

Магнитоэлектрический эффект в тонких пленках и слоистых тороидных структурах

И.Е. Чупис

*Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина
E-mail: chupis@ilt.kharkov.ua*

Статья поступила в редакцию 23 июля 2002 г.

Проведен расчет магнитоэлектрической и диэлектрической восприимчивостей слоистой структуры, в которой тонкие тороидные слои чередуются с диэлектрическими слоями, не находящимися в состоянии спонтанного тороидного упорядочения. В качестве тороика рассмотрен никель-иодистый борацит. Показана возможность аномального увеличения магнитоэлектрической и диэлектрической восприимчивостей в окрестности температуры индуцированного толщиной тороидного фазового перехода.

Проведено розрахунок магнітоелектричної та діелектричної сприйнятливостей шаруватої структури, в якій тонкі тороїдні шари перемежаються з діелектричними шарами, які не знаходяться у стані спонтанного тороїдного упорядкування. В якості тороїка розглянуто нікель-іодистий борацит. Доведено можливість аномального збільшення магнітоелектричної та діелектричної сприйнятливостей в околі температури тороїдного фазового переходу, індукованого товщиною плівки.

PACS: 77.84.-s, 75.80.+q

Магнитоэлектрический эффект, заключающийся в индуцировании электрической поляризации \mathbf{P} магнитным полем \mathbf{H} и в появлении намагнитченности \mathbf{M} под действием электрического поля \mathbf{E} , характеризуется тензором магнитоэлектрической (МЕ) восприимчивости $\alpha_{ik} = \partial P_i / \partial H_k = \partial M_k / \partial E_i$. Вещества, в которых тензор линейного МЕ эффекта имеет отличные от нуля антисимметричные компоненты, допускают существование третьего (кроме \mathbf{P} и \mathbf{M}) дипольного момента \mathbf{T} , называемого тороидным [1]. Тороиками называют вещества, в которых происходит фазовый переход с возникновением спонтанного тороидного момента [2]. К тороикам относят некоторые сегнетомагнитные соединения, в частности никель-иодистый борацит $\text{Ni}_3\text{B}_7\text{O}_{13}\text{I}$ [3]. В нем ниже температуры $\Theta \approx 64$ К возникновение тороидного момента сопровождается появлением спонтанной электрической поляризации и слабой намагнитченности. Недиагональные компоненты МЕ восприимчивости имеют величину $\alpha_{23} = \alpha_{32} \approx 3 \cdot 10^{-4}$ [4]. Как известно [5], величина МЕ отклика пропорциональна магнитной и диэлектрической восприимчивостям системы. В последнее время гигантские значения диэлектрической восприимчивости наблюдались в

слоистых структурах с тонкими сегнетоэлектрическими слоями со слабым межслоевым взаимодействием в окрестности так называемого индуцированного толщиной сегнетоэлектрического фазового перехода [6].

Представляет интерес изучение МЕ эффекта в пленках и системах, содержащих тонкие тороидные слои, в окрестности индуцированного толщиной тороидного фазового перехода. Эта задача решена ниже в случае, когда тороиком является никель-иодистый борацит. Показано, что в окрестности индуцированного толщиной фазового перехода в тороидное состояние возможно изменение критического поведения (по сравнению с массивным образцом) магнитоэлектрической и диэлектрической восприимчивостей, которые становятся аномально большими.

Рассмотрим слоистую структуру, состоящую из тороидных слоев А, чередующихся со слоями диэлектрика В, не находящегося в состоянии спонтанного тороидного и какого-либо другого дипольного упорядочения. Считаем толщины всех слоев одинаковыми, период структуры вдоль оси z равен $2l$, а толщина многослойной структуры $L = 2Nl$, N — число периодов, $-L/2 \leq z \leq L/2$. Свободную энергию системы запишем в виде

$$F = \sum_{j=0}^{N-1} (F_{Aj} + F_{Bj}). \quad (1)$$

В (1) мы опустили взаимодействие между слоями, поскольку гигантские значения восприимчивости в [6] наблюдались в случае слабого межслоевого взаимодействия (см. также [7,8]).

Спонтанный тороидный момент в слоях В отсутствует, существует лишь тороидный момент, индуцированный внешними электрическим и магнитным полями. Ниже считаем электрическое поле приложенным перпендикулярно слоям вдоль оси z ($E = E_z$), а магнитное поле — лежащим в плоскости слоев xy .

