

Акустопьезомагнетизм и модули упругости CoF_2

Т.Н. Гайдамак, Г.А. Звягина, К.Р. Жеков, И.В. Билыч,
В.А. Десненко, Н.Ф. Харченко, В.Д. Филь

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

Статья поступила в редакцию 3 февраля 2013 г., опубликована онлайн 21 апреля 2014 г.

С использованием акустических колебаний изучен пьезомагнитный отклик монокристаллов CoF_2 на частотах ~ 55 МГц. В отсутствие внешнего магнитного поля результаты воспроизводят данные прямых статических измерений. В магнитном поле открывается дополнительный канал пьезомагнитного отклика с амплитудой, линейной по напряженности поля. Эффективности обоих каналов в антиферромагнитном состоянии становятся сопоставимыми при $H \sim 3$ Тл. Выше температуры Нееля механизм первого канала перестает работать, а пьезомагнитный отклик, связанный с новым каналом, демонстрирует спад, хорошо аппроксимируемый экспоненциальной зависимостью. Измерены скорости звука для различных кристаллографических направлений и рассчитаны компоненты тензора упругих модулей.

З використанням акустичних коливань вивчено п'єзомагнітний відгук монокристалів CoF_2 на частотах ~ 55 МГц. У відсутності зовнішнього магнітного поля результати відтворюють дані прямих статичних вимірів. У магнітному полі відкривається додатковий канал п'єзомагнітного відгуку з амплітудою, лінійною по напруженості поля. Ефективності обох каналів в антиферомагнітному стані стають порівнянними при $H \sim 3$ Тл. Вище температури Нееля механізм першого каналу перестає діяти, а п'єзомагнітний відгук, пов'язаний з новим каналом, демонструє спад, який добре апроксимується експоненціальною залежністю. Визначено швидкості звуку для різних кристаллографічних напрямків і розраховано компоненти тензора пружних модулів.

PACS: 74.25.Ld Механические и акустические свойства, упругость и затухание ультразвука;
75.50.Ee Антиферромагнетизм;
75.80.+q Магнитомеханические эффекты, магнитострикция.

Ключевые слова: пьезомагнетизм, акустоэлектрическая трансформация, модули упругости.

Введение

В работе исследована акустоэлектрическая трансформация (АЭТ), т.е. генерация электромагнитных сигналов при распространении звуковой волны, в монокристаллах CoF_2 . Наше обращение к этому хорошо изученному антиферромагнитному соединению инициировано результатами аналогичных исследований, выполненных ранее в железосодержащем сверхпроводнике FeSe [1]. В этом веществе в отсутствие магнитного поля было обнаружено, что эффективность АЭТ аномально большая, сравнимая по величине с эффективностью индукционного механизма АЭТ в проводящей среде в магнитном поле ~ 2 Тл. Анализ показал, что наиболее вероятной причиной этого является пьезомагнетизм (ПМ) — возникновение в веществе магнитного момента при воздействии упругой деформации. Необходи-

мое условие такого процесса — существование в веществе магнитной структуры [2].

Исторически CoF_2 был первым антиферромагнетиком, в котором в середине прошлого столетия был обнаружен ПМ. Симметричный анализ, выполненный Дзялошинским [3], позволил указать необходимые конфигурации экспериментов, вскоре осуществленных Боровиком-Романовым [4]. Кроме принципиального подтверждения самого факта существования эффекта, в [4] были проведены количественные измерения величины коэффициента пьезомагнитной связи, показавшие, что в CoF_2 таковой на два порядка превышает значение для MnF_2 . Эксперименты [4] фактически представляли собой прямые статические измерения магнитного момента, возникающего в образце под действием приложенного сдвигового напряжения. АЭТ эксперимент в некотором смысле следует считать

косвенным, поскольку измеряемыми величинами являются амплитуда и фаза электромагнитного поля, излучаемого из образца в результате появления переменного во времени магнитного момента, возбуждаемого упругой волной достаточно высокой частоты. В связи с этим для нас было принципиально важно провести АЭТ эксперимент в образце с известной величиной пьезомагнитной связи с целью сравнения результатов измерений и подтверждения пригодности метода для изучения пьезомагнитных эффектов. Последнее заранее не было очевидным ввиду возможного влияния релаксационных процессов.

В отсутствие внешнего магнитного поля результаты наших экспериментов практически совпали с результатами [4], подтвердив правомочность использования АЭТ для изучения пьезомагнетизма. В то же время в магнитном поле при температурах, заметно превышающих температуру Нееля, обнаружены ярко выраженные эффекты, линейные по магнитному полю и указывающие на значительный вклад ближнего порядка в амплитуду АЭТ. Они имеют нестандартную температурную зависимость, хорошо аппроксимируемую экспонентой. Авторы считают наблюдение этих особенностей главным результатом работы.

Структура работы следующая. В разд. 1 наряду со схематическим описанием методики кратко изложено ее простейшее теоретическое обоснование. В разд. 2 приведены и обсуждены результаты экспериментов в отсутствие магнитного поля. Раздел 3 посвящен магнитопольным зависимостям. Кроме того, в этом разделе приведен результат измерений магнитной восприимчивости, обнаруживающий корреляцию с АЭТ данными. В заключительном разделе приведены результаты ультразвуковых измерений модулей упругости CoF_2 , отсутствующие, насколько авторам известно, в литературе и хорошо согласующиеся с величинами, полученными в экспериментах по мандельштам-бриллоновскому рассеянию [5].

