

УДК 537.9

ИССЛЕДОВАНИЕ МАГНИТНЫХ ВЗАИМОДЕЙСТВИЙ В КОМПОЗИТЕ СО СМЕСЬЮ НАНОЧАСТИЦ γ -Fe₂O₃ И CoFe₂O₄

© 2025 г. В. Г. Колесникова*, В. Д. Сальников,
А. С. Омелянчик, В. В. Родионова

Федеральное государственное автономное образовательное учреждение высшего образования «Балтийский федеральный университет имени Иммануила Канта», Калининград, Россия

*E-mail: VGKolesnikova1@kantiana.ru

Поступила в редакцию 15.11.2024 г.

После доработки 14.12.2024 г.

Принята к публикации 30.12.2024 г.

Представлены результаты исследования магнитных взаимодействий в перспективных для биомедицинских приложений композитах на основе пьезоактивной матрицы PVDF, наполненной различными комбинациями частиц: магнитотвердые наночастицы CoFe₂O₄; смесь магнитотвердых CoFe₂O₄ и магнитомягких γ -Fe₂O₃ наночастиц; смесь частиц CoFe₂O₄ и BaTiO₃. Анализ проводился с помощью методов IRM-DCD и FORC. Определено, что наличие магнитомягкой фазы в композите приводит к увеличению полей магнитных взаимодействий с $\Delta h_c \approx 1300$ Э (для композитов с частицами CoFe₂O₄) до $\Delta h_c \approx 1500$ Э (для композитов со смесью магнитотвердых и магнитомягких наночастиц), и к образованию двух основных магнитных фаз в композите.

Ключевые слова: магнитные взаимодействия, магнитоэлектрические композиты, FORC-анализ

DOI: 10.31857/S0367676525040151, EDN: GTRFHC

ВВЕДЕНИЕ

Растущее число заболеваний опорно-двигательного аппарата требует поиска новых эффективных методов восстановления костной ткани [1]. Тканевая инженерия и регенеративная медицина предлагают стратегии восстановления костной ткани с использованием скаффолдов (клеточных каркасов), стимулирующих дифференцировку стволовых клеток в остеогенном направлении [2]. Для воспроизведения свойственных живому организму условий дифференцировки стволовых клеток *in vitro/in vivo* на скаффолдах, необходимо учитывать мезоструктурные особенности костей (жесткость, пористость, внутреннюю микроструктуру), а также обеспечивать воздействие на клетки комбинации различных физических стимулов, таких как магнитный, электрический и механический, поскольку они играют важную роль в регуляции активности стволовых клеток [3]. Среди разнообразия материалов, потенциальных для использования в качестве скаффолдов для инженерии костной ткани, обеспечить такой набор свойств могут полимерные композиты, обладающие магнитоэлектрическим (МЭ) эффектом. Прямой МЭ эффект – переход энергии от ферромагнитной фазы к сегнетоэлектрической: приложение внешнего

магнитного поля приводит к изменению размеров магнитострикционной компоненты, что за счет механической связи фаз приводит к деформации пьезоэлектрической компоненты, которая, в свою очередь, изменяет электрическую поляризацию (смена знака или величины поляризации) [4]. Разработке таких мультиферроидных материалов, с контролируемым магнитоэлектрическим откликом, в последние годы уделяется большое внимание [5, 6]. Изменять свойства магнитоэлектрических композитов на микро- и наноуровне возможно путем изменения механической связи магнитной и пьезоэлектрической фаз [7]. Поэтому, важную роль при создании композита с заданными свойствами играет выбор типа матрицы, который обусловлен рядом дополнительных требований к ней: легкость, миниатюрность, простота в обработке, гибкость и износостойкость, бионейтральность [8]. Классические керамические материалы, используемые при создании МЭ композитов, не обладают данными свойствами, поэтому для биомедицинских приложений пьезоэлектрическая керамика заменяется на пьезоэлектрические гибкие полимеры, такие как поливинилиденфторид (ПВДФ – англ. «PVDF») или поли(винилиденфторидтрифторэтилен) (ПВДФ-ТрФЭ – англ. «PVDF-TrFE»), а также

другие сополимеры и полимерные смеси на основе PVDF [9], которые не только обладают перечисленными выше свойствами, а также коммерчески являются доступным и экологически чистым материалами [10].

