Влияние электрического поля на магнитные переходы "несоразмерная–соразмерная фаза" в мультиферроике типа BiFeO₃

© А.Г. Жданов, А.К. Звездин*, А.П. Пятаков, Т.Б. Косых, D. Viehland**

Московский государственный университет им. М.В. Ломоносова, 119992 Москва. Россия

* Институт общей физики им. А.М. Прохорова Российской академии наук,

** Material Science Department, Virginia Tech, Blacksburg,

VA 24061, USA

E-mail: pyatakov@phys.msu.ru

(Поступила в Редакцию 1 марта 2005 г.)

Рассмотрены особенности индуцированных магнитным полем фазовых переходов несоразмерная-соразмерная фаза в мультиферроиках, веществах в которых сосуществуют магнитное и электрическое упорядочение. Примерами таких веществ служат сегнетомагнетик феррит висмута BiFeO₃, соединения на его основе, а также другие сегнетомагнетики, в которых наблюдаются пространственно модулированные спиновые структуры. Показано, что наличие взаимодействия между электрической и магнитной подсистемами мультиферроика может приводить к смещению под действием электрического поля точки критического магнитного поля, при котором происходит переход из пространственно модулированного в однородное антиферромагнитное состояние. Согласно теоретическим оценкам при параметрах материала, типичных для феррита висмута, это смещение составляет порядка 0.5 Т в электрическом поле 50 kV/ст. Построены фазовые диаграммы в координатах магнитное поле–электрическое поле. Проведено сравнение результатов, полученных в приближении гармонической несоразмерной структуры, с точным солитонным решением.

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (грант № 05-02-16997-а, 05-02-17719-а, 04-02-81046-Бел2004-а) и программой "Университеты России" УР.3313-05.

PACS: 64.70.Kb, 64.70.Rh

1. Введение

В последнее время оживился интерес к сегнетомагнетикам или, в современной терминологии, мультиферроикам — классу материалов, в которых сосуществует магнитное и электрическое упорядочение [1]. Взаимодействие электрической и магнитной подсистем может проявляться в виде магнитоэлектрического эффекта: индуцированной электрическим полем намагниченности и индуцированной магнитным полем электрической поляризации [2]. Долгое время магнитоэлектрические эффекты представляли в основном академический интерес, однако открытый в последнее время гигантский магнитоэлектрический эффект [3] позволил говорить о практическом применении магнитоэлектриков для преобразования электрических полей в магнитные и обратно, что является одной из насущных проблем сенсорной техники, микроэлектроники и систем магнитной памяти.

В магнитоэлектриках интересен не только магнитоэлектрический эффект сам по себе, но также и возможность более глубокого изменения свойств материалов под влиянием электрического и магнитного полей вплоть до индуцирования "перекрестных" фазовых превращений. Термин "перекрестный" здесь используется для обозначения влияния электрического поля на магнитную подсистему и, наоборот, магнитного поля на электрическую подсистему рассматриваемого мультиферроика. Исследования мультиферроиков и поиск материалов с гигантским магнитоэлектрическим эффектом активно ведутся в настоящее время [1,3–9]. Одним из самых популярных соединений, на основе которого создают новые магнитоэлектрические материалы, является феррит висмута BiFeO₃ [1,3–7], что в значительной мере связано с рекордно высокими температурами электрического ($T_c = 1083$ K) и магнитного ($T_N = 643$ K) упорядочения. В тонких пленках именно этого материала был впервые открыт при комнатных температурах гигантский магнитоэлектрический эффект [3].

С другой стороны, интерес к ферриту висмута имеет также фундаментальный научный аспект. В объемных образцах BiFeO₃ присутствует пространственно модулированная структура, в которой векторы намагниченности антиферромагнитных подрешеток меняются от точки к точке периодически с периодом 620 Å [10,11], несоразмерным с периодом кристаллической решетки.¹

Наличие пространственно модулированной структуры в феррите висмута приводит к тому, что в среднем по объему магнитоэлектрический эффект обращается в

¹¹⁹⁹⁹¹ Москва. Россия

¹ Примечательно, что существует глубокая аналогия между пространственно модулированными структурами в сегнетомагнетиках и волнами вектора директора в нематическом жидком кристалле [12], в особенности касающаяся влияния на них электрического поля. Эта аналогия формально выражается в сходстве выражений для энергии неоднородного магнитоэлектрического взаимодействия в сегнетомагнетике и энергии взаимодействия флексоэлектрической поляризации с внешним электрическим полем в нематическом жидком кристалле.