1. Схема эксперимента и его теоретическое обоснование

Через диэлектрическую линию задержки (ЛЗ) в образец вводится поперечная линейно поляризованная упругая волна. Образец должен быть сориентирован таким образом, чтобы в нем возбуждалась единственная мода, или, иными словами, линейная поляризация в образце должна сохраниться. Если звук распространяется вдоль оси симметрии выше второго порядка, то это требование удовлетворяется автоматически. Упругое возмущение порождает в образце электромагнитное поле (ЭМП), которое, вследствие условий непрерывности его компонент на границе, излучается в окружающее пространство. В проводящих средах появление ЭМП в отсутствие подмагничивания вызывается электронными токами инерционного и деформа-

ционного происхождения. В магнитном поле основной вклад определяется индукционным механизмом, связанным с холловскими токами. В магнитоупорядоченных средах (в том числе и магнитодиэлектриках) благодаря магнитоупругому взаимодействию возбуждаются осцилляции магнитных моментов, порождая тем самым ЭМП. Последнее воспринимается рамочной антенной (плоская катушка) с возможностью ее поворота вокруг продольной оси для определения поляризации излучаемого поля. Эксперимент проводится во время-пролетном режиме, допускающем временное разрешение лучшее, чем величина акустической задержки в исследуемом образце, что позволяет избавиться от возможного влияния на результат механического резонанса.

Отметим отдельно два момента, существенных для дальнейшего представления результатов. 1) Изменение амплитуды изучаемых сигналов определяется сравнением с уровнем калибровочного сигнала, регулируемого с помощью запредельного аттенюатора, отградуированного в децибелах. Таким образом, непосредственно регистрируемой величиной является логарифмическая амплитуда измеряемого сигнала. 2) В качестве связующего, обеспечивающего акустический контакт между пьезопреобразователем и ЛЗ, а также между ЛЗ и образцом, используется кремнийорганическая жидкость ГКЖ-94. Затвердевая при температурах 120–110 К, она обеспечивает надежный акустический контакт при низких T , однако выше температуры отвердевания затухание, вносимое склейками, быстро нарастает. На рис. 1, не вдаваясь в обсуждение физических аспектов, в качестве примера приведено изменение воспринимаемого антенной сигнала во всем доступном для наблюдения температурном интервале, иллюстрирующее как уменьшение АЭТ отклика с ростом температуры, так и увеличение затухания в переходных склейках. На рис. 1 также

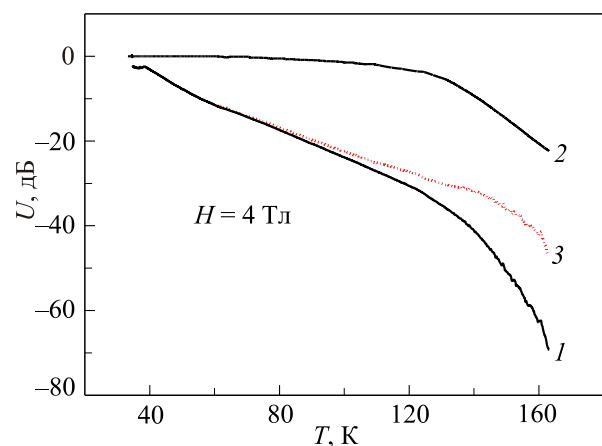


Рис. 1. Пример температурных зависимостей регистрируемых величин: амплитуда сигнала, получаемого от исследуемого образца (1), амплитуда сигнала, отраженного от торца линии задержки (2), разностная кривая (3).

продемонстрировано поведение отраженного от торца ЛЗ (монокристаллический Ge) сигнала, измеренное в этом же эксперименте со стороны возбуждающего генератора. Поскольку изменением затухания в ЛЗ можно пренебречь [6], эволюция этого сигнала обусловлена двукратным прохождением через склейку пьезопреобразователь–ЛЗ. Если бы две склейки, проходимые возбуждающим образец сигналом, были идентичными, то разностная кривая, представленная на рис. 1, представляла бы в чистом виде поведение АЭТ отклика во всем температурном интервале. К сожалению, толщина склейки (~ 2 мкм), определяющая ее вклад в затухание, является плохо контролируемым параметром, зависящим от многих факторов, и гарантировать полную идентичность склеек невозможно. Однако на рис. 1 видно, что для $T < 110$ К коррекция, вносимая склейками, минимальна, и в этой области температур регистрируемый сигнал практически полностью представляет АЭТ отклик. В связи с этим нижеследующее обсуждение ограничено только такими температурами.

Более или менее подробная теория АЭТ применительно к металлам (в том числе и сверхпроводникам) изложена в [7,8] (см. также обзор [9]). В магнитоупорядоченных средах строгое решение задачи подразумевает решение связанной системы уравнений, описывающих распространение упругих, электромагнитных и спиновых волн (см., например, [10] и обзор [11], хотя в этих работах обсуждается несколько иная задача — электромагнитное возбуждение звука). Однако наши эксперименты проведены на частотах (~ 55 МГц), много меньших частот магнитных резонансов; при этом упругая волна слабо взаимодействует со средой и ее затуханием можно пренебречь. Эффективность возбуждения спиновых волн также мала, и проблема сводится к решению граничной задачи только для уравнений Максвелла. Из подобной схемы выпадают, конечно, случаи сильного взаимодействия упругой и магнитной подсистем, например при спин-переориентационных фазовых превращениях.

Рассмотрим полуограниченное пространство $z \geq 0$, занятое антиферромагнитным диэлектриком, на поверхности которого задано упругое смещение $u(t) = u_0 \exp(i\omega t)$ ($u_0 = (u_x, 0, 0)$ — амплитуда упругого смещения). Комбинируя первое и второе уравнения Максвелла, для ЭМП получаем уравнение

$$\nabla^2 \mathbf{E} = -k_c^2 \epsilon \mu \mathbf{E} + 4\pi i k_c [\nabla \mathbf{m}]. \quad (1)$$

Здесь \mathbf{m} — намагниченность, индуцируемая упругим смещением; ϵ — диэлектрическая проницаемость антиферромагнетика, магнитную проницаемость которого μ в дальнейшем, где это возможно, полагаем равной 1; $k_c = \omega/c$.

