

04,05

Максвелл-вагнеровская релаксация и магнитодиэлектрические свойства керамики $\text{Bi}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{MnO}_3$

© А.В. Турик^{1,2}, А.В. Павленко^{1,3}, Л.А. Резниченко¹

¹ Научно-исследовательский институт физики Южного федерального университета, Ростов-на-Дону, Россия

² Южный федеральный университет, Ростов-на-Дону, Россия

³ Южный научный центр РАН, Ростов-на-Дону, Россия

E-mail: turik1934@yandex.ru

(Поступила в Редакцию 12 января 2016 г.)

При температуре $T = 78$ К в диапазоне частот $f = 200\text{--}10^5$ Hz и магнитных индукций $B = 0\text{--}5$ Т выполнены измерения комплексной диэлектрической проницаемости $\varepsilon = \varepsilon' - i\varepsilon''$ керамики манганита висмута-лантана $\text{Bi}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{MnO}_3$. Обнаружены диэлектрическая релаксация и четко выраженный магнитодиэлектрический эффект. Предложено объяснение, основанное на суперпозиции максвелл-вагнеровской релаксации и магниторезистивного эффекта.

Работа выполнена при финансовой поддержке МОН РФ (базовая и проектная части гос. Задания: проект № 1927, темы № 213.01-2014/012-ВГ и 3.1246.2014/К) и РФФИ (грант № 16-32-60095 мол_а_дк).

1. Введение

Максвелл-вагнеровская (МВ) поляризация и релаксация обусловлены движением свободных зарядов и их накоплением на поверхностях раздела двухслойных или многослойных диэлектриков [1,2]. Эти эффекты в керамиках твердых растворов $\text{Bi}_{1-x}\text{La}_x\text{MnO}_3$ (BLM) могут сопровождаться магниторезистивным (МР) и магнитодиэлектрическим (МД) эффектами, связанными с андерсоновской локализацией носителей заряда на спиновом беспорядке и их делокализацией под действием внешнего магнитного поля [3,4]. Следует учитывать также влияние межзеренных границ и туннелирование носителей заряда через диэлектрические межзеренные прослойки.

Ранее [5–7] нами было показано, что в керамике $\text{Bi}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{MnO}_3$ (BLM-50) при $T = 80$ К наблюдается МД-эффект, обусловленный сосуществованием МВ-поляризации и МР-эффекта. Однако измерения в [5–7] были выполнены в слабых магнитных полях с магнитной индукцией $B < 0.85$ Т. Настоящая работа является продолжением выполненных ранее исследований в более сильных $0 < B < 5$ Т магнитных полях и посвящена установлению закономерностей формирования МВ-релаксации и МД-свойств BLM-50 керамики.

2. Объекты, методы приготовления и исследования образцов

Исследовались керамические образцы состава $\text{Bi}_{0.5}\text{La}_{0.5}\text{MnO}_3$ (BLM-50). Синтез твердых растворов осуществляли методом твердофазных реакций из оксидов Bi_2O_3 , Mn_2O_3 , La_2O_3 высокой степени чистоты

обжигом в две стадии, с промежуточным помолом, при температурах $T_1 = 1173$ К и $T_2 = 1273$ К и временах выдержки $\tau_1 = 10$ h и $\tau_2 = 2$ h. Спекание керамики проводили при температуре 1293 К в течение 2 h.

Измерения действительной (ε') и мнимой (ε'') частей комплексной диэлектрической проницаемости $\varepsilon = \varepsilon' - i\varepsilon''$ при температуре $T = 78$ К в диапазоне частот $200\text{--}10^5$ Hz проводили с помощью прецизионного анализатора импеданса Wayne Kerr 6500 В. Исследование изменения ε' и ε'' на частотах $f = 200\text{--}10^5$ Hz при $T = 80$ К в магнитном поле $B = 0\text{--}5$ Т проводилось с помощью LCR-метра Agilent E4980A при напряженности измерительного электрического поля $E = 1$ V/mm.