нуль. Таким образом, необходимым условием наблюдения магнитоэлектрического эффекта является подавление пространственно модулированной структуры, что происходит в сильных магнитных полях [13], когда система претерпевает фазовый переход несоразмерная– соразмерная фаза между спин-модулированным и однородным антиферромагнитным состояниями. Появление магнитоэлектрического эффекта в тонких пленках и керамических соединениях феррита висмута также вызвано подавлением в них пространственно модулированной структуры [3,6,14].

Цель настоящей работы — рассмотрение влияния электрического поля на магнитный фазовый переход между пространственно модулированной фазой и однородным антиферромагнитным состоянием.

2. Теория

2.1. Термодинамический потенциал системы. Полный термодинамический потенциал системы включает в себя потенциалы электрической и магнитной подсистем, и его объемная плотность может быть представлена в следующем виде:

$$F = F_{el} + F_{me} + F_m + F_{an} + F_{exch} + F_L, \qquad (1)$$

где *F_{el}* — плотность свободной энергии электрической подсистемы

$$F_{el} = \frac{a_1 \eta_z^2}{2} + \frac{a_2 \eta_z^4}{4} + \frac{a_3}{2} \eta_\perp^2 - a_4 (\eta_\perp E_\perp + \eta_z E_z), \quad (2)$$

 $a_1 < 0, a_2 > 0, a_3 > 0, a_4 > 0$ — феноменологические контакты, характеризующие электрическую подсистему; η_z, η_\perp — компоненты параметра порядка, параллельные и перпендикулярные оси *z*, ось *z* выбрана вдоль направления одноосной анизотропии кристалла (ось *c*).

F_{me} есть энергия магнитоэлектрического взаимодействия

$$F_{me} = -D \cdot (\mathbf{P}[\mathbf{M} \cdot \mathbf{l}]), \qquad (3)$$

где $\mathbf{l} = \frac{\mathbf{L}}{L}$ — единичный вектор антиферромагнетизма, определяемый разностью векторов намагниченностей подрешеток ионов Fe: $\mathbf{L} = \mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2$, **P** — поляризация среды, *D* — коэффициент *однородного* магнитоэлектрического взаимодействия, ответственного за возникновение слабого ферромагнетизма, характеризующегося намагниченностью **M**.

 F_m есть магнитная энергия во внешнем магнитном поле **H** (см. Приложение)

$$F_m = \frac{\mathbf{M}^2}{2\chi_{\perp}} - \frac{(\mathbf{M}\mathbf{I})^2}{2\chi_{\parallel}} - \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}, \qquad (4)$$

где $\chi_{\parallel}, \chi_{\perp}$ — продольная и перпендикулярная вектору антиферромагнетизма магнитные восприимчивости.

Энергия анизотропии запишется в виде

$$F_{an} = K_u \sin^2 \theta, \tag{5}$$

где θ — угол между вектором антиферромагнетизма и осью c кристалла, K_u — константа одноосной анизотропии.

Слагаемое, соответствующее обменному взаимодействию, выражается следующим образом:

$$F_{exch} = A \sum_{i=x,y,z} (\nabla l_i)^2, \tag{6}$$

где *А* — константа неоднородного обмена (обменная жесткость).

Наконец, последнее слагаемое в $(1) - F_L$ (инвариант Лифшица), соответствующее *неоднородному* магнитоэлектрическому взаимодействию, пропорционально пространственным производным от компонент вектора антиферромагнетизма [11,12]

$$F_L = \alpha_{ijkl} P_i l_j \nabla_k l_l, \tag{7}$$

где α_{ijkl} — тензор неоднородного магнитоэлектрического взаимодействия.

В случае кубического кристалла выражение (7) можно переписать в векторном виде²

$$F_L = \alpha \cdot (\mathbf{P} \cdot \mathbf{\Lambda}), \tag{8}$$

где

$$\mathbf{\Lambda} = \mathbf{I} \operatorname{div} \mathbf{I} + [\mathbf{I} \times \operatorname{rot} \mathbf{I}]. \tag{9}$$

Осуществляя процедуру минимизации (см. Приложение) по намагниченности **М** магнитоэлектрического (3) и магнитного (4) вкладов в энергию, получаем вместо (3) и (4) в термодинамическом потенциале слагаемое, зависящее только от **l**

1

$$F_m^{eff} = \chi_\perp \frac{H_{eff\perp}^2}{2},\tag{10}$$

где $\mathbf{H}_{eff\perp} = \mathbf{H}_{eff} - (\mathbf{H}_{eff}\mathbf{l})\mathbf{l}$ — перпендикулярная вектору антиферромагнетизма составляющая эффективного магнитного поля, которое является суммой внешнего поля **H** и внутреннего поля (магнитоэлектрического происхождения)

$$\mathbf{H}_{eff} = \mathbf{H} + D[\mathbf{l} \cdot \mathbf{P}],\tag{11}$$

предполагается, что продольная восприимчивость $\chi_{\parallel} \ll \chi_{\perp}.$

Минимизация (2) по η для равновесного значения параметра порядка η^0 в отсутствие внешнего поля *E* дает

$$\eta_{\perp}^{0} = 0, \quad \eta_{z}^{0} = \sqrt{\frac{-a_{2}}{a_{1}}}.$$
 (12)

Компоненты параметра порядка η преобразуются под действием операций симметрии кристалла так же, как компоненты полярного вектора, поэтому в дальнейшем анализе будем рассматривать электрическую поляризацию P среды, пропорциональную η .

