

تحلیل تولید هارمونیک دوم القای مغناطیسی در لایه‌ی نازک بس فرو (فریت

بیس‌موت) با در نظر گرفتن حوزه‌های فروالکتریک

انسیه حق وردی^۲، زهرا سادات عزیزی^۱، محمد مهدی طهرانچی^{۱و۲}

^۱ پژوهشکده لیزر و پلاسما، دانشگاه شهید بهشتی، تهران

^۲ دانشکده فیزیک، دانشگاه شهید بهشتی، تهران

چکیده - فیلم‌های نازک بس فرو کاربرد وسیعی در قطعات میکروالکترونیکی دارند. از شدت تولید هارمونیک دوم (SHG) این مواد، به عنوان روبشگر حساس در مطالعه اثر ضعیف مگنتو الکتریک استفاده می‌شود. ضرایب غیرخطی در محاسبه و تخمین SHG به تقارن ساختاری و مشخصه حوزه‌های فرو الکتریک مجاز در آن، وابسته است. در این مقاله، ضرایب غیرخطی مغناطیسی لایه نازک بس فرو فریت بیسموت (BFO) با تقارن $3m$ بررسی شده‌اند. با در نظر گرفتن حوزه‌های فروالکتریک در این لایه رابطه‌ی شدت MSHG ارائه شده است.

کلید واژه- بیسموت فریت، تولید هارمونیک القای مغناطیسی، تولید هارمونیک دوم، حوزه‌های فرو الکتریک، مگنتو الکتریک.

Magnetic induced harmonic generation in multi-ferric thin film (Bismuth ferrite) by ferroelectric domains consideration

Ensiye Haghverdi¹, Zahra Sadat Azizi¹, Mohammad Mehdi Tehrani^{1,2}

¹Laser and Plasma Research Institute, Shahid Beheshti University, Tehran

²Department of physics, Shahid Beheshti University, Tehran

Abstract- The multiferroics thin films are widely used in microelectronic devices. The intensity of the second harmonic generation (SHG) in these films is as a sensitive probe to study the effects of weak magneto electric effects. In this paper, the nonlinear coefficients of magnetic bismuth ferrite (BFO) thin-film with $3m$ symmetry have been studied. Given ferroelectric domains in this layer, the MSHG relation is provided.

Keywords: Bismuth ferrite, Ferromagnetic domains, Magneto electric, Magnetic induced Second harmonic generation, Second harmonic generation, Transmission geometry.

۱- مقدمه

اخیرا، مطالعات بسیاری بر روی اکسیدهای بس فرو به دلیل تابعیت دو گانه آنها از جمله مگنتو الکتریک صورت می گیرد. از آنجایی که لایه های نازک کلید اصلی ساخت بسیاری از قطعات جدید مانند حافظه ها هستند؛ اطلاع از خواص مگنتو الکتریک آنها ضروری است [۱]. از آنجایی که مقادیر کمیت های قابل اندازه گیری در این لایه ها بسیار کوچک هستند، از تولید هارمونیک دوم^۱ (SHG) به عنوان روبشگری حساس به خواص مگنتو الکتریک استفاده می شود. منشا این کارایی، حساسیت بسیار بالای عناصر تانسور پذیرفتاری SHG و جفت شدگی مگنتو الکتریک به تقارن های بلورین است.

از روش SHG در مطالعه بسیاری از اکسیدهای بس فرو استفاده شده است. از جمله این مواد، فریت بیسموت (BFO) است، که لایه نازک آن در دمای اتاق خواص فرو الکتریکی و آنتی فرومغناطیسی دارد. در اینجا با نگاه به اثر تولید هارمونیک دوم القای مغناطیسی^۲ MSHG، خواص مگنتو الکتریک لایه نازک BFO بر روی SrTiO_3 بررسی می شود. از آنجایی که این زیرلایه دارای مرکز تقارن (مکعبی) است، به ازای هر ورودی، مداخله ای در خروجی SHG نخواهد داشت.

