

**НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ
ФІЗИКО-ТЕХНІЧНИЙ ІНСТИТУТ НИЗЬКИХ ТЕМПЕРАТУР
імені Б. І. Веркіна**

**НАЦІОНАЛЬНА АКАДЕМІЯ НАУК УКРАЇНИ
ФІЗИКО-ТЕХНІЧНИЙ ІНСТИТУТ НИЗЬКИХ ТЕМПЕРАТУР
імені Б. І. Веркіна**

Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису

ГАЙДАМАК ТЕТЯНА МИКОЛАЇВНА

УДК 538.9

ДИСЕРТАЦІЯ

**ПРУЖНІ ХАРАКТЕРИСТИКИ FeSe , $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$, $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$
ТА АКУСТОЕЛЕКТРИЧНА ТРАНСФОРМАЦІЯ В НИХ**

01.04.07 - фізика твердого тіла

Подається на здобуття наукового ступеня
кандидата фізико-математичних наук

Дисертація містить результати власних досліджень. Використання ідей, результатів і текстів інших авторів мають посилання на відповідне джерело _____ Гайдамак Т.М.
(підпис здобувача)

**Науковий керівник: Філь Вячеслав Дмитрович,
доктор фізико-математичних наук, професор
головний науковий співробітник**

Харків – 2019

АНОТАЦІЯ

Гайдамак Т.М. Пружні характеристики FeSe, SmFe₃(BO₃)₄, NdFe₃(BO₃)₄ та акустoeлектрична трансформація в них. – Кваліфікаційна наукова праця на правах рукопису.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізико-математичних наук за спеціальністю 01.04.07 – фізика твердого тіла. – Фізико-технічний інститут низьких температур імені Б. І. Веркіна НАН України, Харків, 2019.

Дисертаційна робота присвячена встановленню особливостей низькотемпературної поведінки швидкостей і поглинання звуку, механізмів акустoeлектромагнітної та акустoeлектричної трансформацій в монокристалах FeSe, SmFe₃(BO₃)₄ та NdFe₃(BO₃)₄.

У **вступі** коротко обґрунтована актуальність теми дисертаційної роботи та її зв'язок з науковими темами. Визначено мету та основні завдання досліджень, об'єкти, предмет і методи досліджень. Сформульована та викладена наукова новизна і практична значимість отриманих результатів, наведено, дані про особистий внесок дисертантки, апробацію роботи та публікації за темою дисертації. Також наведено інформацію про структуру та обсяг дисертаційної роботи.

Перший розділ «Огляд літератури» присвячено стислому огляду актуальних статей та оглядів за темою дисертації.

Другий розділ «Методика експерименту» дає опис експериментальної установки. Усі експерименти були проведені на установці, що являє собою мостову схему й працює в імпульсному режимі на частотах ~ 55 МГц. Установка дозволяє вимірювати швидкість звуку, діелектричну проникність, та досліджувати акустoeлектромагнітну (АЕМТ) та акустoeлектричну (АЕТ) трансформації. Температурні (в діапазоні 1,7 – 300 К) та магнітопольові (магнітне поле до 5 Тл) залежності вказаних характеристик досліджуваних сполук записуються в режимі реального часу.

У **третьому розділі «Акустичні характеристики та акустoeлектромагнітна трансформація в FeSe»** визначено всі компоненти

тензора модулів пружності монокристалів FeSe, виявлено значне пом'якшення C_{11} та $(C_{11} - C_{12})$ мод при структурному перетворенні. Вивчено вплив надпровідного переходу на швидкість і затухання звукового сигналу, що виявився значним. Оцінена величина надпровідної енергетичної щільності.

Досліджено процес акустоелектромагнітної трансформації в монокристалах FeSe. За відсутності постійного магнітного поля під впливом ультразвуку з'являється високочастотний магнітний відгук, що частково зберігається і в надпровідному стані. Ефект кваліфікований як п'єзомагнетизм. Припускається, що в надпровіднику еволюція сигналу акустоелектромагнітної трансформації визначається зміною лондоновської глибини проникнення $\lambda_L(T)$.