Для получения оптимальных магнитоэлектрических свойств могут быть выбраны различные варианты наполнителей в качестве магнитной и электрической фаз, например, частицы, провода, анизотропные ламельные структуры [7]. Выбор типа магнитного наполнителя обусловлен величиной его магнитоstriction и магнитными свойствами (намагниченность, восприимчивость, коэрцитивность) [11]. Для композитов с нано- и микрочастицами, помимо основного механизма возникновения магнитоэлектрического эффекта за счет магнитоstrictionных свойств ферромагнетика, появляется вклад, связанный с тенденцией частиц, их агрегатов и ансамблей к смещению и повороту в пьезоактивной матрице под действием внешнего магнитного поля [12]. Комбинация двух механизмов позволяет достичь наиболее сильного механического воздействия на матрицу, которое приводит к увеличению пьезоэффекта и, соответственно, к увеличению магнитоэлектрического эффекта [13]. Тенденция частиц к повороту и смещению может быть усилена за счет магнитных (например, диполь-дипольного) взаимодействий, определяемых, в том числе, расстоянием между частицами, их агрегатами и ансамблями [14]. Изменять конфигурацию частицами и их агрегатов в полимере можно на этапе изготовления композита. Как следствие, магнитоэлектрический эффект полученного композита будет напрямую зависеть от магнитных взаимодействий, заложенных во время его изготовления [15].

Таким образом, исследование взаимодействий ферромагнитных наночастиц и их агрегатов в пьезоэлектрической матрице важно для оптимизации коэффициента магнитоэлектрической связи – ключевого параметра магнитоэлектрических клеточных каркасов для тканевой инженерии. Цель данной работы – с помощью IRM-DCD (Isothermal Remanent Magnetization, Direct Current Demagnetization) зависимостей и FORC (First Order Reversal Curve) диаграмм проанализировать магнитные взаимодействия в композитах на основе пьезоактивной матрицы PVDF и магнитотвердых наночастиц CoFe_2O_4 , и установить влияние внесения дополнительных наполнителей – магнитомягких наночастиц $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ и микрочастиц BaTiO_3 – на них.

ЭКСПЕРИМЕНТ И РЕЗУЛЬТАТЫ

Для изготовления композитов в качестве полимерной матрицы использовался полимер поливинилиденфторид (PVDF). Для приготовления раствора гранулы PVDF растворялись в диметилформамиде (DMF) в весовом соотношении 1:4

при температуре 40 °C с последующим перемешиванием до полного растворения полимерных гранул. Время растворения составляло 45 минут. Наночастицы CoFe_2O_4 и $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$, которые были использованы в качестве ферромагнитного наполнителя для композита, синтезированы методами золь-гель самосгорание и соосаждение. Наночастицы смешивали со второй частью растворителя и диспергировали в предварительно приготовленных растворах полимера-прекурсора в ультразвуковой ванне в течение 2 ч. Пьезоэлектрические частицы BaTiO_3 (ВТО) добавляли в раствор на том же этапе, что и ферромагнитные частицы. Раствор частиц и прекурсора полимера наносили на чистую стеклянную подложку с помощью лезвия для нанесения покрытия, при этом расстояние от подложки до лезвия было фиксировано (метод изготовления – метод ракельного ножа или doctor Blade [4, 5]). Растворитель испаряли путем нагрева композитов в печи при 75 °C в течение 15 мин.

В качестве магнитомягкой фазы ферромагнитного наполнителя выступали наночастицы маггемита ($\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$) с объемным и линейным размерами кристаллитов 7 нм и 9.6 нм, соответственно, определенными с помощью рентгеновского дифрактометра и просвечивающего электронного микроскопа [16]. В качестве магнитотвердой фазы выступали наночастицы феррита кобальта (CoFe_2O_4) размером 23 нм [17]. Пьезоэлектрические частицы титаната бария (BaTiO_3) размером 2 мкм были получены методом твердотельного помола, в композите они используются для увеличения числа центров образования пьезоэлектрической фазы полимера; при этом, частицы ВТО могут оказывать незначительное влияние на межчастичное взаимодействие [18].