غالباً لایه های فروالکتریک، دارای حوزه هایی با مساحت کمتر از روبشگر هستند. بنابراین در این مقاله، بعد از مروری بر ساختار بلورین و حوزه های فروالکتریک لایه، با رویکرد تحلیلی، تانسور پذیرفتاری مغناطیسی محاسبه شده است. در نهایت شدت MSHG تولید شده توسط نمونه BFO مورد نظر، محاسبه و تحلیل شده است.

۲- مبانی نظری تولید هماهنگ دوم مغناطیسه

در بلورهایی که دارای مغناطش خود به خود یا القایی توسط میدان مغناطیسی خارجی هستند؛ دارای $\mathbf{M}(0)$ هستند. قطبش اپتیکی غیر خطی محیط، در تقریب دو قطبی الکتریکی، بصورت زیر است [2]:

$$P_i(2\omega) = P_i^{cr}(2\omega) + P_i^m(2\omega) \quad (1)$$

¹ Second harmonic generation² Magnetic induced second harmonic generation

$$= d_{ijk}^{(2)}(2\omega, \omega, \omega) E_j(\omega) E_k(\omega) + d_{ijkl}^{(3)}(2\omega, \omega, \omega, 0) E_j(\omega) E_k(\omega) M_l(0)$$

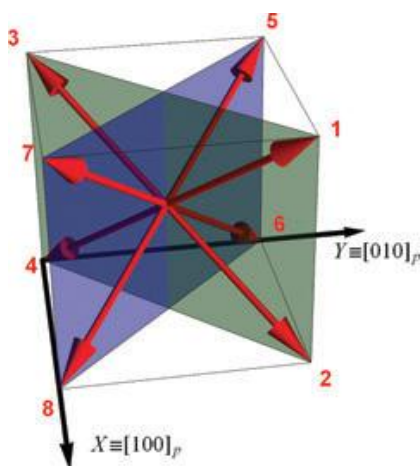
که در آن P_i^{cr} و P_i^m به ترتیب سهم های بلوری و مغناطیسی، $E_j(\omega)$ و $E_k(\omega)$ میدانهای ورودی اصلی و $M(0)$ مغناطش استاتیکی خود به خود یا القایی توسط میدان مغناطیسی خارجی هستند.

سهم P_i^{cr} ، توسط گروه های دیگر محاسبه شده است [۲]. در این مقاله به محاسبه جمله ی P_i^m و سهم آن در اثر MSHG، می پردازیم.

۳- تقارن ساختاری و حوزه های فرو الکتریک

BFO در

فریت بیسموت یکی از مواد بس فرو شناخته شده است. لایه نازک آن که بر زیر لایه $\text{SrTiO}_3(100)$ رشد یافته است، دارای گروه تقارنی $3m$ است. چنین لایه ای، هشت حوزه مختلف فروالکتریک در راستای صفحات $\langle 111 \rangle$ شکل می دهد. در شکل (۱) راستای قطبش مغناطیسی و هشت حوزه مرتبط با آن (شماره ۱ تا ۸) معرفی شده اند.



شکل (۱). هشت حوزه ی مختلف لایه نازک $\text{BiFeO}_3//\text{SrTiO}_3(100)$. فلش قرمز تعیین کننده جهت قطبش فروالکتریک در هشت حوزه با توجه به سلول واحد زیر لایه است. $[100]$ و $[010]$ جهت های بلوری نسبت به زیر لایه هستند. دو صفحه آینه ای برای گروه تقارنی $3m$ به رنگ آبی و سبز نشان داده شده است [۲].

