Проявление базисной анизотропии и механических граничных условий в магнитном двупреломлении звука в гематите

© И.Ш. Ахмадуллин, С.А. Мигачев, М.Ф. Садыков, М.М. Шакирзянов

Казанский физико-технический институт им. Е.К. Завойского Российской академии наук, 420029 Казань, Россия

E-mail: shakirzyanov@kfti.knc.ru

(Поступила в Редакцию 8 июля 2004 г.)

Изложены результаты экспериментального изучения угловой зависимости эффекта магнитного двупреломления звука в гематите от направления магнитного поля, приложенного в базисной плоскости кристалла. При комнатных температурах обнаружена гексагональная и одноосная анизотропия положения кривой магнитоакустических осцилляций в магнитном поле — кривой осцилляционной зависимости амплитуды прошедшей через кристалл акустической волны от величины поля. Показано, что гексагональная анизотропия обусловлена базисной анизотропией высших порядков. Появление одноосной магнитной анизотропии в базисной плоскости объясняется существованием механических напряжений на границах образца, возникающих при приклеивании к ним пьезопреобразователей. Наблюдаемое изменение направления оси одноосной анизотропии при изменении граничных условий подтверждает данное предположение.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 04-02-16025).

1. В работе авторов [1] сообщалось об экспериментальном наблюдении эффекта магнитного двупреломления (ДП) поперечного звука, распространяющегося вдоль трудной оси С3 в легкоплоскостном антиферромагнетике (ЛПАФ) *α*-Fe₂O₃. В соответствии с выводами теории ДП [2] были обнаружены осцилляции амплитуды прошедшего через образец звука, зависящие от величины магнитного поля Н (магнитоакустические (МА) осцилляции), а также преобразование поляризации звука из линейной на входе в эллиптическую на выходе из образца. Природа этого явления связана со снятием вырождения спектра поперечных волн с волновым вектором **k** || **C**₃ магнитоупругим (МУ) взаимодействием [3]. При распространении звука вдоль оси С₃ лишь одна из двух нормальных мод поперечных колебаний эффективно взаимодействует с магнитной подсистемой, а именно с колебаниями вектора антиферромагнетизма L в плоскости базиса. Эти колебания соответствуют низкочастотной квазиферромагнитной ветви спиновых волн в двухподрешеточных ЛПАФ, к которым относится и гематит (*α*-Fe₂O₃) [2,3]. Вследствие перенормировки модулей упругости из-за МУ-связи скорость взаимодействующей моды (МУ-моды) становится отличной от скорости невзаимодействующей моды и зависящей от магнитного поля Н (в силу зависимости частоты АФМР ω_{f0} от **H**). Это приводит к сдвигу фаз между нормальными модами поперечных колебаний $\Delta \varphi(H)$, величина которого на выходе из образца длиной d в направлении распространения определяется выражением $\Delta \varphi(H) = \Delta k d/2$, где $\Delta k(H)$ — разность волновых векторов этих мод. Амплитуда результирующей волны на выходе оказывается таким образом осциллирующей функцией, зависящей от величины магнитного поля [1,2]. При исследовании угловой зависимости эффекта ДП было обнаружено, что положение кривых МА-осцилляций в магнитном поле существенно зависит от его направления в базисной плоскости [1]. Наблюдалась 60° периодическая зависимость, которую удается объяснить при учете полей базисной анизотропии четвертого и шестого порядков. При этом на гексагональную зависимость накладывается 180° угловая зависимость, указывающая на существование в базисной плоскости значительной одноосной магнитной анизотропии. Однако появление такой анизотропии не следует из соображений кристаллохимической или магнитной анизотропии [4] и может быть обусловлено дополнительными магнитострикционными полями [5,6]. В наших экспериментах наиболее вероятны две причины возникновения таких полей. Одна из них — остаточные напряжения в неотожженных образцах, которые выпиливались из монокристаллической були, выращенной вдоль одной из осей второго порядка в плоскости базиса. Вторая причина — механические напряжения, возникающие в образце в результате приклеивания к торцам образца, параллельным базисной плоскости, с двух сторон пьезопреобразователей [5,6]. Причем неоднородные деформации, обусловленные этими напряжениями, могут быть, согласно [5,6], сравнимы с величиной спонтанной стрикции в гематите [7]. Для выяснения причин возникновения периодических закономерностей в угловой зависимости эффектов ДП звука были проведены новые эксперименты в отожженных образцах гематита, результаты которых обсуждаются в данной работе.

