

Низкотемпературное поведение магнитоупругих характеристик ферробората празеодима

Г.А. Звягина¹, К.Р. Жеков¹, А.А. Звягин^{1,2}, И.В. Билыч¹,
Л.Н. Безматерных³, И.А. Гудим³

¹Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины
пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина
E-mail: zvyagina@ilt.kharkov.ua

²Institute for Solid State Physics, Technical University Dresden, Dresden D-01069, Germany

³Институт физики им. Л.В. Киренского СО РАН, г. Красноярск, 660036, Россия

Статья поступила в редакцию 20 ноября 2009 г.

Проведены низкотемпературные исследования поведения упругих модулей и поглощения звука в монокристалле $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$. В температурном поведении скоростей и поглощения звука проявляется переход магнитной подсистемы в антиферромагнитно-упорядоченное состояние. Обнаружены особенности поведения упругих характеристик $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$ во внешнем магнитном поле. Построена феноменологическая теория, качественно описывающая наблюдаемые особенности. Высказано предположение о том, что в кристалле существует слабый магнитный момент.

Проведено низкотемпературні дослідження поведінки пружних модулів та поглинання звуку в монокристалі $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$. У температурній поведінці швидкостей та поглинання звуку виявляється перехід магнітної підсистеми в антиферомагнітно-впорядкований стан. Знайдено особливості поведінки пружних характеристик $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$ в зовнішньому магнітному полі. Побудовано феноменологічну теорію, що якісно описує особливості, які спостерігаються. Висловлено припущення про те, що в кристалі існує слабкий магнітний момент.

PACS: 72.55.+s Магнитоакустические эффекты;

74.25.Ld Механические и акустические свойства, упругость и ультразвуковое ослабление.

Ключевые слова: ферроборат, магнитоупругое взаимодействие, магнитные фазовые переходы.

Введение

Кристаллы семейства $\text{RFe}_3(\text{BO}_3)_4$ ($\text{R} = \text{Y}; \text{La-Nd}; \text{Sm-Er}$) в последнее время привлекают внимание исследователей благодаря своим чрезвычайно интересным оптическим, магнитным и магнитоэлектрическим свойствам, перспективным для создания новых многофункциональных материалов [1,2].

Специфика магнитных свойств редкоземельных ферроборатов обусловлена наличием в их составе двух типов магнитных ионов ($3d$ - и $4f$ -элементов) [3,4]. Она определяется, с одной стороны, особенностями поведения как магнитной подсистемы железа, так и электронной структуры редкоземельного иона, формируемой кристаллическим полем, а с другой — ($f-d$)-взаимодействием. Магнитные структуры, реализующиеся в кристаллах этой группы, весьма разнообразны: в зависимости от типа редкоземельного иона эти соединения

могут быть легкоосными (ферробораты Tb, Dy) или легкоплоскостными антиферромагнетиками (ферроборат Nd), либо спонтанным образом переходить от легкоосного к легкоплоскостному состоянию (ферроборат Gd).

Для некоторых ферроборатов ($\text{R} = \text{Gd}, \text{Nd}$) была установлена корреляция их магнитных свойств с упругими и электрическими свойствами [5,6], что позволило авторам упомянутых работ отнести эти соединения к классу мультиферроиков, т.е. материалов, где сосуществуют хотя бы два из трех параметров порядка: упругого, электрического или магнитного. Наиболее ярко мультиферроэлектрические эффекты проявляются при спонтанных и индуцированных магнитным полем фазовых переходах. Именно поэтому изучение упругих свойств этих соединений в окрестности как структурных, так и магнитных фазовых переходов представляет несомненный интерес.

Настоящая работа посвящена исследованию упругих свойств, а также магнитоупругих эффектов в ферроборате празеодима ($\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$).

Структура и магнитные свойства $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$

При комнатной температуре $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$, как и все редкоземельные ферробораты, имеет тригональную (ромбоэдрическую) симметрию кристаллической решетки (пространственная группа $R32 (D_3^7)$). Характерной особенностью структуры являются направленные вдоль тригональной оси c геликоидальные цепочки соединенных по ребру октаэдров FeO_6 , связанные с редкоземельными ионами Pr^{3+} и ионами бора [7].

Во всех соединениях этого семейства при достаточном низких температурах ($20 \text{ K} < T_N < 40 \text{ K}$) происходит антиферромагнитное упорядочение железной подсистемы. Исследования магнитной восприимчивости монокристалла $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$ показали, что в нем при температуре $T_N = 32 \text{ K}$ реализуется антиферромагнитная магнитная структура с анизотропией типа «легкая ось». Магнитные моменты ионов Fe^{3+} ориентируются вдоль тригональной оси c кристалла [8]. Такие же выводы были сделаны авторами [9], которые провели спектроскопическое исследование данного соединения методом редкоземельного эрбиевого зонда. При этом редкоземельная подсистема ионов Pr^{3+} , оставаясь в парамагнитном состоянии, оказывается подмагниченной магнитным полем упорядоченной железной подсистемы.

В достаточно сильном внешнем магнитном поле \mathbf{H} , направленном вдоль тригональной оси c ($H_{\text{cr}} = 4,3 \text{ Тл}$ при $T = 4,2 \text{ K}$, $H_{\text{cr}} = 6,5 \text{ Тл}$ при $T = 31 \text{ K}$), в магнитной подсистеме железа наблюдается спин-переориентационный переход типа спин-флоп, в результате которого спины ионов Fe^{3+} опрокидываются в базисную плоскость [8].

Результаты эксперимента

Изометричные монокристаллы $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$ выращивались из раствора–расплава на основе тримоллибдата висмута по методике, описанной в [10], и достигали размеров до 10–12 мм. Мы работали с кристаллом, представляющим собой прозрачную гексагональную хорошо ограниченную призму зеленого цвета высотой порядка 4 мм в направлении, близком к оси симметрии третьего порядка. Из него были приготовлены экспериментальные образцы с характерными размерами $\sim 1,5 \times 1 \times 1 \text{ мм}$.

Ориентирование образцов осуществлялось рентгеновским методом обратной съемки (метод Лауэ).

