

Магнитоупругие эффекты в ферроборате тербия

Г.А. Звягина¹, К.Р. Жеков¹, Л.Н. Безматерных², И.А. Гудим², И.В. Билыч¹,
А.А. Звягин¹

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

²Институт физики им. Л. В. Киренского СО РАН, г. Красноярск, 660036, Россия

Статья поступила в редакцию 20 июня 2008 г.

Проведены низкотемпературные исследования поведения упругих модулей и поглощения звука в монокристалле ферробората тербия. Определены компоненты тензора модулей упругости этой системы. В температурном поведении скоростей и поглощения звука проявляются структурный фазовый переход и переход магнитной подсистемы в антиферромагнитно упорядоченное состояние. Магнито-полевые зависимости скоростей поперечного звука демонстрируют особенности типа скачков при величине магнитного поля, равной полю спин-флоп перехода антиферромагнитной подсистемы. Проведенный теоретический анализ показал, что наблюдаемые особенности поведения акустических характеристик связаны не с редкоземельной подсистемой ферробората, а с перенормировкой за счет магнитоупругой связи обменного взаимодействия между ионами железа.

Проведено низкотемпературні дослідження поведінки пружних модулів і поглинання звуку в монокристалі ферробората тербію. Визначено компоненти тензора модулів пружності цієї системи. У температурній поведінці швидкостей і поглинання звуку проявляються структурний фазовий перехід і перехід магнітної підсистеми в антиферомагнітно впорядкований стан. Магнітопольові залежності швидкостей поперечного звуку демонструють особливості типу стрибків при величині магнітного поля, рівної полю спин-флоп переходу антиферомагнітної підсистеми. Проведений теоретичний аналіз показав, що особливості поведінки акустичних характеристик, які спостерігаються, пов'язані не з рідкісноземельною підсистемою ферроборату, а з перенормуванням за рахунок магнітопружного зв'язку обмінної взаємодії між іонами заліза.

PACS: 72.55.+s Магнитоакустические эффекты;
74.25.Ld Механические и акустические свойства, упругость и затухание ультразвука.

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

Введение

Семейство кристаллов $RM_3(BO_3)_4$, где $R = Y$ или редкоземельный ион, $M = Al, Ga, Sc, Cr, Fe$, в настоящее время привлекает внимание исследователей по ряду причин. Различные комбинации R и M приводят к широкому разнообразию физических свойств, которые в сочетании с термической и химической стабильностью делают эти кристаллы чрезвычайно интересными как для фундаментальной физики, так и для их практического применения. Так, например, благодаря своим специфическим оптическим свойствам кристаллы $Y(Gd)Al_3(BO_3)_4$, допированные Nd , применя-

ются в лазерной технике для генерации излучения на основной и удвоенной частоте [1,2].

Редкоземельные бораты, содержащие магнитный ион железа, демонстрируют интересные магнитные свойства из-за присутствия двух различных видов магнитных ионов ($3d$ - и $4f$ -элементов) [3,4]. Эти свойства обусловлены, во-первых, спецификой поведения магнитной подсистемы железа, во-вторых, характерными особенностями электронной структуры редкоземельного иона, которая формируется кристаллическим полем, и, конечно, f - d -взаимодействием. Конкуренция вкладов этих двух подсистем в формирование магнитной структуры предполагает существование фазовых

переходов, происходящих как при изменении температуры, так и в магнитном поле. Исследования магнитных структур в кристаллах этой группы обнаружили широкий диапазон возможных состояний: в зависимости от типа редкоземельного иона эти соединения могут быть легкоосными или легкоплоскостными антиферромагнетиками, спиральными магнетиками либо образуют угловые магнитные структуры.

Для некоторых ферроборатов ($R = \text{Gd}, \text{Nd}$) была установлена корреляция магнитоупругих и магнитоэлектрических свойств [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 тербия ($\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$).

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

При комнатной температуре $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$, как и все кристаллы этого семейства, имеет тригональную (ромбоэдрическую) симметрию кристаллической решетки (пространственная группа $R32 (D_3^7)$), структура минерала хантита $\text{CaMg}_3(\text{CO}_3)_4$ [7]. Элементарная ячейка содержит одну формульную единицу. Характерной особенностью структуры являются направленные вдоль тригональной оси c геликоидальные цепочки соединенных по ребру октаэдров FeO_6 . Три такие цепочки связаны между собой треугольными призмами TbO_6 , а равносторонние треугольники BO_3 объединяют цепочки железа в единую трехмерную структуру. Кроме того, призмы TbO_6 и два октаэдра FeO_6 , принадлежащих разным цепочкам, связаны равнобедренными треугольниками BO_3 . Октаэдры FeO_6 в плоскости ab находятся в вершинах равностороннего треугольника. При температуре $T_c = 192 \text{ K}$ [9] (по данным, приведенным в обзоре [8], 240 K и 196 K) в кристалле реализуется структурный фазовый переход первого рода, в результате которого одна из цепочек смещается вдоль оси c по отношению к двум другим цепочкам, что приводит к появлению двух неэквивалентных положений железа. Переход сопровождается понижением локальной симметрии редкоземельного иона от D_3 при $T > T_c$ до C_2 ($T < T_c$). Таким образом, в результате структурного перехода элементарная ячейка этого соединения остается тригональной: пространственная

группа симметрии $R32$ при $T > T_c$ и $P3_12_1$ при $T < T_c$ [9]. Элементарная ячейка низкотемпературной фазы содержит три формульные единицы.

Во всех соединениях этого семейства при низких температурах ($20 \text{ K} < T_N < 40 \text{ K}$) происходит антиферромагнитное упорядочение железной подсистемы. О том, что происходит с редкоземельной подсистемой, в литературе существуют две точки зрения. По данным работ, проанализированных в обзоре [8], редкоземельная подсистема, оставаясь парамагнитной вплоть до самых низких температур, подмагничивается магнитным полем упорядоченной железной подсистемы. Температура антиферромагнитного перехода $T_N = 20\text{--}40 \text{ K}$ слабо зависит от вида редкоземельного иона, но при этом ионы R^{3+} определяют ориентацию магнитных моментов ионов Fe^{3+} в упорядоченном состоянии. Так, в соединениях с $\text{Y}, \text{Nd}, \text{Er}$ и Tm магнитные моменты железа ориентированы в плоскости ab , а в соединениях с Tb и Dy они параллельны оси c . С другой стороны, авторы [10], проведя исследования магнитных свойств и эксперимент по дифракции нейтронов соединения с Tb , полагают, что антиферромагнитное упорядочение геликоидальных цепочек ионов железа возникает при 40 K , магнитное упорядочение ионов Tb возникает при той же температуре и приводит к антипараллельной ориентации магнитных моментов ионов Fe и Tb в плоскости ab при 2 K .