در این مقاله، جهت های مرجع دستگاه مختصات نمونه بر اساس راستای زیرلایه یعنی $X = [100]$ و $Y = [010]$ اختیار می شوند. در یک گروه تقارنی $3m$ راستای قطبش

$$\begin{aligned} d_{1211}^{new} &= 1/\sqrt{3}d_{1211}^{old} = -d_{1121}^{new} \\ d_{2122}^{new} &= 1/(3\sqrt{3})d_{2122}^{old} = -d_{2212}^{new} \\ d_{1112}^{new} &= 1/\sqrt{3}d_{1112}^{old} = -2d_{1211}^{new}(d_{1121}^{new}) - d_{2111}^{new} \end{aligned} \quad (5)$$

ماتریس دوران برای حوزه ی ۲، با تغییر علامت درایه های a_{22} و a_{33} بدست می آید، اجزای تانسور پذیرفتاری تحت این دوران عبارتند از:

$$\begin{aligned} d_{1211}^{new} &= -1/\sqrt{3}d_{1211}^{old} = -d_{1121}^{new} \\ d_{2122}^{new} &= -1/3\sqrt{3}d_{2122}^{old} = -d_{2212}^{new} \\ d_{1112}^{new} &= -1/\sqrt{3}d_{1112}^{old} = -2d_{1211}^{new}(d_{1121}^{new}) - d_{2111}^{new} \end{aligned} \quad (6)$$

و به همین ترتیب، برای سایر حوزه ها روابط فوق بدست آمدند. با جایگذاری عناصر تانسوری جدید رابطه (۵) در رابطه (۱)

$$\begin{aligned} P_x^{(1)} &= m_x d_{1211} \sin 2\varphi + \frac{1}{\sqrt{3}} m_y d_{1112} \\ &+ m_y (d_{2221} + d_{1222}) \cos^2 \varphi \end{aligned} \quad (7)$$

$$p_y^{(1)} = -\frac{1}{\sqrt{3}} d_{1112} m_x (2 \sin^2 \varphi + 1) + m_y d_{2122} \sin 2\varphi,$$

بدست می آیند و به همین ترتیب برای حوزه ی ۲ داریم:

$$\begin{aligned} p_y^{(2)} &= +\frac{1}{\sqrt{3}} d_{1112} m_x (2 \sin^2 \varphi + 1) + m_y d_{2122} \sin 2\varphi \\ P_x^{(2)} &= m_x d_{1211} \sin 2\varphi - \frac{1}{\sqrt{3}} m_y d_{1112} \\ &+ m_y (d_{2221} + d_{1222}) \cos^2 \varphi \end{aligned} \quad (8)$$

با توجه به زاویه بین بردارهای قطبش و تصویر آنها در صفحه x-y، قطبش در هشت حوزه به صورت

$$\begin{aligned} p_x^{(6)} &= -p_x^{(8)} = -\frac{1}{\sqrt{3}} d_{1112} m_x (2 \cos^2 \varphi + 1) \\ &+ m_y d_{2122} \sin 2\varphi \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} p_x^{(5)} &= -p_x^{(7)} = \frac{1}{\sqrt{3}} d_{1112} m_x (2 \cos^2 \varphi + 1) \\ &+ m_y d_{2122} \sin 2\varphi \end{aligned}$$

$$p_y^{(1)} = -p_y^{(3)}$$

$$p_y^{(2)} = -p_y^{(4)}$$

در راستای محور تقارنی سه تایه است. در هر حوزه جهت قطبش در راستای محور x_3 نمونه و محور x_1 عمود بر آن و صفحه آینه ای شامل آن، قرار داد می شود. نور فرودی عمود بر نمونه و میدان الکتریکی آن در صفحه ی x-y با زاویه ϕ نسبت به محور y قرار دارد. نمونه تحت میدان مغناطیسی عرضی با زاویه انتخابی و $M_z = 0$ است.