Для получения достаточно точных значений абсолютных скоростей звука (точность $\sim 1\%$) были проведены измерения с использованием «нониусной» методики [11].

Абсолютные значения скоростей продольных и поперечных звуковых волн, распространяющихся вдоль осей x, y, z стандартной для тригонального кристалла декартовой системе координат ($y \parallel C_2$ и $z \parallel C_3$), измеренные при температуре жидкого азота, приведены в табл. 1. Здесь и далее в целях упрощения введены следующие обозначения: $S(m, n)$ — скорость звуковой волны, в которой волновой вектор \mathbf{q} параллелен направлению \mathbf{m} , а вектор смещения частиц в звуковой волне \mathbf{u} совпадает с направлением \mathbf{n} ($\mathbf{m}, \mathbf{n} = x, y, z$).

Таблица 1. Абсолютные значения скоростей звука, измеренные при $T \approx 77 \text{ K}$ в монокристалле $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$

Волновой вектор \mathbf{q}	$S(m, n)$	$S \cdot 10^5, \text{ см/с}$
[100]	$S(x, x)$	8,7
	$S(x, y)$	4,16
	$S(x, z)$	3,17
[010]	$S(y, y)$	9,26
	$S(y, x)$	3,32
	$S(y, z)$	4,26
[001]	$S(z, z)$	7,8
	$S(z, x)$	3,5
	$S(z, y)$	3,5

Измерения относительных изменений скорости и затухания звука также были проведены на автоматизированной аппаратуре, описанной в [11]. Точность относительных измерений при толщине образцов $\sim 0,5 \text{ мм}$ составляла величину $\sim 10^{-4}$ по скорости и $\sim 0,05 \text{ дБ}$ по затуханию. Диапазон изменения температуры: 1,7–300 К, магнитного поля — до 55 кЭ.

Температурные зависимости скорости и поглощения звука

В то время как в большинстве кристаллов семейства $\text{RFe}_3(\text{BO}_3)_4$ (в основном в соединениях с тяжелыми редкими землями) реализуется структурный фазовый переход к пространственной группе $P3_121 (D_3^4)$, соединение $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$, как известно, сохраняет симметрию $R32$, по крайней мере, до 2 К [7]. Наши эксперименты показали, что в температурном диапазоне от 300 К до 32 К все продольные и поперечные звуковые моды демонстрируют монотонное поведение без каких-либо аномалий.

При $T_N = 32 \text{ K}$ для некоторых мод мы зарегистрировали особенности, которые можно интерпретировать как изломы (либо слабые скачки, наложенные на температурный ход), см., например, рис. 1, 2, где представлено температурное поведение скорости и затухания продольной и поперечной акустических мод ($\mathbf{q} \parallel \mathbf{x}$, $\mathbf{u} \parallel \mathbf{x}$ и $\mathbf{q} \parallel \mathbf{y}$, $\mathbf{u} \parallel \mathbf{x}$), где $\mathbf{x}, \mathbf{y}, \mathbf{z}$ — орты в направлении соответствующих осей. Особенности в скоростях при T_N чаще всего сопровождаются слабыми аномалиями в поглощении звука. Информация о том, что при этой температуре в соединении $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$ (согласно дан-

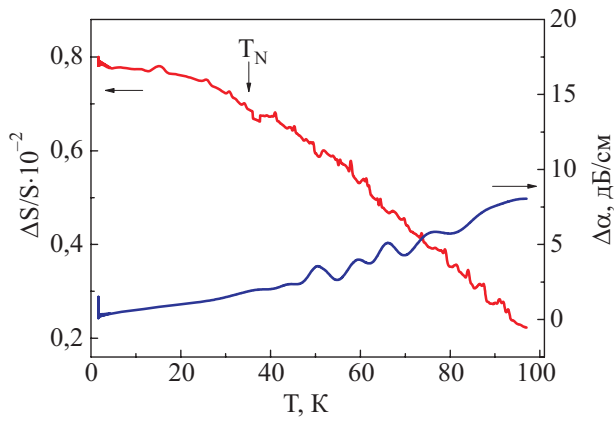


Рис. 1. Температурная зависимость поведения скорости и поглощения продольной акустической моды C_{11} , $\mathbf{q} \parallel \mathbf{x}$, $\mathbf{u} \parallel \mathbf{x}$.

ным магнитных и оптических измерений [8,9]) происходит переход в антиферромагнитное упорядоченное состояние, позволяет соотнести наблюдаемые аномалии именно с точкой Нееля. Отметим, что в случае тербиевого ферробората переход в магнитоупорядоченное состояние проявлялся менее выразительно: особенности в температурной зависимости упругих характеристик в T_N наблюдались только для одной поперечной моды ($\mathbf{q} \parallel \mathbf{x}$, $\mathbf{u} \parallel \mathbf{z}$) [12].

Магнитополевые зависимости скорости и поглощения звука

Магнитополевые зависимости скорости и поглощения звука при фиксированных значениях температуры измерены в диапазоне от 0 до 55 кЭ для двух взаимно перпендикулярных направлений внешнего магнитного поля, совпадающего с направлением оси симметрии третьего порядка C_3 (z) и лежащего в базисной плоскости xy . В случае $\mathbf{H} \parallel \mathbf{z}$ все исследуемые поперечные скорости при определенном значении магнитного поля H_{SF} испытывают скачкообразное изменение. Масштаб

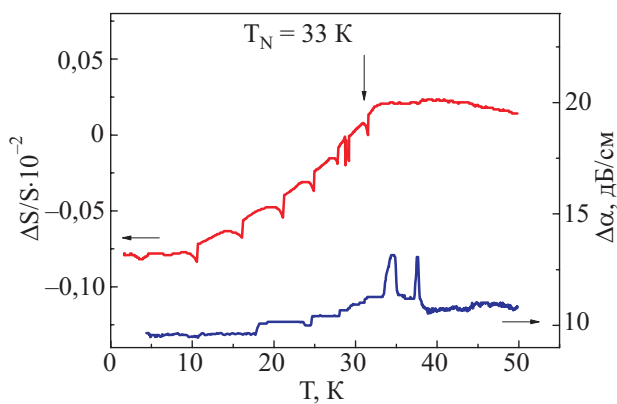


Рис. 2. Температурная зависимость поведения скорости и поглощения поперечной акустической моды C_{66} , когда $\mathbf{q} \parallel \mathbf{y}$, $\mathbf{u} \parallel \mathbf{x}$.