Полное решение (1) представляет комбинацию частного решения неоднородного уравнения и одного из

двух возможных (распространяющегося в положительном направлении оси z) решений однородного уравнения. Физически это означает, что на передающем интерфейсе возбуждаются две нормальные моды. Одна из них представляет слегка перенормированную магнитоупругим взаимодействием (этой перенормировкой мы пренебрегаем) акустическую волну, «одетую» в связанное с ней ЭМП, а вторая — «почти» свободную электромагнитную волну, распространяющуюся в диэлектрике в положительном направлении со скоростью $c/\sqrt{\epsilon}$. Появление последней диктуется необходимостью удовлетворения граничным условиям, заключающимся в непрерывности тангенциальных E и H компонент ЭМП на возбуждающем интерфейсе. Во избежание недоразумений напомним, что нормальные моды в однородной среде (в линейном режиме) не взаимодействуют, т.е. акустическая волна при своем распространении в однородном образце уже не порождает каких-либо других колебаний, имеющих скорость, отличающуюся от звуковой.

Обратимся теперь к приемному интерфейсу. Если акустическая задержка в образце превышает длительность возбуждающего импульса, то приходящие на приемный интерфейс акустический и электромагнитный сигналы разделены во времени, и мы можем регистрировать электромагнитное излучение, возникающее при падении на интерфейс только упругой волны. Подчеркнем, что в экспериментах мы не наблюдали сколько-нибудь значительных сигналов от электромагнитных волн, практически без задержки приходящих на приемный интерфейс. По-видимому, это связано с тем, что на используемых нами частотах излучающий интерфейс для электромагнитной волны представляет фактически точечный источник и излучаемое поле рассеивается в пространстве в виде сферической волны. По этой причине полем приходящей электромагнитной волны можно пренебречь и в случае более коротких образцов.

Таким образом, ЭМП на упругосвободном приемном интерфейсе формируется под действием упругой деформации (приходящая и отраженная волны) и уходящей в образец электромагнитной волны. В пьезомагнетике величина вектора \mathbf{m} связана с деформацией тензорным соотношением $m_i = \Lambda_{i,kl}^u u_{kl}$, где $\Lambda_{i,kl}^u$ — компоненты аксиального s -тензора, изменяющие свой знак при инверсии времени (здесь и далее запятая в тензорных обозначениях, как это принято, отделяет индексы, симметричные относительно перестановок).

Если длина звуковой волны много меньше диаметра звукового пучка, то одномерное описание является хорошим приближением. Излученное ЭМП вблизи поверхности также можно считать плоской волной, для которой $E_x = H_y$ (и наоборот). Вследствие непрерывности тангенциальных компонент ЭМП это равенство и есть граничное условие на поле в образце. Компонента

H может быть найдена интегрированием второго уравнения Максвелла. В результате для нашей геометрии из (1) получаем

$$E_l = -4\pi i k_c \varepsilon_{lmz} \Lambda_{m,xz}^u \left(\frac{\sqrt{\varepsilon}}{\sqrt{\varepsilon} + 1} \right) u_x. \quad (2)$$

Здесь ε_{lmz} — компоненты тензора Леви–Чивита, u_x — амплитуда упругих смещений на приемном интерфейсе (т.е. удвоенная амплитуда возбуждения). При выводе (2) учтено, что волновое число звука $q \gg k_c$.

2. Пьезомагнетизм в отсутствие магнитного поля

Напомним вкратце результаты работ [3,4], посвященных изучению пьезомагнетизма в CoF₂. В [3,4] в качестве внешнего параметра, индуцирующего магнитный момент, использовано сдвиговое напряжение σ_{kl} : ($m_i = \Lambda_{i,kl}^\sigma \sigma_{kl}$). Инвариантность тензора Λ^σ относительно преобразований магнитной группы приводит к тому, что в легкоосных антиферромагнетиках со структурой рутила, к которым принадлежит CoF₂, ненулевые значения имеют только компоненты $\Lambda_{y,xz}^\sigma \equiv \Lambda_{x,yz}^\sigma$ и $\Lambda_{z,xy}^\sigma$. Поскольку трансформационные свойства тензоров σ_{ik} и u_{ik} совпадают, тензор Λ^u имеет такую же структуру. Это означает, что в нашей геометрии ($u_{xz} \neq 0$) должны индуцироваться намагниченность m_y и поле E_x . Связь между компонентами тензоров Λ^σ и Λ^u легко получить, учитывая их симметрию по немым индексам и используя стандартные соотношения теории упругости. В частности, имеем $\Lambda_{y,xz}^u = 2\Lambda_{y,xz}^\sigma C_{44}$ (C_{44} — модуль сдвига). Обращаем внимание, что автором [4], по-видимому, так же из-за симметрии по немым индексам, в качестве пьезомагнитных модулей озвучены величины $2\Lambda_{i,kl}^\sigma$ (см., например, [12]).

Результаты измерений приведены на рис. 2. Сигнал АЭТ демонстрирует максимальную производную при температуре Нееля ($T_N \approx 38,4$ К). Имеется небольшая температурная область выше температуры Нееля ($T - T_N \leq 2$ К), где также имеется ПМ отклик, хорошо различимый на рис. 2 благодаря логарифмическому масштабу и связанный либо с флуктуациями, либо с поверхностными магнитными неоднородностями.

