

# Динамический магнитоэлектрический эффект в молибдате тербия

© Б.К. Пономарёв, Б.С. Редькин, А.Г.М. Янсен\*, П. Видер\*, Г. Вигельман\*, Э. Штип\*

Институт физики твердого тела Российской академии наук,  
142432 Черноголовка, Московская обл., Россия

\* Grenoble High Magnetic Field Laboratory,  
F-38042 Grenoble, France

E-mail: ponom@issp.ac.ru

(Поступила в Редакцию в окончательном виде 10 января 2008 г.)

Измерена электрическая поляризация, индуцируемая в сегнетоэлектрическом молибдате тербия магнитным полем, линейно изменяющимся во времени. Измерения выполнены в поле до 19 Т при различных заданных значениях скорости изменения поля при температурах 273 и 219 К. Полученные результаты указывают на существование двух типов магнитоэлектрического эффекта. Один из них представляет собой обычный магнитоэлектрический эффект, который целесообразно назвать статическим магнитоэлектрическим эффектом. Другой характеризуется тем, что электрическая поляризация возрастает при увеличении скорости изменения магнитного поля и релаксирует во времени до нуля при фиксации отличного от нуля значения поля. Это явление называется динамическим магнитоэлектрическим эффектом.

PACS: 75.80.+q, 76.30.Kg, 77.80.-e, 74.25.Na, 74.25.Nf

## 1. Введение

В работе [1] экспериментально исследовался магнитоэлектрический эффект в орторомбическом сегнетоэлектрическом молибдате тербия  $Tb_2(MoO_4)_3$ . В некоторых случаях на полевых зависимостях индуцированной электрической поляризации наблюдался гистерезис. Полная индуцированная поляризация в молибдате тербия при гелиевых температурах была на два порядка больше, чем ширина петли гистерезиса. Поэтому гистерезисом можно было пренебречь.

При  $T = 273$  К относительный вклад гистерезиса в полную магнитоиндуцированную поляризацию настолько велик, что им пренебрегать нельзя. Магнитоиндуцированная электрическая поляризация существенно зависит от скорости изменения магнитного поля  $dH/dt$ . При увеличении  $dH/dt$  она увеличивается. При фиксации магнитного поля ( $dH/dt = 0$ ;  $H \neq 0$ ) поляризация убывает до нуля с постоянной времени  $\tau \approx 3$  с. Настоящая работа посвящена изучению этого эффекта.

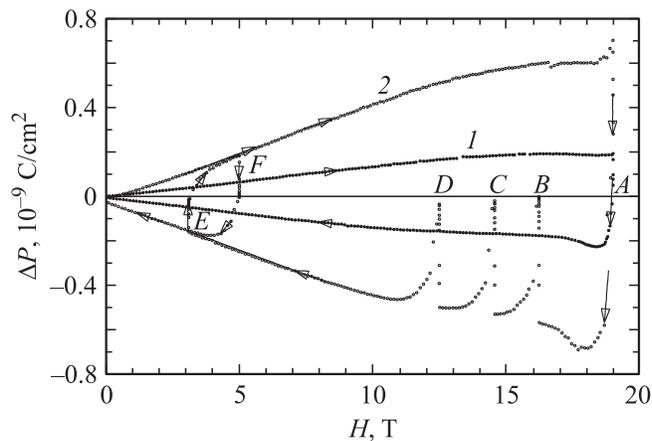
## 2. Образец и эксперимент

Монокристаллический однодоменный образец сегнетоэлектрического молибдата тербия представлял собой прямоугольную пластину среза (001) с размерами  $7 \times 7 \times 1$  мм. Спонтанная поляризация была направлена вдоль оси [001]. Орторомбические оси [100] и [010] были направлены вдоль диагоналей пластины. На плоскости образца (001) были нанесены металлические контакты из серебряной пасты. Измерялось изменение электрической поляризации  $\Delta P$  вдоль оси [001], создаваемое внешним магнитным полем. Методика измерений описана в работе [2]. Поле изменялось линейно во времени с заданной скоростью. Значения магнитного поля  $H(t)$  и соответствующие им значения индуцированной элек-

трической поляризации  $\Delta P(t)$  измерялись синхронно с интервалом времени 1 с. Зависимости  $\Delta P(H)$  получались путем исключения времени из экспериментальных зависимостей  $\Delta P(t)$  и  $H(t)$ . Измерения были выполнены при двух ориентациях магнитного поля — вдоль осей [100] и [010].