Результаты эксперимента

Изометричные монокристаллы $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$, выращенные из раствора–расплава на основе тримolibдата висмута по методике, описанной в [11], достигали размеров до $10\text{--}12 \text{ мм}$. Нами исследован кристалл, представляющий собой прозрачную пластинку зеленого цвета толщиной менее 1 мм в направлении, близком к оси симметрии третьего порядка. Из него были приготовлены образцы с характерными размерами $\sim 0,5 \times 1 \times 1 \text{ мм}$.

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

Для получения достаточно точных значений абсолютных скоростей звука ($\sim 1\%$) были проведены измерения с использованием «нониусной» методики [12], которая заключается в определении целого числа длин волн n , укладывающихся в образце, по наклону его фазо-частотной характеристики. Фазо-частотные характеристики измерялись в диапазоне $53\text{--}55 \text{ МГц}$. Полученное таким образом значение скорости звука затем уточнялось по реальному фазовому сдвигу $\Phi = 2\pi l + \delta\Phi$, вносимому образцом (здесь $\delta\Phi < 2\pi$ — фазовый сдвиг, регистрируемый фазометром).

Тензор модулей упругости тригональной группы содержит шесть независимых компонент: $C_{11}, C_{33}, C_{44}, C_{66}, C_{13}$ и C_{14} . Значения упругих констант $C = \rho s^2$, где $\rho = 4,71 \text{ г/см}^3$ — плотность вещества, s — абсолютные

значения скоростей продольных и поперечных звуковых волн, распространяющихся вдоль осей x, y, z стандартной для тригонального кристалла декартовой системе координат ($y||C_2$ и $z||C_3$), были вычислены по формулам, приведенным в таблице. Значение модуля C_{13} не вычислялось, поскольку оказалось невозможным провести измерения необходимых скоростей звука в имеющихся образцах.

Абсолютные значения скоростей звука, измеренные при температуре жидкого азота, а также вычисленные значения упругих констант приведены в таблице. Здесь и далее в целях упрощения введены следующие обозначения: $S(\mathbf{m}, \mathbf{n})$ — 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} ($\mathbf{m}, \mathbf{n} = x, y, z$).

Измерения относительных изменений скорости и затухания звука также были проведены на автоматизированной аппаратуре, описанной в [12]. Точность относительных измерений при толщине образцов $\sim 0,5$ мм составляла величину $\sim 10^{-4}$ по скорости и $\sim 0,05$ дБ по затуханию. Диапазон изменения температуры — 1,7–300 К, магнитного поля — до 50 кЭ, рабочая частота 54,3 МГц.

Температурные зависимости скорости и поглощения звука

При понижении температуры от 300 К в температурных зависимостях скоростей продольных и поперечных звуковых мод в окрестности 200 К наблюдаются особенности типа скачков, что свидетельствует о наличии в этом соединении структурной трансформации. Температуры наблюдения особенностей зависят от направления температурной развертки и отличаются примерно на 1 К. Значение критической

температуры $T_c = 201$ К нами определено как среднее значение между температурами наблюдения особенностей при нагреве и охлаждении. Примеры зависимостей для продольных скоростей, соответствующих звуковым модам C_{11} и C_{33} , представлены на рис. 1 и 2. Скачкообразное поведение продольных и поперечных звуковых мод в окрестности T_c , а также наличие температурного гистерезиса позволяют классифицировать эту трансформацию как структурный фазовый переход первого рода. Наш вывод хорошо согласуется с известными данными о том, что в этом соединении действительно реализуется подобный фазовый переход. Значение критической температуры перехода, полученное в нашем эксперименте, несколько отличается от литературных данных (192, 198 и 240 К [8,9]) и, по-видимому, связано с различием в способах выращивания монокристаллов.

При дальнейшем понижении температуры, вплоть до предельной температуры эксперимента 1,7 К, нами зарегистрировано температурное поведение продольных и поперечных звуковых мод, типичное для твердых тел без каких-либо аномалий. Исключение составляют температурные зависимости скоростей звуковых волн ($\mathbf{q}||x, \mathbf{u}||z$) и ($\mathbf{q}||y, \mathbf{u}||z$). Эти моды демонстрируют слабые особенности, которые можно интерпретировать как изломы (либо слабые скачки, наложенные на температурный ход) при температуре 40 К (см., например, рис. 3, где представлено температурное поведение скорости и затухания звуковой волны ($\mathbf{q}||x, \mathbf{u}||z$)). Информация о том, что при этой температуре в соединении $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$ (согласно данным магнитных измерений [10]) происходит переход в антиферромагнитное упорядоченное состояние позволяет соотнести наблюдаемые особенности именно с точкой Нееля.

Таблица. Абсолютные значения скоростей звука, измеренные при 77 К, и упругие модули $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$

Волновой вектор \mathbf{q}	ρS_2	$S(\mathbf{m}, \mathbf{n})$	$S \cdot 10^5 \text{ см} / \text{с}$	$C, 10^{11}, \text{дин} / \text{см}^2$
[100]	C_{11}	$S(x, x)$	7,6	27,2
	$0,5\{C_{44} + C_{66} + [(C_{66} - C_{44})^2 + 4C_{14}^2]^{1/2}\}$	$S(x, y)$	3,8	6,8
	$0,5\{C_{44} + C_{66} - [(C_{66} - C_{44})^2 + 4C_{14}^2]^{1/2}\}$	$S(x, z)$	3,16	4,7 $C_{14} = 4,76$
[010]	$0,5\{C_{11} + C_{44} + [(C_{11} - C_{44})^2 + 4C_{14}^2]^{1/2}\}$	$S(y, y)$	7,75	28,3
	$C_{66} = (C_{11} - C_{12})/2$	$S(y, x)$	3,99	7,5 $C_{12} = 12,2$
	$0,5\{C_{11} + C_{44} - [(C_{11} - C_{44})^2 + 4C_{14}^2]^{1/2}\}$	$S(y, z)$	3,7	6,45
[001]	C_{33}	$S(z, z)$	6,7	21,1
	C_{44}	$S(z, x)$	4,0	7,54
	C_{44}	$S(z, y)$	4,0	7,54