۴- سهم مغناطیسی در شدت SHG

در این بخش، با استفاده از مختصه های معرفی شده، سهم القای مغناطیسی، P_i^m ، در رابطه (۱) محاسبه می شود. با استفاده از شرط تقارن نیومن

$$d_{ijki}^{new} = |\sigma| \sigma_{ip} \sigma_{jq} \sigma_{kr} \sigma_{ls} d_{pqrs}^{old}, \quad (2)$$

که در آن سیگما عناصر ماتریس تقارن و d_{ijki}^{old} و d_{ijki}^{new} به ترتیب عنصری از ماتریس مرتبه سوم قبل و بعد از تبدیل هستند (زیروندها از یک تا سه مقدار می گیرند)، ضرایب غیر صفر تانسور پذیرفتاری عبارتند از:

$$\begin{aligned} d_{2122} &= -d_{1121}, \quad d_{1211} = -d_{1121} \\ d_{1112} &= -2d_{1211}(d_{1121}) - d_{2111} = -d_{2221} \\ &= 2d_{2122}(d_{2212}) + d_{1222} \end{aligned} \quad (3)$$

به دلیل پیچیدگی ساختار بلوری BFO روابط (از جمله تانسور غیرخطی) بر اساس دستگاه مختصات آزمایشگاه نوشته شده اند. تا حالا، تانسور پذیرفتاری مغناطیسی $D^{(3)}$ در هر حوزه نسبت به مرجع نمونه نوشته شده بود. برای بدست آوردن عناصر این تانسور در دستگاه مختصات آزمایشگاه، از ماتریس تبدیل

$$a = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1/\sqrt{3} & \sqrt{2/3} \\ 0 & -\sqrt{2/3} & 1/\sqrt{3} \end{pmatrix}, \quad (4)$$

برای حوزه ۱ استفاده شده است. این ماتریس، $D^{(3)}$ را به مقدار $(\pi/2 + \varphi)$ حول محور x دوران می دهد تا محور x_3 را بر راستای z دستگاه مختصات منطبق نماید. بنابراین روابط (۳) به صورت زیر تبدیل می شوند:

توجه به روابط (۹،۱۰) شدت MSHG متناظر با راستای x قطبش

$$I_x^{2\omega} \propto p_x^{2\omega} (p_x^{2\omega})^* = (\delta A_x^x)^2 (K \sin 2\varphi)^2 + (\delta A_x^y)^2 (B \sin 2\varphi + C \cos^2 \varphi)^2 + 2\delta A_x^x \delta A_x^y (K \sin 2\varphi) (B \sin 2\varphi + C \cos^2 \varphi), \quad (11)$$

می‌شود. و به همین ترتیب برای $I_y^{2\omega}$

$$I_y^{2\omega} \propto p_y^{2\omega} (p_y^{2\omega})^* = (\delta A_y^y)^2 (p_y^{y+})^2 + (\delta A_y^x)^2 (p_y^{x+})^2 + 2\delta A_y^y \delta A_y^x p_y^{y+} p_y^{x+} \cos \Gamma = (\delta A_y^y)^2 (K \sin 2\varphi)^2 + (\delta A_y^x)^2 (B \sin 2\varphi + C \cos^2 \varphi)^2 + 2\delta A_y^x \delta A_y^y (K \sin 2\varphi) (B \sin 2\varphi + C \cos^2 \varphi), \quad (12)$$

را داریم. در روابط فوق، چون ضرایب K ، B و C به مغناطش وابسته‌اند، با قرار دادن $\mathbf{M} = 0$ ، شدت MSHG صفر می‌شود. مقدار ضرایب روابط (۱۱ و ۱۲) با مقایسه آن‌ها با شدت ثبت شده به ازای یک قطبش خاص خروجی و قطبش های فرودی مختلف، قابل محاسبه هستند. علاوه براین، از نسبت ضرایب، نسبت مساحت حوزه‌های فروالکترونیک در لایه نازک محاسبه می‌شوند.

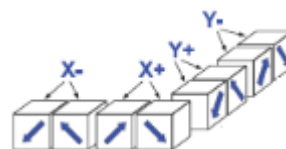
۵- نتیجه‌گیری

در این مطالعه، با در نظر گرفتن حوزه‌های فرو الکترونیک مختلف، شدت MSHG در لایه نازک بس فرو بیسموت فریت (3m)، به صورت تحلیلی، برحسب میدان مغناطیسی خارجی محاسبه شد. با بررسی این نتایج، مساحت حوزه‌ها، وابستگی ضرایب به میدان مغناطیسی اعمالی و ضرایب موثر در تولید MSHG تعیین می‌شوند.