## 3. Результаты

На рис. 1 представлены два цикла измерений зависимости электрической поляризации в молибдате тербия от магнитного поля  $\Delta P(H)$  при увеличении магнитного поля  $H$  от нуля до 19 Т и последующем уменьшении поля до нуля. В исходном состоянии спонтанная электрическая поляризация сегнетоэлектрического молибдата тербия была практически полностью компенсирована адсорбированными атмосферными зарядами, деполяри-



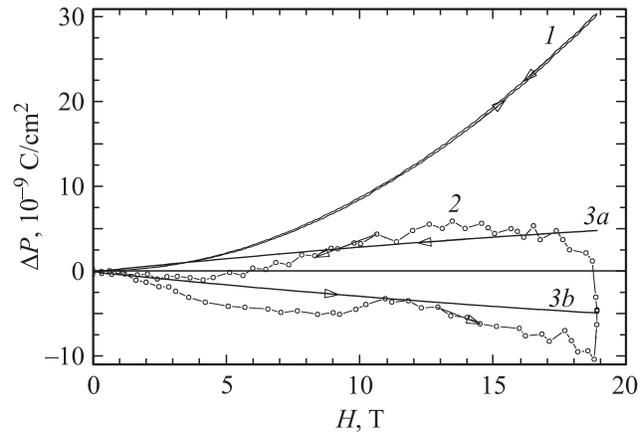
**Рис. 1.** Полевые зависимости электрической поляризации, измеренной вдоль оси [001] при  $T = 273$  К. Магнитное поле направлено вдоль оси [010]. 1 — цикл 1,  $dH/dt = \pm 0.04$  Т/с; 2 — цикл 2,  $dH/dt = \pm 0.12$  Т/с.

зующим полем, а также под действием иных механизмов, анализ которых выходит за рамки настоящего исследования. Нескомпенсированная часть поляризации, которая составляла  $\sim 10^{-3}P_S$ , вычиталась из измеряемых зависимостей. Здесь  $P_S = 190 \cdot 10^{-9} \text{ C/cm}^2$  — спонтанная поляризация молибдата тербия при комнатной температуре [3].

Поле было направлено вдоль оси [010]. Циклы 1 и 2 были выполнены при скоростях изменения поля  $dH/dt = \pm 0.04$  и  $\pm 0.12 \text{ T/s}$  соответственно. Температура образца была равна 273 К. Видно, что гистерезис имеет обращенный характер. В первом цикле при увеличении поля со скоростью  $0.04 \text{ T/s}$  изменение поляризации  $\Delta P$  положительно и при не слишком высоких полях ( $H \leq 5 \text{ T}$ ) линейно зависит от поля. В более сильных полях наблюдается тенденция к насыщению. При  $H \approx 16 \text{ T}$  индуцированная поляризация достигает значения  $\Delta P \approx 0.2 \cdot 10^{-9} \text{ C/cm}^2 \approx 10^{-3}P_S$ . При  $H = 19 \text{ T}$  увеличение поля было прекращено, и знак скорости  $dH/dt$  был изменен. Включение механизма уменьшения поля со скоростью  $dH/dt = -0.04 \text{ T/s}$  привело к скачкообразному возникновению значения  $\Delta P \approx -0.23 \cdot 10^{-9} \text{ C/cm}^2$ . В интервале  $19 \geq H \geq 5 \text{ T}$  имеет место нелинейная зависимость  $\Delta P(H)$ . В интервале значений поля  $0 < H < 5 \text{ T}$  зависимость  $\Delta P(H)$  становится практически линейной.

Аналогичные результаты получены в поле, направленном вдоль оси [100]. Знак величины  $\Delta P$  в этом случае противоположен таковому для поля, параллельного оси [010]. Описанный эксперимент указывает на то, что индуцированное полем изменение поляризации  $\Delta P$  зависит не только от поля, но и от скорости его изменения. Для выяснения вида этой зависимости был выполнен цикл измерений 2, в котором значение  $dH/dt = \pm 0.12 \text{ T/s}$  было в 3 раза выше по абсолютной величине, чем в цикле 1. В цикле 2, так же как и в цикле 1, в слабых полях существует довольно широкий интервал значений поля  $0 < H \leq 8 \text{ T}$ , в котором зависимость  $\Delta P(H)$  почти линейна. На линейном участке индуцированная поляризация в цикле 2 в 3 раза больше, чем в цикле 1. Аналогичный результат получен в поле, параллельном оси [100].

Зависимость поляризации от поля в цикле 2 была качественно подобна этой зависимости в цикле 1. В процессе уменьшения поля было сделано несколько остановок. Каждая из них продолжалась до полной релаксации поляризации. Релаксация происходила экспоненциально с постоянной времени  $\tau \approx 3 \text{ s}$ . В конце остановок поляризация обращалась в нуль. После первых трех остановок, обозначенных буквами *B*, *C* и *D*, при значениях поля 16.21, 14.55 и 12.47 Т знак скорости изменения поля совпадал с таковым до остановок. Значение поляризации после этих остановок возвращалось на ту же самую нисходящую ветвь цикла, с которой оно уходило при остановке поля. После остановки в точке *E* ( $H = 3.12 \text{ T}$ ) и релаксации  $\Delta P$  до нуля знак скорости был изменен. Была включена скорость  $+0.12 \text{ T/s}$ . После



**Рис. 2.** Экспериментальная зависимость электрической поляризации от магнитного поля (1) и рассчитанные петли гистерезиса (2, 3a, 3b). 1 — зависимость  $\Delta P(H)$  вдоль оси [001] при  $T = 219 \text{ K}$ , магнитное поле направлено вдоль оси [010],  $dH/dt = \pm 0.12 \text{ T/s}$ ; 2, 3a, 3b — петли гистерезиса ДМЭЭ при  $T = 219 \text{ K}$  в относительных единицах, 2 — расчет по формуле (4), 3a и 3b — расчет по формуле (5) (результат умножен на 25).