В тонких тороидных слоях тороидный момент неоднороден по толщине пленки, поэтому

$$F_{Aj} = \frac{1}{l} \int_{Z_1}^{Z_2} F_{Aj}(z) dz,$$

$$Z_1 = -\frac{L}{2} + 2jl; \quad Z_2 = -\frac{L}{2} + (2j+1)l. \quad (2)$$

Выше температуры тороидного упорядочения Θ никель-иодистый борацит имеет кубическую симметрию $\bar{4}3m$, а в упорядоченной фазе электрическая поляризация \mathbf{P} направлена вдоль оси четвертого порядка (ось z), тороидный момент и намагниченность лежат в плоскости xy . В работе [3] приведена свободная энергия никель-иодистого борацита для случая однородного распределения диполей (массивный образец). С учетом градиентов вдоль оси z плотность свободной энергии $F_{Aj}(z) = f(z)$ в тороидном слое $0 \leq z \leq l$ запишем в виде:

$$\begin{aligned} f(z) = & \alpha(T_x^2 + T_y^2) + \beta_1 T_x^2 T_y^2 + \beta_2 (T_x^4 + T_y^4) - \\ & - aT_x T_y E_z - bT_x T_y (H_x T_y - H_y T_x) - \\ & - cE_z (H_x T_y - T_x H_y) - \frac{1}{2\chi} E_z^2 - \frac{1}{2\kappa} (H_x^2 + H_y^2) + \\ & + \lambda \left[\left(\frac{\partial T_x}{\partial z} \right)^2 + \left(\frac{\partial T_y}{\partial z} \right)^2 \right] + \lambda_1 \left(H_y \frac{\partial T_x}{\partial z} - H_x \frac{\partial T_y}{\partial z} \right). \end{aligned} \quad (3)$$

Компоненты электрической поляризации и намагниченности определяются выражениями [3]:

$$P_z = aT_x T_y + \frac{1}{\chi} E_z + c(T_y H_x - T_x H_y);$$

$$M_x = bT_x (T_y^2 - T_x^2) + \frac{1}{\kappa} H_x + cT_y E_z;$$

$$M_y = bT_y (T_x^2 - T_y^2) + \frac{1}{\kappa} H_y - cT_x E_z. \quad (4)$$

Равновесные значения $T_{x,y}$ определяются уравнениями Эйлера — Лагранжа

$$\frac{\partial f}{\partial T_i} - \frac{d}{dz} \left(\frac{\partial f}{\partial z} \right) = 0 \quad i = x, y,$$

т.е. уравнениями

$$\begin{aligned} & 2\alpha T_x + 4\beta_2 T_x^3 + 2\beta_1 T_x T_y^2 - aT_y E_z - \\ & - b(H_x T_y^2 - 2T_x T_y H_y) + cE_z H_y - 2\lambda T_x'' = 0; \\ & 2\alpha T_y + 4\beta_2 T_y^3 + 2\beta_1 T_y T_x^2 - aT_x E_z + \\ & + b(H_y T_x^2 - 2T_x T_y H_x) - cE_z H_x - 2\lambda T_y'' = 0. \end{aligned} \quad (5)$$

Из уравнений (5) видно, что в поле $H_x = H_y = H$ существует решение $T_x = -T_y = T$, удовлетворяющее уравнению

$$2\alpha T + 4\beta T^3 - 2\lambda T'' + aE_z T - 3bHT^2 + cE_z H = 0, \quad (6)$$

где $2\beta = 2\beta_2 + \beta_1$.

В отсутствие внешних полей, полагая $T = 0$ на границах тороидного слоя, из (6) находим спонтанный тороидный момент T_s :

$$T_s = T_0 \sqrt{\frac{2m}{1+m}} \operatorname{sn} \left(\frac{z}{l_0 \sqrt{1+m}}, m \right), \quad (7)$$