Пусть электрическое поле направлено вдоль оси c (**H** \parallel **E** \parallel c \parallel z), тогда в линейном по электрическому

² Известно [1,13], что кристаллическая структура феррита висмута мало отличается от кубической (соответствующие углы при вершинах граней отличаются от прямых на величину, меньшую градуса).



Рис. 1. Гистерезис электрической поляризации, P_{sp} — спонтанная электрическая поляризация, E_c — коэрцитивная сила.

полю приближении электрическую поляризацию можно записать в виде

$$P_{z\pm} = \pm P_s + \kappa_{\parallel} E_z, \qquad (13)$$

где $P_s = a_4 \sqrt{\frac{-a_2}{a_1}}$, $\kappa_{\parallel} = \frac{a_4}{2|a_1|}$ — продольная электрическая восприимчивость. Два значения электрической поляризации соответствуют двум ветвям гистерезиса. Переход от одного решения к другому осуществляется при электрических полях $\pm E_c$ (коэрцитивная сила) (рис. 1).

При выводе (13) предполагалось, что магнитоэлектрический вклад в электрическую поляризацию мал, т.е. $DM \ll P/\kappa_{\parallel}$ (см. формулу 3).

Учитывая, что $P = (0, 0, P_z)$ (см. формулу 12), перепишем соотношение (8) в компонентах³

$$F_L = \alpha P_z (l_x \nabla_x l_z + l_y \nabla_y l_z - l_z \nabla_x l_x - l_z \nabla_y l_y).$$
(14)

Поскольку рассматриваемый магнитный фазовый переход состоит в изменении ориентации в пространстве вектора **l**, в выражении для свободной энергии будут иметь значение только слагаемые, зависящие от углов (θ, φ) , задающих положение вектора **l** = $(\sin \theta \cos \varphi, \sin \theta \sin \varphi, \cos \theta)$ в сферической системе координат с осью *c* в качестве полярной. С учетом выражений (1), (5), (6), (10), (11), (14), и учитывая, что (**M** · **H**) = 0 (внешнее магнитное поле **H** || *z* направлено перпендикулярно направлению намагниченности магнитоэлектрического происхождения, пропорциональной второму слагаемому в (11)), для плотности свободной энергии имеем

$$F = A((\nabla \theta)^{2} + \sin^{2} \theta (\nabla \varphi)^{2}) - \alpha \cdot P_{z} (\nabla_{x} \theta \cos \varphi + \nabla_{y} \theta \sin \varphi) - \cos \theta \sin \theta (\sin \varphi \nabla_{x} \varphi - \cos \varphi \nabla_{y} \varphi)) - K_{eff} \cos^{2} \theta,$$
(15)

где $K_{eff} = \left(K_u - \frac{\chi_{\perp} \cdot H^2}{2} - \frac{M^2}{2\chi_{\perp}}\right)$ — константа эффективной одноосной анизотропии, включающей в себя слагаемые, обусловленные магнитным и магнитооптическим взаимодействием.

2.2. Пространственно модулированная спиновая структура. Антиферромагнитная структура $l(\theta, \phi)$, соответствующая минимуму энергии, будет определяться уравнениями Лагранжа–Эйлера

$$2A \cdot \Delta\theta + 2\alpha \cdot P_z \sin^2 \theta(\sin \varphi \nabla_x \varphi - \cos \varphi \nabla_y \varphi) - \sin(2\theta) (A \cdot (\nabla \varphi)^2 + K_{eff}) = 0,$$

$$2A (\sin^2 \theta \cdot \Delta \varphi + \sin 2\theta (\nabla \theta \cdot \nabla \varphi)) - 2\alpha \cdot P_z \sin^2 \theta(\sin \varphi \nabla_x \theta - \cos \varphi \nabla_y \theta) = 0.$$
(16)

В нулевом приближении, когда анизотропией можно принебречь, $K_{eff} = 0$ и решение уравнений (16) имеет вид

$$\varphi_0 = \text{const} = \arctan\left(\frac{q_y}{q_x}\right), \quad \theta_0 = q_x x + q_y y, \quad (17)$$

где $\mathbf{q} = (q_x \cdot q_y)$ — волновой вектор, указывающий направление спиновой модуляции. Решение (17) представляет собой циклоиду, плоскость которой перпендикулярна базисной плоскости и ориентирована вдоль направления распространения волны модуляции (рис. 2).