непродолжительного релаксационного процесса значение поляризации вернулось на восходящую ветвь цикла 2. Далее была сделана остановка в точке *F* ( $H = 5 \text{ T}$ ) с релаксацией  $\Delta P$  до нуля. После этого вновь была включена отрицательная скорость  $dH/dt = -0.12 \text{ T/s}$ .

Аналогично предыдущему переключению после непродолжительного релаксационного процесса значение поляризации вернулось на нисходящую ветвь цикла 2. Важно, что при всех этих остановках поля поляризация релаксировала до нуля. Совокупность семи точек с нулевыми значениями  $\Delta P$  при  $dH/dt = 0$  и отличными от нуля значениями поля (точки *A*, *B*, *C*, *D*, *E* и *F* с учетом начальной точки) образует третий цикл изменения поля. В этом цикле восходящая и нисходящая ветви представляют собой отрезки прямых, лежащие на оси абсцисс. Это означает, что в молибдате тербия при  $T = 273 \text{ K}$  статический магнитоэлектрический эффект (СМЭЭ) равен нулю в пределах чувствительности измерений ( $\approx 10^{-11} \text{ C/cm}^2$ ). Благодаря этому в описываемом случае оказались возможными измерения и анализ сравнительно малого слагаемого поляризации, которое представляет собой динамический магнитоэлектрический эффект (ДМЭЭ).

На рис. 2 кривая 1 изображает полевую зависимость электрической поляризации  $\Delta P(H)$ , индуцированной в молибдате тербия вдоль оси [001] при  $T = 219 \text{ K}$  магнитным полем, направленным вдоль оси [010],  $dH/dt = \pm 0.12 \text{ T/s}$ . В магнитном поле  $H = 19 \text{ T}$  индуцированная электрическая поляризация составляет  $\Delta P(H) = 30 \cdot 10^{-9} \text{ C/cm}^2$ . Это значение превосходит ДМЭЭ, изображенный на рис. 1, в 50 раз. Зависимость  $\Delta P(H)$  имеет небольшой, но отчетливо различимый гистерезис. При  $H \approx 19 \text{ T}$  ширина петли гистере-

зиса вдоль оси ординат составляет  $\approx 0.4 \cdot 10^{-9} \text{ C/cm}^2$ . Большой обратимый вклад СМЭЭ осложняет анализ гистерезиса. Для устранения вклада СМЭЭ восходящая и нисходящая ветви зависимости  $\Delta P(H)$  были аппроксимированы по методу наименьших квадратов полиномами второй степени. Среднеквадратичные отклонения полиномов от эксперимента составляли  $\delta(\Delta P) \approx 0.06 \cdot 10^{-9} \text{ C/cm}^2$ . Это значение на порядок меньше ширины петли гистерезиса. Полином для восходящей ветви имеет вид

$$\Delta P_u = 0.08409 \cdot 10^{-9} \frac{\text{C}}{\text{cm}^2 \cdot \text{T}^2} H^2 - 0.00226 \cdot 10^{-9} \frac{\text{C}}{\text{cm}^2 \cdot \text{T}} H + 0.05033 \cdot 10^{-9} \frac{\text{C}}{\text{cm}^2}. \quad (1)$$

Соответственно для нисходящей ветви

$$\Delta P_d = 0.08380 \cdot 10^{-9} \frac{\text{C}}{\text{cm}^2 \cdot \text{T}^2} H^2 + 0.02364 \cdot 10^{-9} \frac{\text{C}}{\text{cm}^2 \cdot \text{T}} H + 0.02330 \cdot 10^{-9} \frac{\text{C}}{\text{cm}^2}. \quad (2)$$

Полусумма этих полиномов имеет вид

$$\Delta P_{\text{fit}} = 0.083941 \cdot 10^{-9} \frac{\text{C}}{\text{cm}^2 \cdot \text{T}^2} H^2 + 0.01069 \cdot 10^{-9} \frac{\text{C}}{\text{cm}^2 \cdot \text{T}} H + 0.036815 \cdot 10^{-9} \frac{\text{C}}{\text{cm}^2}. \quad (3)$$