где $\operatorname{sn}(u, m)$ — эллиптический синус Якоби, $m = k^2$ [9]; $T_0 = (-\alpha/2\beta)^{1/2}$ — спонтанный тороидный момент массивного образца; $l_0 = (-\lambda/\alpha)^{1/2}$ — корреляционная длина. Параметр m определяется соотношением

$$l = 2l_0 \sqrt{1+m} K(m), \quad (8)$$

где $K(m)$ — полный эллиптический интеграл первого рода, а параметр m изменяется от 0 до 1. При $m \rightarrow 1$ величина K логарифмически расходится, при этом, как следует из (8), $l \gg l_0$. Следовательно, предел $m = 1$ соответствует массивному образцу (толстой пленке). С другой стороны, при $m \rightarrow 0$ величина $K \rightarrow \pi/2$ и l стремится к своему наименьшему (критическому) значению $l_c = \pi l_0$, при котором спонтанный тороидный момент равен нулю. Для значений толщин $l < l_c$ спонтанный тороидный момент не существует. Это значит, что фазовый переход из тороидного состояния ($T \neq 0$) в паратороидное ($T = 0$) может произойти без изменения температуры путем уменьшения толщины пленки (так называемый наведенный толщиной фазовый пере-

ход [6,7,10]). При $l > l_c$ температура фазового перехода зависит от толщины пленки. Полагая в (3) постоянную $\alpha = \alpha_0(t - \Theta)$ (где t — температура, Θ — температура перехода в толстой пленке), из условия $l = l_c = \pi l_0(t = \Theta_l)$ находим

$$\Theta_l = \Theta \left[1 - \left(\frac{l_{c0}}{l} \right)^2 \right], \quad l_{c0} = \pi \sqrt{\frac{\lambda}{\alpha_0 \Theta}}, \quad (9)$$

здесь l_{c0} — критическая толщина пленки при нулевой температуре. При $l \leq l_{c0}$ значение $\Theta_l \leq 0$, т.е. фазовый переход в тороидное состояние не может произойти ни при какой температуре. Из (9) видно, что температура перехода в тороидное состояние в пленке Θ_l меньше температуры фазового перехода в массивном образце Θ .

Нас интересует МЕ восприимчивость рассматриваемой системы, т.е. величины

$$\alpha_{zx} = \frac{\partial P_z}{\partial H_x}, \quad \alpha_{zy} = \frac{\partial P_z}{\partial H_y}. \quad (10)$$

Из (4) получаем

$$\alpha_{zx} = a \frac{\partial}{\partial H_x} (T_x T_y) + c T_y, \quad (11)$$

$$\alpha_{zy} = a \frac{\partial}{\partial H_y} (T_x T_y) - c T_x.$$

Для рассматриваемого решения $T_y = -T_x = -T$ при $H_x = H_y = H$ магнитоэлектрические восприимчивости линейного эффекта

$$\alpha_{zx} = \alpha_{zy} = \alpha(z) = -c T_s - 2a T_s \tau, \quad \tau = \left(\frac{\partial T}{\partial H} \right)_{E, H=0}. \quad (12)$$

Дифференцируя уравнение (6) по H и перейдя к переменной $u = z/l_0 \sqrt{1+m}$, получаем следующее уравнение для определения τ :

$$\tau_u'' + (1+m - 6m \operatorname{sn}^2(u, m)) \tau = R \operatorname{sn}^2(u, m), \quad (13)$$

$$R = -\frac{3mb}{2\beta}.$$

Магнитоэлектрическая восприимчивость рассматриваемой многослойной структуры с не взаимодействующими слоями есть величина

$$\bar{\alpha} = \frac{1}{L} \sum_{j=0}^{N-1} \int_{Z_1}^{Z_2} [\alpha_{A_j}(z) + \alpha_{B_j}(z)] dz, \quad (14)$$

$$Z_1 = -L/2 + 2jl, \quad Z_2 = -L/2 + (2j+1)l.$$

Поскольку в слое В спонтанный тороидный момент отсутствует, в результате имеем:

$$\bar{\alpha} = \frac{1}{l} \int_0^l \alpha(z) dz = \frac{1}{2K} \int_0^{2K} \alpha(u) du. \quad (15)$$

Решение уравнения (13) для τ имеет вид [11]

$$\tau(u) = c_1 \tau_1 + c_2 \tau_2 + \tau_3,$$

$$\tau_1 = \operatorname{cn}(u, m) \operatorname{dn}(u, m),$$

$$\tau_2 = \left(u - \frac{1+m}{1-m} E(amu, m) \right) \operatorname{cn}(u, m) \operatorname{dn}(u, m) + \frac{\operatorname{sn}(u, m) [\operatorname{dn}^2(u, m) + m^2 \operatorname{cn}^2(u, m)]}{1-m}, \quad (16)$$

$$\tau_3 = \frac{R}{3(m-1)^2} [2 - (1+m) \operatorname{sn}^2(u, m)],$$

где $E(amu, m)$ — эллиптический интеграл второго рода, $\operatorname{cn}(u, m)$, $\operatorname{dn}(u, m)$ — соответственно эллиптический косинус и дельта амплитуды.

