УДК 537.61

ЛИНЕЙНЫЙ МАГНИТОЭЛЕКТРИЧЕСКИЙ ЭФФЕКТ В НАНОКОМПОЗИТНЫХ СРЕДАХ

А. К. Звездин

Рассмотрен эффект усиления магнитоэлектрического эффекта в композитной среде, представляющей собой матрицу – диэлектрик с большим значением диэлектрической постоянной ϵ, с вкрапленными в нее мелкими магнитными частицами, обладающими магнитоэлектрическим эффектом. Показано, что в такой среде происходит усиление магнитоэлектрического эффекта в $(\kappa_{eff}c+1)f$ раз, где κ_{eff} – эффективная поляризуемость композита, c – фактор Лоренца, f – фактор заполнения $f = Nv$, N – концентрация магнитных частиц, v – объем частицы.

Линейный магнитоэлектрический эффект (ЛМЭ) определяется следующими формулами (в системе СГС):

$$\mathbf{P} = \hat{\kappa}\mathbf{E} + \frac{\hat{\alpha}}{4\pi}\mathbf{H}, \tag{1}$$

$$\mathbf{M} = \mathbf{E}\frac{\hat{\alpha}}{4\pi} + \hat{\chi}\mathbf{H}, \tag{2}$$

где $\mathbf{E}, \mathbf{H}$ – внешние электрическое и магнитное поля, $\mathbf{P}, \mathbf{M}$ – вызванные ими электрическая поляризация и намагниченность, $\hat{\kappa}$ и $\hat{\chi}$ – тензоры поляризуемости и восприимчивости, $\hat{\alpha}$ – магнитоэлектрический тензор. Последний и является предметом рассмотрения настоящей работы. ЛМЭ уже более 100 лет привлекает к себе внимание физиков (напомним в связи с этим такие имена, как П. Кюри, С. А. Богуславский, Л. Неель, Л. Ландау, Е. Лифшиц). Ландау и Лифшиц в 1956 г. сформулировали необходимые условия существования ЛМЭ, которые заключаются в том, что среда с

ЛМЭ должна быть одновременно нечетной относительно операций пространственной инверсии и отражения времени. Дзялошинский в 1959 г. [1] предсказал существование ЛМЭ в некоторых антиферромагнетиках, в частности, в Cr_2O_3 и в 1961 г. эффект был экспериментально обнаружен [2, 3].

Однако вплоть до недавнего времени ЛМЭ представлял лишь академический интерес ввиду того, что он был мал ($\alpha_{ij} \lesssim 10^{-3}$) и наблюдался при низких температурах. Наибольшая величина ЛМЭ была найдена в $TbHO_4$ ($\alpha \approx 10^{-1}$), поэтому ЛМЭ в нем был определен как гигантский, но он существует лишь при $T < 2\,K$. Ситуация изменилась в последние годы; были синтезированы композитные среды (типа $BiFeO_3xPbTiO_3$) и эпитаксиальные пленки на подложке с большим значением диэлектрической проницаемости ϵ [4], в которых ЛМЭ является гигантским при комнатных температурах и выше ($\alpha \approx 10^{-2}$)[1]. Очевидно, что гигантский ЛМЭ представляет значительный практический интерес. В настоящей работе теоретически исследуется возможный механизм возникновения гигантского ЛМЭ в композитной среде.