При больших величинах электрического и магнитного полей циклоида существенно отличается от гармонической, и зависимость угла θ от координат нелинейная. Так же как и при решении в нулевом приближении, для азимутального угла имеем $\varphi = \text{const}$, а уравнение для θ принимает вид

$$2A\Delta\theta - K_{eff}\sin 2\theta = 0.$$
(18)

Ориентируя систему координат так, чтобы $\varphi = 0$ (циклоида лежит в плоскости xz) и интегрируя (18), получаем выражение для производной от угла по координате

$$\frac{d\theta}{dx} = \sqrt{\frac{K_{eff}}{A \cdot m}} \sqrt{1 - m\cos^2\theta},\tag{19}$$

где $m = \frac{K_{eff}}{C}$, C — константа интегрирования уравнения (18). Период циклоиды λ находим, интегрируя (19)



Рис. 2. Пространственно модулированная спиновая структура, *L* — вектор антиферромагнетизма.

³ В соотношении (14) опущены слагаемые вида $l_i \nabla_j l_i$, представляющие полные производные координат, так как при рассмотрении задачи Лагранжа–Эйлера (см. далее) функция плотности свободной энергии может быть определена с точностью до полной производной.

по углу θ от 0 до 2π

$$\lambda = 4K_1(m) \sqrt{\frac{A \cdot m}{K_{eff}}},\tag{20}$$

 $K_1(m) = \int_{0}^{\pi/2} \frac{d\theta}{\sqrt{1 - m\cos^2 \theta}}$ — полный эллиптический интеграл первого рода.

2.3. Перекрестные фазовые переходы. Закон распределения спинов в циклоиде (19) позволяет найти среднее по объему значение энергии и условия фазовых переходов в однородное состояние. При построении фазовых диаграмм удобно использовать безразмерные величины электрического и магнитного полей **H** || **E** || *c*

$$e = \kappa_{\parallel} \frac{E_z}{P_s},\tag{21}$$

$$h = H_z \sqrt{\frac{\chi_\perp}{2Aq_0^2}},\tag{22}$$

где q_0 — модуль волнового вектора циклоиды, соответствующий минимуму свободной энергии (1). q_0 можно найти, минимизировав (1) по q в пренебрежении энергией анизотропии и в отсутствие внешних полей

$$q_0 = \frac{\alpha \cdot P_s}{2A}.$$
 (23)

В этом случае электрическую поляризацию среды и намагниченность магнитоэлектрического происхождения в линейном приближении можно представить в виде

$$P_z = P_s(\pm 1 + e), \tag{24}$$

$$M = M_s(\pm 1 + e), \tag{25}$$

где $M_s = \chi_{\perp} DP_s$ — спонтанная намагниченность магнитоэлектрического происхождения. Знаки +/- учитывают гистерезис поляризации (13). При увеличении электрического поля смена знака (с "-" на "+") в выражениях (24), (25) происходит при значении поля $e_c = \frac{\kappa_{\parallel} E_c}{P_s}$, соответствующим коэрцитивной силе, а при уменьшении (с "+" на "-") — при $e = -e_c$, как это следует из рис. 1.

Плотность свободной энергии также удобно записывать в виде суммы приведенных энергий

$$f = f_{exch} + f_L + f_{an}, \qquad (26)$$

где энергии обмена, неоднородного магнитоэлектрического взаимодействия и эффективной анизотропии нормированы на энергию обмена Aq_0^2 гармонической циклоиды в отсутствие полей

$$f_{exch} = \frac{F_{exch}}{Aq_0^2} = \frac{1}{q_0^2} \left(\frac{d\theta}{dx}\right)^2,$$
 (27)

$$f_L = \frac{F_L}{Aq_0^2} = -\frac{2|\pm 1 + e|}{q_0} \cdot \left| \frac{d\theta}{dx} \right|,$$
 (28)

$$f_{an} = -k(e, h) \cos^2 \theta.$$
⁽²⁹⁾

При выводе (28) использовано (24), а также соотношения (14) и (23); $k(e, h) = \frac{K_{eff}}{Aq_0^2} = (k_u - h^2 - \beta \cdot (\pm 1 + e)^2)$ — безразмерная эффективная константа анизотропии, учитывающая действие электрических и магнитных полей, $k_u = \frac{K_u}{Aq_0^2}, \beta = \frac{M_s^2}{2\chi_{\perp}Aq_0^2}.$