У четвертому розділі «Дослідження акустичних характеристик та акустоелектромагнітної трансформації в CoF_2 »

правомочність застосування методики акустоелектромагнітної трансформації (АЕМТ) при дослідженні п'єзомагнетизму була підтверджена на прикладі класичного п'єзомагнетика CoF_2 . Оцінка величини параметру п'єзомагнітних взаємодій виявилася близькою до відомого для цієї сполуки значення. При наведенні поля уздовж осі легкого намагнічення з'являється новий канал виникнення п'єзомагнітних відгуків. При цьому індукований пружною деформацією магнітний момент орієнтований паралельно напрямку зсуву в поперечній акустичній хвилі. Ефект існує як в антиферомагнітній фазі, так і при температурах, які значно перевищують T_N . В останньому випадку амплітуда п'єзомагнітного відгуку експоненційно спадає з підвищенням температури, слідуючи, очевидно, зміни числа антиферомагнітного скоррелірованих спінів. Аналогічна залежність відзначена також і у відхиленні сприйнятливості парамагнітної фази від закону Кюрі-Вейсса.

У п'ятому розділі «Пружні та п'єзоелектричні характеристики фероборатів самарію та неодиму» досліджено пружні характеристики та акустоелектричну трансформацію двох легкоплотинних представників сімейства рідкісноземельних фероборатів. У парамагнітному стані виміряні швидкості звуку в монокристалах неодимового та самарієвого фероборатів для набору напрямків,

достатнього для відновлення елементів тензорів пружних та п'єзоелектричних модулів. Пружна система характеризується підвищеною жорсткістю в базовій площині по відношенню до деформацій розтягу – стиску. Інтенсивність п'єзоелектричного взаємодії досить висока, п'єзоелектричні модулі на порядок перевищують відповідні величини для сімморфного цим сполукам α -кварцу.

Вивчено вплив антиферомагнітного впорядкування на акустоелектричні характеристики самарієвого фероборату. Виявлено гігантський магнітоп'єзоелектричний ефект (МПЕ) – аномально велике зростання ефективного п'єзомодуля нижче температури Нееля й пригнічення цього зростання магнітним полем. Природа ефекту – спільний внесок магнітоелектричної та магнітопружної взаємодій і еволюція цього вкладу під впливом магнітного поля H в процесі спінової перебудови. Ідейно магнітоп'єзоелектричний ефект близький до вже відомого на момент проведення досліджень магнітодіелектричного ефекту (МЕ), для якого в даній роботі отримані додаткові дані по його залежності від орієнтації H в базисній площині. Виписано феноменологічні співвідношення, що дозволяють пояснити поведінку в антиферомагнітній фазі ефективного п'єзомодуля та швидкості звуку. При певній геометрії експерименту, навіть в глибоко розвиненій спін-флоп фазі, зовнішні поля (пружне й електричне) модулюють взаємну орієнтацію векторів L і H . Вимірювання в цій геометрії дозволили відновити числові значення і температурні залежності ряду феноменологічних параметрів, що входять в розкладання термодинамічного потенціалу.

Досліджено також МПЕ й МЕ ефекти в монокристалічних зразках $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$. Незважаючи на менший масштаб, істотних якісних відмінностей від самарієвого фероборату не виявлено. Встановлено, що константа магнітопружного зв'язку нижче температури Нееля змінює знак. У присутності магнітного поля температурна поведінка МЕ і МПЕ даних демонструє стрибкоподібні зміни, пов'язані з переходом від спіральної до спін-флоп фази. Цей перехід носить ознаки фазового перетворення I роду. Знайдено межі існування спіральної фази на H, T площині. Вимірювання в спін-флоп стані показали, що

для оптимальної геометрії експерименту амплітуди обговорюваних ефектів спадають, як H^2 . Оцінено співвідношення вкладів неодимової та залізної підсистем в явища, що спотерігалися. Показано, що магнітна система заліза відіграє роль баласту, гальмуючого розвиток МЕ й МПЕ ефектів. Магнітопольові залежності швидкості звуку продемонстрували існування нового спін - залежного явища – пряме перенормування константи п'єзоелектричного зв'язку в магнітовпорядкованому стані.

Ключові слова: залізовмісні надпровідники, фероборати, антиферомагнетизм, п'єзоефект, швидкість звуку, модулі пружності.

ABSTRACT

Gaydamak T.N. Elastic characteristics of FeSe, SmFe₃(BO₃)₄, NdFe₃(BO₃)₄ and acoustoelectric transformation in them. – Manuscript.