Рассмотрим нанокомпозитную среду с диэлектрической постоянной $\epsilon_1 \gg 1$, в которую вкраплены малые магнитные частицы, характеризуемые диэлектрической постоянной ϵ_2 и магнитоэлектрическим тензором $\hat{\alpha}$. Пусть объем частицы равен v и их концентрация равна N. Будем полагать также наличие в среде некоторой выделенной ориентации кристаллических осей малых частиц, что означает, что $\langle\hat{\alpha}\rangle \neq 0$, где $\langle\hat{\alpha}\rangle$ – значение магнитоэлектрического тензора, усредненное по ориентациям кристаллических осей малых частиц. Если концентрация частиц N достаточно велика, то очевидно, что композитную среду можно охарактеризовать эффективными величинами ϵ_{eff} и $\hat{\alpha}_{eff}$. Такая процедура называется гомогенизацией композитной среды. Она имеет смысл по крайней мере тогда, когда среднее расстояние между частицами в среде и их характерный размер намного меньше характерной длины, на которой изменяется среднее (макроскопическое) электромагнитное поле в среде (например, длины волны и т.д.). Соответствующие теоретические модели, позволяющие определить эффективные проницаемости среды, называют моделями эффективной среды. Они разработаны для вычисления частотной зависимости $\epsilon(\omega)$. Нам неизвестны работы, в которых метод эффективной среды использовался бы для вычисления эффективного магнитоэлектри-

[1]Интересны также многослойные структуры типа пьезоэлектрик–ферромагнетик, в которых наблюдаются большие магнитоэлектрические эффекты [12], но они не являются линейными по магнитному полю.

ческого тензора. В настоящей работе делается попытка по крайней мере качественно рассмотреть этот вопрос.

Поскольку значения компонент магнитоэлектрического тензора $\hat{\alpha}$ много меньше 1, можно решить задачу методом последовательных приближений: на первом этапе определяется ϵ_{eff}, на втором, используя ϵ_{eff}, определяется $\hat{\alpha}_{eff}$. При малых значениях фактора заполнения f, когда взаимодействием "вкрапленных" частиц между собой можно пренебречь, для вычисления ϵ_{eff} можно использовать приближение Максвелла-Гарнетта [5]:

$$\frac{\epsilon_{eff}-\epsilon_1}{\epsilon_{eff}+2\epsilon_1}=f\frac{\epsilon_2-\epsilon_1}{\epsilon_2+2\epsilon_1} \tag{3}$$

или

$$\epsilon_{eff}=\epsilon_1\frac{\epsilon_2(1+2f)+2\epsilon_1(1-f)}{\epsilon_2(1-f)+\epsilon_1(2+f)}, \tag{4}$$

где $f\approx Nv$. Для больших значений f, когда следует учитывать взаимодействие между внедренными частицами, используют для вычисления ϵ_{eff} приближение Браггемана [6]:

$$f\frac{\epsilon_1-\epsilon_{eff}}{\epsilon_1+2\epsilon_{eff}}+(1-f)\frac{\epsilon_2-\epsilon_{eff}}{\epsilon_2+2\epsilon_{eff}}=0 \tag{5}$$

или формулы Ханаи–Браггемана, которые получают, стартуя из формул Максвелла-Гарнетта, при помощи итерационной процедуры, повышая концентрацию частиц [6, 7].

Для сферических частиц формула Ханаи–Браггемана имеет вид:

$$\frac{\epsilon_2-\epsilon_{eff}}{\epsilon_2-\epsilon_1}\left(\frac{\epsilon_1}{\epsilon_{eff}}\right)^{1/3}=1-f. \tag{6}$$

Более подробное изложение процедуры гомогенизации или методов эффективной среды можно найти в [8 – 11].

Перейдем к вычислению $\hat{\alpha}_{eff}$. При воздействии внешнего магнитного поля на рассматриваемую композитную среду мелкие магнитные частицы электрически поляризуются за счет магнитоэлектрического эффекта. Среднее значение вектора электрической поляризации магнитной подсистемы равно:

$$\langle\mathbf{P}_2\rangle=\frac{Nv}{4\pi}\langle\hat{\alpha}\rangle\mathbf{H}=\frac{f}{4\pi}\langle\hat{\alpha}\rangle\mathbf{H}, \tag{7}$$

где $\langle\hat{\alpha}\rangle$ – усредненное по ориентациям кристаллических осей частиц значение тензора $\hat{\alpha}$.