Для однородного состояния $\mathbf{l} \parallel c$ (параллельная фаза, $\theta = 0$) энергия целиком определяется анизотропным слагаемым, а зависящие от пространственных производных обменная энергия и инвариант Лифшица равны нулю

$$f_{\parallel} = -k(e, h). \tag{30}$$

Аналогично для однородного состояния l $\perp c$ (перпендикулярная фаза, $\theta=\frac{\pi}{2})$ имеем

$$f_{\perp} = 0. \tag{31}$$

Для нахождения среднего по периоду циклоиды значения энергии пространственно модулированной фазы $\langle f \rangle_{\lambda}$ найдем средние $\langle f_{exch} \rangle_{\lambda}, \langle f_L \rangle_{\lambda}, \langle f_{an} \rangle_{\lambda}.$

Среднее значение энергии обмена

$$\langle f_{exch} \rangle = \frac{1}{\lambda} \int_{0}^{\lambda} f_{exch}(x) dx = \frac{4}{\lambda} \int_{0}^{\pi/2} f_{exch}(\theta) \frac{dx}{d\theta} d\theta.$$
 (32)

Учитывая (19), (20) и (27), получаем

$$\langle f_{exch} \rangle = \frac{C}{Aq_0^2} \frac{1}{K_1(m)} \int_0^{\pi/2} \sqrt{1 - m\cos^2\theta} \cdot d\theta$$
$$= \frac{k(e,h)}{m} \frac{K_2(m)}{K_1(m)},$$
(33)

где $K_1(m), K_2(m) = \int_{0}^{\pi/2} \sqrt{1 - m \cos^2 \theta} d\theta$ — полные эллиптические интегралы первого и второго родов.

Аналогично для среднего значения энергии неоднородного магнитоэлектрического взаимодействия (инварианта Лифшица) имеем

$$\langle f_L \rangle = \frac{4}{\lambda} \int_0^{\pi/2} f_L(\theta) \frac{dx}{d\theta} d\theta = -\frac{1}{K_1(m)} \sqrt{\frac{C}{A}} \frac{|\pm 1+e|}{q_0} \pi$$
$$= -\sqrt{\frac{k(e,h)}{m}} \frac{\pi |\pm 1+e|}{K_1(m)}.$$
(34)

Среднее от энергии анизотропии

$$\langle f_{an} \rangle = -k(e,h) \frac{4}{\lambda} \int_{0}^{\pi/2} \cos^2 \theta \, \frac{dx}{d\theta} \, d\theta$$
$$= -\frac{k(e,h)}{m} \left(1 - \frac{K_2(m)}{K_1(m)} \right). \tag{35}$$

Физика твердого тела, 2006, том 48, вып. 1

Окончательно для полной энергии пространственно модулированного состояния имеем

$$f_{cycl} = -\frac{k(e,h)}{m} \left(1 - 2\frac{K_2(m)}{K_1(m)}\right) - \frac{\pi}{K_1} \sqrt{\frac{k(e,h)}{m}} \, |\pm 1 + e|.$$
(36)

Каждой паре значений полей (e, h) соответствует свое значение модуля эллиптического интеграла *m*, минимизирующего энергию, что физически означает изменение формы циклоиды под действием приложенных полей. В сильных полях форма циклоиды значительно отличается от гармонической, приближаясь к периодической структуре доменов, разделенных доменными стенками (солитонами), ширина которых много меньше ширины доменов. Из (31) следует, что при переходе в фазу $\mathbf{l} \perp c$ энергия доменных границ $\langle f \rangle_{\lambda}$ меняет знак, и пространственно модулированное состояние становится энергетически невыгодным.

Уравнения для линий фазовых переходов на плоскости (e, h) могут быть найдены аналитически [15], если мы подставим в выражение для энергии (26) решение в нулевом приближении (17). При этом необходимо учесть гистерезис зависимости P(E). В нулевом приближении, как следует из формул (27), (28), обменная энергия и энергия неоднородного магнитоэлектического взаимодействия примут вид

$$f_{exch} = \frac{q^2}{q_0^2},$$
 (37)

$$f_L = -\frac{2|\pm 1 + e|q}{q_0}.$$
 (38)

Минимизация энергии по q дает для волнового вектора гармонической циклоиды значение $q = q_0 | \pm 1 + e |$, т.е. период циклоиды зависит от приложенного электрического поля.