Вычитанием расчетной подгоночной зависимости (3) из экспериментальной зависимости  $\Delta P(H)$  (кривая 1 на рис. 2) была получена петля гистерезиса. Для удобства представления результат вычитания был умножен на 25 и сдвинут по оси ординат вниз на величину  $1.25 \cdot 10^{-9} \text{ C/cm}^2$ . Полученная таким образом функция

$$\Delta P^*(H) = 25[\Delta P(H) - \Delta P_{\text{fit}}(H)] - 1.25 \cdot 10^{-9} \text{ C/cm}^2 \quad (4)$$

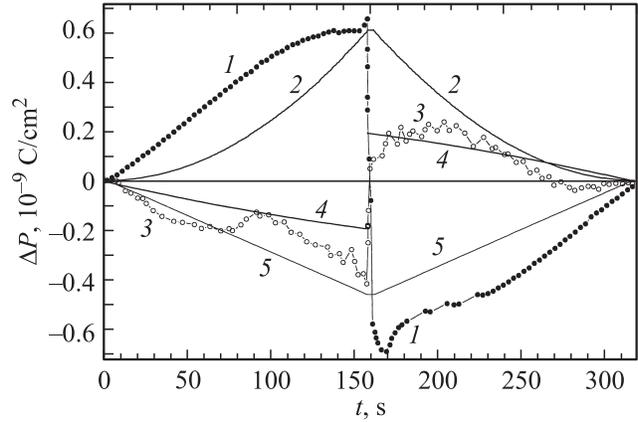
представлена на рис. 2 кривой 2. Она изображает петлю гистерезиса ДМЭЭ в относительных единицах при температуре  $T = 219 \text{ K}$  без маскирующего вклада СМЭЭ. Видно, что кривая 2 на рис. 2 качественно подобна зависимостям  $\Delta P(H)$  на рис. 1. Подобие заключается в следующем.

1) При возрастании магнитного поля от нуля до  $H_m$  со скоростью  $dH/dt$  величина  $\Delta P(H)$  возрастает по абсолютной величине от нуля до  $\Delta P(H_m)$ .

2) Изменение знака величины  $dH/dt$  при  $H = H_m$  приводит к резкому изменению значения магнитоиндуцированной электрической поляризации от  $\Delta P(H_m)$  до  $\approx -\Delta P(H_m)$ .

3) При последующем убывания магнитного поля со скоростью  $-dH/dt$  величина  $\Delta P(H)$  убывает по абсолютной величине до нуля.

Эти свойства петли гистерезиса ДМЭЭ хорошо выражены на рис. 1 и наблюдаются в несколько искаженном виде на кривой 2 (рис. 2).



**Рис. 3.** Зависимости электрической поляризации от времени. Поле направлено вдоль оси [010].  $dH/dT = 0.12 \text{ T/s}$ . 1 —  $T = 273 \text{ K}$ , ДМЭЭ (цикл 2); 2 —  $T = 219 \text{ K}$ , СМЭЭ + ДМЭЭ, относительные единицы, уменьшение в 50 раз; 3 —  $T = 219 \text{ K}$ , ДМЭЭ, расчет по формуле (4) с последующим делением на 25; 4 —  $T = 219 \text{ K}$ , ДМЭЭ, расчет по формуле (5); 5 — зависимость поля от времени в относительных единицах.

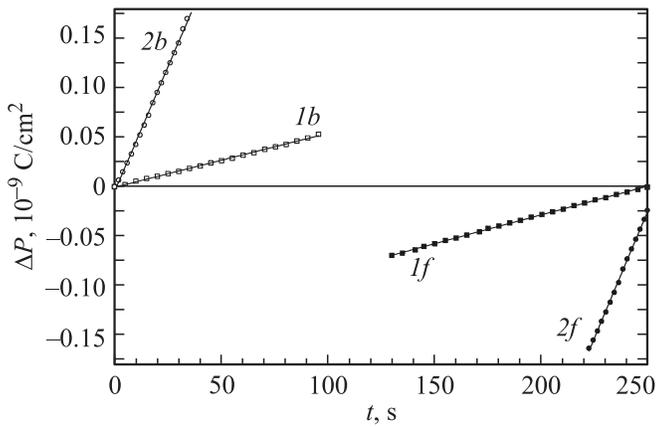
Искажения вызваны тем, что при  $T = 219 \text{ K}$  (кривая 2 на рис. 2) петля гистерезиса ДМЭЭ представляет собой малую разность двух больших близких величин — экспериментальной кривой 1 на рис. 2 и расчетной кривой, заданной формулой (3). Значения  $\Delta P(H)$  на кривой 1 имеют экспериментальный разброс, что приводит к появлению большой относительной погрешности в значениях ДМЭЭ на кривой 2 (рис. 2). Существует другой способ выделения петли гистерезиса ДМЭЭ из суммарной зависимости 1. Он состоит в вычислении полуразности функций (1) и (2)

$$\pm \frac{(\Delta P_u - \Delta P_d)}{2} = \pm \left( 0.000145 \cdot 10^{-9} \frac{\text{C}}{\text{cm}^2 \cdot \text{T}^2} H^2 - 0.01295 \cdot 10^{-9} \frac{\text{C}}{\text{cm}^2 \cdot \text{T}} H + 0.01351 \cdot 10^{-9} \frac{\text{C}}{\text{cm}^2} \right). \quad (5)$$