Thesis for the candidate's degree in physics and mathematics by speciality 01.04.07 – solid state physics. – B. I. Verkin Institute for Low Temperature Physics and Engineering, NAS of Ukraine, Kharkiv, 2019.

The thesis is devoted to investigation of: sound velocities behavior at low temperatures, determination of the elastic modulus tensor components and research of the mechanisms of acoustoelectromagnetic and acoustoelectric transformations in FeSe, SmFe₃(BO₃)₄ and NdFe₃(BO₃)₄ single crystals.

In the **introduction** the dissertation topic and its relevance to scientific topics is briefly substantiated. The research purpose and main tasks, objects, subject and methods are determined. Also formulated: the scientific novelty and practical value of the obtained results, the data on the applicant's personal contribution, the dissertation approbation and the publications. The information on the structure and volume of dissertation is provided.

The first chapter “The review of literature data” is devoted to a brief overview of current articles and reviews on the dissertation's topic.

The second chapter “Experimental technique” gives the experimental setup description. All the experiments were carried out on the setup, which is a bridge scheme and it works in a pulsed mode at frequencies ~ 55 MHz. The installation allows to measure sound velocities, dielectric permittivity, and to investigate acoustoelectromagnetic (AEMT) and acoustoelectric (AET) transformations. Temperature (in the range of 1.7 – 300 K) and magnetic (magnetic field up to 5 T) dependencies of named characteristics of the investigated compounds are recorded in real time mode.

In the third chapter “Acoustic characteristics and acoustoelectromagnetic transformation in FeSe” all the components of elasticity tensor modulus for FeSe single crystals were determined, significant C_{11} and $(C_{11} - C_{12})$ modes softening was revealed under the structural transformation. The superconducting transition influence on velocity and attenuation of a sound signal was studied, and it is appeared to be significant for C_{11} - mode. The superconducting energy gap value was estimated. The process of acoustoelectromagnetic transformation in FeSe single crystals is studied. In the absence of magnetic field under the ultrasound influence a high-frequency magnetic response appears, which is partly preserved in superconducting state. The effect is qualified as piezomagnetism. It is assumed that in a superconductor the acoustoelectromagnetic transformation signal evolution is determined by the London penetration depth $\lambda_L(T)$ change.

In the fourth chapter “Investigation of acoustic characteristics and acoustoelectromagnetic transformation in CoF₂” the validity of the acoustoelectromagnetic transformation (AEMT) method application in piezomagnetism study of was confirmed by the example of classical piezomagnetic CoF₂. The evaluation of the piezomagnetic interaction parameter magnitude turned out to be close to the known value for the compound. In the field along C_4 , a new piezomagnetic response channel appears. In this case, induced by elastic deformation magnetic moment is oriented parallel to the displacement direction in the transverse acoustic wave. The effect exists both in the antiferromagnetic phase and at temperatures much higher than T_N . In the latter case, the piezomagnetic response amplitude exponentially decreases

with temperature increasing, following, probably, changing the number of antiferromagnetic correlated spins. The similar dependence is also revealed with susceptibility deviation from the Curie-Weiss law.

In the fifth chapter “Elastic and piezoelectric properties of samarium and neodymium ferrobates” is devoted to investigation of elastic characteristics and acoustoelectric transformation of two easy-plane rare-earth family representatives. Sound velocities in neodymium and samarium ferrobates single crystals were measured in paramagnetic state. The set of directions was sufficient to restore tensor elements of elastic and piezoelectric moduli. The elastic system is characterized by increased rigidity in the base plane in relation to extension-contraction deformation. The piezoelectric interaction intensity is quite high, piezoelectric moduli are an order of magnitude higher than the corresponding ones for symmorphic to those compounds α -quartz.

The influence of antiferromagnetic ordering on the acoustoelectric characteristics of samarium ferrobate has been studied. The giant magnetopiezoelectric effect (MPE) has been revealed more than double growth of the effective piezomodulus in the antiferromagnetic phase and its reduction by the high magnetic field. The nature of the effect is in the joint contribution of both magnetoelectric and magnetoelastic interactions. The nature magnetopiezoelectric effect is close to the magnetodielectric effect (ME) which was already known during the study. In the paper, additional data on ME were obtained on its dependence of H orientation in the basal plane. Phenomenological relations are presented, they explain the effective piezomodulus and sound velocity behavior in antiferromagnetic phase. With a certain experiment's geometry, even in a deeply developed spin-flop phase, the external fields (elastic and electric) modulate the mutual orientation of L and H .vectors. Measurements in the geometry allowed to restore the numerical values and temperature dependences of a number of phenomenological parameters included in the thermodynamic potential expansion.