Для средней по периоду энергии имеем

$$\langle f \rangle_{cycl} = -(\pm 1 + e)^2 - \frac{k(e, h)}{2}.$$
 (39)

Из (30), (31) и (39) могут быть получены аналитические формулы для полей перехода из пространственно модулированной фазы в однородные (параллельную и перпендикулярную соответственно) в приближении гармонической циклоиды [15]

$$h_1^2 = k_u - 2(\pm 1 + e_z)^2 \left(1 + \frac{\beta}{2}\right),$$
 (40)

$$h_2^2 = k_u + 2(\pm 1 + e_z)^2 \left(1 - \frac{\beta}{2}\right).$$
(41)

Первое уравнение соответствует границе между пространственно модулированной фазой и однородной фазой $\mathbf{l} \parallel c$, второе — между пространственно модулированной и однородной $\mathbf{l} \perp c$. Из (41) видно, что однородная фаза $\mathbf{l} \perp c$ всегда возможна. Условие существования однородной $\mathbf{l} \parallel c$ фазы можно записать в виде

$$k_u > 2(1-e_z)^2 \left(1+\frac{\beta}{2}\right).$$
 (42)

Физически условие (42) означает, что внешнее поле e_z уменьшает внутреннее поле спонтанной поляризации и может сделать существование пространственно модулированной структуры энергетически невыгодным.

Далее будет проведено сравнение вида линий фазовых переходов на примере магнитоэлектрика феррита висмута, определяемых аналитически по формулам (40) и (41), и результатов численных расчетов фазовых диаграмм.

3. Результаты и обсуждение

Результаты численных расчетов фазовой диаграммы представлены на рис. 3. В каждой точке (e, h) производилась минимизация по m энергии пространственно модулированной структуры (36), и полученное значение энергии сравнивалось со значениями энергий однородных состояний (30), (31). При расчете значения параметров анизотропии, магнитоэлектрического взаимодействия и коэрцитивной силы полагались равными $k_u = 2$, $\beta = 1.2$, $e_c = 0.04$; соответствующие значения констант в феррите висмута [1] $K_u = 6 \cdot 10^{-5} \text{ erg/cm}^3$, $A = 3 \cdot 10^{-7} \text{ erg/cm}$, $q_0 = 10^6 \text{ cm}^{-1}$, $\chi_{\perp} = 5 \cdot 10^{-5}$, $M_s = 6 \text{ G}$, $P_s = 0.06 \text{ C/m}^2$, $E_c = 50 \text{ kV/cm}$, $\kappa_{\parallel} = \varepsilon - 1 \approx 50$.



Рис. 3. Фазовая диаграмма в безразмерных координатах e (электрическое поле) и h (магнитное поле) для феррита висмута. І — область существования пространственно модулированной спиновой структуры, II — область существования однородной антиферромагнитной фазы $l \perp c$. Сплошная линия — граница их раздела. Штриховой линией показана граница раздела этих же фаз, вычисленная аналитически по формуле (41). На вставке в увеличенном масштабе показаны метастабильные состояния в области малых электрических полей (гистерезис типа "бабочка"). Точки C_1, C_2 соответствуют коэрцитивному полю E_c . Стрелки указывают направление движения вдоль границы при возрастании и убывании электрического поля.

Области I, II на рис. 3, ограниченные сплошными линиями, соответствуют однородному $l \perp c$ и пространственно модулированному состояниям соответственно. Штриховые линии, определяемые формулами (40), (41), обозначают границы пространственно модулированной фазы, рассчитанные в гармоническом приближении. Видно, что изменение профиля циклоиды, характеризующееся модулем эллиптических интегралов *m*, позволяет солитонной циклоиде существовать в тех областях, где существование гармонической циклоиды было бы уже энергетически невыгодным. Отличие критических магнитных полей составляет 10% и более.

В области малых значений электрического поля возможны метастабильные состояния (вставка на рис. 3), связанные с гистерезисом электрической поляризации (рис. 1). Точки C_1 и C_2 соответствуют перескоку с одной ветви гистерезиса на другую: стрелками показано направление движения вдоль границы при возрастании и убывании электрического поля. Гистерезис типа "бабочка" является характерным для магнитоэлектриков: в работе [16] он наблюдался для зависимости электрической поляризации от магнитого поля.

В отсутствие электрического поля фазовый переход происходит при $h_0 \approx 1.8$ (точка A на вставке рис. 3), что соответствует магнитному полю ~ 190 kOe и находится в хорошем согласии с экспериментальными данными [5,13]. На фазовой диаграмме также можно видеть перекрестный характер магнитных фазовых переходов в магнитоэлектриках: величина магнитного поля фазового перехода может меняться на величину $\Delta h = \pm 0.05$ (5 kOe). В материалах с большим значением коэрцитивной силы возможно еще более сильное влияние на величину критического поля.