По экспериментальным данным рассчитаны магнитодиэлектрические (МД и МЛ) коэффициенты диэлектрической проницаемости и диэлектрических потерь и соответствующие коэффициенты (MED и MEL) для электрического модуля $M = 1/\varepsilon$:

$$\begin{aligned} \text{MD}(B) &= \frac{\varepsilon'(B) - \varepsilon'(0)}{\varepsilon'(0)} \cdot 100\%, \\ \text{ML}(B) &= \frac{\varepsilon''(B) - \varepsilon''(0)}{\varepsilon''(0)} \cdot 100\%, \end{aligned} \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \text{MED}(B) &= \frac{M'(B) - M'(0)}{M'(0)} \cdot 100\%, \\ \text{MEL}(B) &= \frac{M''(B) - M''(0)}{M''(0)} \cdot 100\%, \end{aligned} \quad (2)$$

где $\varepsilon(B)$, $\varepsilon(0)$, $M(B)$, $M(0)$ — диэлектрические проницаемости и электрические модули, измеренные в переменном электрическом поле частоты f с напряженностью $E = 1$ V/mm в присутствии и в отсутствие

постоянного магнитного поля с индукцией B . Для измерения удельной электропроводности σ при температуре $T = 80\text{ K}$ в магнитном поле $B = 0-5\text{ T}$ использовался High Resistance Meter Agilent E4339 В.

3. Экспериментальные результаты и обсуждение

На рис. 1 и 2 при $T = 80\text{ K}$ представлены экспериментальные зависимости $\varepsilon'(f)$, $\varepsilon''(f)$ в диапазоне частот $200 < f < 10^5\text{ Hz}$, а также зависимости MD(B), ML(B), MED(B) и MEL(B) керамики BLM-50 на частотах $f = 2$ и 20 kHz . В отсутствие магнитного поля с увеличением частоты величина ε' монотонно убывает от 150 до 25, тогда как $\varepsilon''(f)$ проходит через релаксационный максимум.

Приложение к образцу постоянного магнитного поля приводит к росту ε' на всех частотах измерительного электрического поля (рис. 1) и, как следствие, к положительным значениям MD (рис. 2). Приложение же магнитного поля при частотах ниже средней частоты релаксации приводит к уменьшению ε'' и к отрицательным значениям ML. Зависимости MD(B), ML(B), MED(B) и MEL(B) керамики BLM-50 на частоте $f = 20\text{ kHz}$ (выше средней частоты релаксации) также показаны на рис. 2. При этом как MD, так и ML положительны, что согласуется с данными рис. 1.

Для объяснения описанных эффектов может быть привлечен эффект увеличения релаксационной частоты системы зерно-прослойка в BLM-керамике вследствие колоссального отрицательного магнетосопротивления [3,4]. Согласно [8], если зерно BLM-керамики имеет большую электропроводность, чем прослойка, и электропроводность зерна экспоненциально увеличивается с ростом магнитной индукции вследствие отрицательного МР-эффекта, возникает МД-эффект. Для количественной

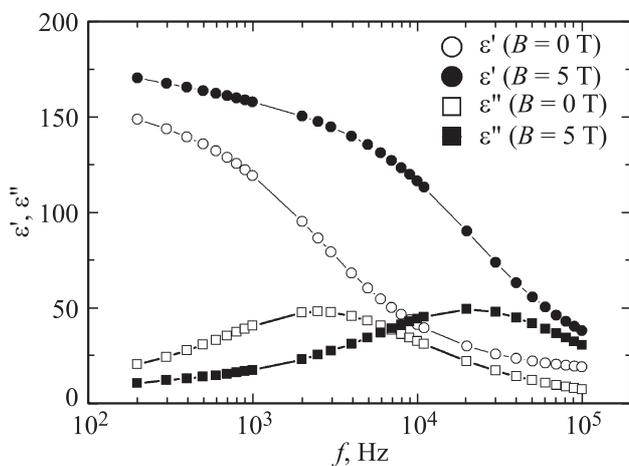


Рис. 1. Экспериментальные зависимости $\varepsilon'(f)$ и $\varepsilon''(f)$ керамики BLM-50 в диапазоне частот $200-10^5\text{ Hz}$ при температуре 78 K .