аномалий для разных мод: 1–3%. «Скачок» в скорости звука сопровождается аномалией в поглощении. Положение аномалий в скорости и поглощении практически не изменяется при увеличении и уменьшении величины магнитного поля. Примеры магнитополевых зависимостей поперечных скоростей и поглощения звука представлены на рис. 3 и 4. Увеличение температуры до 15 К, почти не изменяя величины «скачка» в скорости, приводит к смещению особенности в сторону больших полей (рис. 3).

Продольные моды также демонстрируют особенности в магнитополевых зависимостях при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{z}$ в поле H_{SF} и соответствующих температурах (рис. 5). Эти аномалии гораздо слабее, чем для поперечных мод (скачки менее 0,5%).

Критические поля наблюдаемых нами особенностей в поведении звуковых мод и соответствующие им температуры хорошо коррелируют со значениями полей и температур, в которых, согласно данным магнитных измерений [8], в соединении $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$ реализуется спин-переориентационный фазовый переход типа спин-флоп.

Недавнее исследование магнитоупругих эффектов в изоструктурном монокристалле ферробората тербия,

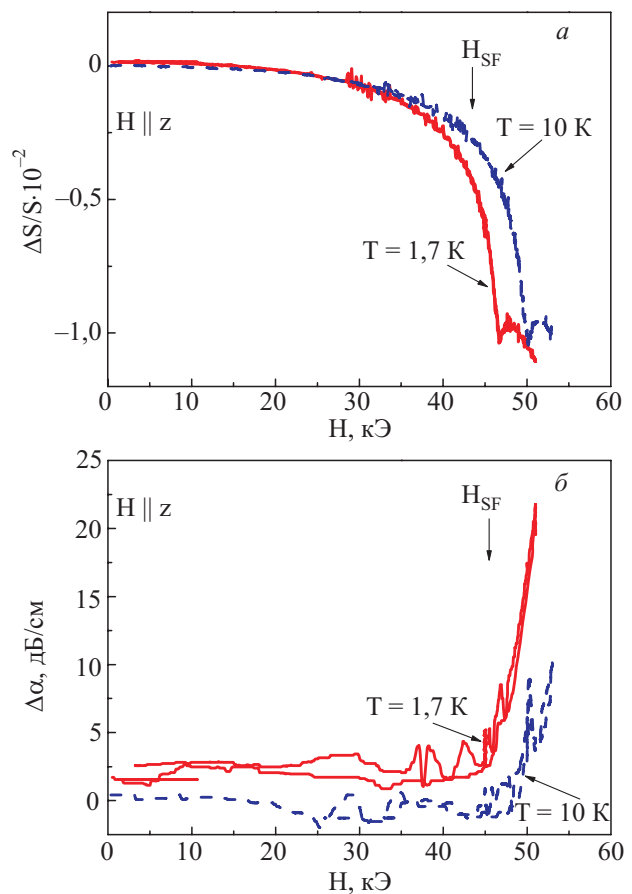


Рис. 3. Магнитополевая зависимость поведения скорости (а) и поглощения (б) акустической волны ($\mathbf{q} \parallel \mathbf{y}$, $\mathbf{u} \parallel \mathbf{z}$) при T , К: 1,7 (—) и 10 (----).

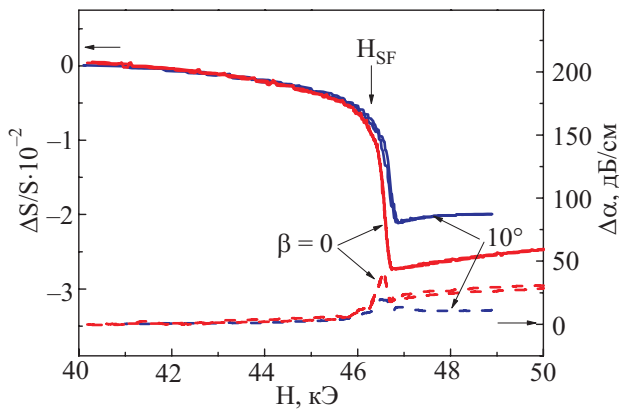


Рис. 4. Магнитополевая зависимость скорости (—) и поглощения (---) акустической C_{66} -моды, когда $\mathbf{q} \parallel \mathbf{y}$, $\mathbf{u} \parallel \mathbf{x}$ при углах отклонения вектора \mathbf{H} от оси z ($\beta = 0^\circ$; 10°), и температуре 1,7 К.

имеющего сходную магнитную структуру, показало, что поведение некоторых поперечных звуковых мод в окрестности спин-флоп перехода весьма чувствительно к направлению внешнего магнитного поля [12]. Поэтому мы провели аналогичные измерения и для $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$.

Оказалось, что отклонение вектора \mathbf{H} от оси z в плоскостях xz и yz на угол β более 3 градусов при фиксированном значении температуры смещает особенность в сторону больших полей. Величина «скачка» уменьшается с ростом величины угла, рис. 4–7. Когда вектор \mathbf{H} лежит в базисной плоскости, скорость и поглощение звука не испытывают никаких аномалий вплоть до максимального в нашем эксперименте значения поля 55 кЭ.