Интересно, что при данных константах феррита висмута соотношение (42) указывает на существование однородной фазы $\mathbf{l} \parallel c$. Численные расчеты также показывают, что в электрическом поле $e_{crit} \approx 0.25$ и в отсутствие магнитного поля может происходить переход в однородную фазу $\mathbf{l} \parallel c$, если значения коэрцитивного поля $e_c > e_{crit}$. Однако экспериментальному значению коэрцитивного поля для феррита висмута $E_c = 50 \text{ kV/cm}$ соответствует величина $e_c = 0.04$, что будет препятствовать наблюдению параллельной фазы в феррите висмута: переключение поляризации происходит раньше, чем совершается переход в фазу $\mathbf{l} \parallel c$. Впрочем, нельзя исключать существование других материалов, в которых данный перекрестный фазовый переход будет возможным.

Экспериментальное наблюдение изменения магнитного поля фазового перехода под воздействием электрического поля нецелесообразно проводить с помощью методов, связанных с магнитоэлектрическим эффектом (как это делалось ранее [13]), так как измерения индуцированных намагниченности и поляризации придется вести на фоне сильных электрических магнитных полей. В качестве альтернативной методики исследования магнитных фазовых переходов в магнитоэлектриках хорошо зарекомендовал себя электронный спиновый резонанс [5]. Изменение характера спектров спинового резонанса позволил определить магнитное поле фазового перехода [5] и, возможно, позволит в будущем обнаружить влияние электрического поля на эту величину.

4. Заключение

Таким образом, взаимосвязь магнитной и электрической подсистем в магнитоэлектриках типа феррита висмута может приводить к ряду новых эффектов, возникающих под действием магнитных и электрических полей.

В частности, показано, что магнитоэлектрическое взаимодействие приводит к возможности управления при помощи электрического поля спиновой пространственно модулированной структурой. Также рассмотрено влияние электрического поля на магнитный фазовый переход несоразмерная–соразмерная фаза: расчитаны фазовые диаграммы в координатах магнитное поле– электрическое поле. Проведено сравнение результатов, полученных в приближении гармонической циклоиды с точным солитонным решением: отличие величин критических магнитных полей составляет 10% и более.

Теоретические расчеты показывают, что существует возможность управлять полем перехода с помощью электрического поля: в феррите висмута поле перехода может изменяться на 5 kOe под действием поля 50 kV/cm, что можно обнаружить с помощью измерений спектров электронного спинового резонанса.

Показана принципиальная возможность магнитных фазовых переходов в однородное состояние, индуцированных электрическим полем в отсутствие магнитного поля. Однако этот эффект может наблюдаться только в средах с достаточно большой коэрцитивной силой: оценки показывают, что в случае феррита висмута переключение спонтанной поляризации будет препятствовать наблюдению этой разновидности перекрестных фазовых переходов.

Приложение

Вклад магнитной подсистемы сегнетомагнетика в полный термодинамический потенциал системы включает в себя однородный обмен F_1 , магнитно-дипольное взаимодействие F_2 и магнитоэлектрическое взаимодействие F_{me}

$$F_m = F_1 + F_2 + F_{me}.$$
 (II1)

Энергия однородного обмена представима в виде

$$F_1 = \frac{1}{2\chi_{\perp}} \mathbf{M}^2 + \frac{1}{2\chi_{\parallel}} (\mathbf{M}\mathbf{I})^2 + b \, \frac{\mathbf{L}^2}{2}, \qquad (\Pi 2)$$

где $\mathbf{l} = \frac{\mathbf{L}}{L}$ — единичный вектор антиферромагнетизма; $\chi_{\parallel}, \chi_{\perp}$ — продольная и перпендикулярная вектору антиферромагнетизма магнитные восприимчивости, причем $\chi_{\parallel} \ll \chi_{\perp}$. Поскольку последнее слагаемое в (П2) не зависит от ориентации вектора антиферромагнетизма в пространстве, при дальнейшем рассмотрении, посвященном фазовым переходам с изменением направления *L*, мы его опустим.

Энергия магнитно-дипольного взаимодействия представима в виде

$$F_2 = -(\mathbf{M} \cdot \mathbf{H}). \tag{\Pi3}$$

Таким образом, для энергии магнитной подсистемы получаем

$$F_m = \frac{1}{2\chi_{\perp}} \left(\mathbf{M}\right)^2 + \frac{1}{2\chi_{\parallel}} \left(\mathbf{M}\mathbf{l}\right)^2 - \left(\mathbf{M}\cdot\mathbf{H}\right) - D(\mathbf{M}[\mathbf{lP}]). \quad (\Pi 4)$$