MPE and ME effects are studied in $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ single crystals. Despite the smaller scale, there were no significant qualitative differences from the samarium

ferroborate. It is established that the magnetoelastic constant changes its sign below Neel temperature. In a magnetic field, ME and MPE temperature behavior shows jump-like changes associated with the transition from a spiral to a spin-flop phase. The transition has first-order phase transition signs. The boundaries of the spiral phase existence in H, T plane are determined. Measurements in the spin-flop state have shown that for the optimal experiment geometry the amplitudes of the discussed effects are decreases as H^{-2} . The ratio of neodymium and iron subsystems contribution to the observed phenomena was estimated. It is shown that the magnetic system of iron plays the ballast role, inhibiting the development of ME and MPE effects. Magnetofield dependences of sound velocities demonstrated existence of a new spin-dependent phenomenon – a direct renormalization of the piezoelectric constant in a magnitude ordering state.

Keywords: piezomagnetism, superconductivity, magnetism, ferroborates, sound velocities, elastic properties.

СПИСОК ПУБЛІКАЦІЙ ЗДОБУВАЧА ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ:
Наукові праці, в яких опубліковані основні наукові результати дисертації:

- 1) Acoustic characteristics of FeSe single crystals / G.A. Zvyagina, **T.N. Gaydamak**, K.R. Zhekov, I.V. Bilich, V.D. Fil, D.A. Chareev, A.N. Vasiliev // Europhysics Letters. – 2013. – V.101, Iss.5. – P. 56005-56005.
- 2) Piezomagnetism of FeSe single crystals / V.D. Fil, D.V. Fil, K.R. Zhekov, **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, D.A. Chareev, A.N. Vasiliev // "Europhysics Letters. – 2013. – V. 103, Iss.5. – P. 47009-47009.
- 3) 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 // Физика низких температур. – 2014. – Т. 40, № 6. – С. 676–684.
- 4) Упругие и пьезоэлектрические модули ферроборатов Nd и Sm / **Т.Н. Гайдамак**, И.А. Гудим, Г.А. Звягина, И.В. Билыч, Н.Г. Бурма, К.Р. Жеков, В.Д. Филь // Физика низких температур. – 2015. – Т. 41, № 8. – С. 792-797.
- 5) Magnetopiezoelectric effect and magnetocapacitance in $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ / **T.N. Gaydamak**, I.A. Gudim, G.A. Zvyagina, I.V. Bilych, N.G. Burma, K.R. Zhekov, V. D. Fil // Phys. Rev. B. – 2015. – V. 92, Iss.21. – P. 214428-1–214428-7.
- 6) Магнитодиелектрический и магнитопьезоэлектрические эффекты в $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ / И.В. Билыч, К.Р. Жеков, **Т.Н. Гайдамак**, И.А. Гудим, Г.А. Звягина, В.Д. Филь // Физика низких температур. – 2016. – Т. 41. № 12. – С. 792-797.

Наукові праці, які засвідчують апробацію результатів:

- 7) Elastic properties of FeSe / **T.N. Gaydamak**, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, G.A. Zvyagina, V.D. Fil', E.S. Kozlyakova, D.A. Chareev // III International Conference for Young Scientists —“Low Temperature Physics”, May 14 – 18, 2012 : book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2012. – P. 66.
- 8) Акустические исследования монокристалла FeSe / **Т.Н. Гайдамак**, К.Р. Жеков, И.В. Билыч, Г.А. Звягина, В.Д. Филь, Е.С. Козлякова, Д.А. Чареев // ЭВРИКА–2012, Апрель 19–22, 2012: тезисы докладов. – Украина, Львов, 2012. – Д50.

9) FeSe – piezomagnetic/ **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, D.A. Chareev // IV International Conference for Young Scientists—“Low Temperature Physics”, June 3 – 7, 2013 : book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2013. – P. 29.