Для исследования магнитных взаимодействий в композите был проведен сравнительный анализ магнитных характеристик образцов с тремя видами наполнителя: CFO, смесь CFO-ВТО и смесь CFO-FO (петли гистерезиса образцов представлены на рис. 1). Полевые зависимости остаточной намагниченности были получены, следуя двум протоколам измерений:

- Isothermal Remanent Magnetization (IRM) – измерение остаточной намагниченности образца после приложения и снятия магнитного поля, напряженность которого с каждым шагом измерения увеличивается в диапазоне $H_R = 0\text{--}1.1$ Тл (H_R – return field, возвращающее поле).
- Direct Current Demagnetization (DCD) – измерение остаточной намагниченности образца после процедуры изменения и снятия магнитного поля, в котором он находится: (1) приложение магнитного поля насыщения ($H_S = -1.1$ Тл); (2) приложение обратного магнитного поля, напряженность которого

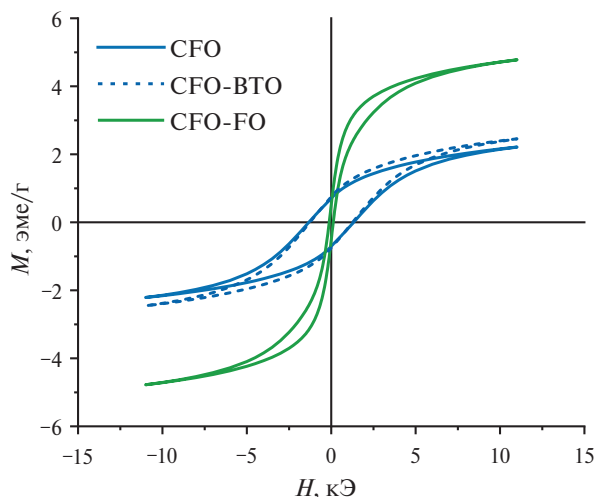


Рис. 1. Полевая зависимость намагниченности, измеренная при комнатной температуре, композитов на основе PVDF с наночастицами CFO (синий цвет, сплошная линия), CFO-ВТО (синий цвет, пунктирная линия) и CFO-FO (зеленый цвет).

го увеличивается в диапазоне $H_R = 0-1.1$] Тл с каждым шагом измерения; (3) снятие поля.

Распределение полей переключения (SFD — switching field distribution) — первая производная зависимостей $M_{DCD}(H_R)$ — представлено на графиках на рис. 2 для всех исследуемых композитов. Для нанокompозитов с частицами CFO зависимость SFD имеет максимум в поле 2.2 кЭ, а для нанокompозитов со смесью частиц CFO-FO максимум SFD, соответствующий полю переключения намагниченности наночастиц кобальтового феррита, смещается в область более низких полей и находится в поле 2.0 кЭ. Такой эффект может быть вызван межчастичным дипольным взаимодействием магнитомягких и магнитотвердых частиц. При этом, на SFD-распределении наблюдается резкое возрастание восприимчивости при приближении к нулевому полю, что может быть вызвано подмагничивающим воздействием магнитомягкой фазы оксида железа, которое не изменяет остаточную намагниченность в следствии суперпарамагнитных релаксаций и, соответственно, не вносит изменения на SFD-распределение. В малых полях суперпарамагнитные наночастицы оксида железа намагничиваются и, создавая дополнительное поле, вызывают переключение намагниченности некоторых наночастиц кобальтового феррита. Добавление диамагнитных микрочастиц ВТО не оказывает существенного влияния на распределение полей переключения по сравнению с образцом композита, содержащего только частицы CFO (рис. 2б).

Анализ типа взаимодействия наночастиц может быть также проведен по графику Келли: $\delta m(H) = M_{DCD} - (1 - 2 \cdot M_{IRM})$, где $\delta m(H)$ — параметр, отвечающий за интегральные магнитные характеристики системы, включая данные