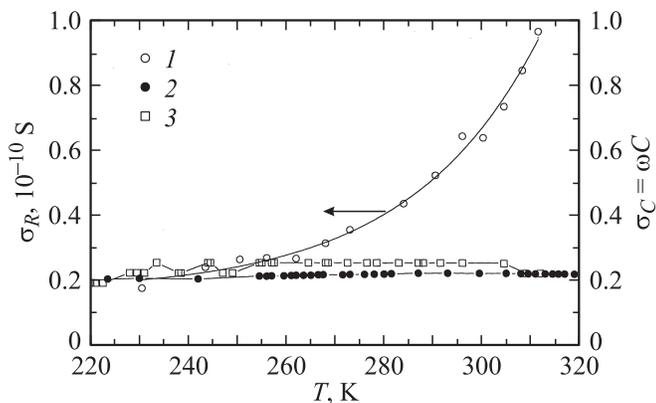
Значения расчетных функций (1) и (2) не имеют экспериментального разброса, поэтому расчет ДМЭЭ по формуле (5) дает гладкие кривые. Положительный знак перед скобкой в формуле (5) соответствует восходящей ветви петли гистерезиса ДМЭЭ, отрицательный знак дает нисходящую ветвь. Результаты расчета по формуле (5), умноженные на 25, представлены на рис. 2 кривыми 3а, 3б. Они хорошо соответствуют результатам рис. 1 и качественно согласуются с кривой 2 (рис. 2).

Из изложенного выше следует, что ДМЭЭ при 219 K существует. Его знак противоположен знаку этого эффекта при 273 K, а абсолютное значение в поле 19 T примерно в 3 раза меньше, чем при температуре 273 K.

В магнитном поле, параллельном [100], при  $T = 219 \text{ K}$  получены аналогичные результаты. Знак ДМЭЭ в этом случае противоположен таковому в поле вдоль [010].



**Рис. 4.** Зависимости электрической поляризации от времени ( $H < 5$  Т). Поле направлено вдоль оси [010].  $T = 273$  К.  $1b$  и  $1f$  — начало и конец цикла 1;  $2b$  и  $2f$  — начало и конец цикла 2.  $dH/dT$ , Т/с:  $1b, 1f$  — 0.04,  $2b, 2f$  — 0.12.



**Рис. 5.** Температурные зависимости компонент проводимости вдоль оси [001]. Линии проведены для наглядности.  $1$  — активная компонента,  $f = 1$  кГц,  $2$  — емкостная компонента,  $f = 1$  кГц (правая шкала, единицы  $10^{-7}$  С),  $3$  — емкостная компонента  $f = 100$  Нз (правая шкала, единицы  $10^{-8}$  С). Ступенчатый характер кривой  $3$  обусловлен дискретностью показаний прибора Е7-15.

На рис. 3 кривая  $1$  представляет временную зависимость электрической поляризации ДМЭЭ, измеренную при  $T = 273$  К в цикле 2 (рис. 1). Прямые линии  $5$  показывают зависимость магнитного поля от времени в относительных единицах. Максимальное абсолютное значение поля равно 19 Т. Видно, что при изменении знака величины  $dH/dt$  кривая  $1$  имеет резкий скачок. Кривая  $2$  представляет временную зависимость суммарной поляризации СМЭЭ и ДМЭЭ, измеренную при температуре 219 К (рис. 2, кривая  $1$ ). Для удобства сравнения ординаты кривой  $2$  уменьшены в 50 раз. Скачок на зависимости  $2$  при изменении знака  $dH/dt$  не виден. Это объясняется малостью вклада ДМЭЭ по сравнению с СМЭЭ при 219 К. Сравнение кривых  $1$  и  $2$  на рис. 3 показывает принципиальное различие в поведении временных зависимостей ДМЭЭ и СМЭЭ.

Кривая  $3$  представляет вклад ДМЭЭ в магнитоэлектрический эффект при  $T = 219$  К. Видно, что этот вклад мал по сравнению с вкладом СМЭЭ. Большой разброс экспериментальных точек обусловлен процедурой выделения малой величины ДМЭЭ на фоне большой величины СМЭЭ. Зависимость ДМЭЭ до времени при  $T = 219$  К (кривая  $3$ ) претерпевает скачок при изменении знака величины  $dH/dt$ . Из сравнения кривых  $1$  и  $3$  видно, что ДМЭЭ зависит от температуры. Знак производной  $d(\Delta P)/dt$  изменяется при понижении температуры от  $T = 273$  К до  $T = 219$  К. Абсолютное значение ДМЭЭ при этом убывает примерно в 3 раза. Кривые  $4$  на рис. 3 рассчитаны по формуле (5) с последующей заменой переменной  $H$  на переменную  $t$ .