На рис. 3 приведены поляризационные диаграммы — зависимости амплитуды и фазы сигнала от угла φ между плоскостью витков приемной антенны и направлением смещений в акустической волне. Амплитуда, как и ожидалось, ведет себя практически как $|\cos \varphi|$ и имеет максимум для E_x -поляризации, а фаза меняется на 180° при переходе амплитуды через минимум. Величину пьезомагнитного момента удобно выразить через зависящий от температуры параметр порядка — вектор антиферромагнетизма [13]. Тогда $\Lambda_{i,kl} \equiv \Pi_{ij,kl} L_j$, где L_j — соответствующая компонента вектора антиферромагнетизма (в нашем случае L_z). Здесь $\Pi_{ij,kl}$ уже обычный i -тензор, инвариантный относительно операции

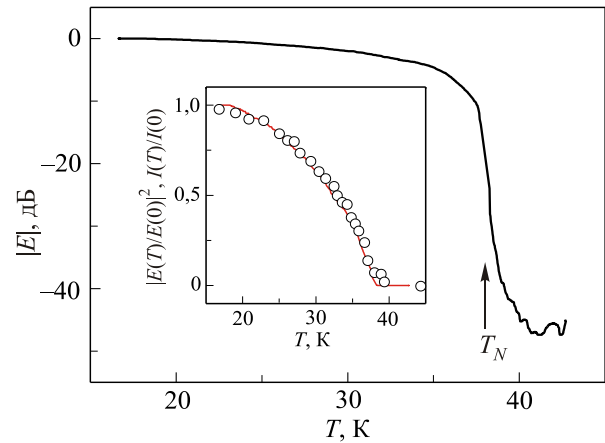


Рис. 2. Амплитуда пьезомагнитного отклика CoF₂. Вставка — сравнение нормированных величин ПМ отклика и интенсивности $I(T)$ магнитного рассеяния нейтронов: \circ — нейтроны [14], сплошная линия — квадрат амплитуды ПМ отклика.

обращения времени, компоненты которого также могут зависеть от температуры.

На вставке к рис. 2 приведен квадрат нормированной амплитуды сигнала АЭТ совместно с интенсивностью пика магнитного рассеяния нейтронов (также нормированного), взятого из работы [14]. Поскольку последний пропорционален квадрату подрешеточной намагниченности, совпадение зависимостей говорит о том, что в пределах точности экспериментов компонента $\Pi_{yz,xz}$ от температуры не зависит.

Величина регистрируемого сигнала АЭТ зависит от эффективности приемной антенны и коэффициента ее связи с излучаемым полем. Для получения численных

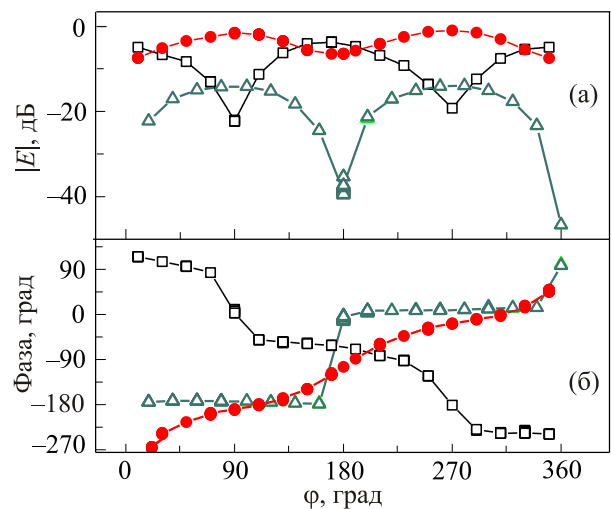


Рис. 3. Поляризационные диаграммы амплитуды (а) и фазы (б) АЭТ сигналов; \square — $T = 1,63$ К, $H = 0$; Δ — $T = 43$ К, $H = 1$ Тл, \bullet — $T = 1,63$ К, $H = 4$ Тл, φ — угол между плоскостью витков приемной антенны и направлением смещений в акустической волне, $\mathbf{H} \parallel C_4$.

оценок мы заменили образец CoF_2 монокристаллом Nb примерно такого же размера, исследованным ранее в [8]. В этом случае в магнитном поле компонента E_y описывается выражением

$$E_y = ik_c \left(\frac{k_0^2}{q^2 + k_0^2} \right) Bu_x, \quad (3)$$

где k_0^2 — квадрат скин-волнового числа, B — индукция, создаваемая внешним полем.

Для образца Nb модуль множителя в круглых скобках в (3) равен 0,9. Измеренная нами диэлектрическая проницаемость CoF_2 при направлении поля вдоль z (ось симметрии C_4) $\varepsilon \approx 4,8$. Исходя из аналогии с MnF_2 [15], можно ожидать $\varepsilon \sim 7$ для направлений поля в xy -плоскости, что для выражения в круглых скобках в (2) дает величину $\sim 0,7$.

Определено, что регистрируемая амплитуда АЭТ сигнала при совпадающих уровнях возбуждения становится сопоставимой с таковой для Nb при $H \approx 1$ Тл. Приравнявая (2) и (3), получаем $\Lambda_{y,xz}^u \approx 10^3$ эме/см³. Конечно, эта оценка приближенная, поскольку распределения ЭМП над диэлектриком и проводником отличаются. Тем не менее она близка к значению, получаемому при пересчете Λ^σ из [4] ($\Lambda_{y,xz}^u \approx 760$ эме/см³). Для этой оценки использовано измеренное нами значение $C_{44} = 3,79 \cdot 10^{11}$ дин/см² (см. ниже).

В заключение раздела отметим следующее. В свободном образце при понижении температуры ниже T_N соотношение объемов 180° -доменов должно было быть одинаковым, что привело бы к обнулению сигнала АЭТ при непринятии мер по монодоменизации. На самом деле во всех циклах охлаждения, как и в [4], сигналы практически полностью воспроизводились, что указывает на преимущественную ориентацию доменов одного знака. В принципе усилить степень монодоменности можно охлаждением образца в небольшом ($\sim 10^2$ Э) поперечном поле [16]. При точности ориентировки магнитного поля по отношению к оси C_4 порядка градуса к такому эффекту приведет охлаждение в достаточно сильном продольном поле. Однако эксперимент при прохождении через точку Нееля в поле $H = 4$ Тл с последующим его обнулением не привел к осязаемому увеличению АЭТ отклика. Возможно, это связано с тем, что спонтанно возникающие в CoF_2 домены обычно имеют большие размеры из-за большой энергии доменных стенок [16], и в зоне звукового пучка всегда преобладал один домен. При $T > T_N$ ПМ отклик отсутствует вследствие исчезновения дальнего антиферромагнитного порядка.