о межчастичных взаимодействиях. В соответствии с моделью Стонера—Вольфарта, смещение δm -зависимостей в область отрицательных значений свидетельствует о преобладании диполь-дипольных межчастичных взаимодействий в каждой из рассматриваемых композитах, что согласуется с наблюдениями, сделанными ранее. На рис. 2г видно, что добавление суперпарамагнитных наночастиц FO в композит с кобальтовым ферритом CFO приводит к увеличению значения δm по модулю в области локального минимума (область, которая соответствует перемагничиванию наночастиц CFO) примерно в два раза. При добавлении диамагнитных микрочастиц ВТО происходит увеличение значения величины δm по модулю в области локального минимума, что может указывать на усиление магнитных взаимодействий между частицами CFO в композите. Однако изменение модуля δm чувствительно не только к межчастичным взаимодействиям, но и к конфигурации агломератов частиц, влияние которой не может быть учтено корректно при проведении анализа в рамках данной работы. Протокол анализа графика Келли отличается быстрой скоростью измерения и построения, легкостью интерпретации данных для простых систем наночастиц, однако, для рассматриваемой многофазной системы он оказался неприменим из-за невозможности разрешить вклады в общую энергию системы от различных факторов.

Для более подробного исследования магнитных взаимодействий был использован метод FORC-анализа (FORC: First Order Reversal Curve — обратная кривая первого рода), основанный на исследовании большого числа частных кривых намагничивания (FORC-кривых) образцов. Сравнивая ход частных кривых намагничивания между собой, можно судить о типе взаимодействия; по SFD- и FORC-диаграммам проводится качественное и количественное исследование взаимодействий магнитных фаз в системе. Протокол проведения измерений FORC-кривых: (1) образец намагничивается путем приложения магнитного поля насыщения; (2) внешнее магнитное поле уменьшается до значения H_R (return field — поле возвращения); (3) измеряется полевая зависимость величины магнитного момента образца при увеличении внешнего магнитного поля, H_A (applied field), до насыщения. Полученная полевая зависимость магнитного момента образца от поля возвращения (H_R) до поля насыщения называется FORC — кривая. Для проведения корректного анализа процессов взаимодействия в магнитных системах необходимо измерить как минимум сто FORC-кривых. Далее, для проведения FORC-анализа, необходимо провести математическую обработку полученных данных. Для этого сначала строится набор SFD-кривых