На рис. 4 представлены экспериментальные зависимости индуцированной поляризации от времени  $\Delta P(t)$  в слабых полях ( $H \leq 5$  Т) для начальных ( $1b$  и  $2b$ ) и конечных ( $1f$  и  $2f$ ) участков циклов, изображенных на рис. 1. Для удобства представления зависимостей  $1f$  и  $2f$  сдвинуты в область малых времен. Зависимость поляризации от времени означает, что в образце вдоль оси [001] течет ток, плотность которого равна

$$j = \frac{d(\Delta P)}{dt}. \quad (6)$$

Видно, что на рис. 4 поляризация зависит от времени линейно во всех четырех случаях, и наклоны всех прямых положительны. Отсюда следует, что соответствующие плотности токов постоянны и положительны. Аналогичный результат получен в поле, параллельном оси [100]. Знаки зависимостей  $\Delta P(t)$  для направлений поля вдоль [010] и [100] противоположны.

На рис. 5 представлены температурные зависимости активной и емкостной компонент проводимости исследованного образца молибдата тербия вдоль оси [001]. Измерения выполнены при помощи приборов Е7-8 и Е7-15. Емкостная компонента мало изменяется при повышении температуры от 220 до 320 К. Активная компонента при повышении температуры от 220 до 310 К плавно возрастает примерно в 5 раз.

## 4. Обсуждение

Из результатов измерений со скоростями изменения поля  $dH/dt = 0, \pm 0.04$  и  $\pm 0.12$  Т/с можно вывести следующие свойства ДМЭЭ.

1) Каждому значению  $dH/dt$  соответствует определенная кривая  $\Delta P(H)$ .

2) В сравнительно слабых полях поляризация зависит от поля линейно

$$\Delta P(H) = \alpha H. \quad (7)$$

3) При остановке поля ( $dH/dt = 0; H \neq 0$ ) поляризация  $\Delta P$  экспоненциально релаксирует к нулю. После релаксации величины  $\Delta P$  до нуля включение исходного значения  $dH/dt$  возвращает поляризацию на исходную кривую  $\Delta P(H)$ .

4) Изменение знака скорости  $dH/dt$  преобразует кривую  $\Delta P(H)$  в новую кривую  $-\Delta P(H)$ , зеркально симметричную исходной кривой относительно оси абсцисс.

Константа  $\alpha$  в формуле (7) зависит от скорости изменения поля  $dH/dt$ . Эта зависимость представлена пятью точками для значений  $dH/dt = 0, \pm 0.04$  и  $\pm 0.12$  Т/с. Она описывается линейным соотношением

$$\alpha = \beta \frac{dH}{dt}. \quad (8)$$

Здесь  $\beta$  — постоянная. Из (7) и (8) следует, что линейные по полю участки обоих циклов на рис. 1 описываются формулой

$$\Delta P(H) = \beta \frac{dH}{dt} H(t). \quad (9)$$

Дифференцируя (9) по  $t$  при  $dH/dt = \text{const}$ , получаем

$$\frac{d(\Delta P)}{dt} = j = \beta \left( \frac{dH}{dt} \right)^2 = \text{const}. \quad (10)$$

Как видно из рис. 3 и 4, знаки плотностей поляризованных токов одинаковы для начала и конца цикла, т.е. они не зависят от знака  $dH/dt$ . Отсюда следует, что плотность тока является четной функцией скорости изменения поля  $dH/dt$  в соответствии с формулой (10). При помощи формулы (10) из экспериментальных зависимостей  $\Delta P(t)$ , приведенных на рис. 4, найдены значения плотностей токов. Они равны  $j_1 \approx 5.5 \cdot 10^{-13}$  А/см<sup>2</sup> при  $dH/dt = \pm 0.04$  Т/с и  $j_2 \approx 5 \cdot 10^{-12}$  А/см<sup>2</sup> при  $dH/dt = \pm 0.12$  Т/с. Среднее значение отношения  $r = j_2/j_1$ , рассчитанное по четырем парам экспериментальных значений плотностей токов (для начала и конца циклов для двух направлений магнитного поля), равно  $r = 8.8 \pm 0.3 \approx 9$ , т.е. квадрату отношения скоростей быстрого и медленного циклов. Отсюда и из равенства нулю тока при  $dH/dt = 0$  следует, что плотность тока в слабом поле есть линейная функция квадрата производной поля по времени. Этот экспериментальный результат подтверждает формулу (10). Учитывая это, можно считать экспериментально установленным, что в молибдате тербия при температуре 273 К в слабых полях электрическая поляризация  $\Delta P$ , индуцируемая магнитным полем, является функцией не только поля, но и производной поля по времени, и описывается соотношением (9). Константа эффекта  $\beta$  при  $T = 273$  К найдена из экспериментальных данных рис. 4 по формуле (10). Для поля вдоль оси [010] она равна  $\beta_{[010]} = (3.5 \pm 0.2) \cdot 10^{-10}$  (А/см<sup>2</sup>)/(Т/с)<sup>2</sup>, для поля вдоль оси [100] —  $\beta_{[100]} = -(4.1 \pm 0.2) \cdot 10^{-10}$  (А/см<sup>2</sup>)/(Т/с)<sup>2</sup>. Знак константы  $\beta$  определялся относительно направления спонтанной поляризации.