2. В экспериментах измерялась зависимость амплитуды прошедшей через образец гематита поперечной ультразвуковой волны ($\mathbf{k} \parallel \mathbf{C}_3$) с частотой $f \cong 91 \text{ MHz}$ от величины и направления магнитного поля, приложенного в базисной плоскости, перпендикулярной оси \mathbf{C}_3 кристалла. Методика измерений и требования к образцам подробно изложены в [1]. Отметим лишь, что эллиптичность волны на выходе позволяет располагать поляризации излучающего и принимающего пьезопре-

образователей на плоскопараллельных границах образца под любым углом друг к другу. Наиболее удобно (прежде всего для сравнения с теорией), если они расположены либо параллельно, либо перпендикулярно друг другу [1]. Далее приводятся результаты измерений при их ортогональной ориентации для двух различных направлений поляризации входного пьезопреобразователя (излучателя). В первом случае направление поляризации излучателя составило угол $\xi = 30^{\circ}$ с выделенной осью второго порядка C_2 (ось роста монокристаллической були), во втором случае угол ξ между ними равнялся 120°. Соответствующим образом приклеивались и приемные преобразователи.

Измерения проводились при комнатной температуре в интервале магнитных полей $3 \le H \le 20$ kOe, приложенных в базисной легкой плоскости образца. Образец вращался в магнитном поле, направление поля в базисной плоскости определялось углом φ_H , отсчитываемым от той же выделенной оси второго порядка C₂. Процедура отжига монокристаллов была стандартной и выполнялась в воздушной атмосфере по следующей схеме: в течение 3 h температура равномерно поднималась до температуры отжига, равной 1100°C; далее в течение 6 h проводился отжиг при этой температуре. Время остывания до комнатной температуры в печи составляло 20 h.

На рис. 1 представлены экспериментальные кривые МА-осцилляций $A_{\perp}(H)$ в этих образцах при $\varphi_{H} = 0$ для обеих ориентаций преобразователей (сплошная линия соответствует расположению излучателя с $\xi \cong 30^\circ$, крестиками обозначена кривая, полученная при $\xi \cong 120^{\circ}$). На рис. 2 показана зависимость величины магнитного поля $\Delta H_m^{(n)}(\varphi_H) = H_m^{(n)}(\varphi_H) - H_m^{(n)}(0)$, при котором наблюдается максимум (под номером n) кривой $A_{\perp}(H)$, от его направления для обеих ориентаций излучателя. Как видно из рис. 2, величина $\Delta H_m^{(n)}(\varphi_H)$ в обоих случаях $(\xi = 30, 120^{\circ})$ является периодической функцией с периодом 60° , на которую в свою очередь наложена 180° анизотропия значительной амплитуды. При сравнении рис. 2, а и b (точки) четко прослеживается поворот оси этой анизотропии на 90°. Необходимо заметить, что результаты экспериментов в отожженных образцах, полученные при ориентации излучателя, когда угол



Рис. 1. Осцилляции амплитуды прошедшего звука в зависимости от величины поля H ($\varphi_H \cong 0$). Сплошная линия получена при $\xi \cong 30^\circ$ ($\varphi_0 \cong 30^\circ$), крестиками обозначены результаты при $\xi \cong 120^\circ$ ($\varphi_0 \cong 120^\circ$).



Рис. 2. Угловая зависимость положения кривой МА-осцилляций от направления магнитного поля в базисной плоскости. $a - \xi \cong 30^\circ, b - \xi \cong 120^\circ$. Сплошные линии — аппроксимация функциями вида (2).

 $\xi \cong 30^{\circ}$, очень незначительно отличаются от данных для неотожженных образцов при тех же условиях [1], которые во избежание загромождения рисунков здесь не приводятся. Таким образом, можно предположить, что остаточные деформации, связанные с ростом моно-кристаллов, малы по сравнению с деформациями, обусловленными спонтанной стрикцией, и что наблюдаемая одноосная анизотропия в базисной плоскости связана с граничными условиями [6].