С помощью граничных условий:

$$\tau(u=0) = \tau(u=2K) = \tau_s \quad (17)$$

находим постоянные c_1 и c_2 :

$$c_1 = \tau_s - \frac{2R}{3(1-m)^2},$$

$$c_2 = \frac{2R - 3\tau_s(1-m)^2}{3(1-m)[K(1-m) - E(1+m)]}. \quad (18)$$

Используя (7), (12), (16) и (18), для МЕ восприимчивости рассматриваемой системы $\bar{\alpha}$ (15) находим:

$$\bar{\alpha} = -\frac{T_0}{K\sqrt{2(1+m)}} \left\{ \left(c + \frac{ab}{2\beta} \right) \ln \frac{1+\sqrt{m}}{1-\sqrt{m}} + \frac{a\sqrt{m} [b(E-K) - 2\tau_s \beta (2E + K(m-1))]}{\beta [K(1-m) - E(1+m)]} \right\}. \quad (19)$$

Для толстой пленки, когда $m \rightarrow 1$, $K \rightarrow \infty$, $E \rightarrow 1$, $K(1-m) \rightarrow 0$, из (19) в пределе получаем

$$\alpha_t = -T_0 \left(c + \frac{3ab}{4\beta} \right). \quad (20)$$

Это же значение α_t можно получить, опуская пространственные производные в (6).

Для тонкой пленки вблизи Θ_l при $m \rightarrow 0$

$$E - K \cong -\pi m/4, \quad K(0) = E(0) = \pi/2,$$

$$K(1-m) - E(1+m) \cong -3\pi m/4, \ln \frac{1+\sqrt{m}}{1-\sqrt{m}} \cong 2\sqrt{m}.$$

С учетом этих соотношений получаем следующее выражение для МЕ восприимчивости слоистой тороидной структуры вблизи температуры индуцированного толщиной фазового тороидного перехода Θ_l :

$$\bar{\alpha} \cong -T_0 \frac{2\sqrt{2m}}{\pi} \left[c + \frac{2ab}{3\beta} + \frac{2a\tau_s}{3m} \right]. \quad (21)$$

При малых значениях m из (8) следуют соотношения для пленок толщиной, близкой к критической l_c :

$$l \cong \pi l_0 \left(1 + \frac{3}{4}m \right), \quad m = \frac{4}{3} \left(\frac{l}{l_c} - 1 \right), \quad l - l_c \ll l_c. \quad (22)$$

С другой стороны, для таких пленок, используя зависимость l_0 от температуры и соотношение (9), вблизи температуры фазового перехода Θ_l получаем

$$m \cong \frac{2}{3} \frac{l^2}{l_{c0}^2} \frac{\Theta_l - t}{\Theta}. \quad (23)$$

Если значение $\partial T/\partial H = \tau_s = 0$ на поверхности пленки, то

$$\bar{\alpha} \propto \sqrt{l-l_c}, \quad \bar{\alpha} \propto l\sqrt{\Theta_l - t}, \quad (24)$$

т.е. МЕ восприимчивость имеет обычную (в рамках теории Ландау) корневую температурную зависимость, однако с коэффициентом, пропорциональным толщине пленки.

Если же $\tau_s \neq 0$ на поверхности, то, как видно из (21), критическая зависимость МЕ восприимчивости усилена:

$$\begin{aligned} \bar{\alpha} &\cong -\frac{2\sqrt{2}}{\pi\sqrt{3}} \tau_s a T_0 \sqrt{\frac{l_c}{l-l_c}}, \\ \bar{\alpha} &\cong -\frac{4a\tau_s T_0}{\pi\sqrt{3}} \frac{l_{c0}}{l} \sqrt{\frac{\Theta}{\Theta_l - t}}. \end{aligned} \quad (25)$$

Это усиление МЕ эффекта в тонких тороидных пленках вблизи Θ_l возможно лишь при ненулевом значении τ_s на поверхности. Так как спонтанный тороидный момент в слоях отсутствует, то вклад в τ_s может дать лишь индуцированный тороидный момент, который создается скрещенными электрическим и магнитным полями, $\tau \propto E_z H_{x,y}$. При измерении МЕ восприимчивости к системе прикладывается внешнее магнитное поле. Электрическое же поле E_z может иметь как внешнее, так и внутрисистемное происхождение. В отсутствие внешнего поля $E_z \neq 0$ на контакте слоев может быть следствием несовершенства поверхностей и деполяризации, контактной разности потенциалов. Внешнее элект-

рическое поле также индуцирует $\tau_s \neq 0$, и соответствующая МЕ восприимчивость относится к нелинейному МЕ эффекту.