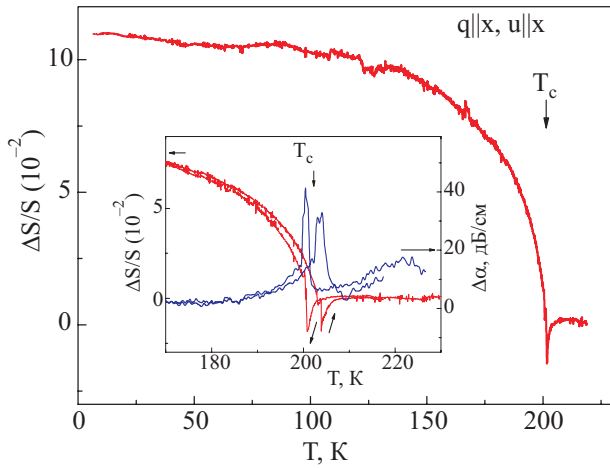


Рис. 1. Температурная зависимость поведения скорости и поглощения звуковой моды C_{11} .

Магнитополевые зависимости скорости и поглощения звука

Магнитополевые зависимости скорости и поглощения звука при фиксированных значениях температуры измерены в диапазоне до 50 кЭ для двух взаимно перпендикулярных направлений внешнего магнитного поля (совпадающего с направлением оси симметрии третьего порядка z и лежащего в базисной плоскости). При $\mathbf{H} \parallel z$ все исследуемые поперечные скорости звука при определенном значении магнитного поля H_{SF} (значение H_{SF} меняется при изменении температуры) испытывают скачкообразное уменьшение (величина скачка от 0,2 до 3% для разных мод). Скачок в скорости звука сопровождается аномалией в поглощении. Примеры магнитополевых зависимостей поперечных скоростей и поглощения звука представлены на рис. 4–8. Увеличение температуры практически не изменяет величину скачка в скорости и приводит к смещению особенности в сторону больших полей (рис. 4,6).

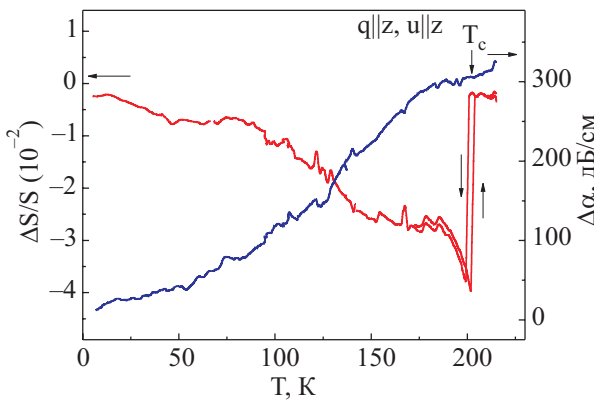


Рис. 2. Температурная зависимость поведения скорости и поглощения звуковой моды C_{33} .

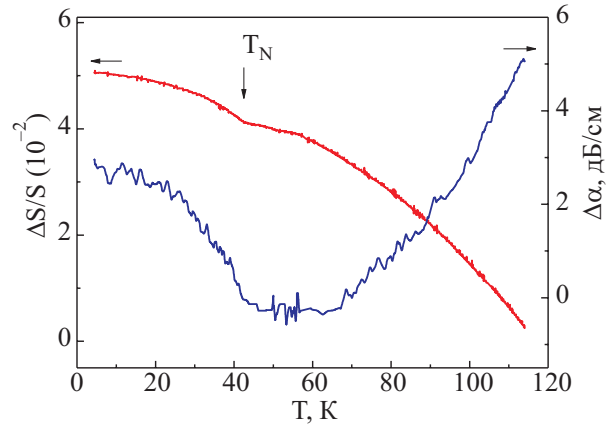


Рис. 3. Температурная зависимость поведения скорости и поглощения звуковой волны ($q \parallel x, u \parallel z$).

Отклонение вектора \mathbf{H} от оси z при фиксированном значении температуры также смещает особенность в сторону больших полей, однако величина скачка уменьшается с ростом величины угла (рис. 7,8). Когда же вектор \mathbf{H} лежит в базовой плоскости, скорость и поглощение звука не испытывают никаких аномалий вплоть до максимального в нашем эксперименте значения поля 50 кЭ.

Обращает внимание то, что моды C_{44} и C_{66} демонстрируют наиболее ярко гистерезисное поведение при увеличении и уменьшении величины магнитного поля как для скорости, так и для поглощения звука (рис. 6,7). Этот гистерезис в поведении скорости звука сохраняется при небольшом ($\sim 5^\circ$) отклонении направления магнитного поля от оси z , при уменьшении величины скачка с ростом угла (рис. 7,а). При углах, больших 10° гистерезисные явления практически исчезают (рис. 7,а). Что же касается поведения поглощения звука, то при увеличении угла отклонения вид особенности существенно меняется, начиная с малых значений угла (рис. 7,б).

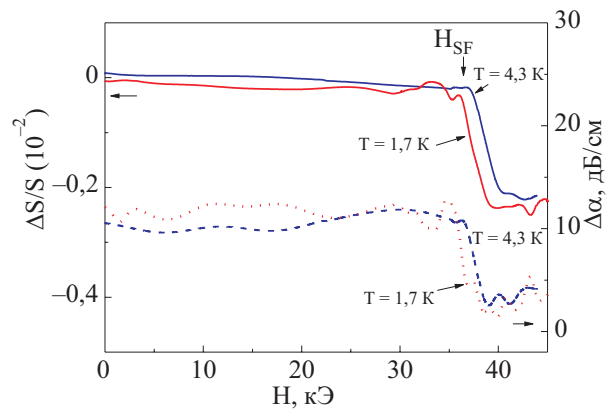


Рис. 4. Магнитополевая зависимость скорости (сплошные кривые) и поглощения (пунктир) звуковой волны ($q \parallel x, u \parallel z$) при температурах 1,7 К и 4,3 К, $\mathbf{H} \parallel z$.