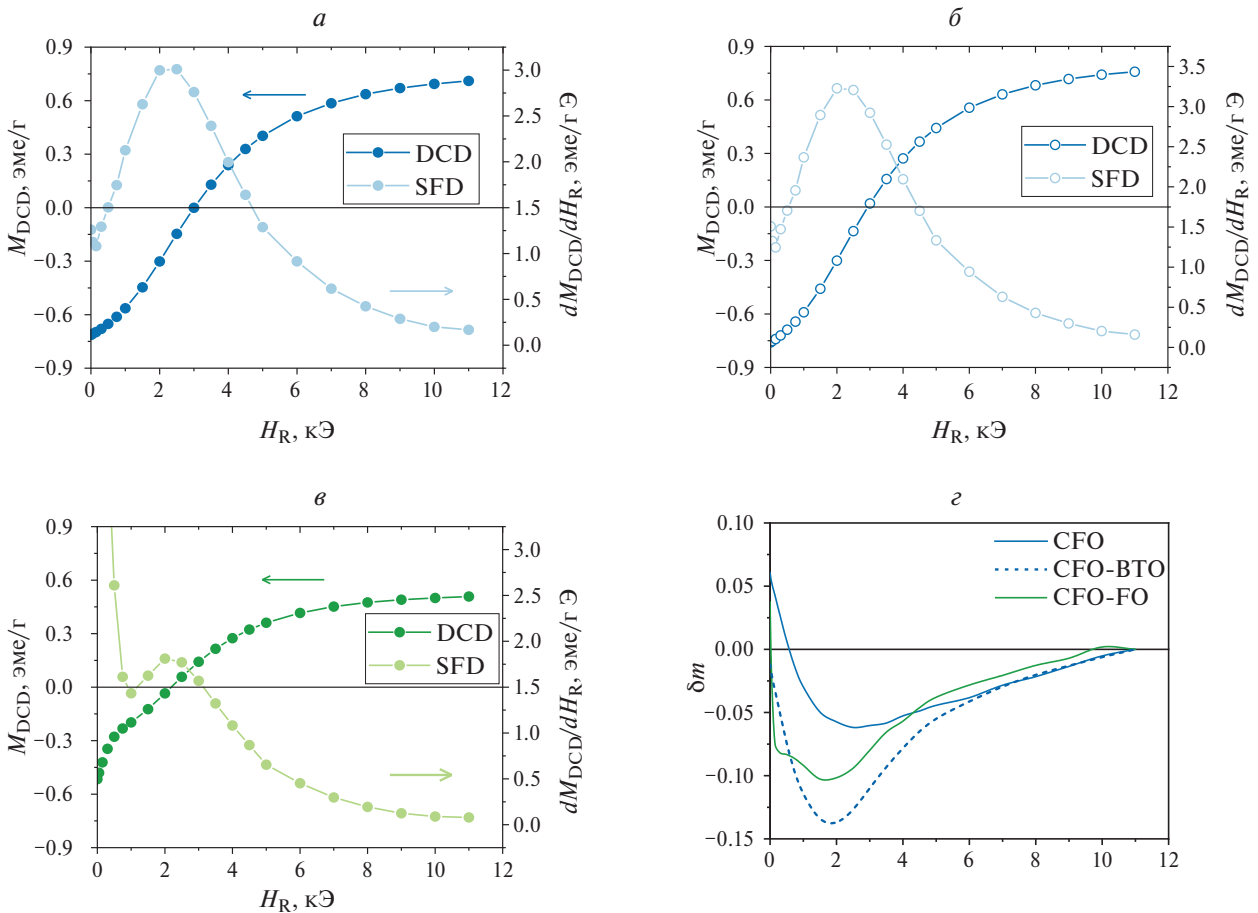


Рис. 2. Полевая зависимость остаточной намагниченности M_{DCD} и распределение полей переключения (SFD) нанокompозитов с наполнителями из частиц CFO (а), CFO-BTO (б), CFO-FO (в). Полевая зависимость интенсивности взаимодействия частиц (δm) для всех образцов (г).

(SFD – распределение полей переключений) для всех измеренных FORC-кривых на одном графике (SFD-график). SFD-кривая – это первая производная по полю, определяющаяся как

$$SFD = \left(\frac{\partial m}{\partial H_A} \right)_{H_r}. \quad (1)$$

С увеличением величины возвращающего поля на графике может появиться смещение SFD-кривых относительно SFD-кривой, полученной в полях насыщения (то есть относительно начальной кривой, для измерения которой прикладываемое возвращающее поле равно по модулю и противоположно по направлению полю насыщения). По его величине и направлению проводится анализ изменения полей переключения для каждой магнитной фазы в системе. Оценка магнитных взаимодействий фаз системы проводится по FORC-диаграмме, которая строится по FORC-распределению:

$$\rho = -\frac{1}{2} \left(\frac{\partial^2 M}{\partial H_A \partial H_R} \right). \quad (2)$$

H_c и H_u , – ключевые параметры для анализа магнитных взаимодействий многофазных си-

стем – поле коэрцитивности и поле взаимодействия магнитных фаз, определяются следующим образом:

$$H_c = \frac{H_A - H_R}{2}; \quad H_u = \frac{H_A + H_R}{2}. \quad (3)$$

H_c и H_u – диагональные оси на FORC-диаграмме. Диапазон величин полей взаимодействий в композите (ΔH_u) определяется по FORC-диаграмме как ширина пика функции распределения $\rho(H_A, H_R)$ вдоль оси взаимодействий, H_u (рис. 3а).

На рис. 3а представлены полученные FORC-кривые, SFD-график и FORC-диаграмма для композита, содержащего только магнитные наночастицы CFO. Отчетливо прослеживается наличие двух магнитных фаз как на SFD-графике (два пика), так и на FORC-диаграмме (области 1 и 2 на рис. 3а). Их возникновение в композите с магнитотвердыми частицами связано с агрегированием частиц и их распределением в матрице: область 2 на рис. 3а характеризует магнитную фазу, связанную с взаимодействием частиц внутри агломератов, а область 1 на рис. 3а характеризует магнитную фазу, связанную с взаимодействием между агломератами [18]. Для композита с