Наиболее интересный результат мы обнаружили при исследовании магнитополевых зависимостей поведения C_{44} -моды в полях выше поля H_{SF} . Напомним, что в кри-

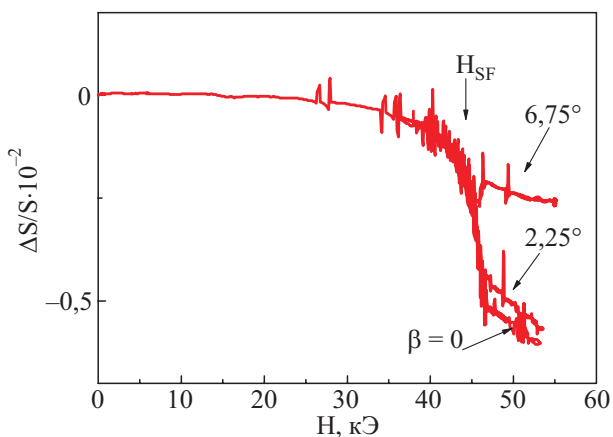


Рис. 5. Магнитополевая зависимость скорости акустической C_{11} -моды ($\mathbf{q} \parallel \mathbf{x}$, $\mathbf{u} \parallel \mathbf{x}$) при углах отклонения вектора \mathbf{H} от оси z ($\beta = 0^\circ$; $2,25^\circ$; $6,75^\circ$) и температуре 1,7 К.

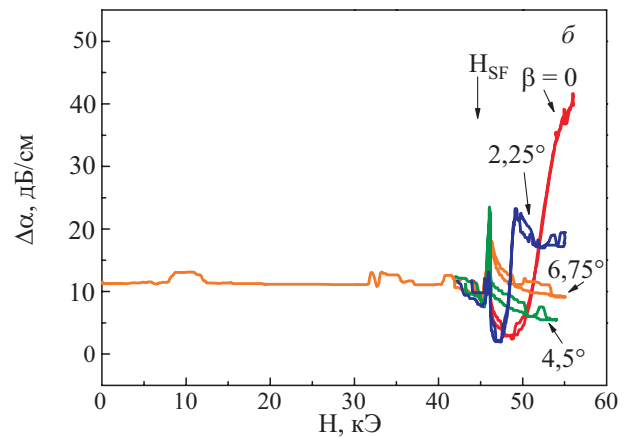
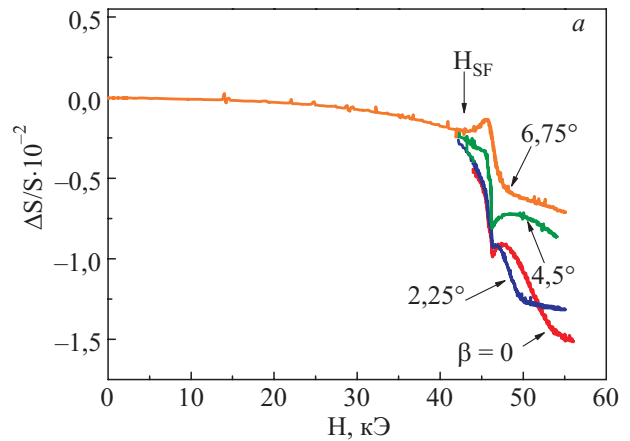


Рис. 6. Магнитополевая зависимость скорости (а) и поглощения (б) акустической волны ($\mathbf{q} \parallel \mathbf{x}$, $\mathbf{u} \parallel \mathbf{z}$) при различных углах отклонения вектора \mathbf{H} от оси z и температуре 1,7 К.

сталлах тригональной симметрии акустической C_{44} -моды отвечают звуковые волны, распространяющиеся вдоль оси симметрии третьего порядка (волновой вектор звука $\mathbf{q} \parallel \mathbf{z}$, вектор поляризации $\mathbf{u} \parallel \mathbf{y}$ или $\mathbf{u} \parallel \mathbf{x}$) [13]. Если внешнее магнитное поле направлено строго по оси z , поведение C_{44} -моды во всем исследуемом диапазоне полей практически не отличается от поведения других поперечных мод. Это — «скачок» в скорости, особенность в поглощении при $H = H_{SF}$, и отсутствие каких-либо аномалий в полях $H > H_{SF}$, рис. 8, 9 ($\beta = 0$).

Рассмотрим поведение C_{44} -моды при отклонении вектора \mathbf{H} от оси z .

Отклонение \mathbf{H} от оси z в плоскости xz . В магнитополевых зависимостях скорости C_{44} -моды после «скачка» в $H = H_{SF}$ в полях $H_{cr} > H_{SF}$, начиная уже с малых углов ($\sim 0,1^\circ$), появляются дополнительные особенности («скачки» $\sim 1\%$). Поглощение при этом также ведет себя аномальным образом. Особенности в скорости и поглощении сопровождаются гистерезисом по магнитному полю. Увеличение угла в диапазоне $0,1^\circ$ – 2° смещает дополнительные особенности в сторону больших полей, практически не меняя положения «скачка», соответствующего спин-флоп переходу, рис. 8,а. При дальнейшем увеличении угла до 15° мы смогли зарегистриро-

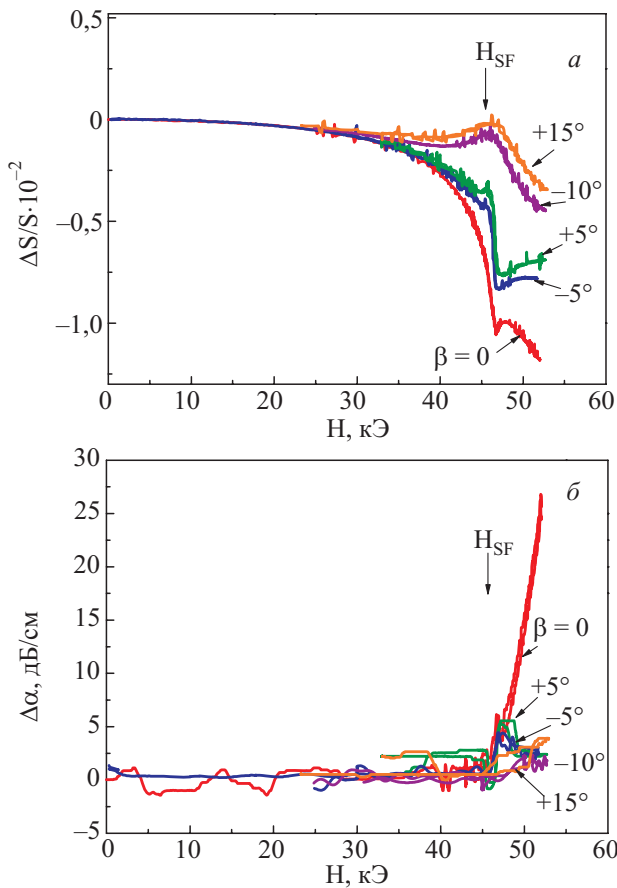


Рис. 7. Магнитополевая зависимость скорости (а) и поглощения (б) акустической волны ($\mathbf{q} \parallel \mathbf{y}$, $\mathbf{u} \parallel \mathbf{z}$) при различных углах отклонения \mathbf{H} от оси z и температуре 1,7 К.