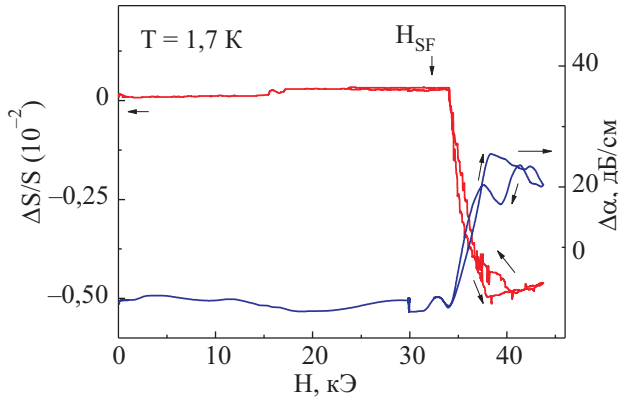


Рис. 5. Магнитополевая зависимость скорости и поглощения звуковой волны ($\mathbf{q}||\mathbf{y}$, $\mathbf{u}||\mathbf{z}$) при температуре 1,7 К, $\mathbf{H}||\mathbf{z}$.

Отметим, что магнитополевое поведение упругих модулей C_{44} и C_{66} демонстрирует особенности типа «петель» в полях, больших величины поля, при которой наблюдался скачок скорости (рис. 6,7).

Из трех продольных мод скорости звуковых колебаний (\mathbf{q} , $\mathbf{u}||\mathbf{x}$) и (\mathbf{q} , $\mathbf{u}||\mathbf{y}$) демонстрируют очень слабые особенности (скачки менее 0,1%) в магнитополевых зависимостях при $\mathbf{H}||\mathbf{z}$ (рис. 9). Эти аномалии гораздо более слабые, чем для поперечных мод.

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 [10], в соединении $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$ реализуется спин-переориентационный фазовый переход типа спин-флоп.

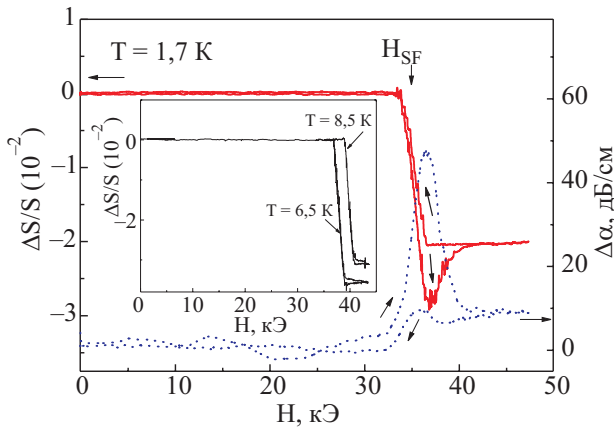


Рис. 6. Магнитополевая зависимость скорости (сплошные кривые) и поглощения (пунктир) звуковой волны ($\mathbf{q}||\mathbf{z}$, $\mathbf{u}||\mathbf{x}$) при температуре 1,7 К, $\mathbf{H}||\mathbf{z}$. На вставке — магнитополевая зависимость скорости этой же звуковой моды при температурах 6,5 и 8,5 К.

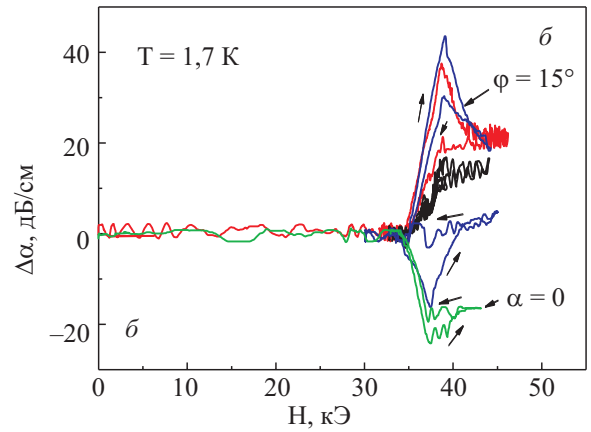
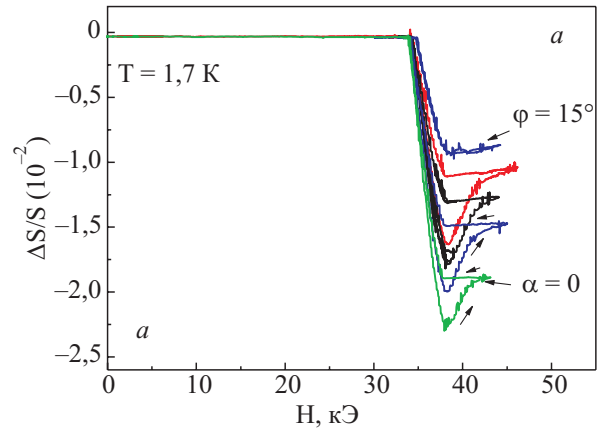


Рис. 7. Магнитополевая зависимость скорости (а) и поглощения (б) звуковой волны ($\mathbf{q}||\mathbf{y}$, $\mathbf{u}||\mathbf{x}$) при температуре 1,7 К при углах отклонения направления внешнего магнитного поля от оси \mathbf{z} , меняющихся с шагом 3° в диапазоне $0-15^\circ$.

Обсуждение результатов

Измеренные нами изменения скоростей звука и его поглощение связаны с упругой, магнитоупругой и магнитной подсистемами исследуемого вещества. В тербиевом ферроборате магнитная подсистема состоит из ионов железа и тербия. Магнитные взаимодействия в исследуемом веществе можно классифицировать по их силе в порядке убывания. Главное взаимодействие, определяющее наличие магнитного порядка в системе, — обменное взаимодействие ионов железа между собой. Ионы железа и тербия взаимодействуют между собой посредством более слабого $f-d$ -обмена. Что же касается релятивистских взаимодействий, то ионы железа в ферроборате при низких температурах находятся в синглетном орбитальном состоянии, поэтому одноионная магнитная анизотропия для этих ионов пренебрежимо мала. Для ионов тербия, наоборот, сильная спин-орбитальная связь приводит к существенной магнитной анизотропии типа «легкая ось», направленной вдоль оси c кристалла.

