 100 \ \Gamma \mathfrak{n})) =$$
$$= A + B/\omega^{n} + C/(\omega_{0}^{2} - \omega^{2}). \quad (1)$$

Данная функция хорошо описывает экспериментальные данные с параметрами n = 0.8,  $\omega_0 = 200$  кГц. Какова физическая причина взаимодействия дипольного электрического и магнитного моментов в тонких пленках La<sub>x</sub>Bi<sub>1-x</sub>FeO<sub>3</sub>?

Образование магнитной неоднородности при замещении висмута лантаном приводит к возникновению электрической поляризации, симметрия пространственного 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 BiFeO<sub>3</sub> 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°, 109° и 71° [19]. Состояние поляризации после ориентационного перехода является стабильным и сохраняется после удаления поля. В тонких пленках BiFeO<sub>3</sub> 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 BiFeO<sub>3</sub> [23]. Намагниченность доменного происхождения, связанная с неоднородным магнитоэлектрическим эффектом, имеет величину  $M \sim 3 \ \Gamma c \ [24]$ , которая сопоставима с вкладом в намагниченность, обусловленным взаимодействием Дзялошинского-Мория, составляющим примерно 2 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 В вектор поляризации переключается на 109° или 180° 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 BiFeO<sub>3</sub> толщиной 600 нм на 109° наблюдалось при T > 300 К методом силовой пьезоэлектрической спектроскопии с поворотом антиферромагнитных доменов на 90°, определенных методом фотоэмиссионной электронной микроскопии с линейным дихроизмом рентгеновского излучения, а переключение доменов на 71° 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:

$$\operatorname{Re} \chi = \chi_0 / (1 + (\omega\tau)^2) + \chi_0 / (\omega_0^2 - \omega^2 + \beta^2),$$
  

$$\operatorname{Im} \chi = \chi_0 \omega\tau / (1 + (\omega\tau)^2) + \beta\chi_0 / (\omega_0^2 - \omega^2 + \beta^2).$$
(2)

Частоту релаксации ферроэлектрических доменов запишем аналогично времени релаксации в суперпарамагнетике  $\tau = \tau_0 \exp(E_a/k_B(T-T_0)),$  где T<sub>0</sub> — температура блокировки доменов,  $E_a$  — энергия активации. Магнитоемкость 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  $\beta = \Delta \omega < (\omega_0 - \omega)$ , Im  $\chi > 1$ , то изменение тангенса угла диэлектрических потерь в магнитном поле можно выразить в виде  $\operatorname{tg} \delta_H / \operatorname{tg} \delta_0 =$  $= \beta_H \chi_H / \beta_0 \chi_0$ . 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 La<sub>x</sub>Bi<sub>1-x</sub>FeO<sub>3</sub>.

#### 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°. Диэлектрическая релаксация описывается в модели Дебая на частотах меньших 10 кГц. Усиление магнитоемкости во внешнем электрическом поле с максимальным значением в интервале температур 350 К-380 К обусловлено переключением доменов, обнаруженных в пленках  $BiFeO_3$ , на 71° [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).
- W. Eerenstein, N. D. Mathur, and J. F. Scott, Nature 442, 759 (2006).
- Ю. Ф. Попов, А. П. Пятаков, А. М. Кадомцева и др., ЖЭТФ 138, 226 (2010).
- 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).
- I. Sosnowska, T. Peterlin-Neumaier, and E. J. Steichele, Phys. C 15, 4835 (1982).
- D. Sando, A. Agbelele, D. Rahmedov et al., Nature Mater. 12, 641 (2013).
- 8. I. E. Dzyaloshinskii, Europhys. Lett. 83, 67001 (2008).
- 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).
- M. Ramazanoglu, W. Ratcliff, H. T. Yi et al., Phys. Rev. Lett. 107, 067203 (2011).
- 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).
- 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).
- 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).