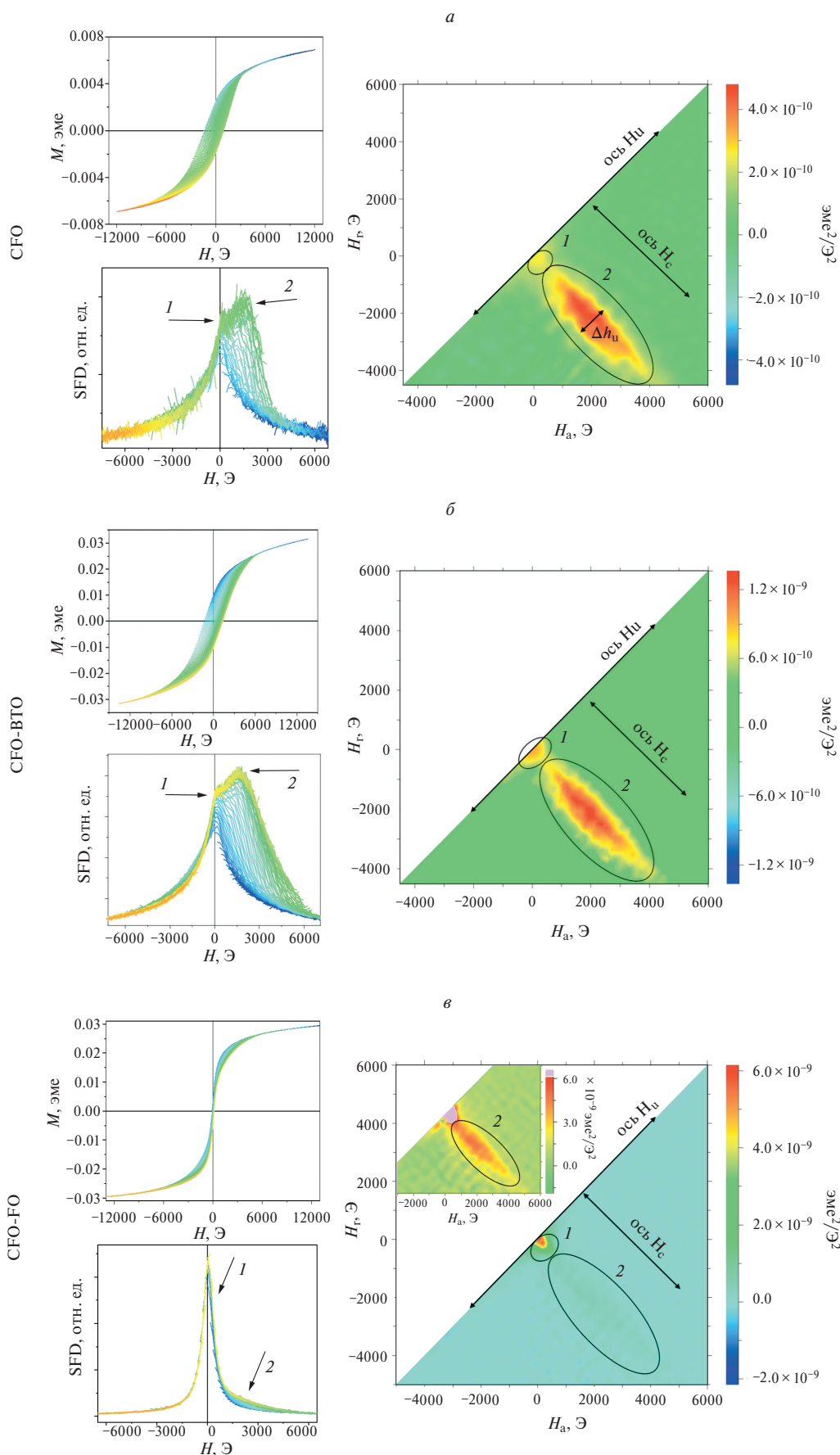


Рис. 3. FORC-кривые и SFD-график (слева); FORC-диаграммы (справа) для композитов с частицами CFO (а), CFO-BTO (б), CFO-FO (в). На вставке FORC-диаграммы для композита CFO-FO показана увеличенная область 2 с усиленным цветовым контрастом для лучшей визуализации отклика магнитотвердой фазы.

