



Doctoral Thesis

Induced polar states in oxide thin films

Author(s):

Becher, Carsten

Publication Date:

2014

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-010362601> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

DISS. ETH NO. 22220

INDUCED POLAR STATES IN OXIDE THIN FILMS

A thesis submitted to attain the degree of
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH
(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by

CARSTEN BECHER

Dipl.-Phys., Universität Bonn

born on 27.04.1984

citizen of Germany

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Manfred Fiebig

Prof. Dr. Nicola Spaldin

Prof. Dr. Steven Johnson

2014

Abstract

Polar materials are nowadays widely used in electronic devices such as capacitors or memory cells. A goal of modern material science, however, is to combine polarity with other functional properties, as e.g. magnetism, to generate materials with extended or even completely new functionalities. One pathway to achieve this is to *induce* polar order in otherwise centrosymmetric systems. Here, oxide thin films foreshadow multifunctional devices but also bare complex correlation physics which makes them interesting from a technological and academic point of view.

Within this thesis, the key aspect of polarity is the accompanied symmetry breaking, to which optical second harmonic generation (SHG) is a particularly sensitive probe. Thus, SHG has been used to demonstrate the concept of a thin-film heterostructure, whose integral symmetry can be switched on and off at will.

Next, SHG has been employed to investigate two types of induced polar states, one that is driven by magnetic order and one by epitaxial strain, respectively. Here, two model systems have been selected, namely TbMnO_3 as classical spin-spiral compound in its bulk form, and SrMnO_3 as being predicted to become polar at moderate strain levels.

In TbMnO_3 films, both a cycloidal spin-spiral and its resulting ferroelectric polarization have been independently detected for the first time. The spin-driven polar state features $\leq 5 \mu\text{m}$ sized magnetoelectric domains that can be controlled by external electric fields. Contrary to previous experiments, the bulk-like multiferroicity of TbMnO_3 is hence found to persist even for pronounced spatial confinement to only three periods of the spin-spiral.

The main part of the thesis is devoted to SrMnO_3 films, where a strain-induced polar multidomain state could be observed. Here, the polarity even persists above ambient temperatures. Moreover, this polar phase is accompanied by a conductance structure that is assembled by electrically isolated nanoregions. Strain-promoted defect formation is considered as mechanism to form the electrostatic potential barriers at the domain walls. This defect-polarization coupling enables individual electrical control of each domain and thus provides a new functionality as strain-induced nanocapacitors.

Zusammenfassung

Polare Materialien werden heute bereits in weiten Bereichen der Elektrotechnik, beispielsweise als Kondensatoren oder Speichereinheiten, eingesetzt. Ein Ziel aktueller Materialwissenschaft ist es jedoch, Polarität mit anderen Eigenschaften, wie z.B. Magnetismus, zu kombinieren, um neuartige Materialien mit erweiterten oder komplett neuen Funktionalitäten zu erzeugen. Ein Weg dazu besteht darin, Polarität in ansonsten zentrosymmetrische Systeme zu *induzieren*. Oxidische Dünnschichten sind dabei aus technischer wie auch wissenschaftlicher Sicht interessant, da sie sowohl den Einsatz in Endgeräten als auch Erkenntnisse zur Physik komplexer korrelierter Systeme versprechen.

Ein Schlüsselaspekt im Rahmen dieser Arbeit ist der mit Polarität einhergehende Symmetriebruch, für den optische Frequenzverdopplung (engl. second harmonic generation, SHG) eine besonders empfindliche Nachweisteknik darstellt. Daher wird SHG genutzt, um das Konzept einer Dünnschicht-Heterostruktur zu demonstrieren, dessen Gesamtsymmetrie ein- und ausgeschaltet werden kann.

Danach ist SHG verwendet worden, um zwei Arten induzierter polarer Zustände zu untersuchen, die durch magnetische Ordnung oder durch epitaktische Verspannung verursacht werden. Hierzu sind mit TbMnO_3 und SrMnO_3 zwei Modellsysteme ausgewählt worden, da TbMnO_3 als Volumenkristall ein klassisches Spin-Spiral System darstellt und für SrMnO_3 Polarität bereits für moderate Verspannungen vorhergesagt worden ist.

In TbMnO_3 Filmen konnten sowohl die zyklonale Spin-Spirale als auch die daraus resultierende ferroelektrische Polarisierung unabhängig voneinander nachgewiesen werden. Der polare Zustand weist magnetoelektrische Domänen $< 5 \mu\text{m}$ auf, die mit elektrischen Feldern geschaltet werden können. Entgegen der Erfahrung aus bisherigen Experimenten kann also die aus den Volumenkristallen bekannte Spin-Spiral Multiferroizität auch in dünnen Filmen bis zu einer räumlichen Begrenzung von nur drei Spiralperioden bestehen.

Den Hauptteil der vorliegenden Arbeit bilden die Untersuchungen an SrMnO_3 Filmen, an denen ein verspannungsinduzierter polarer Multidomänenzustand bis oberhalb der Raumtemperatur beobachtet werden konnte. Zudem geht die polare Phase mit einer Leitfähigkeitsstruktur einher, die aus elektrisch isolierten Nanobereichen zusammengesetzt ist. Verspannungsinduzierte Defektformation wird als Mechanismus für elektrostatische Potentialbar-

rieren an den Domänenwänden diskutiert. Diese Kopplung zwischen Defekten und Polarität ermöglicht individuelle elektrische Kontrolle jeder einzelnen Domäne und bietet daher neuartige Funktionalität in Form verspannungsinduzierter Nanokapazitäten.