Магнитоэлектрический эффект при температуре  $T = 219$  К можно представить в виде суммы двух эффектов — СМЭЭ и ДМЭЭ. В поле  $H = 19$  Т СМЭЭ в 150 раз больше, чем ДМЭЭ. В связи с этим ДМЭЭ при  $T = 219$  К определен с большой экспериментальной

погрешностью, и количественные соотношения (7)–(10) в этом случае проверить невозможно. Однако установлено, что форма петли гистерезиса при  $T = 219$  К качественно подобна форме при  $T = 273$  К. При возрастании поля ширина петли увеличивается. Она имеет практически вертикальную ветвь при максимальном значении поля и нулевой скорости изменения поля. На основании этого можно утверждать, что ДМЭЭ при  $T = 219$  К существует. Его знак противоположен таковому при 273 К, а абсолютное значение в поле 19 Т при 219 К примерно в 3 раза меньше, чем при 273 К. СМЭЭ при  $T = 219$  К, напротив, очень велик по сравнению с ДМЭЭ и убывает практически до нуля ( $\approx 10^{-11}$  С/см<sup>2</sup>) при повышении температуры до 273 К. Это позволяет при  $T = 273$  К выполнять измерения на более высокой чувствительности, что повышает отношение сигнал/шум и уменьшает случайный разброс экспериментальных значений. Уменьшение СМЭЭ при повышении температуры объяснено в работе [4] и связано с уменьшением магнитной восприимчивости в соответствии с законом Кюри.

Эффект, исследуемый в настоящей работе и интерпретируемый как ДМЭЭ, невелик и по порядку величины сравним с нескомпенсированной частью поляризации, существующей в образце перед началом измерений. В связи с этим необходимо выяснить, не является ли он случайным тривиальным результатом действия неких сопутствующих факторов. Такими факторами могут быть смена типа электрической проводимости при изменении температуры или паразитные ЭДС и токи, индуцируемые в кристалле внешним магнитным полем, изменяющимся во времени. С этой целью были выполнены измерения температурных зависимостей емкостной и активной компонент проводимости в интервале существования ДМЭЭ. Было установлено, что указанные температурные зависимости не имеют аномалий в исследованном температурном интервале.

Предполагаемые паразитные ЭДС могут возникнуть как результат действия вихревого электрического поля  $E$ , создаваемого переменным магнитным полем. Вихревое поле  $E$  связано с магнитным полем  $H$  уравнением

$$\oint_L E_l dl = -\frac{1}{c} \int_S \frac{\partial B_n}{\partial t} dS = -\frac{S}{c} \frac{dH_n}{dt}. \quad (11)$$

Здесь  $L$  — произвольный замкнутый контур;  $E_l$  — проекция вихревого электрического поля на дугу контура  $L$ ;  $dl$  — элемент дуги контура  $L$ ;  $c$  — скорость света;  $B_n = \mu H_n$  — компонента магнитной индукции, нормальная к плоскости контура; в рассматриваемом случае образец представляет собой парамагнетик с очень малой магнитной восприимчивостью, поэтому с очень высокой точностью можно положить  $\mu = 1$  и принять, что индукция и магнитное поле совпадают по направлению;  $S$  — площадь контура  $L$ ;  $dS$  — элемент площади контура. В однородном поле интегрирование по

площади плоского контура  $S$  эквивалентно умножению подынтегральной функции на  $S$ . Пренебрегая эффектами распространения, в уравнении (11) можно заменить частную производную полной.

Так как измерения выполнены в магнитном поле, направленном вдоль осей [010] и [100], контур  $L$  должен лежать в плоскости (010) или (100). Для определенности будем считать, что плоскость контура  $L$  совпадает с плоскостью (010). Вихревое поле  $E$  имеет проекции, направленные вдоль оси [001]. Эти проекции могут создавать паразитную электрическую поляризацию  $\Delta P_d$  вдоль оси [001] или паразитный поляризационный ток вдоль этой оси. Паразитная электрическая поляризация  $\Delta P_d$  определяется соотношением