В силу диполь-дипольного взаимодействия между поляризованными частицами в образце возникает среднее внутреннее электрическое поле

$$\mathbf{E}_{in} = \frac{cf}{4\pi}\langle\hat{\alpha}\rangle\mathbf{H}, \tag{8}$$

где c – константа Лоренца, которая в простейшем случае равна $4\pi/3$. Внутреннее поле $\mathbf{E}_{in}$ поляризует электрическую подсистему образца, вектор электрической поляризации которого равен

$$\mathbf{P}_1 = \frac{\epsilon_{eff} - 1}{4\pi}\mathbf{E}_{in}. \tag{9}$$

Складывая (9) и (7), получим вектор электрической поляризации образца $\mathbf{P}_t$ в виде:

$$\mathbf{P}_t = (\kappa_{eff}c + 1)\frac{f}{4\pi}\langle\hat{\alpha}\rangle\mathbf{H}, \tag{10}$$

где $\kappa_{eff} = \dfrac{\epsilon_{eff} - 1}{4\pi}$.

Таким образом, наличие матрицы с высоким значением диэлектрической постоянной усиливает линейный магнитоэлектрический эффект материала в $\eta = (\kappa_{eff}c + 1)f$ раз. Нетрудно показать, что точно такой же коэффициент усиления возникает и в первом слагаемом уравнения (2) для намагниченности.

При $\epsilon_1 \gg 1$ эффект усиления может быть значительным. Для оценок примем $\epsilon_1 = 10^3$, $\epsilon_2 = 10^2$, $f = 0.5$ (значения, типичные для нанокомпозитов типа $(BiFeO_3xPbTiO_3)$), тогда, согласно (4), $\epsilon_{eff} \approx 480$ и параметр усиления $\eta \approx \frac{\epsilon_{eff}}{3}f \approx 80$.

Конечно, для оценки результирующего эффекта нужно принять во внимание, что компоненты $\langle\hat{\alpha}\rangle$ могут быть значительно меньше, чем соответствующие компоненты тензора $\hat{\alpha}$.

Естественно предположить, что рассмотренный механизм усиления может проявляться и в тонких магнитоэлектрических пленках (например, $BiFeO_3$), выращенных на диэлектрических подложках с большими значениями диэлектрической постоянной ϵ. Рассмотренный механизм усиления может быть применим и к квадратичному магнитоэлектрическому эффекту. Нетрудно убедиться, что аналогичный механизм усиления ЛМЭ реализуется также в случае, когда роль матрицы нанокомпозитной среды играет магнитный материал с большим значением магнитной проницаемости μ.

Автор благодарен А. П. Пятакову за прочтение рукописи и за замечания.

Работа поддержана проектами РФИИ (02–02–17389), Интеграция (Б–0056).

ЛИТЕРАТУРА

[1] Дзялошинский И. Е. ЖЭТФ, **33**(3), 881 (1959).

[2] Астров Д. Н. ЖЭТФ, **38**(3), 984 (1961).

[3] Follen V. J., Rado G. T., and Stadler E. W. Phys. Rev. Lett., **6**, 607 (1961).

[4] Cheng J., Ruette B., Dong S., et al. Appl. Phys. (Submitted); Wang J., Zheng H., Nagarajan V., et al. Science, **299**, 1719 (2003).

[5] Maxwell-Garnett J. C. Phil. Trans. Roy. Soc., **A203**, 385 (1904).

[6] Bruggeman D. A. J. Ann. Phys. Lpz., **24**, 636 (1935).

[7] Ragossing H. and Felts A. J. Europ. Ceramic. Soc., **18**, 429 (1998).

[8] Wood D. M. and Asheroft N. W. Phys. Rev., **B 25**(10), 6255 (1982).

[9] Van der Hulst H. C. Light Scattering by Small Particles, New York, Dover, 1981.

[10] Sheng P. Phil. Mag., **B 65**, 357 (1991).

[11] Belotelov V. I., Perlo P., and Zvezdin A. K. in: "Metal/Polymer Nanocomposities" Ed. J. Carotenuto, New York, Wiley, 2004.

[12] Srinivasan S., Rasmussen E. T., Bush A. A., et. al. Appl. Phys., A (2003).

Институт общей физики
им. А. М. Прохорова РАН

Поступила в редакцию 9 февраля 2004 г.