В тонкопленочных тороидных структурах в окрестности температуры индуцированного толщиной фазового тороидного перехода возможно также аномальное усиление диэлектрической проницаемости по сравнению с массивным образцом, в котором при тороидном переходе она имеет незначительный скачок. Действительно, из (4) и (6) находим

$$\chi_e = \frac{\partial P_z}{\partial E_z} = \chi^{-1} - 2afT_s, \quad f = \frac{\partial \tau}{\partial E_z},$$

$$f_u'' + f(1+m-6m\text{sn}^2(u,m)) = A \text{sn}(u,m), \quad (26)$$

$$A = \frac{a(1+m)}{2} \sqrt{\frac{m}{\alpha\beta}}.$$

Решая уравнение (26) для f аналогично предыдущему случаю с граничными условиями $f(u=0,2K) = f_s$, получаем для среднего значения диэлектрической восприимчивости вблизи Θ_l (малые m) выражение

$$\bar{\chi}_e \cong \chi_t - \frac{4\sqrt{2}af_s T_0}{3\pi\sqrt{m}} \approx -\frac{4af_s T_0}{\pi\sqrt{3}} \frac{l_{c0}}{l} \sqrt{\frac{\Theta}{\Theta_l - t}}. \quad (27)$$

В формуле (27) χ_t — диэлектрическая восприимчивость массивного образца. Величина $f_s = (\partial\tau/\partial E)_s$ на поверхности пленки может быть отличной от нуля в присутствии постоянного внешнего магнитного поля, лежащего в плоскости слоев.

Таким образом, индуцированный толщиной фазовый переход в тороидное состояние может сопровождаться аномальным усилением как МЕ восприимчивости, так и диэлектрической проницаемости.

Поскольку взаимодействие слоев не учитывалось, полученные результаты относятся как к тонкопленочным многослойным системам, так и к отдельной тонкой пленке тороика при условии отсутствия спонтанного тороидного момента на обеих граничных поверхностях тороидного слоя. В слоистых структурах это условие может быть реализовано благодаря контакту тороидных слоев А с нетороидными (или паратороидными) слоями В.

1. В.М. Дубовик, Л.А. Тосунян, *ЭЧАЯ* **14**, 1193 (1983).
2. V.L. Ginzburg, A.A. Gorbatsevich, Yu.V. Kopayev, and B.A. Volkov, *Solid State Commun.* **50**, 339 (1984).
3. Д.Г. Санников, И.С. Желудев, *ФТТ* **27**, 1369 (1985).
4. E. Asher, H. Rieder, H. Schmid, and H. Stossel, *J. Appl. Phys.* **37**, 1404 (1966).
5. Г.А. Смоленский, И.Е. Чупис, *УФН* **137**, 415 (1982).
6. Y. Kim, R.A. Gerhardt, and A. Erbil, *Phys. Rev.* **B55**, 8766 (1997).

7. M.D. Glinchuk, E.A. Eliseev, V.A. Stephanovich, M.G. Karkut, and R. Farhi, *Cond.mat/0004258*.
8. М.Д. Глинчук, Е.А. Елисеев, В.А. Стефанович, *ФТТ* **44**, 912 (2002).
9. И.С. Градштейн, И.М. Рыжик, *Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений*, Физматгиз, Москва (1963).
10. B.D. Qu, W.L. Zhong, and R.H. Prince, *Phys. Rev.* **B55**, 11218 (1997).
11. Г. Бейтмен, А. Эрдейи, *Высшие трансцендентные функции*, Наука, Москва (1967).

Magnetoelectric effect in toroidal thin films and multilayers

I.E. Chupis

Magnetoelectric and dielectric susceptibilities are calculated for a multilayer system where thin toroidal layers alternate with dielectric layers which are not toroids. The case where nickel-iodine boracite is a toroid is analyzed. It is shown that the magnetoelectric and dielectric susceptibilities may be anomalously high in the vicinity of the thickness-induced toroidal phase transition.