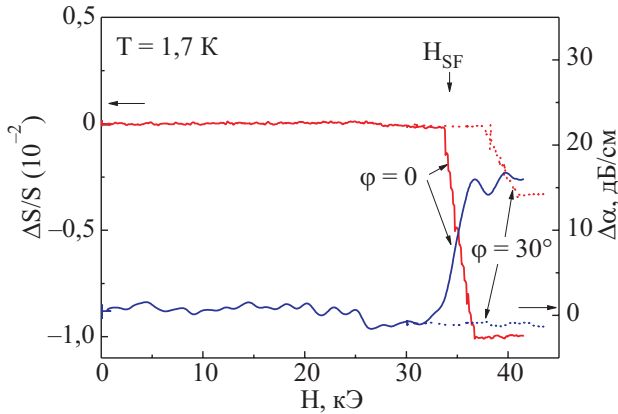


Рис. 8. Магнитолевая зависимость скорости и поглощения звуковой волны ($\mathbf{q}||\mathbf{x}$, $\mathbf{u}||\mathbf{y}$) при температуре 1,7 К. φ — угол отклонения направления внешнего магнитного поля от оси \mathbf{z} ; $\varphi = 0^\circ$ (сплошные кривые) и $\varphi = 30^\circ$ (пунктир).

Наиболее слабым магнитным взаимодействием в системе является магнито-дипольное взаимодействие.

Магнитная подсистема в ферроборате может взаимодействовать с упругой подсистемой посредством двух основных механизмов. Во-первых, изменение положений немагнитного окружения магнитных ионов (лигандов) вследствие взаимодействия со звуком может привести к изменению электрических полей лигандов, что вследствие спин-орбитальной связи может изменить величину одноионной магнитной анизотропии ионов тербия. Во-вторых, взаимодействие с упругой деформацией может привести к изменению степени перекрытия волновых функций ионов, участвующих в обмене, что ведет к изменению эффективных обменных интегралов между ионами железа. Влиянием звуковых колебаний на практически локальное обменное взаимодействие между ионами железа и тербия, как нам кажется, в основном приближении можно пренебречь. Проанализируем последовательно, как эти возможные механизмы реализуются в ферроборате тербия, опираясь на результаты наших измерений изменения скоростей звука и поглощения как функции температуры и внешнего магнитного поля.

Первый механизм, т.е. влияние магнитоупругого взаимодействия на одноионную магнитную анизотропию ионов тербия, был теоретически рассмотрен в работе [13], где исследована возможная магнитоупругая в ферроборатах. В тригональном кристалле поведение упругой подсистемы связано с поведением шести

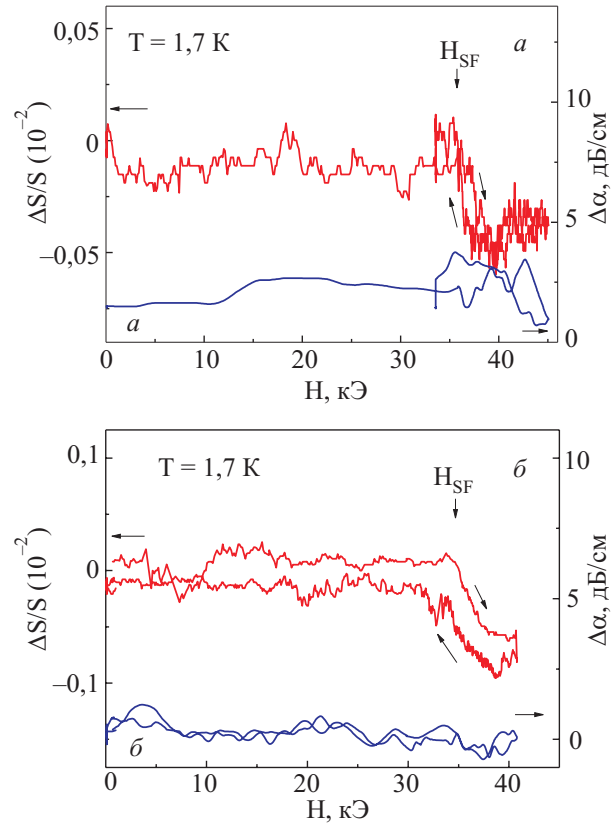


Рис. 9. Магнитолевые зависимости скорости и поглощения продольных звуковых волн: (а) (\mathbf{q} , $\mathbf{u}||\mathbf{x}$) при температуре 1,7 К, $\mathbf{H}||\mathbf{z}$. (б) (\mathbf{q} , $\mathbf{u}||\mathbf{y}$) при температуре 1,7 К, $\mathbf{H}||\mathbf{z}$.

упругих модулей, которые связаны с измеряемыми скоростями звука следующими соотношениями.

1. Направление распространения звука вдоль оси \mathbf{z} (ось симметрии 3 порядка)

$$\rho s_1^2 = \frac{1}{3}(C^{\alpha 1} + 2C^{\alpha 2} + 2\sqrt{2}C^{\alpha 12}) \text{ — продольная волна;}$$

$$\rho s_{2,3}^2 = \frac{1}{2}C^{\xi} \text{ — две поперечные волны.}$$

2. Направление распространения звука вдоль оси \mathbf{x}

$$\rho s_1^2 = \frac{1}{3}(C^{\alpha 1} + \frac{1}{2}C^{\alpha 2} - 2\sqrt{2}C^{\alpha 12}) + \frac{1}{2}C^{\varepsilon} \text{ —}$$

продольная волна;

$$\rho s_{2,3}^2 = \frac{1}{4}C^{\varepsilon} + \frac{1}{4}C^{\xi} \pm \frac{1}{4}\sqrt{2(C^{\varepsilon} - C^{\xi})^2 + 16(C^{\varepsilon\xi})^2} \text{ —}$$

две поперечные волны.