10) Пьезомагнетизм 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 // XI Международная научная конференция «Физические явления в твердых телах», декабря 3 – 6, 2013: тезисы доклада – Украина, Харьков, 2013. – С. 125.

11) Acoustopiezomagnetic effect in CoF_2 / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, V.A. Desnenko // V International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics», June 2 – 6, 2014: book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2014. – P. 78.

12) Ultrasonic in Nd and Sm ferrobates. Magnetopiezoelectric effect/ **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilych, K.R. Zhekov, I.A. Gudim // VI International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics», June 2 – 5, 2015: book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2015. – P. 47.

13) Magnetopiezoelectric effect and magnetocapacitance in neodymium ferrobate / **T.N. Gaydamak**, I.A. Gudim, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, K.R. Zhekov, V.D. Fil // VII International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics», June 1 – 5, 2016: book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2016. – P. 79.

14) Magnetopiezoelectric and magnetodielectric effects in $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ / **T.N. Gaydamak**, I.A. Gudim, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, K.R. Zhekov, V.D. Fil // International school & conference on nanoscience and quantum transport (nano QT–2016), October 8–14, 2016.

15) Magnetopiezoelectric effect in Sm and Nd ferroboraes / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilych, K.R.Zhekov, I.A. Gudim // VIII International Conference for Professionals and Young Scientists «Low Temperature Physics», May 29 – June 2, 2017 : book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2017. – P. 84.

16) Piezomagnetism in FeSe / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, D.A. Chareev // International conference on strongly correlated electron systems (SCES–2017), July 17–21, 2017: book of abstracts. – Czech Republic, Prague, 2017. – P. 36.

17) Magnetopiezoelectric effect in Sm and Nd ferrobates / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, K.R. Zhekov, I.A. Gudim // V International Research and Practice Conference «Nanotechnology and nanomaterials», August 23 – 26, 2017 : book of abstracts. – Chernivtsi, Ukraine, 2017. – P. 237.

18) Easy-plane ferrobates. Magnetopiezoelectric effects / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, K.R. Zhekov, I.A. Gudim // “6th International Symposium in Optics and its Applications”, OPTICS–2018, February 17–20, 2018 : book of abstracts. – Trento, Italy, 2018. – P. 47.

ЗМІСТ

ПЕРЕЛІК УМОВНИХ ПОЗНАЧЕНЬ.....	14
ВСТУП.....	16
РОЗДІЛ 1. ОГЛЯД ЛІТЕРАТУРИ.....	21
1.1. Залізовмісні надпровідники. Халькогенід заліза.....	21
1.2. Рідкісноземельні фероборати $RFe_3(BO_3)_4$	25
1.3 Висновки до Розділу 1.....	33
РОЗДІЛ 2 МЕТОДИКА ЕКСПЕРИМЕНТУ	34
2.1 Приборна реалізація.....	34
2.2 Методика вимірювання абсолютних та відносних швидкостей звуку.....	36
2.3 Ноніусний метод	37
2.4 Схема криогенної частини установки	39
2.5 Методика акустоелектричної та акустоелектромагнітної трансформації.....	41
РОЗДІЛ 3 АКУСТИЧНІ ХАРАКТЕРИСТИКИ ТА	
АКУСТОЕЛЕКТРОМАГНІТНА ТРАНСФОРМАЦІЯ В FeSe.....	43
3.1 Акустичні характеристики залізовмісного надпровідника FeSe	43
3.2. Вплив надпровідного переходу на поведінку пружних характеристик....	47
3.3 Акустоелектромагнітні характеристики халькогениду заліза	51
3.4 Висновки до Розділу 3	58
РОЗДІЛ 4 ДОСЛІДЖЕННЯ АКУСТИЧНИХ ХАРАКТЕРИСТИК ТА	
АКУСТОЕЛЕКТРОМАГНІТНОЇ ТРАНСФОРМАЦІЇ В CoF_2	60
4.1 Дослідження акустичних характеристик CoF_2	61
4.2. П'єзомагнетизм за відсутності магнітного поля.....	63
4.3 Акустоелектромагнітна трансформація в магнітному полі	67
4.4 Висновки до Розділу 4	72
РОЗДІЛ 5. ПРУЖНІ ТА П'ЄЗОЕЛЕКТРИЧНІ ХАРАКТЕРИСТИКИ	
ФЕРОБОРАТІВ САМАРІЮ ТА НЕОДИМУ	74
5.1. Пружні та п'єзоелектричні модулі фероборатів Nd й Sm	74