Таким образом, в отсутствие магнитного поля АЭТ эксперимент фактически подтвердил результаты статических измерений. Надо отметить, что используемый метод технически много проще использованного в [4] и хорошо подходит для изучения хрупких образцов. Кро-

ме того, он позволяет экспериментировать с тонкими образцами, имеющими субмиллиметровые толщины.

3. Акустоэлектрическая трансформация в магнитном поле

В магнитном поле ($\mathbf{H} \parallel \mathbf{q} \parallel \mathbf{z}$) появляется еще один канал генерации ЭМП поперечной упругой волной, существующий как в антиферромагнитной фазе, так и при температурах, значительно превышающих T_N , где отсутствует вклад обсуждавшегося в предыдущем разделе механизма. Последнее обстоятельство позволяет выяснить его свойства в чистом виде. На рис. 3 приведена поляризационная диаграмма для $T > T_N$ ($H = 1$ Тл, $T = 43$ К), из которой следует, что в этом случае мы имеем дело с полем E_y и, следовательно, с m_x -компонентой магнитного момента. Поскольку последняя также индуцируется упругой деформацией, этот процесс может быть отнесен к классу пьезомагнитных явлений.

Полевые зависимости амплитуды сигнала АЭТ при различных температурах в двойных логарифмических координатах приведены на рис. 4. При $T > T_N$ изменение $|E(H)|$, как это следует из наклона соответствующей прямой, подчиняется линейному закону. В антиферромагнитной фазе линейная зависимость просматривается только в области достаточно сильных полей ($H > 1$ Тл). Отклонение от линейности в меньших полях связано с тем, что в данном случае поле АЭТ представляет результат интерференции двух механизмов возбуждения ПМ отклика. Поляризационная диаграмма (рис. 3) при $H = 0$ имеет недостаточную глубину модуляции ($\sim 90\%$), что обусловлено, по-видимому, искажениями распределения ЭМП вследствие ограниченности размеров образца. Хотя зависимости, приведенные на рис. 4, измерялись при положении антенны, отвечающем минимуму АЭТ отклика в отсутствие поля ($\varphi = 90^\circ$), вклад последнего в области малых полей оказывается заметным. Очевидно, что ниже T_N при $H \neq 0$ возбуждаются одно-

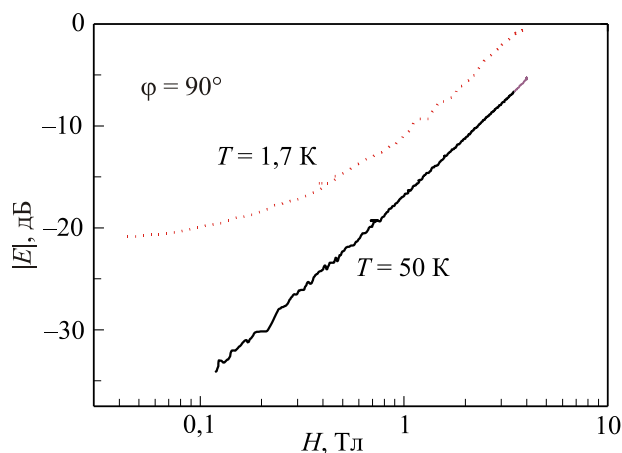


Рис. 4. Полевые зависимости амплитуд АЭТ сигналов.

временно как не зависящая от H компонента E_x , формируемая по сценарию, обсужденному в разд. 2, так и индуцируемая в присутствии H компонента E_y . Последняя по-прежнему изменяется с полем по линейному закону. Амплитуды двух компонент выравниваются в поле ~ 3 Тл.

Обратим внимание на поляризационную диаграмму, соответствующую сосуществованию обоих механизмов ПМ отклика (рис. 3). Модуляция амплитуды АЭТ значительно ослаблена, а зависимость фазы сигнала от угла поворота антенны приближается к линейной. Такое поведение возможно, если сдвиг фаз между E_x и E_y компонентами близок к $\pi/2$, т.е. излучаемое ЭМП эллиптически поляризовано.

Температурные зависимости логарифмических амплитуд сигналов АЭТ для разных полей представлены на рис. 5. Для $H \geq 1$ Тл амплитуда в T_N меняется непрерывно, но со скачком производной. В малых полях становится заметным также и скачок амплитуды вследствие вымерзания в точке перехода вклада компоненты E_x . При $T > 60$ К температурные зависимости представляют собой практически прямые линии. На вставке продемонстрировано качество такого представления. Выше 110 К подобное поведение, судя по данным рис. 1, по-видимому, сохраняется, однако для строгого доказательства этого необходимы дополнительные эксперименты с другим связующим. Таким образом, в достаточно широком температурном интервале ПМ отклик хорошо аппроксимируется экспонентой $\exp(-T/T_0)$ с $T_0 \sim 30$ К.