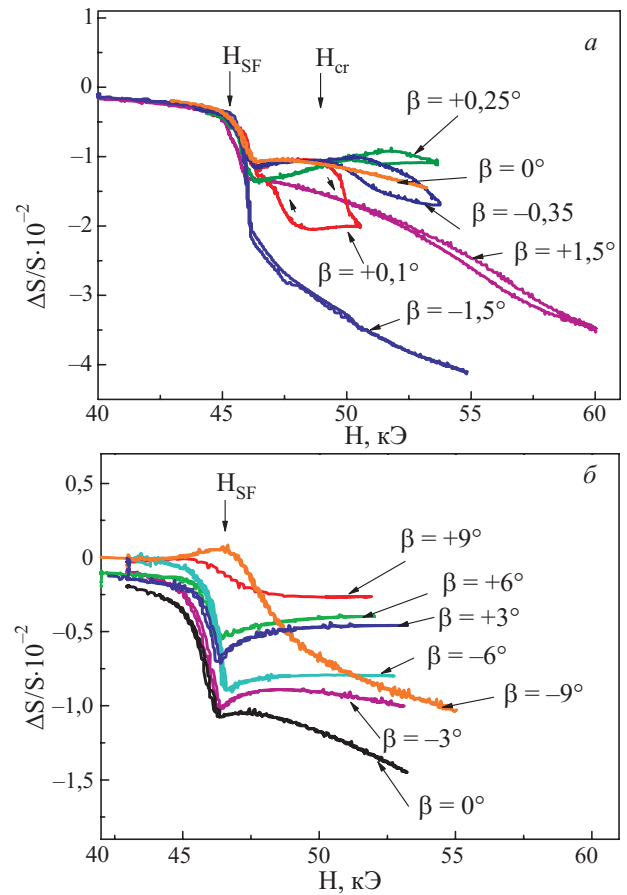


Рис. 8. Магнитополевая зависимость скорости акустической C_{44} -моды, когда $\mathbf{q} \parallel \mathbf{z}$, $\mathbf{u} \parallel \mathbf{x}$ при температуре 1,7 К: при малых углах отклонения \mathbf{H} от оси z , положение H_{cr} указано для $\beta = +0,1^\circ$, (а); при больших углах отклонения \mathbf{H} от оси z (б).

вать только аномалии, отвечающие спин-флоп переходу, рис. 8,б.

Следует отметить, что поведение C_{44} -моды при отклонении \mathbf{H} от оси z , как в положительном, так и в отрицательном направлении оси x , качественно совпадает (вид особенностей и их положение).

Отклонение вектора \mathbf{H} от оси z в плоскости yz . Магнитополевое поведение скорости и поглощения C_{44} -моды при отклонении \mathbf{H} в положительном и в отрицательном направлении оси y существенно различается. При отклонении \mathbf{H} в положительном направлении оси y C_{44} -мода качественно ведет себя так же, как при отклонении \mathbf{H} в плоскости xz . После «скачка» в $H = H_{SF}$ в полях $H_{cr} > H_{SF}$, начиная уже с малых углов ($\sim 0,1^\circ$), появляются дополнительные аномалии, имеющие гистерезисный характер. Однако в этом случае «скачки» в скорости при H_{cr} достигают величины $\sim 3,5\%$, а диапазон углов, в которых они наблюдаются, гораздо уже — $0,1^\circ - 1^\circ$. Если же отклонять вектор \mathbf{H} в отрицательном направлении оси y , то во всем исследуемом диапазоне углов ($0,1^\circ - 15^\circ$), кроме аномалий в $H = H_{SF}$, в полях $H_{cr} > H_{SF}$ мы не обнаружили никаких дополнительных особенностей, имеющих гистерезисный характер, рис. 9.

Обсуждение результатов

В предыдущей работе [12] мы показали, что в редкоземельных ферроборатах магнитная подсистема взаимодействует с упругой прежде всего вследствие изменения перекрытия волновых функций, а следовательно, и обменных интегралов между ионами железа под воздействием упругой деформации. Обменное же взаимодействие между редкоземельными ионами, как и взаимодействие между ионами железа и редкоземельными ионами, скорее всего, вносит меньший вклад в исследуемые магнитоупругие характеристики. Аналогично [12], мы полагаем, что в ферроборате празеодима перенормировка упругих констант кристалла вследствие относительно слабой магнитной анизотропии не так ярко выражена. Магнитная анизотропия здесь, естественно, релятивистского происхождения, вызвана магнитодипольным взаимодействием и (или) взаимодействием редкоземельных ионов с электрическим кристаллическим полем, поскольку ион железа находится в S -состоянии. Заметим, однако, что эта магнитная анизотропия, несмотря на ее малость, опре-