$$\Delta P_d = \chi E \leq 0.3 \cdot 10^{-17} \text{ C/cm}^2. \quad (12)$$

Значение электрической поляризуемости молибдата тербия  $\chi = 0.6$  получено нами из измерений емкости на частоте 1 kHz при  $T = 273 \text{ K}$ . Для значения поля  $E$  при помощи соотношения (11) по известному значению  $dH/dt$  получена оценка сверху  $E \leq 5 \cdot 10^{-6} \text{ V/cm}$ . Видно, что величина (12) на восемь порядков меньше экспериментальных значений ДМЭЭ. Таким образом, электрическое поле, создаваемое предполагаемыми паразитными ЭДС, не может поляризовать исследуемый диэлектрик настолько сильно, чтобы этим можно было объяснить наблюдаемый эффект. Следует отметить, что малое значение величины (12) не является единственной причиной, препятствующей объяснению наблюдаемого эффекта механизмом паразитных ЭДС. Более веская причина неправомерности такого объяснения заключается в том, что величина (12) в отличие от исследуемого эффекта не зависит от времени. Это следует из (11) при условии  $dH/dt = \text{const}$ . Как показано на рис. 3, исследуемый эффект существенно зависит от времени, что противоречит рассматриваемому механизму. Электрическую поляризацию могут создать также паразитные токи вдоль оси [001], возникающие под действием вихревого поля  $E$ . Плотности этих токов при  $T = 273 \text{ K}$  удовлетворяют неравенству

$$j_C \leq E\sigma Z_0/S_{(001)} \approx 1.5 \cdot 10^{-17} \text{ A/cm}^2. \quad (13)$$

Здесь  $\sigma \approx 0.3 \cdot 10^{-10} \text{ S}$  — проводимость образца при 273 K;  $S_{001} \approx 1 \text{ cm}^2$  — площадь поверхности образца, параллельной плоскости (001);  $Z_0 = 0.1 \text{ cm}$  — толщина образца в направлении [001]. Значение плотности тока (13) на четыре порядка меньше экспериментальных значений поляризационных токов ДМЭЭ. Из (11) и (13) следует, что паразитный поляризационный ток изменяет знак при изменении знака  $dH/dt$ . Это противоречит одному из основных экспериментальных результатов, согласно которому знак поляризационного тока в наблюдаемом нами эффекте не зависит от знака  $dH/dt$ . Электрическая поляризация вдоль оси [001], создаваемая паразитными токами, зависит от времени линейно, как и

в случае ДМЭЭ.

$$\Delta P_C = \int_0^t j d\xi \leq 1.5 \cdot 10^{-17} \left( \frac{\text{A}}{\text{cm}^2} \right) t. \quad (14)$$

Однако в отличие от исследуемого эффекта она не зависит от магнитного поля. Установленные выше количественные и качественные различия между исследуемым эффектом и паразитными эффектами вихревого электрического поля указывают на фундаментальное различие между исследуемым эффектом и поляризационными токами паразитных ЭДС. Исследуемый эффект не связан с паразитными ЭДС, которые индуцируются переменным магнитным полем. Действительной причиной наблюдаемого эффекта оказывается неизвестное ранее явление, заключающееся в том, что состояние сегнетоэлектрика с магнитными ионами зависит не только от значения магнитного поля, но и от скорости его изменения во времени.

## 5. Заключение

Экспериментально установлено, что в молибдате тербия наблюдаются два типа магнитоэлектрического эффекта — СМЭЭ и ДМЭЭ. СМЭЭ представляет собой возникновение электрической поляризации под действием постоянного магнитного поля. СМЭЭ не зависит от скорости изменения поля. Это обычный магнитоэлектрический эффект. ДМЭЭ представляет собой возникновение электрической поляризации под действием внешнего магнитного поля, изменяющегося во времени. Прекращение изменения поля при отличном от нуля значении поля приводит к экспоненциальной релаксации ДМЭЭ во времени. В слабых полях значение динамической поляризации описывается билинейной зависимостью от поля и от скорости изменения поля. Поляризационный ток статической поляризации изменяет знак при инверсии скорости изменения поля во времени. Поляризационный ток динамической поляризации инвариантен относительно этой операции. Предложен феноменологический формализм описания ДМЭЭ. Микроскопический механизм ДМЭЭ неясен. До настоящего времени ДМЭЭ не наблюдался.

## Список литературы

- [1] Б.К. Пономарев, А.И. Попов, Э. Штип, Г. Вигельманн, А.Г.М. Янсен, П. Видер, Б.С. Редькин. ФТТ **47**, 1326 (2005).
- [2] H. Wiegmann, B.K. Ponomarev, J. van Tol, A.G.M. Jansen, P. Wyder, B.S. Red'kin. Ferroelectrics **183**, 195 (1997).
- [3] E.T. Keve, S.C. Abrahams, K. Nassau, A.M. Glass. Solid State Commun. **8**, 1517 (1970).
- [4] B.K. Ponomarev, S.A. Ivanov, B.S. Red'kin, V.N. Kurlov. Physica B **177**, 327 (1992).