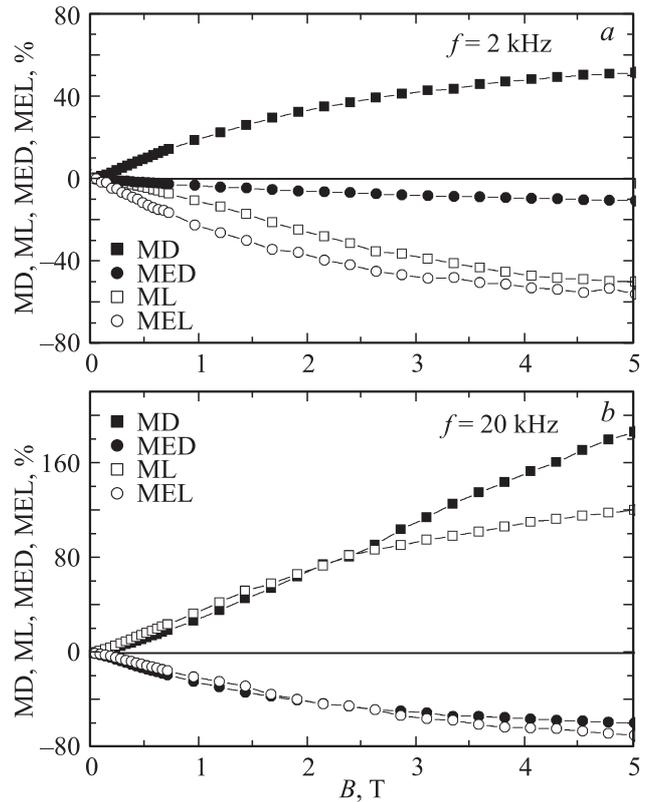


Рис. 2. Экспериментальные зависимости MD(B), ML(B), MED(B) и MEL(B) керамики BLM-50 при $T = 78\text{ K}$ на частотах $f = 2\text{ kHz}$ (а) и 20 kHz (б).

оценки МД-эффекта можно привлечь теорию МВ-релаксации [1,2]. Теоретический МВ-диэлектрический спектр имеет дебаевский характер и описывается следующими соотношениями:

$$\varepsilon = \varepsilon_\infty + \frac{\varepsilon_s - \varepsilon_\infty}{1 + i\omega\tau} - i \frac{\sigma}{\omega\varepsilon_0}; \quad \tau = \varepsilon_0 \frac{\theta_1\varepsilon_2 + \theta_2\varepsilon_1}{\theta_1\sigma_2 + \theta_2\sigma_1};$$

$$\varepsilon_\infty = \frac{\varepsilon_1\varepsilon_2}{\theta_1\varepsilon_2 + \theta_2\varepsilon_1}; \tag{3}$$

$$\varepsilon_s = \frac{\varepsilon_1\sigma_2 + \varepsilon_2\sigma_1 - \tau\sigma_1\sigma_2}{\theta_1\sigma_2 + \theta_2\sigma_1}; \quad \sigma = \frac{\sigma_1\sigma_2\tau\varepsilon_\infty}{\varepsilon_1\varepsilon_2\varepsilon_0}. \tag{4}$$

Здесь $\varepsilon_1 = 10$, $\sigma_1 = 10^{-8} (\Omega \cdot \text{m})^{-1}$, $\theta_1 = 0.05$ и $\varepsilon_2 = 20$, $\sigma_2 = 2.3 \cdot 10^{-5} (\Omega \cdot \text{m})^{-1}$, $\theta_2 = 0.95$ — использованные при расчетах диэлектрические проницаемости, электропроводности и объемные концентрации первого и второго слоев. К двухслойному диэлектрику в целом относятся статическая и высокочастотная проницаемости ε_s и ε_∞ , электропроводность σ и время релаксации τ ; $\omega = 2\pi f$ — круговая частота электрического поля, $\varepsilon_0 = 8.854 \cdot 10^{-12}\text{ F/m}$ — электрическая постоянная.