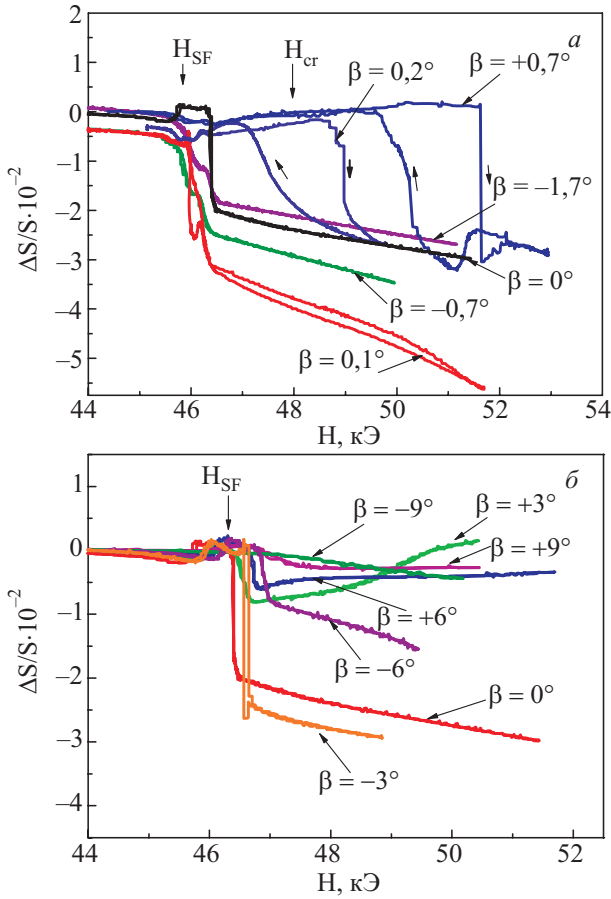


Рис. 9. Магнитополевая зависимость скорости акустической C_{44} -моды ($\mathbf{q} \parallel \mathbf{z}$, $\mathbf{u} \parallel \mathbf{y}$) при температуре 1,7 К: при малых углах отклонения вектора \mathbf{H} от оси z , положение H_{cr} указано для $\beta = +0,2^\circ$, (а); при больших углах отклонения \mathbf{H} от оси z (б).

деляет анизотропию магнитоупругого отклика системы, т.е. зависимость его упругих характеристик от взаимного расположения вектора внешнего магнитного поля, волнового вектора и вектора поляризации звуковой волны.

Рассмотрим простую феноменологическую модель двухподрешеточного легкоосного антиферромагнетика, взаимодействующего с упругой подсистемой.

Выражение для энергии системы имеет вид

$F = F_M + F_{ME} + F_E$, где F_M , F_{ME} , F_E — магнитная, магнитоупругая и упругая энергии соответственно.

$$F = A(\mathbf{M}_1 \mathbf{M}_2) - \frac{K}{2M_0^2} ((M_1^z)^2 + (M_2^z)^2) - \mathbf{H}(\mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2) + u_{yz} [B_1(M_1^y M_2^z - M_1^z M_2^y) + B_2(M_1^x M_1^z - M_2^z M_2^x)] + 2C_{44}u_{yz}^2.$$

Здесь A — обменная константа антиферромагнитного междошрешеточного взаимодействия, K — константа легкоосной магнитной анизотропии ($K, A > 0$), B_1 и B_2 — константы магнитоупругого взаимодействия, u_{yz} —

деформация в плоскости yz . Пусть магнитное поле \mathbf{H} направлено под углом β к оси z , а намагниченности подрешеток $\mathbf{M}_1, \mathbf{M}_2$ составляют с этой осью углы θ_1 и θ_2 соответственно, см. рис. 10.

Обозначим $AM_0 = H_E$, $K = M_0 H_A$, $B_{1,2} = M_0 H_{B1,2}$, где M_0 — величина магнитного момента подрешетки. Тогда выражение для энергии можно записать в виде

$$F = M_0 [H_E \cos(\theta_1 - \theta_2) - \frac{H_A}{2} (\sin^2 \theta_1 + \sin^2 \theta_2) - H (\cos(\theta_1 - \beta) + \cos(\theta_2 - \beta)) + u_{yz} \times [H_{B1} \sin(\theta_1 - \theta_2) + \frac{H_{B2}}{2} (\sin 2\theta_1 - \sin 2\theta_2)] + 2C_{44}u_{yz}^2.$$

Рассмотрим два предельных случая:

- магнитное поле \mathbf{H} направлено по оси z ($\beta = 0$);
- магнитное поле \mathbf{H} направлено перпендикулярно оси z ($\beta = \pi/2$).

Найдем минимум энергии F относительно θ_1, θ_2 и u_{yz} , считая при этом $B_1, B_2 \ll A, K, H$.

Основное состояние магнитной подсистемы для случая $\beta = 0$ реализуется в трех возможных конфигурациях:

- 1) парафаза, здесь $\theta_2 = \theta_1$; и $F_{ME} + F_E = 2C_{44}u_{yz}^2$;
- 2) антиферромагнитная фаза (АФ), здесь $\theta_2 = \pi - \theta_1$,

$$F_{ME} + F_E = 2C_{44}u_{yz}^2 + u_{yz}M_0 \sin(2\theta_1)(H_{B2} - H_{B1}),$$

$$\frac{\partial^2 F_{ME}}{\partial \theta_1 \partial u_{yz}} = 2M_0(H_{B2} - H_{B1}) \cos 2\theta_1;$$

- 3) спин-флор фаза (СФ), здесь $\theta_2 = -\theta_1$,

$$F_{ME} + F_E = 2C_{44}u_{yz}^2 + u_{yz}M_0 \sin(2\theta_1)(H_{B2} + H_{B1}),$$

$$\frac{\partial^2 F_{ME}}{\partial \theta_1 \partial u_{yz}} = 2M_0(H_{B2} + H_{B1}) \cos 2\theta_1.$$

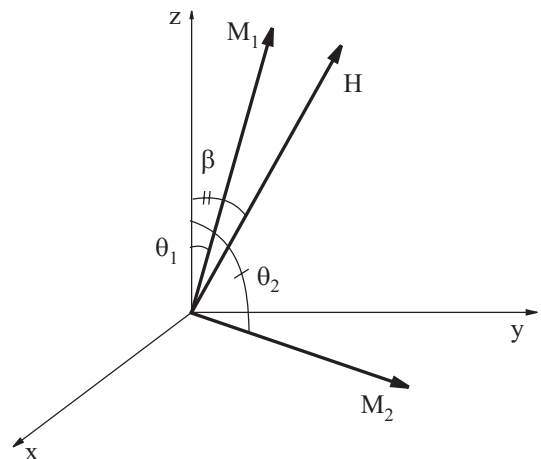


Рис. 10. Иллюстрация двухподрешеточной модели антиферромагнетика.