5.2. Магнітоп'єзоелектричний ефект й магнітоємність в $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$	84
5.3 Магнітодіелектричний й магнітоп'є зоелектричний ефекти в $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$..	98
5.4 Висновки до Розділу 5	115
ВИСНОВКИ	117
СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ.....	118
ДОДАТОК А.	128

СПИСОК УМОВНИХ ПОЗНАЧАНЬ:

T_c —критична температура переходу в надпровідний стан

T_N – температура Нееля

РЗМ – рідкісноземельний метал

χ - сприйнятливість

Θ – температура Дебая

P - поляризація

МЕ – магнітодіелектричний ефект

МПЕ – магнітоп’єзоелектричний ефект

H - зовнішнє магнітне поле

ЛЗ – лінія затримки

ФЧХ – фазо-частотна характеристика

S – швидкість звуку

Φ_0 - повна фаза

N_2 - азот

He^4 - гелій

ЕП – електричне поле

B – об’ємний модуль

k – парціальні стисливості

ε – діелектрична проникність

ΔC_Q – скачок теплоємності

A – деформаційний потенціал

q – хвильове число

ε_F – енергія Фермі

V_F - швидкість Фермі

l – довжина вільного пробігу

ПФ – поверхня Фермі

τ – час релаксації

БКШ – теорія Бардіна- Купера- Шріффера

$\Delta(T)$ – енергетична щілина

АЕХ – аномальний ефект Хола

ω – фотонна частота

М – магнітний момент

U_{ST} – поле Стюарта- Толмена

U_{ind} – індукційне поле

Ω - циклотронна частота

j_{an} – аномальний струм

η – доля відгалуджуючого струму

L_i – компонента вектору антиферомагнітизму

λ_L – лондонівська глибина проникнення

ПД – поляризаційна діаграма

ПМ – п'єзомагнетизм

QL – квазіповздовжна хвиля

QT – квазіпоперечна хвиля

ЕМП – електромагнітне поле

АЕМТ – акустоелектромагнітна трансформація

АЕТ – акустоелектрична трансформація

H_{ex} – обмінне поле

H_{SF} – поле спін-флопу

χ_{CW} – сприйнятливність по закону Кюрі-Вейса

ВСТУП

Актуальність теми. Магістральний шлях розвитку фізики твердого тіла – синтез різноманітних сполук, найчастіше не існуючих у природі, з метою отримання функціональних матеріалів, що мають видатні технологічні властивості. Яскравий приклад руху у цьому напрямку – синтез високотемпературних надпровідників. На даний час наука ще далека від своєї «блакитної» мрії – цілеспрямованого синтезу сполук із заданими властивостями. Поки що всі задачі вирішуються методом спроб та помилок – синтезуються нові сполуки з очікуваними властивостями, та проводяться комплексні їх дослідження. Очевидно, що при такому алгоритмі розвитку науки будь-які дослідження фізичних характеристик нових сполук є актуальними та затребуваними.

Серед великої кількості різноманітних напрямків останнім часом помітно вирізняються такі теми, як залізовмісні надпровідники та мультифероїки.

Добре відомо, що явища надпровідності та магнетизму – антагоністи. Лише факт існування надпровідності у речовині, що містить у великій концентрації йони заліза, раніше здавався неможливим. Це було так, доки у 2008 році не з'явилось перше повідомлення про виявлення надпровідності в залізовмісній сполуці $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$. Це відкриття слугувало початком цілого напрямку досліджень залізовмісних надпровідників. На даний момент широко досліджуються два типи сполук – пніктиди та халькогеніди. Сполука FeSe відноситься до халькогенідів, тобто речовинам, що містять у своєму складі один з халькогенів.

Плівки FeSe досліджувались ще у 70-х роках минулого століття, та до спроб виявлення в них надпровідності справа не дійшла. Однак вслід за відкриттям надпровідності в $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ у 2008 році, з'явилось повідомлення про її знаходження у FeSe . Сполука швидко завоювала інтерес наукової спільноти завдяки простій структурі й достатньо високій критичній температурі, значення якої сильно зростає при всебічному стиску. В сполуці також виявлено значний потенціал можливості підвищення критичної температури, в плівкових зразках вдалося підвищити T_C до 100 К.