3. Направление распространения звука вдоль оси y (ось симметрии 2-го порядка)

$$\rho s_{1,2}^2 = \frac{1}{6}C^{\alpha 1} + \frac{1}{12}C^{\alpha 2} - \frac{\sqrt{2}}{3}C^{\alpha 12} + \frac{1}{4}C^\varepsilon + \frac{1}{4}C^\xi \pm \frac{1}{2}\sqrt{\left(\frac{1}{6}C^{\alpha 1} + \frac{1}{12}C^{\alpha 2} - \frac{\sqrt{2}}{3}C^{\alpha 12} + \frac{1}{4}C^\varepsilon - \frac{1}{4}C^\xi\right)^2 + 4(C^{\varepsilon\xi})^2}$$

(+) — квазипродольная волна, (-) — квазипоперечная волна,

$$\rho s_3^2 = \frac{1}{2}C^\varepsilon \text{ — поперечная волна.}$$

4. Направление распространения звука в плоскости yz под углом 45° к оси z

$$\rho s_{1,2}^2 = \frac{1}{4}\left(\frac{2}{3}C^{\alpha 1} + \frac{5}{6}C^{\alpha 2} + \frac{1}{2}C^\varepsilon + C^\xi + 2C^{\varepsilon\xi}\right) \pm \frac{1}{4}\sqrt{\left(-\frac{1}{2}C^{\alpha 2} - \frac{4\sqrt{2}}{3}C^{\alpha 12} + \frac{1}{2}C^\varepsilon + C^{\varepsilon\xi}\right)^2 + \left(\frac{2}{3}C^{\alpha 1} - \frac{2}{3}C^{\alpha 2} - \frac{2\sqrt{2}}{2}C^{\alpha 12} + C^\varepsilon + 2C^{\varepsilon\xi}\right)^2}$$

(+) — квазипродольная волна, (-) — квазипоперечная волна,

$$\rho s_3^2 = \frac{1}{4}C^\varepsilon + \frac{1}{4}C^\xi - C^{\varepsilon\xi} \text{ — поперечная волна,}$$

где $C^{\alpha 1}, C^{\alpha 2}, C^{\alpha 12}, C^\varepsilon, C^\xi, C^{\varepsilon\xi}$ — шесть упругих модулей тригонального кристалла, выписанные в нормальных для этой системы координатах. Стандартные модули упругости, которые мы упоминали ранее, связаны с этими модулями следующими соотношениями:

$$\begin{aligned} C_{11} &= \frac{1}{3}(C^{\alpha 1} + \frac{1}{2}C^{\alpha 2} - 2\sqrt{2}C^{\alpha 12}) + \frac{1}{2}C^\varepsilon; \\ C_{12} &= \frac{1}{3}(C^{\alpha 1} + \frac{1}{2}C^{\alpha 2} - 2\sqrt{2}C^{\alpha 12}) - \frac{1}{2}C^\varepsilon; \\ C_{33} &= \frac{1}{3}(C^{\alpha 1} + 2C^{\alpha 2} + 2\sqrt{2}C^{\alpha 12}); \\ C_{13} &= \frac{1}{3}(C^{\alpha 1} - C^{\alpha 2} + \frac{\sqrt{2}}{2}C^{\alpha 12}); \\ C_{14} &= -C^{\varepsilon\xi}; \\ C_{44} &= \frac{1}{2}C^\xi; \\ C_{66} &= \frac{1}{2}C^\varepsilon. \end{aligned} \quad (1)$$

Авторы работы [13] предположили наличие связи между упругой подсистемой ферроборатов и магнитной одноионной анизотропией редкоземельных ионов. В соответствии с их вычислениями наиболее сильные изменения должны проявляться в температурном поведении упругих модулей $C^{\alpha 1}, C^{\alpha 2}, C^{\alpha 12}$ (см. формулы (16) и рис. 3 работы [13]). Как следует из формул (1), в соответствии с этими результатами

должны были бы наблюдаться наиболее сильные температурные изменения в скоростях продольного звука C_{33} и C_{11} , а поперечные моды должны меняться более слабо. Однако таких сильных изменений для продольного звука, как предсказывает теория [13], экспериментально не наблюдается (см. рис. 1,2.) Кроме того, как видно на рис. 1–3, в предсказанном в работе [13] температурном диапазоне изменения продольных и поперечных упругих модулей одного порядка. Это, по-видимому, означает, что авторы работы [13] использовали несколько завышенные значения величин магнитоупругой связи колебаний решетки с магнитной одноионной анизотропией ионов тербия. Теория [13] предсказывает особенности и в магнитном поведении скоростей звука, связанных с одноионной анизотропией редкоземельной подсистемы, но прежде всего, в продольных скоростях звука, как видно из их формул (12) работы [13]. В наших же экспериментах существенные аномалии в магнитных зависимостях продольных скоростей не наблюдались (рис. 9). Наиболее сильные изменения скоростей звука с внешним магнитным полем наблюдаются для поперечных звуковых мод (см. рис. 4–8). Таким образом, результаты экспериментов свидетельствуют о том, что, по-видимому, связь с одноионной магнитной анизотропией редкоземельной подсистемы тербиевого ферробората не является основным механизмом влияния магнитной подсистемы на фононную подсистему этого кристалла. Другим возможным объяснением такого расхождения теории с нашим экспериментом может быть

связь с одноионной анизотропией не акустических, а оптических колебаний в исследуемой системе.

Проанализируем теперь, как перенормировка обменных констант вследствие звуковых колебаний может повлиять на поведение скоростей звука и поглощения. Теоретически в общем виде эта проблема изучалась в работе [14], где показано, что изменение скорости звуковых колебаний вследствие перенормировки констант обменного взаимодействия магнитной подсистемы имеет вид

$$\Delta s = (\Delta s)_1 + (\Delta s)_2,$$

$$(\Delta s)_1 = -[\rho V s (g \mu_B)^4 q^2]^{-1} [2 |g_0(\mathbf{q})|^2 (g \mu_B \langle S_0^z \rangle)^2 \chi_0^z + T \sum_k \sum_\alpha |g_k(\mathbf{q})|^2 (\chi_k^\alpha)^2], \quad (2)$$

$$(\Delta s)_2 = -[2 \rho V s (g \mu_B)^2 q^2]^{-1} [h_0^2(\mathbf{q}) (g \mu_B \langle S_0^z \rangle)^2 + T \sum_k \sum_\alpha h_k^\alpha(\mathbf{q}) \chi_k^\alpha],$$

где коэффициенты магнитоупругой связи даются формулой

$$g_k^\alpha(\mathbf{q}) = \sum_j e^{i\mathbf{kR}_{ji}} (e^{i\mathbf{kR}_{ji}} - 1) \mathbf{u}_q \frac{\partial J_{ij}^\alpha}{\partial \mathbf{R}_i}, \quad (3)$$