Найдем перенормировку упругого модуля C_{44} вследствие взаимодействия с магнитной подсистемой:

$$C_{44}^* = C_{44} - \frac{\left(\frac{\partial^2 F}{\partial \theta_1 \partial u_{yz}} \right)^2}{\frac{\partial^2 F}{\partial \theta_1^2}} \Bigg|_{\theta_1 = \theta_{1eq}},$$

где для θ_1 берется равновесное значение в соответствующей фазе:

В парафазе и в АФ фазе $-\theta_1 = 0$, а в СФ фазе

$$\cos \theta_1 = \frac{H}{2H_E - H_A}.$$

В парафазе имеем $C_{44}^* = C_{44}$, т.е. модуль C_{44} в этой фазе не меняется.

$$\text{В АФ фазе } C_{44}^* = C_{44} - \frac{2M_0(H_{B1} - H_{B2})^2}{(2H_E + H_A)}.$$

В СФ фазе получаем:

$$C_{44}^* = C_{44} - \frac{2M_0(H_{B1} + H_{B2})^2}{(2H_E - H_A)} \frac{\left[1 - 2 \frac{H^2}{(2H_E - H_A)^2} \right]^2}{1 - \frac{H^2}{(2H_E - H_A)^2}}.$$

Таким образом, в СФ фазе упругий модуль C_{44} меняется скачком в поле перехода из антиферромагнитной фазы в спин-флоп фазу. Заметим, что критическое поле, ниже которого устойчива АФ фаза, равно $H_2 = \sqrt{(2H_E + H_A)H_A}$, а поле, выше которого устойчива СФ фаза, равно $H_1 = \frac{(2H_E - H_A)\sqrt{H_A}}{\sqrt{(2H_E + H_A)}}$ (заметим,

что выражение для H_1 в работе [12] приведено с ошибкой), так что фазовый переход I рода имеет место при $H_{SF} = \sqrt{H_1 H_2} = \sqrt{H_A(2H_E - H_A)}$.

Из приведенной теории видно, что изменение упругого модуля C_{44} в антиферромагнитной фазе, по сравнению с парафазой, пропорционально квадрату разности эффективных магнитных полей $(H_{B1} - H_{B2})^2$, тогда как в спин-флоп фазе такое изменение значительно больше, так как пропорционально квадрату суммы таких полей.

Для $\beta = \pi/2$ основное состояние магнитной подсистемы реализуется в конфигурации $\theta_2 = \pi - \theta_1$ (антиферромагнитная фаза). При этом возможны два значения θ_1 :

$$\sin \theta_1 = \frac{H}{2H_E + H_A},$$

$$\cos \theta_1 = 0, \quad \theta_1 = \frac{\pi}{2}.$$

Перенормировка упругого модуля C_{44} для случая $\beta = \pi/2$ при соответствующих равновесных значениях θ_1 :

$$1) \cos \theta_1 = 0, \quad C_{44}^* = C_{44} - \frac{2M_0(H_{B1} - H_{B2})^2}{(H - 2H_E - H_A)};$$

$$2) \sin \theta_1 = \frac{H}{2H_E + H_A},$$

$$C_{44}^* = C_{44} - \frac{2M_0(H_{B1} - H_{B2})^2}{(2H_E + H_A)} \frac{\left[1 - 2 \frac{H^2}{(2H_E + H_A)^2} \right]^2}{1 - \frac{H^2}{(2H_E + H_A)^2}}.$$

В общем случае $\beta \neq 0, \pi/2$ поведение магнитоупругих, как и магнитных характеристик, существенно зависит от угла наклона вектора магнитного поля \mathbf{H} к оси z . Если угол β меньше критического значения β_c , определяемого из уравнения

$$\begin{aligned} (H^2 \sin 2\beta_c)^{2/3} + [2H_A H_E - H^2 \cos 2\beta_c (1 + [H_A/2H_E])]^{2/3} = \\ = H_A(2/H_E)^{1/3}, \end{aligned}$$

то поведение магнитных [14] и магнитоакустических характеристик будет аналогично случаю $\beta = 0$, а для углов $\beta > \beta_c$, как при $\beta = \pi/2$.

Как видно (рис. 8, 9), изменение модуля C_{44} качественно может быть описано в рамках предложенной простой феноменологической модели.

Тот факт, что в полевых зависимостях изменения скорости и поглощения акустической C_{44} -моды наблюдались два скачка (два фазовых перехода I рода) в полях $H_{cr} > H_{SF}$ (рис. 8,а и 9,а) можно объяснить, например, возникновением в кристалле промежуточного состояния. Известно [15], что появление промежуточного состояния вызвано тем, что намагниченность образца вблизи его поверхности стремится быть параллельной ей. Как следствие, образец разбивается на домены. В антиферромагнетике, естественно, ненулевая намагниченность появляется при $\beta = 0$ лишь в спин-флоп фазе, а для углов $\beta > \beta_c$ — при любом ненулевом поле. В работе [16] показано, что промежуточное состояние для антиферромагнитной пластины проявляется следующим образом: в полевой зависимости намагниченности, наряду со скачком в поле спин-флопа H_{SF} , появляется еще один скачок в критическом поле $H_{cr} > H_{SF}$, величина которого зависит от размагничивающего фактора пластины. Поэтому логично предположить, что наблюдаемые нами два скачка в магнито-полевых зависимостях скоростей некоторых поперечных мод в полях $H \geq H_{SF}$ связаны с реализацией в образце промежуточного состояния. А гистерезисные явления, сопровождающие аномалии в скорости и по-

глошении, можно объяснить наличием доменной структуры в промежуточном состоянии исследуемой антиферромагнитной системы [16].

Наконец, зависимость поведения S_{44} -моды при отклонении вектора \mathbf{H} в плоскости yz от того, в положительном или отрицательном направлении оси y отклонился вектор \mathbf{H} , может быть связана, например, с наличием слабого ферромагнитного момента, вызванного взаимодействием Дзялошинского–Мория. Для ромбоэдрической системы, к которой принадлежит исследуемый кристалл, симметричный анализ допускает существование вектора Дзялошинского, направленного вдоль оси z (C_3). При этом слабый ферромагнитный момент, вызванный взаимодействием Дзялошинского–Мория, должен лежать в базисной плоскости xz . Тогда различие в поведении S_{44} -моды при отклонении вектора \mathbf{H} в положительном или отрицательном направлении оси y может быть объяснено спонтанным нарушением симметрии, вызванным слабой спонтанной намагниченностью, обусловленной взаимодействием Дзялошинского–Мория. Альтернативным объяснением такого поведения S_{44} -моды может быть наличие слабой магнитной анизотропии в базисной плоскости.