3. Наблюдаемые в эксперименте МА-осцилляции (рис. 1) описываются соответствующим выражением, полученным в [2] (в относительных единицах),

$$A_{\perp}(H) = \sqrt{\sin^2(2\varphi_0)\sin^2(\Delta k(H)d/2)},$$
 (1)

где φ_0 — угол между направлением поляризации возбуждаемой волны и направлением поляризации нормальной (поперечной) МУ-моды. Выражение (1) позволяет получить лишь качественное согласие, тогда как в количественном отношении имеются существенные различия между теорией и экспериментом. Аналогичная картина наблюдается и в других ЛПАФ, таких как MnCO₃ [8], FeBO₃ [9]. Возможные причины отсутствия хорошего количественного согласия подробно обсуждаются в [10]. Одна из теоретических моделей, позволяющих согласовать экспериментальные и расчетные зависимости A_{\perp} от величины поля H, рассмотрена в работе [6].

Экспериментальная угловая зависимость $\Delta H_m^{(n)}(\varphi_H) = H_m^{(n)}(\varphi_H) - H_m^{(n)}(0)$ положения максимумов кривой $A_{\perp}(H)$ в магнитном поле (очевидно, это относится и к любой другой точке кривой МА-осцилляций) достаточно хорошо аппроксимируется функцией

$$\Delta H_m^{(n)}(\varphi_H) \equiv \Delta H_m^{(n)} \cong \beta \cos 2(2\varphi_H - \alpha) + \chi \cos(6\varphi_H), \quad (2)$$

которая может быть объяснена из следующих соображений. Согласно (1), амплитуда звука на выходе из образца

максимальна при выполнении условия

$$\Delta k(H_m^{(n)}) = \pi (2n+1)/2, \quad H_m^{(n)} \equiv H_m^{(n)}(\varphi_H).$$
(3)

Разность волновых векторов $\Delta k(H_m^{(n)})$ в случае используемых в эксперименте достаточно больших полей, при которых выполняется неравенство $\Delta k/k \ll 1$, можно приближенно записать в виде [2]

$$\Delta k(H_m^{(n)}) \approx k \frac{\Delta}{\omega_{f0}^2(H_m^{(n)})}, \quad \Delta = \frac{H_E(2B_{14})^2}{M_0 C_{44}},$$
$$k = 2\pi f / V_\eta, \quad V_\eta = C_{44} / \rho, \tag{4}$$

где V_{η} — скорость невзаимодействующей моды, C_{44} — модуль упругости, ρ — плотность кристалла, B_{14} — компонента тензора МУ-связи, H_E — обменное поле, M_0 — равновесная намагниченность подрешеток. Частота АФМР квазиферромагнитной моды ω_{f0} при учете предполагаемой одноосной анизотропии и базисной анизотропии четвертого и шестого порядков имеет вид [5,11]

$$\omega_{f0}^{2}(H_{m}^{(n)}) = \gamma^{-2} \Big\{ H_{m}^{(n)} \left(H_{m}^{(n)} + H_{D} \right) + 2H_{E}H_{ms}^{0} + 2H_{E}H_{p} \cos 2(\theta - \varphi_{H}) + 36H_{E}H_{a} \cos 6\varphi_{H} \Big\}.$$
 (5)

Из выражений (4) и (5) видно, что величина магнитного поля $H_m^{(n)}$, при которой выполняется условие (3), является сложной периодической функцией угла φ_H .