а h_k^α определяется как

$$h_k^\alpha = \sum_j e^{-i\mathbf{kR}_{ji}} (e^{i\mathbf{kR}_{ji}} - 1) (e^{-i\mathbf{kR}_{ji}} - 1) \mathbf{u}_q \mathbf{u}_{q-1} \frac{\partial^2 J_{ij}^\alpha}{\partial \mathbf{R}_i \partial \mathbf{R}_j}. \quad (4)$$

В этих формулах V — объем кристалла, g и μ_B — g -фактор и магнетон Бора, J_{ij}^α — интегралы обменного взаимодействия между узлами i и j , $\alpha = x, y, z$, \mathbf{R}_{ji} — радиус-вектор узла i , \mathbf{R}_{ji} — вектор, соединяющий узлы j и i , \mathbf{q} — волновой вектор звуковой волны (q — его модуль), \mathbf{u}_q — вектор поляризации звуковой волны, $\langle S_0^z \rangle$ — средний момент на один узел, χ_0^z — однородная и χ_k^α — неоднородная магнитные восприимчивости. В формулах (2) изменение скорости звука проявляется вследствие динамической связи между спиновой подсистемой и акустическими ветвями фононов. Из этих формул видно, что изменение величины скорости звука пропорционально квадрату намагниченности. Поскольку в критическом поле спин-перориентационного (спин-флоп) перехода намагниченность системы испытывает скачок, то, как видно из наших экспериментов (см. рис. 4–8), и скорости звуковых колебаний также испытывают скачок в этом критическом поле. С другой стороны, поскольку при

$T = T_N$ намагниченность антиферромагнитной системы обращается в нуль, согласно формулам (2) скорости звука проявляют очень слабую особенность в этой точке, что и наблюдается в эксперименте (см. рис. 3). Из формул (3), (4) следует, что наибольшие изменения скорости звука должны были бы демонстрировать продольные звуковые колебания. Как видно на рис. 9, этого не происходит. Такое поведение скоростей звука, по-видимому, свидетельствует о том, что в ферроборате тербия обменное взаимодействие между ионами железа не прямое, вдоль цепочек, а косвенное, которое меняется сильнее при взаимодействии с поперечными модами звуковых колебаний. В работе [14] также найдено, как поглощение звуковых волн связано с изменением обменных интегралов между магнитными ионами. Показано, что фактически это поглощение пропорционально изменению скорости звуковых волн, но умноженному на отношение скорости релаксации магнитных колебаний к квадрату скорости звука. То, что особенности, которые мы наблюдали в температурном и магнитопольном поведении поглощения значительно слабее, чем аналогичные особенности в поведении скоростей звука, говорит о том, что, по-видимому, скорость релаксации магнитных колебаний меньше скоростей звука в ферроборате тербия.

Рассмотрим в качестве альтернативного теоретического описания наблюдаемых нами экспериментально особенностей простейшую феноменологическую модель двухподрешеточного легкоосного антиферромагнетика, взаимодействующего с упругой подсистемой.

Выражение для энергии системы имеет вид

$$F = A(\mathbf{M}_1 \mathbf{M}_2) - \frac{K}{2M_0^2} [(M_1^z)^2 + (M_2^z)^2] - \mathbf{H}(\mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2) + B_1 u_{xy} (M_1^x M_2^y + M_1^y M_2^x) + B_2 u_{xy} (M_1^x M_1^y + M_2^x M_2^y) + 2C_{66} u_{xy}^2. \quad (5)$$

Здесь A — обменная константа антиферромагнитного междошрешеточного взаимодействия, K — константа легкоосной магнитной анизотропии ($K, A > 0$), B_1 и B_2 — константы магнитоупругого взаимодействия, u_{xy} — деформация в плоскости xy . Пусть магнитное поле \mathbf{H} направлено вдоль 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 $AM_0 = H_E$, $K = M_0 H_A$, $B_{1,2} = M_0 H_{B_{1,2}}$, где M_0 — величина магнитного момента подрешетки. Найдем минимум энергии F относительно θ_1, θ_2 и u_{xy} , считая при этом $B_1, B_2 < A, K, H$. Тогда основное состояние магнитной подсистемы реализуется в трех возможных конфигурациях:

- 1) антиферромагнитная фаза (АФ), здесь $\theta_2 = \pi - \theta_1$;
- 2) спин-флоп фаза (SF), здесь $\theta_2 = -\theta_1$;
- 3) парафаза, здесь $\theta_2 = \theta_1$.

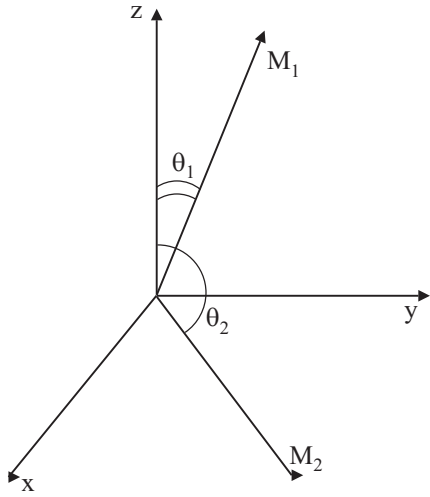


Рис. 10. Иллюстрация двухподрешеточной модели антиферромагнетика.

В АФ фазе энергия имеет вид:

$$F = M_0[-H_E \cos 2\theta_1 + H_A \sin^2 \theta_1 + 2(H_{B1} + H_{B2})u_{xy} \sin^2 \theta_1] + 2C_{66}u_{xy}^2. \quad (6)$$

В SF фазе

$$F = M_0[H_E \cos 2\theta_1 + H_A \sin^2 \theta_1 - 2H \cos \theta_1 + 2(H_{B1} - H_{B2})u_{xy} \sin^2 \theta_1] + 2C_{66}u_{xy}^2 \quad (7)$$

Найдем перенормировку упругого модуля C_{66} вследствие взаимодействия с магнитной подсистемой:

$$C_{66}^* = C_{66} - \frac{\left(\frac{\partial^2 F}{\partial u_{xy} \partial \theta_1} \right)^2}{\frac{\partial^2 F}{\partial \theta_1^2}} \Bigg|_{\theta_1 = \theta_{1eq}},$$