частицами CFO на SFD-графиках первый пик (область 1) выделяется достаточно слабо относительно второго пика, а на FORC-распределении область 1 имеет менее интенсивную яркость, чем область 2. Это свидетельствует о слабом диполь-дипольном взаимодействии между агломератами в полимере, что может быть связано с большим расстоянием между ними. При этом, взаимодействие частиц внутри агломератов (область 2 на рис. 3а) характеризуется более широкой областью полей переключения (удлинение вдоль оси H_c на диаграмме), что свидетельствует о наличии сильного диполь-дипольного взаимодействия внутри агрегатов, согласно работе [19]. Величины полей взаимодействия магнитотвердых частиц CFO в композите определяются по диаграмме как ширина области 2 вдоль оси взаимодействий, $\Delta H_u \approx 1300$ Э. На рис. 3б представлены данные анализа композита с дополнительным наполнителем – сегнетоэлектрическими частицами ВТО. FORC-распределение для такого композита показывает, что добавление частиц ВТО в нанокompозиты не приводит к значительным изменениям их макроскопических магнитных свойств: на FORC-диаграмме также наблюдается две области, SFD-графики характеризуются двумя схожими с рис. 3а пиками. Величины полей взаимодействия магнитотвердых частиц CFO в присутствии ВТО увеличивается, $\Delta H_u \approx 1400$ Э. Для композитов, изготовленных на основе смеси магнитомягких и магнитотвердых наночастиц (рис. 3в) FORC-диаграмма имеет отличный от диаграмм на рис. 3а и 3б вид. Явно выражено наличие магнитомягкой фазы с максимумом перемагничивания в околонулевом внешнем магнитном поле (области 1 на SFD-графике и FORC-диаграмме). Усиление яркости околонулевого пика и его уширение как по оси взаимодействия, так и по оси коэрцитивности (рис. 3в относительно 3а и 3б), свидетельствуют о сильном диполь-дипольном взаимодействии магнитомягких частиц внутри кластеров. Кроме того, относительное усиление яркости области 1 по сравнению с областью 2 на FORC-диаграмме, а также заостренность пика 1 в около-нулевых полях на SFD-графике, свидетельствуют о том, что часть кластеров магнитотвердых частиц в присутствии кластеров магнитомягких частиц перемагничивается в меньших полях (заключенных в области 1): при перемагничивании частицы FO создают положительное поле подмагничивания для CFO-частиц [20]; оставшаяся часть магнитотвердой фазы перемагничивается в той же области полей, в которых происходило перемагничивание CFO наполнителя в композитах с CFO и смесью частиц CFO-ВТО (область 2). Величины полей взаимодействия магнитных частиц в магнитотвердой фазе увеличивается, $\Delta H_u \approx 1500$ Э (на вставке FORC-диаграммы на рис. 3в показана увеличенная область 2 с

усиленным цветовым контрастом для лучшей визуализации отклика магнитотвердой фазы).

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, нами изучены магнитные взаимодействия в композитах PVDF с различными наполнителями: магнитотвердые CoFe_2O_4 частицы; смесь магнитотвердых CoFe_2O_4 частиц и диамагнитных пьезоэлектрических частиц BaTiO_3 ; смесь магнитомягких $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ и магнитотвердых CoFe_2O_4 частиц. По результатам исследования магнитных свойств с помощью IRM-DCD зависимостей и методом FORC-анализа, определено, что добавление смеси магнитомягких наночастиц в полимерный композит с частицами CoFe_2O_4 приводит к увеличению полей магнитных взаимодействий наночастиц магнитотвердой фазы с $\Delta H_u \approx 1300$ до ≈ 1500 Э. Установлено, что в каждом композите образуется две магнитные фазы, связанное с двумя типами взаимодействий – между магнитными наночастицами и между агломератами наночастиц.

Полученные результаты важны для понимания влияния свойств магнитного наполнителя и магнитных взаимодействий на функциональные свойства магнитоэлектрического композита, который находит свое применение в биомедицинских приложениях в качестве клеточного каркаса, способствующего ускоренному росту и изменению клеток.

Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (проект № 21-72-30032).