Можно думать, что появление ПМ отклика выше T_N связано с существованием при этих температурах антиферромагнитных корреляций, или, другими словами, ближнего порядка. Подобного рода эффекты наблюда-

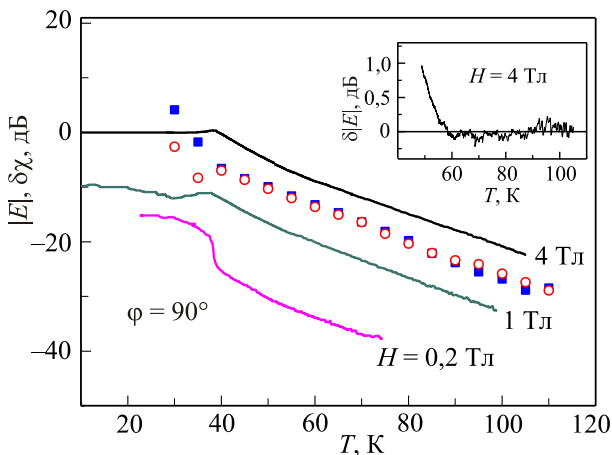


Рис. 5. Температурные зависимости амплитуд АЭТ сигналов и магнитной восприимчивости. Сплошные линии — АЭТ сигналы в разных полях, точки — $\delta\chi(T) = \chi_{CW} - \chi_{\parallel}$, $H = 0,01$ Тл (\circ), $H = 3$ Тл (\blacksquare). Вставка — разность между измеренной амплитудой АЭТ отклика и аппроксимирующей прямой.

лись ранее в CoF₂ при исследовании двулучепреломления [17] и температурного поведения решеточных постоянных [14]. Вклад ближнего порядка в этих экспериментах проявлялся как поправка к фоновому изменению изучаемого свойства, определяемому путем экстраполяции. В нашем случае ситуация принципиально иная — по крайней мере для $T \leq 110$ К вклад ближнего порядка определяется из первичных экспериментальных данных.

Можно сравнить проявление ближнего порядка в описываемых экспериментах с таковым в поведении магнитной восприимчивости χ_{\parallel} при $\mathbf{H} \parallel \mathbf{z}$ и $T > T_N$. Теоретический анализ показывает, что в рамках модели среднего поля восприимчивость высокосимметричных магнетиков в парафазе следует закону Кюри–Вейсса [18,19]. Любая попытка явно учесть взаимодействие между ближайшими соседями приводит к отклонениям от этого закона при подходе к T_N . Таким образом, можно считать, что отклонение экспериментально измеренных значений χ_{\parallel} от закона Кюри–Вейсса обусловлено в основном вкладом ближнего порядка.

Несмотря на то, что в общих чертах температурное поведение восприимчивости CoF₂ уже давно известно [20], мы не смогли найти в литературе подробные экспериментальные данные. В связи с этим была измерена зависимость $\chi_{\parallel}(T)$ с использованием некоммерческого СКВИД-магнитометра с разрешением по магнитному моменту $\sim 2 \cdot 10^{-7}$ эме в магнитных полях до 3 Тл. Результаты приведены на рис. 6. При $T > 150$ К восприимчивость достаточно хорошо подчиняется закону Кюри–Вейсса ($\chi_{CW} = C/(T + \Theta)$, $\Theta \approx 101$ К, $C = 0,039$ при $H = 3$ Тл), на что указывает разностная кривая (рис. 6, вставка). Отклонения, появляющиеся при приближении

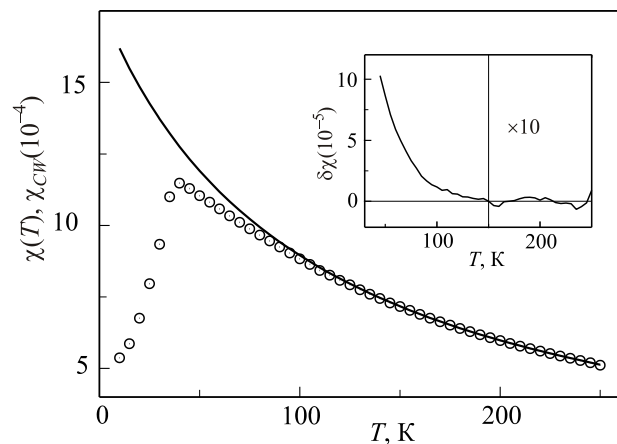


Рис. 6. Магнитная восприимчивость CoF₂. Точки — χ_{\parallel} , сплошная линия — закон Кюри–Вейсса χ_{CW} . Вставка — разностная кривая ($\delta\chi(T) = \chi_{CW} - \chi_{\parallel}$, $H = 3$ Тл), демонстрирующая отсутствие, в пределах точности измерений, систематических отклонений от закона Кюри–Вейсса в интервале 150–250 К (результаты представлены в растянутом масштабе).

к T_N , направлены в сторону уменьшения восприимчивости, т.е. они обусловлены именно антиферромагнитными корреляциями. Сами по себе такие отклонения обсуждались и ранее. Но мы сравнили их с АЭТ откликом, наложив отформатированные соответствующим образом результаты для $\delta\chi_{||}$ на рис. 5. Удивительно, но температурные изменения всех представленных на рис. 5 величин близки. Вряд ли такое совпадение случайно, т.е. как АЭТ отклик, так и $\delta\chi_{||}$ отражают вклад одного и того же физического процесса, развивающегося вследствие спиновых корреляций.

В заключение раздела кратко обсудим выводы, вытекающие из феноменологического анализа обсуждаемой ситуации. Поскольку индуцируемый звуком момент m_x линеен по приложенному магнитному полю, в термодинамическом потенциале должны быть удержаны только квадратичные по моментам слагаемые. Часть термодинамического потенциала, описывающую в нашем случае магнитоупругие свойства в предельно упрощенном виде, можно записать как [2]

$$\tilde{\Phi} = \frac{B}{2} \left(m_x + 0,5m_z \frac{du_x}{dz} \right)^2 + \lambda m_z m_x \frac{du_x}{dz} - 0,5H_z m_x \frac{du_x}{dz}. \quad (4)$$