Минимизируем (П4) по М

$$\frac{1}{\chi_{\perp}}\mathbf{M} + \frac{1}{\chi_{\parallel}}\left(\mathbf{M}\cdot\mathbf{l}\right)\mathbf{l} - \mathbf{H} - D[\mathbf{lP}] = 0. \tag{15}$$

Введя обозначения $\mathbf{H}_{eff} = \mathbf{H} + D[\mathbf{lP}]$, помножив (П5) на l, находим

$$(\mathbf{M}\mathbf{l}) = (\mathbf{H}_{ett}\mathbf{l}) \cdot \left(\frac{1}{\chi_{\perp}} + \frac{1}{\chi_{\parallel}}\right)^{-1}.$$
 (II6)

Физически введение \mathbf{H}_{eff} означает учет магнитного поля, порожденного электрической поляризацией среды вследствие магнитоэлектрического взаимодействия.

Подставляя (Пб) в (П5), получаем

$$\mathbf{M} = \chi_{\perp} \left(\mathbf{H}_{eff} - \frac{\chi_{\perp} (\mathbf{H}_{eff} \mathbf{l})}{\chi_{\perp} + \chi_{\parallel}} \mathbf{l} \right)$$
$$\approx \chi_{\perp} \left(\mathbf{H}_{eff} - (\mathbf{H}_{eff} \mathbf{l}) \mathbf{l} \right) = \chi_{\perp} \mathbf{H}_{eff \perp}. \tag{\Pi7}$$

Подставив (П7) в (П4), окончательно получим

$$F_m^{eff} = -\chi_\perp \frac{\mathbf{H}_{eff\perp}^2}{2},\tag{\Pi8}$$

где $\mathbf{H}_{eff \perp} = \mathbf{H}_{eff} - (\mathbf{H}_{eff} \mathbf{l}) \mathbf{l}.$

Список литературы

- [1] А.К. Звездин, А.П. Пятаков. УФН 174, 4, 465 (2004).
- [2] H. Schmid. Ferroelectrics 252, 41 (2001).
- [3] J. Wang, H. Zheng, V. Nagarajan, B. Liu, S.B. Ogale, D. Viehland, V. Venugopalan, D.G. Schlom, M. Wuttig, R. Ramesh, J.B. Neaton, U.V. Waghmare, N.A. Hill, K.M. Rabe. Science **299**, 1719 (2003).
- [4] J.S. Kim, C. Cheon, Y.N. Choi, P.W. Jang. J. Appl. Phys. 93, 11, 9263 (2003).
- [5] B. Ruette, Z. Zvyagin, A.P. Pyatakov, A. Bush, J.F. Li, V.I. Belotelov, A.K. Zvezdin, D. Viehland. Phys. Rev. B 69, 064 114 (2004).
- [6] V.R. Palkar, Darshan, C. Kundaliya, S.K. Malik, S. Bhattacharya. Phys. Rev. B 69, 212 102 (2004); cond-mat_0406044.
- Jiefang Li, Junling Wang, M. Wuttig, R. Ramesh, Naigang Wang, B. Ruette, A.P. Pyatakov, A.K. Zvezdin, D. Viehland. Appl. Phys. Lett. 84, 25, 5261 (2004).

- [8] M. Fiebig, Th. Lottermoser, D. Frohlich, A.V. Goltsev, R.V. Pisarev. Nature 419, 818 (2002).
- [9] T. Anima, D. Higashiyama, Y. Kaneko, J.P. He, T. Goto, S. Miyasaka, T. Kimura, K. Oikawa, T. Kamiyama, R. Kumai, Y. Tokura. Phys. Rev. B 70, 064 426 (2004).
- [10] I. Sosnowska, T. Peterlin-Neumaier, E. Steichele. J. Phys. C, Solid State Phys. 15, 4835 (1982).
- [11] I. Sosnowska, A. Zvezdin. J. Magn. Magn. Mater. 140–144, 167 (1995).
- [12] A. Sparavigna, A. Strigazzi, A. Zvezdin. Phys. Rev. B 50, 2953 (1994).
- [13] А.М. Кадомцева, А.К. Звездин, Ю.Ф. Попов, А.П. Пятаков, Г.П. Воробьев. Письма в ЖЭТФ 79, 705 (2004).
- [14] F. Bai, J. Wang, M. Wuttig, J.F. Li, N. Wang, A. Pyatakov, A.K. Zvezdin, L.E. Cross, D. Viehland. Appl. Phys. Lett. 86, 1 (2005).
- [15] А.К. Zvezdin. Кратк. сообщ. ФИАН (2005), в печати.
- [16] Z.V. Gabbasova, M.D. Kuz'min, A.K. Zvezdin, I.S. Dubenko, V.A. Murashov, D.N. Rakov, I.B. Krynetsky. Phys. Lett. A 158, 491 (1991).