Авторы выражают благодарность Воронцову С.А. за изготовление композитов, исследуемых в данной работе.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Roseti L., Parisi V., Petretta M. et al. / Mater. Sci. Eng. C. 2017. V. 78. P. 1246.*
2. *Ye G., Bao F., Zhang X. et al. // Nanomedicine. 2020. V. 15. No. 20. P. 1995.*
3. *Kopyl S., Surmenev R., Surmeneva M. et al. // Mater. Today Bio. 2021. V. 12. Art. No. 100149.*
4. *Martins P., Lanceros-Méndez S. // Adv. Funct. Mater. 2013. V. 23. No. 27. P. 3371.*
5. *Амиров А.А., Каминский А.С., Архипова Е.А. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2023. Т. 87. № 6. С. 813; Amirov A.A., Kaminskiy A.S., Arkhipova E.A. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2023. V. 87. No. 6. P. 715.*
6. *Pereira L.N., Pastoril J.C.A., Dias J.S. et al. // Electron. 2024. V. 13. No. 12. P. 1.*
7. *Palneedi H., Annapureddy V., Priya S., Ryu S. // Actuators. 2016. V. 5. No. 1. P. 9.*
8. *Ortega N., Kumar A., Scott J.F., Katiyar R.S. // J. Phys. Cond. Matter. 2015. V. 27. No. 50. Art. No. 504002.*
9. *Martins P., Kolen'ko Yu.V., Rivas J., Lanceros-Mendez S. // ACS Appl. Mater. Interfaces. 2015. V. 7. No. 27. P. 15017.*
10. *Ferson N.D., Uhl A.M., Andrew J.S. // IEEE Trans. Ultrason. Ferroelectr. Freq. Control. 2021. V. 68. No. 2. P. 229.*

11. Lawes G., Srinivasan G. // J. Phys. D. Appl. Phys. 2011. V. 44. No. 24. Art. No. 243001.
12. Столбов О.В., Райхер Ю.Л. // Изв. РАН. Сер. физ. 2024. Т. 88. № 4. С. 677; Stolbov O.V., Raikher Y.L. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2024. V. 88. No. 4. P. 586.
13. Stolbov O.V., Raikher Y.L. // Nanomaterials. 2024. V. 14. No. 1. P. 1.
14. Зубарев А.Ю., Исакова Л.Ю. // Изв. РАН. Сер. физ. 2023. Т. 88. № 4. С. 653; Zubarev A.Y., Isakova L.Y. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2024. V. 88. No. 4. P. 563.
15. Russkikh G.S. // Procedia Eng. 2016. V. 152. P. 620.
16. Магомедов К.Э., Омелянчик А.С., Воронцов С.А. и др. // Изв. РАН. Сер. физ. 2023. Т. 87. № 6. С. 819; Magomedov K.E., Omelyanchik A.S., Vorontsov S.A. et al. // Bull. Russ. Acad. Sci. Phys. 2023. V. 87. No. 6. P. 720.
17. Antipova V., Omelyanchik A., Sobolev K. et al. // Polymer. 2024. V. 290. Art. No. 126567.
18. Omelyanchik A., Antipova V., Gritsenko C. et al. // Nanomaterials. 2021. V. 11. No. 5. P. 1.
19. Pike C.R., Roberts A.P., Verosub K.L. // J. Appl. Phys. 1999. V. 85. No. 9. P. 6660.
20. Vaganov M., Linke J., Odenbach S., Raikher Yu.L. // J. Magn. Magn. Mater. 2017. V. 431. P. 130.

Study of magnetic interactions in a composite with a mixture of γ -Fe₂O₃ and CoFe₂O₄ nanoparticles

V. G. Kolesnikova*, V. D. Salnikov, A. S. Omelyanchik, V. V. Rodionova

Immanuel Kant Baltic Federal University, Kaliningrad, 236041 Russia

**e-mail: VGKolesnikova1@kantiana.ru*

We studied magnetic interactions in promising biomedical composites based on a piezoactive PVDF matrix with a mixture of soft magnetic γ -Fe₂O₃ (FO) and hard magnetic CoFe₂O₄ (CFO) nanoparticles by conducting IRM-DCD and FORC analyses. It was determined that the addition of a mixture of soft and hard magnetic nanoparticles to the polymer base of the composite leads to an increase in the magnetic interaction fields ΔH_u from ≈ 1300 to ≈ 1500 Oe and to the formation of two main magnetic phases in the composite.

Keywords: magnetic interactions, magnetoelectric composites, FORC-analysis.