где для θ_1 берется равновесное значение в соответствующей фазе:

$$\text{в АФ фазе } \theta_1 = 0, \text{ а в SF фазе } \cos \theta_1 = \frac{H}{(2H_E - H_A)}.$$

В АФ фазе имеем $C_{66}^* = C_{66}$, т.е. модуль C_{66} в этой фазе не меняется. В SF фазе получаем

$$C_{66}^* = C_{66} - \frac{8(H_{B1} - H_{B2})^2 H^2}{(2H_E - H_A)^3} \frac{1 - \frac{H^2}{(2H_E - H_A)^2}}{1 - \frac{H^2}{(2H_E + H_A)^2}} \approx \approx C_{66} - \frac{(H_{B1} - H_{B2})^2 H^2}{H_E^3}. \quad (8)$$

Таким образом, в SF фазе упругий модуль C_{66} меняется скачком в поле спин-флоп перехода. Заметим, что критическое поле H_2 , ниже которого устойчива АФ фаза, равно $\sqrt{(2H_E + H_A)H_A}$, а поле H_1 , выше которого устойчива SF фаза, равно $\sqrt{(2H_E - H_A)H_A} / (2H_E + H_A)$, так что фазовый переход 1 рода имеет место при $H_{SF} = \sqrt{H_1 H_2} = \sqrt{H_A (2H_E - H_A)}$.

Из рис. 7,а следует, что поведение модуля C_{66} соответствует предложенной простой феноменологической модели.

Рассмотрение модели перенормировки модуля C_{44} производится аналогично, но в ней необходимо учитывать слабое влияние упругой подсистемы на конфигурацию магнитных моментов в основном состоянии.

Наблюдение гистерезиса (т.е. переход первого рода) и для малых углов отклонения направления магнитного поля от оси z полностью соответствует результатам теоретических рассмотрений [15].

Гистерезисные явления, которые наблюдались в поведении некоторых поперечных скоростей звука при $H > H_{SF}$ (рис. 6,7), можно объяснить наличием доменной структуры в промежуточном состоянии исследуемой антиферромагнитной системы [16]. Заметим, что магнитооптические исследования монокристалла ферробората тербия обнаружили наличие доменной структуры в промежуточном состоянии в окрестности спин-флоп перехода [17].

Выводы

Таким образом, на основании измерений магнито-полевой и температурной зависимостей поведения скорости и поглощения звука в ферроборате тербия можно сделать следующие выводы. Во-первых, по-видимому, магнитоупругая связь в этом веществе проявляется сильнее всего не в результате влияния смещений немагнитных соседей (лигандов) редкоземельных ионов, как считали ранее, а посредством перенормировки величин обменного взаимодействия между ионами железа, и этот обмен носит не прямой, а косвенный характер. Магнитополевое поведение поперечных звуковых мод хорошо описывается в рамках феноменологической модели двух подрешеток ионов железа, взаимодействующих с упругими колебаниями решетки.

Во-вторых, скорость релаксации магнитных возбуждений в этой системе слабее, чем в других системах с магнитоупругой связью (см., например, [16]), вследствие чего поглощение звука отражает особенности исследуемой магнитной системы слабее, чем поведение скорости звука.

И наконец, доменная структура ферробората тербия, которая существует в промежуточном состоянии, вероятно, проявляется в явлении гистерезиса, который наблюдался в магнитополевом поведении некото-

рых поперечных скоростей звука в полях выше поля спин-флор перехода.

Авторы благодарны В.Д. Филю, В.А. Бедареву, А.Н. Васильеву и Н.П. Колмаковой за обсуждение результатов работы и ценные замечания.

1. D. Jaque, *J. Alloys Compounds* **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. Kuvaradin, and E.A. Popova, *JETP Lett.* **83**, 509 (2006).
7. W.A. Dollase and R.J. Reeder, *Am. Mineral.* **71**, 163 (1986).
8. А.Н. Васильев, Е.А. Попова, *ФНТ* **32**, 968 (2006).
9. D. Fausti, A.A. Nugroho, P.H.M. van Loosdrecht, S.A. Klimin, M.N. Popova, and L.N. Bezmaternykh, *Phys. Rev.* **B74**, 024403 (2006).
10. C. Ritter, A. Balaev, A. Vorotynov, G. Petrakovski, D. Velikanov, V. Temerov, and I. Gudim, *J. Phys.: Condens. Matter* **19**, 196227 (2007).
11. L.N. Bezmaternykh, V.L. Temerov, I.A. Gudim, and N.A. Stolbovaya, *Crystall. Rep.* **50**, Suppl. 1, 97 (2005).
12. Е.А. Масалитина, В.Д. Филь, К.Р. Жеков, А.Н. Жолобенко, Т.В. Игнатова, Sing-Ik Lee, *ФНТ* **29**, 93 (2003).
13. A.A. Demidov, N.P. Kolmakova, L.V. Takunov, and D.V. Volkov, *Physica* **B398**, 78 (2007).
14. M. Tachiki and S. Maekawa, *Progr. Theor. Phys.* **51**, 1 (1974).
15. М.И. Каганов, Г.К. Чепурных, *ФТТ* **11**, 911 (1969).

16. В.В. Еременко, В.А. Сиренко, *Магнитоупругие свойства антиферромагнетиков и сверхпроводников*, Наукова думка, Киев (2004).

17. V.A. Bedarev, L.N. Bezmaternykh, S.L. Gnatchenko, M.I. Pashchenko, and V.L. Temerov, *Magnetic Intermediate State in the Terbium Iron Borate TbFe₃(BO₃)₄*, Proc. MISM-2008, Moscow, 20–25 June (2008).

Magnetoelastic effects in terbium ferroborate

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

Low temperature studies of elastic moduli behavior and sound absorption in a single crystal of terbium ferroborate have been performed. Components of the tensor of elastic moduli of the system have been determined. The structural phase transition and the magnetic subsystem-antiferromagnetically ordered state one manifest themselves in the temperature behavior of sound velocities and absorption. The magnetic field dependences of transverse sound velocities show jump-type peculiarities the magnetic field equal to that of the spin-flop transition of the magnetic subsystem. The theoretical analysis shows that the observed features of the behavior of acoustic characteristics are connected not with the rare-earth subsystem of ferroborate, but with the renormalization of the exchange interaction between iron ions caused by the magneto-elastic coupling.

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

Keywords: ferrobates, magneto-elastic coupling, magnetic phase transition.