مراجع

- [1] Lofland S. E., McDonald K. F., C. J. Metting C. J., Knoese E., *Epitaxy, texturing, and second-harmonic generation in BiFeO3 thin films*, **Phys.Rev. B**.73.(2006) 092408.
- [2] Denev S., Lummen, Eftihia Barnes T., Kumar A, Gopalan V., *Probing Ferroelectrics Using Optical Second Harmonic Generation*, **J. Am. Ceram. Soc.** 94, (2011) 2699–2727.
- [3] Pavlov V. V., Pisarev R. V., Kirilyuk A., Rasing Th., *Observation of a Transversal Nonlinear Magneto-Optical Effect in thin Magnetic Garnet Films*, **Phys. Rev. Lett.** (1997) 78.

$$p_x^{(1)} = -p_x^{(3)} = -p_y^{(5)} = p_y^{(7)} \\ p_x^{(2)} = -p_x^{(4)} = -p_y^{(6)} = p_y^{(8)}$$



شکل ۲: رابطه حوزه های مختلف در $\text{BiFeO}_3/(100) \text{SrTiO}_3$

دسته بندی شده است. با توجه به شکل (۲) برای جمع قطبش در راستاهای مختلف داریم:

$$p_x^{x+} = P_x^{(7)} + P_x^{(8)} = -2m_y d_{2122} \sin 2\varphi \\ p_x^{x-} = P_x^{(5)} + P_x^{(6)} = -p_x^{x+} \\ p_x^{y+} = P_x^{(1)} + P_x^{(2)} \\ = 2m_x d_{1211} \sin 2\varphi + 2m_y (d_{2221} + d_{1222}) \cos^2 \varphi \\ p_x^{y-} = P_x^{(3)} + P_x^{(4)} = -p_x^{y+} \\ p_y^{x+} = P_y^{(7)} + P_y^{(8)} \\ = 2m_x d_{1211} \sin 2\varphi + 2m_y (d_{2221} + d_{1222}) \cos^2 \varphi \\ p_y^{x-} = P_y^{(5)} + P_y^{(6)} = -p_y^{x+} \\ p_y^{y+} = P_y^{(1)} + P_y^{(2)} = 2m_y d_{2122} \sin 2\varphi \\ p_y^{y-} = P_y^{(3)} + P_y^{(4)} = p_y^{y+}$$

به این ترتیب با نامگذاری، $k = 2m_y d_{2122}$ ، $B = 2m_x d_{1211}$ ، $C = 2m_y (d_{2221} + d_{1222})$ و با توجه به رابطه‌ی جمع

$$I_j^{2\omega} = |\sum A^{\nu} P_j^{\nu} e^{i\delta_{j\nu}}|^2$$

که در آن A^{ν} مساحت حوزه ν ، و $e^{i\delta_{j\nu}}$ به دلیل اختلاف فازی بین حوزه ها وارد شده است، قطبش برآیند تمامی حوزه‌ها به صورت

$$p_x = A_x^{x+} p_x^{x+} + A_x^{x-} p_x^{x-} + (A_x^{y+} p_x^{y+} + A_x^{y-} p_x^{y-}) e^{i\Gamma} \\ = \delta A_x^x p_x^{x+} + \delta A_x^y p_x^{y+} e^{i\Gamma} \quad (9)$$

$$p_y = A_y^{y+} p_y^{y+} + A_y^{y-} p_y^{y-} + (A_y^{x+} p_y^{x+} + A_y^{x-} p_y^{x-}) e^{i\Gamma} \\ = \delta A_y^y p_y^{y+} + \delta A_y^x p_y^{x+} e^{i\Gamma} \quad (10)$$

بدست می‌آیند، که در آن $\delta A_x^x = A_x^{x+} - A_x^{x-}$ و $\delta A_y^y = A_y^{y+} - A_y^{y-}$ عامل فاز است. در نهایت با