Сімейство рідкісноземельних фероборатів відноситься до класу мультифероїків. Мультифероїки – речовини, в яких реалізується фазові перетворення з хоча б двома з трьох параметрів порядку – електричним, магнітним або пружним. Не зважаючи на те, що даний клас речовин вже давно відомий, в даний час популярність мультифероїків стрімко зростає. Температури магнітних переходів та реєстрованих магнітоелектричних ефектів наближаються до кімнатних, що робить реальною перспективу їх практичного застосування. В даний час кількість речовин, що проявляють мультифероїдні властивості, значно зросла.

Сімейство рідкісноземельних фероборатів єднає у собі речовини із загальною формулою $RFe_3(BO_3)_4$, де R- рідкісноземельний йон (Pr, Nd, Sm, Eu, Y, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Yb). Всі вони кристалізуються у нецентросіметричну п'єзоактивну групу $R32$. Завдяки наявності двох магнітних підсистем (заліза та рідкісної землі), сімейству притаманне велике різноманіття фізичних властивостей. Представники сімейства є перспективними у приладах для обробки та зберігання інформації.

Мета і задачі дослідження. Метою дисертаційної роботи є з'ясування особливостей низькотемпературної поведінки модулів пружності, а також встановлення механізмів акустоелектричної трансформації в монокристалах FeSe та рідкісноземельних фероборатах самарію та неодиму.

Для досягнення поставлених цілей ставилися та вирішувалися такі **задачі**:

- Вимірювання швидкостей звуку в монокристалах FeSe, $SmFe_3(BO_3)_4$ та $NdFe_3(BO_3)_4$. Розрахунок компонент тензорів модулів пружності та п'єзоелектричних модулів.
- Дослідження температурних та магнітопольових залежностей відносних змін швидкості та поглинання звуку.
- Дослідження акустоелектромагнітної трансформації в FeSe.
- Дослідження п'єзовідгука та діелектричної проникності в АФМ фазі монокристалів $SmFe_3(BO_3)_4$ та $NdFe_3(BO_3)_4$.

Об'єкт дослідження. Механізми взаємодії магнітної, електричної та пружної підсистем у діапазоні температур структурних та магнітних фазових перетворень.

Предмет дослідження. Процес акустоелектромагнітної трансформації у FeSe. Акустоелектрична трансформація у фероборатах самарію та неодиму.

Методи дослідження. При проведенні експериментальних досліджень було використано високочастотну універсальну установку, що дозволяла проводити вимірювання швидкості звуку та відносних змін діелектричної проникності, а також досліджувати процеси акустоелектромагнітної та акустоелектричної трансформацій.

Наукова новизна одержаних результатів

1. Вперше експериментально з високою точністю ($\sim 1\%$) отримані значення швидкостей звуку в монокристалах FeSe, $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ та $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$. Розраховано основні компоненти тензору модулів пружності досліджуваних сполук.
2. Вперше для фероборатів Sm та Nd визначено п'єзоелектричні модулі.
3. Вперше експериментально виявлено електромагнітний відгук, що виникає в монокристалах FeSe під дією ультразвуку. Цей ефект може бути кваліфікований як п'єзомагнетизм.
4. Вперше виявлено гігантський магнітоп'єзоелектричний ефект в антиферомагнетиках та досліджено його прояви у фероборатах самарію та неодиму.
5. Вперше визначено параметри магнітоелектричної та магнітопружної взаємодій в мультифероїках $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ та $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$.

Практичне значення одержаних результатів. В дисертації вивчено механізми взаємодії пружної, магнітної та електричної підсистем, перспективного для прикладного використання сімейства рідкісноземельних фероборатів. Отриманні в ході досліджень FeSe дані допоможуть в розумінні механізмів надпровідності в залізовмісних сполуках. Отриманні дані по швидкостям звуку та модулям пружності можуть бути використані, як довідкова інформація. В ході досліджень

встановлено, що рідкісноземельні фероборати відносяться до сильних п'єзоелектриків та можуть бути використані до технічних застосувань.