Соотношения (3) и (4) позволяют рассчитать частотные зависимости проницаемости $\varepsilon = \varepsilon' - i\varepsilon''$ и электрического модуля $M = 1/\varepsilon$. Для оценки МР-эффекта использовалась формула [8] $\sigma_{2B} = \sigma_2 \exp(B/B_s)$ с

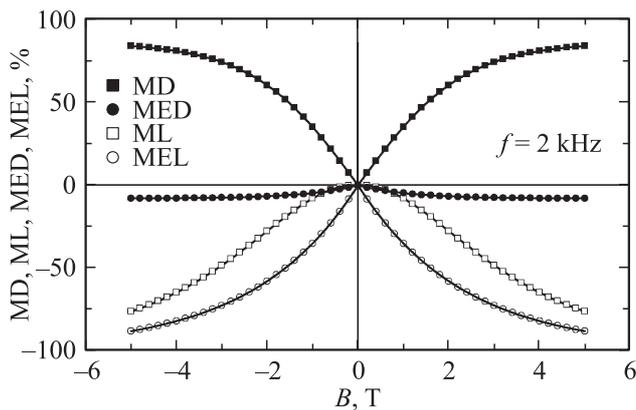


Рис. 3. Рассчитанные зависимости $MD(B)$, $ML(B)$, $MED(B)$ и $MEL(B)$ керамики BLM-50 при $T = 78$ К на частоте $f = 2$ kHz.

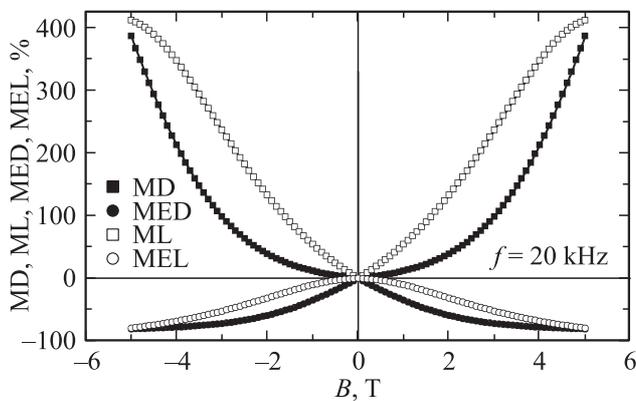


Рис. 4. Рассчитанные зависимости $MD(B)$, $ML(B)$, $MED(B)$ и $MEL(B)$ керамики BLM-50 при $T = 78$ К на частоте $f = 20$ kHz.

$B_s = 2.25$ Т и $0 < B < 5$ Т. Результаты расчетов показаны на рис. 3 и 4. Однако экспериментальные диэлектрические спектры керамики BLM-50 недебаевские, и поэтому сопоставление рис. 3 и 4 с рис. 1 и 2 дает лишь качественное согласие. При этом МД-эффект, обусловленный сосуществованием МВ-поляризации и МР-эффекта, четко проявляется как в экспериментальных, так и в теоретических диэлектрических спектрах. Экспериментальные исследования МР-эффекта в керамике BLM-50 в полях $B = 0-5$ Т подтвердили, что зависимость $\sigma(B)$ имеет экспоненциально нарастающий характер.

4. Выводы

Установлено, что экспериментальные диэлектрические спектры и магнитоэлектрический эффект в керамике BLM-50 при температуре $T = 78$ К могут быть объяснены максвелл-вагнеровской релаксацией в сочетании с магнитоэлектрическим эффектом. Для интерпрета-

ции описанных эффектов привлечен эффект увеличения релаксационной частоты системы зерно-прослойка в BLM-керамике.

Список литературы

- [1] А.Р. Хиппель. Диэлектрики и волны. ИИЛ, М. (1960). 440 с.
- [2] Н.П. Богородицкий, Ю.М. Волокобинский, А.А. Воробьев, Б.М. Тареев. Теория диэлектриков. Энергия, М.-Л. (1965). 344 с.
- [3] В.А. Хомченко, И.О. Троянчук, О.С. Мантыцкая, М. Товар, Г. Шимчак. ЖЭТФ **130**, 64 (2006).
- [4] И.О. Троянчук. Изв. НАН Беларуси **4**, 28 (2013).
- [5] А.В. Павленко, А.В. Турик, Л.А. Резниченко, Л.А. Шилкина, Г.М. Константинов. Письма в ЖТФ **39**, 47 (2013).
- [6] А.В. Павленко, А.В. Турик, Л.А. Резниченко, Ю.С. Кошкилько. ФТТ **56**, 1093 (2014).
- [7] А.В. Павленко, А.В. Турик, Л.А. Резниченко. Изв. РАН. Сер. физ. **78**, 1042 (2014).
- [8] G. Catalan. Appl. Phys. Lett. **88**, 102902 (2006).