В выражение (5) входят следующие магнитные поля: *H_D* — поле Дзялошинского, $H_{ms}^{(0)}$ — изотропная часть поля спонтанной магнитострикции, H_a — эффективное поле базисной анизотропии высших порядков [4], H_p магнитострикционное поле, обусловленное деформациями, возникающими в результате действия какой-либо внешней силы, приложенной в базисной плоскости под углом θ к выделенной оси второго порядка C₂ [5,11]. Такой силой является, например, давление, приложенное в плоскости базиса, влияние которого на частоту АФМР ω_{f0} подробно излучалось в [15]. В рассматриваемом случае, следуя выводам работы [6], можно предположить, что неравное нулю дополнительное магнитострикционное поле Н_p в базисной плоскости обусловлено механическими граничными условиями. Эти условия возникают в результате приклеивания к торцевым поверхностям образца, параллельным базисной плоскости, пьезопреобразователей с сильной анизотропией коэффициента теплового расширения (Х-срез ниобата лития). При затвердевании склейки (эпоксидная смола), происходящем с выделением тепла, возникает сильное растяжение пластинки преобразователя в выделенном направлении в плоскости среза, что и приводит к неоднородным механическим напряжениям на границах. Эти напряжения, как и создаваемые ими магнитострикционные поля, будут обладать осевой симметрией, направление оси которой, очевидно, определяется направлением максимального растяжения пьезодатчика. Наблюдаемое в эксперименте изменение фазы одноосной анизотропии на 90° при переклеивании обоих пьезопреобразователей с разворотом направления векторов поляризации на угол 90°, на наш взгляд, подтверждает данное предположение.

Из изложенного выше следует, что параметры α , β , χ, входящие в выражение (2) для аппроксимирующей функции $\Delta H_m^{(n)}$, определяются следующими факторами: $\hat{\beta}$ — магнитострикционным полем H_p внешних напряжений, угол α — ориентацией оси X в плоскости среза пьезодатчиков относительно оси С2 образца в плоскости базиса, χ — магнитным полем гексагональной базисной анизотропии На. Экспериментальные зависимости на рис. 2 описываются функциями вида (2) со следующими параметрами: для рис. 2, $a \beta \approx 0.5$, $\chi \approx 0.8$, $\alpha \approx 17^{\circ}$; для рис. 2, $b \ \beta \cong 0.5$, $\chi \cong 0.8$, $\alpha \cong 105^{\circ}$ (сплошные линии). Как видно из рис. 2, b, аппроксимирующая функция удовлетворительно характеризует экспериментальную кривую. В то же время она полностью соответствует изменению оси анизотропии на 90° при изменении граничных условий и хорошо описывает общий ход наблюдаемой зависимости. На основании экспериментальных данных можно оценить обменно-усиленные значения этих полей, которые в наших образцах приближенно равны $\sqrt{36H_EH_a} \approx 4.6$ kOe и $\sqrt{2H_EH_p} \approx 1.8$ kOe. Величина поля базисной анизотропии сравнима с литературными данными [4].

В заключение отметим, что обнаруженная угловая зависимость эффекта ДП поперечного звука в ЛПАФ определяется распределением в плоскости базиса довольно слабых магнитных полей. Это демонстрирует высокую чувствительность ультразвуковых методов и возможность их использования для изучения не только упругих и магнитоупругих, но и чисто магнитных свойств сильных магнетиков.

Список литературы

- И.Ш. Ахмадуллин, С.А. Мигачев, М.Ф. Садыков, М.М. Шакирзянов. ФТТ 46, 2, 305 (2004).
- [2] Е.А. Туров. ЖЭТФ 96, 6(12), 2140 (1989).
- [3] В.И. Ожогин, В.Л. Преображенский. УФН 155, 4, 593 (1988).
- [4] Е.А. Туров, А.В. Колчанов, В.В. Меньшиков, И.Ф. Мирсаев, В.В. Николаев. Симметрия и физические свойства антиферромагнетиков. Физматлит, М. (2001). 559 с.
- [5] А.С. Боровик-Романов, Е.Г. Рудашевский. ЖЭТФ 47, 6(12), 2095 (1964).
- [6] Ю.Н. Мицай, К.М. Скибинский, М.Б. Стругацкий, В.В. Тараканов. ФТТ **39**, *5*, 901 (1997).
- [7] M.A. Urguhart, J.E. Goldman. Phys. Rev. 101, 5, 1443 (1956).
- [8] В.Р. Гакель. Письма в ЖЭТФ 9, 5, 590 (1969).
- [9] А.П. Королюк, В.В. Тараканов, В.И. Хижный. ФНТ 22, 8, 924 (1996).
- [10] Е.А. Туров, И.Ф. Мирсаев, В.В. Николаев. УФН 172, 2, 193 (2002).
- [11] Е.А. Туров, В.Г. Шавров. ФТТ 7, 1, 217 (1965).