В (4) мы опустили слагаемые, ответственные за слабый ферромагнетизм. Их учет никаких принципиальных изменений не вносит. Модификация в (4) первого и последнего (зеemanовского) слагаемых обусловлена тем, что сдвиговая деформация в лабораторной системе координат приводит к повороту решетки и связанных с ней анизотропным взаимодействием моментов [2]. Момент m_z можно заменить на $\chi_{||}H_z$. В результате, минимизируя $\tilde{\Phi}$, получаем

$$m_x = (\lambda\chi_{||}B^{-1}H_z + 0,5\chi_{||}H_z - 0,5B^{-1}H_z) \frac{du_x}{dz}. \quad (5)$$

Разрешая (1) с таким m_x , получаем АЭТ отклик (E_y), аналогичный (2) с заменой $\Lambda_{y,xz}^u$ на выражение в круглой скобке в (5). Как указывалось ранее, в антиферромагнитной фазе поля E_x и E_y уравниваются по амплитуде в поле $H_z \sim 3$ Тл, т.е., используя ранее измеренное значение $\Lambda_{y,xz}^u = 10^3$, получаем $\lambda\chi_{||}B^{-1} + \chi_{||} - 0,5B^{-1} \approx 3 \cdot 10^{-2}$. Ниже T_N значение $\chi_{||} \leq 10^{-3}$ эме/см³ ([20], см. также рис. 6), $B^{-1} \sim \chi_{\perp} \approx 3 \cdot 10^{-3}$ эме/см³ [20], поэтому вкладом второго и третьего слагаемых в (5) (т.е. учетом поворота решетки) можно пренебречь. Весь АЭТ отклик определяется лишь вторым слагаемым в (4).

На рис. 5 видно, что ниже T_N АЭТ отклик в достаточно больших полях от температуры практически не зависит, в то время как $\chi_{||}$ уменьшается примерно в два раза (рис. 6). При этих температурах χ_{\perp} также меняется слабо [20]. Согласовать такое поведение с (5) возможно, предположив, что коэффициент λ при $T < T_N$ имеет температурную зависимость, компенсирующую спад $\chi_{||}$.

4. Модули упругости CoF₂

В приведенных выше численных оценках пьезомагнитных коэффициентов существенно используется значение упругого модуля C_{44} исследуемого соединения. Мы не смогли воспользоваться имеющимися в литературе соответствующими данными для CoF₂, полученными при исследованиях неупругого рассеяния нейтронов [21] и мандельштам-бриллюеновского рассеяния света [5], из-за значительного (более чем в два раза) расхождения между ними. В связи с этим приводим результаты собственных акустических измерений упругих модулей, выполненных с использованием «нониусной» методики [22] на частотах ~ 54 МГц при азотной температуре. Характерные размеры акустических длин 1–1,5 мм (температурная дилатация не учитывалась), точность ориентации кристаллографических направлений $\sim 1^\circ$.

Значения скоростей звука s для актуальных кристаллографических направлений представлены в табл. 1.

Здесь $C' = 0,5(C_{11} + C_{12}) + C_{66}$, моды с нижним индексом «45» представляют скорости колебаний с волновой нормалью, параллельной биссектрисе угла между осями x и z (T — чистая поперечная мода с поляризацией, параллельной оси y , QT и QL — квазипоперечная и квазипродольная соответственно). Все значения измерены с точностью не хуже 0,5%.

Величины модулей упругости в сравнении с доступными литературными данными приведены в табл. 2. При их вычислении использована кристаллографическая плотность $\rho = 4,6$ г/см³ [14].

Недиагональные модули C_{12} и C_{13} можно находить из скоростей как квазипоперечной, так и квазипродольной мод — результат, естественно, должен быть один и тот же. Пользуясь табл. 1, легко видеть, что значения C_{12} , определенные из скоростей C_{11} – C_{12} и C' мод, в пределах точности измерений совпадают. Однако в случае C_{13} это не выполняется — в табл. 2 в

Таблица 1. Скорости звука в CoF₂

Мода	C_{11}	C_{33}	C_{44}	C_{66}	$C_{11}-C_{12}$	C'	C_{45}^T	C_{45}^{QT}	C_{45}^{QL}
$s, 10^5$ см/с	5,44	6,65	2,87	4,29	1,72	6,71	3,62	2,72	6,19

Таблица 2. Модули упругости CoF₂ (10¹¹ дин/см²)

C_{11}	C_{33}	C_{44}	C_{66}	C_{12}	C_{13}	T, K	Источник
13,6	20,3	3,79	8,46	12,2	9,9±0,1 (10±0,3)	77	Настоящая работа
13	19,6	3,5	8,5	9,5	9,2	293	[5]
31±2	48±3	10±1	–	–	–	80	[21]

шестом столбце в скобках приведено среднее значение модуля, полученное из скоростей C_{45}^{QT} и C_{45}^{QL} мод, а в качестве доверительного интервала использован разброс этих величин. Очевидно, последний превышает потенциальную точность измерений. Полагаем, причина этого связана с неточной ориентировкой соответствующего образца. При измерениях вдоль главных осей тензора модулей упругости (а также и вдоль оси [110]) поправки в вычисляемые модули квадратичны по углу отклонения от оси и при разумной точности ориентировки на результат не влияют. В случае же C_{13} отклонение α от 45° в xz -плоскости уже дает линейную поправку. В частности, скорость C_{45}^T моды в линейном по α приближении имеет вид

$$\rho s^2 = 0,5(C_{44} + C_{66}) + (C_{66} - C_{44})\alpha.$$

Используя данные приведенных выше таблиц, получаем оценку $\alpha \approx -0,02$, т.е. волновая нормаль в данном случае, по-видимому, была отклонена от биссектрисы в сторону оси x на угол $\sim 1,2^\circ$. Вводя эту поправку в вычисление C_{13} , получаем уточненное значение, приведенное в табл. 2. Доверительный интервал при этом по-прежнему отражает расхождение результатов при использовании для вычислений скоростей C_{45}^{QT} и C_{45}^{QL} мод и уже укладывается в рамки потенциальной точности.