Выводы

Таким образом, на основании исследования температурных и магнитолевых зависимостей поведения скорости и поглощения звуковых волн в ферроборате празеодима можно сделать следующие выводы.

Во-первых, магнитоупругая связь в этом веществе, как и в ферроборате тербия, проявляется сильнее всего не в результате влияния смещений немагнитных соседей (лигандов) редкоземельных ионов, а посредством перенормировки величин обменного взаимодействия между ионами железа, и этот обмен носит не прямой, а косвенный характер. Магнитолевое поведение акустических мод хорошо качественно описывается в рамках феноменологической модели двух подрешеток ионов железа, взаимодействующих с упругими колебаниями решетки.

Во-вторых, обнаруженные особенности магнитолевого поведения упругой S_{44} -моды могут быть следствием наличия в кристалле слабой спонтанной намагниченности, вызванной взаимодействием типа Дзялошинского–Мория.

В-третьих, наблюдаемые в магнитолевых зависимостях скорости поперечной S_{44} -моды особенности типа скачков, имеющих гистерезисный характер, по-видимому, связаны с возможной реализацией в кристалле в полях, больших поля спин–флоп перехода, промежуточного состояния, сопровождаемого образованием доменной структуры.

Естественно, исследование только магнитоупругих характеристик не позволяет сделать выбор в пользу того или иного из предложенных механизмов (магнитной анизотропии или взаимодействия Дзялошинского–Мория), следствием которых являются наблюдаемые нами особенности. Поэтому необходимы дальнейшие исследования низкотемпературных характеристик изучаемого ферробората, например, магнитолевого поведения намагниченности в базисной плоскости, и магнитооптические исследования, позволяющие ответить на вопрос о наличии в кристалле доменной структуры, характерной для промежуточного состояния.

Авторы благодарны академику Н.Ф. Харченко за обсуждение результатов работы.

1. D. Jaque, *J. Alloys Comp.* **323–324**, 204 (2001).
2. M. Huang, Y. Chen, and X. Chen, *Optics Commun.* **208**, 163 (2002).
3. J.A. Campa, C. Cascales, E. Gutierrez-Puebla, M.A. Monge, I. Rasines, and C. Ruiz-Valero, *Chem. Mater.* **9**, 237 (1997).
4. Y. Hinatsu, Y. Doi, K. Ito, M. Wakeshima, and A. Alemi, *J. Solid State Chem.* **172**, 438 (2003).
5. A.K. Zvezdin, S.S. Krotov, A.M. Kadomtseva, G.P. Vorob'ev, Yu.F. Popov, A.P. Pyatakov, L.N. Bezmaternykh, and E.A. Popova, *JETP Lett.* **81**, 272 (2005).
6. A.K. Zvezdin, G.P. Vorob'ev, A.M. Kadomtseva, Yu.F. Popov, A.P. Pyatakov, L.N. Bezmaternykh, A.V. Kuvardin, and E.A. Popova, *JETP Lett.* **83**, 509 (2006).
7. А.Н. Васильев, Е.А. Попова, *ФНТ* **32**, 968 (2006) [*Low Temp. Phys.* **32**, 735 (2006)].
8. А.М. Кадомцева, Ю.Ф. Попов, Г.П. Воробьев, А.А. Мухин, В.Ю. Иванов, А.М. Кузьменко, Л. Безматерных, *Письма в ЖЭТФ* **87**, 45 (2008).
9. Е.П. Чукалина, Т.Н. Станиславчук, Н.М. Попова, Л.Н. Безматерных, И.А. Гудим, *Известия РАН, сер. физ.* **71**, 1606 (2007).
10. L.N. Bezmaternykh, V.L. Temerov, I.A. Gudim, and N.A. Stolbovaya, *Crystallog. Rep.* **50**, 97 (2005).
11. Е.А. Масалитин, В.Д. Филь, К.Р. Жеков, А.Н. Жолобенко, Т.В. Игнатова, Sung-Ik Lee, *ФНТ* **29**, 93 (2003) [*Low Temp. Phys.* **29**, 72 (2003)].
12. Г.А. Звягина, К.Р. Жеков, Л.Н. Безматерных, И.А. Гудим, И.В. Билыч, А.А. Звягин, *ФНТ* **34**, 1142 (2008), [*Low Temp. Phys.* **34**, 901 (2008)].
13. Р. Труэлл, Ч. Эльбаум, Б. Чик, *Ультразвуковые методы в физике твердого тела*, Мир, Москва (1972).
14. М.И. Каганов, Г.К. Чепурных, *ФТТ* **11**, 911 (1969).
15. В.В. Еременко, В.А. Сиренко, *Магнитоупругие свойства антиферромагнетиков и сверхпроводников*, Наукова думка, Киев (2004).
16. В.Г. Барьяхтар, А.Е. Боровик, В.А. Попов, *ЖЭТФ* **62**, 2233 (1972).

The low-temperature behavior of magnetoelastic characteristics of praseodymium ferroborate

G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov, A.A. Zvyagin, I.V. Bilych, L.N. Bezmaternykh, and I.A. Gudim

The behavior of elastic moduluses and sound attenuation in the single crystal $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$ is studied at low temperatures. It is found that the transition of the magnetic subsystem to an antiferromagnetic ordered state manifests itself in the temperature behavior of sound velocity and absorption. Specific features of the

behavior of $\text{PrFe}_3(\text{BO}_3)_4$ elastic characteristics in external magnetic field are observed. A phenomenological theory is developed to describe qualitatively the observed features. It is assumed that there is a weak magnetic moment in the crystal.

PACS: **72.55.+s** Magnetoacoustic effects;
74.25.Ld Mechanical and acoustical properties, elasticity, and ultrasonic attenuation.

Keywords: ferroborate, magnetoelastic interaction, magnetic phase transitions.