Из анализа табл. 2 видно, что наши результаты практически совпадают с данными [5] с учетом температурных изменений и возможных отклонений закона дисперсии фононов от линейности. В то же время расхождение с результатами [21] не может быть объяснено какими-либо ошибками измерений, хотя соотношение между приведенными величинами близко к полученным в настоящей работе и в [5]. Такое впечатление, что авторы [21] при обработке эксперимента ошиблись в каком-то коэффициенте.

Заключение

С использованием метода акустоэлектрической трансформации изучены пьезомагнитные явления в монокристаллах CoF₂. В отсутствие постоянного магнитного поля полностью воспроизведены (в том числе и количественно) результаты прямых статических измерений [4]. При наложении поля вдоль оси легкого намагничивания появляется еще один канал возникновения пьезомагнитного отклика. При этом индуцируемый упругой деформацией магнитный момент ориен-

тирован параллельно направлению смещения в поперечной акустической волне. Эффект существует как в антиферромагнитной фазе, так и при температурах, значительно превышающих T_N . В последнем случае амплитуда пьезомагнитного отклика экспоненциально спадает с повышением температуры. Аналогичная зависимость отмечена и в поведении магнитной восприимчивости. Эти наблюдения — главный результат работы. С высокой точностью измерены скорости звука вдоль главных кристаллографических направлений и вычислены все компоненты тензора упругих модулей монокристалла CoF₂.

1. V.D. Fil, D.V. Fil, K.R. Zhekov, T.N. Gaydamak, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, D.A. Chareev, and A.N. Vasiliev, *Europhys. Lett.* **103**, 47009 (2013).
2. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, Москва (1982).
3. И.Е. Дзялошинский, *ЖЭТФ* **33**, 564 (1957).
4. А.С. Боровик-Романов, *ЖЭТФ* **38**, 1088 (1960).
5. Yu.A. Popkov and V.I. Fomin, in: *Light Scattering in Solids* M. Balkanski (ed.), Paris: Flammarion (1971), p. 502.
6. *Акустические кристаллы*, М.П. Шаскольская (ред.), Наука, Москва (1982).
7. В.Д. Филь, *ФНТ* **27**, 1347 (2001) [*Low Temp. Phys.* **27**, 993 (2001)].
8. V.D. Fil, D.V. Fil, A.N. Zholobenko, N.G. Burma, Yu.A. Avramenko, J.D. Kim, S.M. Choi, and S.I. Lee, *Europhys. Lett.* **76**, 484 (2006).
9. А.Н. Васильев, Ю.И. Гайдуков, *УФН* **141**, 431 (1983).
10. В.Д. Бучельников, Ю.А. Никишин, *Вестник Челябинского университета* **1**, 90 (1998).
11. В.Д. Бучельников, А.Н. Васильев, *УФН* **162**, 89 (1992).
12. A.S. Borovik-Romanov and H. Grimmer, *International Tables for Crystallography*, Vol. D: *Physical Properties of Crystals*, A. Authier (ed.), Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Boston, London (2003), Ch. 1.5: *Magnetic properties*.
13. Е.А. Туров, А.В. Колчанов, В.В. Меньшенин, И.Ф. Мирсаев, В.В. Николаев, *Симметрия и физические свойства антиферромагнетиков*, Физматлит, Москва (2001).
14. Tapan Chatterji, Bachir Ouladdiaf, and Thomas C. Hansen, *J. Phys.: Condens. Matter* **22**, 096001 (2010).
15. R. Schleck, Y. Nahas, R.P.S.M. Lobo, J. Varignon, M.B. Lepetit, C.S. Nelson, and R.L. Moreira, *Phys. Rev. B* **82**, 054412 (2010).
16. А.В. Бибик, Н.Ф. Харченко, С.В. Петров, *ФНТ* **15**, 1280 (1989) [*Sov. J. Low Temp. Phys.* **15**, 707 (1989)].

17. А.С. Боровик-Романов, Н.М. Крейнс, А.А. Панков, М.А. Талалаев, *ЖЭТФ* **61**, 1762 (1973).
18. Дж. Смарт, *Эффективное поле в теории магнетизма*, Мир, Москва (1968).
19. М.Е. Lines, *Phys. Rev.* **137**, A982 (1965).
20. S. Foner, *Int. Conf. on Magnetism*, Nottingham (1964), p. 438.
21. P. Martel, R.A. Cowley, and R.W.H. Stewenson, *Canad. J. Phys.* **46**, 1355 (1968).
22. Е.А. Масалитин, В.Д. Филь, К.Р. Жеков, А.Н. Жолобенко, Т.В. Игнатова, S.I. Lee, *ФНТ* **29**, 93 (2003) [*Low Temp. Phys.* **29**, 72 (2003)].

Acoustopiezomagnetism and modulus
of elasticity of CoF₂

T.N. Gaydamak, G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov,
I.V. Bilich, V.A. Desnenko,
N.F. Kharchenko, and V.D. Fil

Piezomagnetic response of CoF₂ single crystals has been studied using acoustic oscillations at frequencies of ~ 55 MHz. In the absence of external magnetic field

the results reproduce the data of direct static measurements. In the magnetic field there appears an additional channel of the piezomagnetic response linear in field strength. The efficiencies of both channels are comparable in the antiferromagnetic state at $H \sim 3$ T. The mechanism of the first channel disappears above the Néel temperature, and the piezomagnetic response, related to the new channel, reveals a decay, well approximated by the exponential law. The sound velocities for different crystallographic directions have been measured and the components of the tensor of elastic moduli have been calculated.

PACS: 74.25.Ld Mechanical and acoustical properties, elasticity, and ultrasonic attenuation;
75.50.Ee Antiferromagnetics;
75.80.+q Magnetomechanical effects, magnetostriction.

Keywords: piezomagnetism, acoustoelectric transformation, modulus of elasticity.