Особистий внесок здобувача. Дисертантка приймала активну участь у всіх етапах підготовки та виконання робіт: підготовка зразків до експерименту, проведення експериментальні досліджень, обробка експериментальних даних, активна участь у обговоренні отриманих результатів, написанні та підготовці статей. Усі основні результати були представлені у вигляді доповідей на наукових семінарах, радах та міжнародних конференціях особисто дисертанткою. Таким чином, особистий внесок дисертантки є **визначальним**.

Апробація результатів дисертації. Основні результати дисертаційної роботи були представлені та обговорені на наступних міжнародних та вітчизняних наукових конференціях:

- III International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics-2012» (ICYS-LTP-2012) (Kharkiv, Ukraine, May 14-18, 2012);
- ЭВРИКА-2012 (Україна, Львів, Квітень 19-22, 2012);
- IV International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics-2013» (ICYS-LTP-2013) (Kharkiv, Ukraine, June 3-7, 2013);
- XI Міжнародна наукова конференція «Фізичні явища в твердих тілах» (Харків, Україна, Грудень 3-6, 2013);
- V International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics-2014» (ICYS-LTP-2014) (Kharkiv, Ukraine, June 2-6, 2014);
- VI International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics-2015» (ICYS-LTP-2015) (Kharkiv, Ukraine, June 2–5, 2015);
- VII International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics-2016» (ICYS-LTP-2016) (Kharkiv, Ukraine, June 6–10, 2016);
- International School & Conference on Nanoscience and Quantum Transport (nanoQT-2016) (Kyiv, Ukraine, October 8-14, 2016);

- VIII International Conference for Professionals and Young Scientists «Low Temperature Physics- 2017» (ICPYS-LTP-2017) (Kharkiv, Ukraine, May 29 – June 2, 2017);
- International conference on strongly correlated electron systems (SCES – 2017) (Prague, Czech Republic, July 17-21, 2017);
- V International research and practice conference «Nanotechnology and nanomaterials» (NANO – 2017) (Chernivtsi, Ukraine, August 23 – 26, 2017).
- 6th International Symposium in Optics and its Applications, (OPTICS-2018) (Trento, Italy, February 17-20, 2018);

Публікації. Основні результати дисертаційної роботи опубліковані у 18 наукових працях: 6 статтях у провідних спеціалізованих наукових журналах [1-6] та 12 тезах доповідей у збірниках праць міжнародних та вітчизняних наукових конференцій [7-18].

Структура дисертації. Дисертація складається із анотацій, вступу, огляду літератури, розділу з методикою експериментальних досліджень, трьох оригінальних розділів, висновків, списку використаних джерел та додатків. Загальний обсяг дисертації 131 сторінка, вона містить 49 рисунків, 6 таблиць та список використаних джерел з 77 найменувань на 9 сторінках.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами.

Дослідження, які склали дисертаційну роботу, виконано у відділі магнітних і пружних властивостей твердих тіл Фізико-технічного інституту низьких температур імені Б. І. Веркіна НАН України в рамках тематичного плану інституту відповідно до відомчих тем: «Спектроскопічні, транспортні, магнітні та пружні дослідження новітніх низько вимірних структур та надпровідних сполук» (номер держреєстрації 0112U002635, термін виконання 2012-2016 рр.), «Функціональні властивості новітніх надпровідних сполук і металовмісних спін та зарядово-впорядкованих структур» (номер держреєстрації 0117U002294, термін виконання 2017-2021 рр.).

Розділ 1. Огляд літератури

1.1. Залізовмісні надпровідники. Халькогенід заліза.

Добре відомо, що явище надпровідності і магнетизм - антагоністи. Сам факт існування надпровідності в речовині, що містить у великій концентрації йони заліза, раніше здавався неможливим. Це було до тих пір, поки в 2008р. не з'явилося перше повідомлення про виявлення надпровідності в залізовмісній сполуці $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$. Це відкриття слугувало початком цілого напрямку досліджень залізовмісних надпровідників. На даний момент широко досліджуються два типи сполук - пніктиди та халькогеніди. Пніктиди отримали свою назву через вміст в них As, халькогеніди - халькогена (S, Se, Te).

Надпровідність було виявлено в сполуках $\text{SmFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ та $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$ з максимальним значенням температури надпровідного переходу $T_C = 55 \text{ K}$ (для плівок). Всі сполуки мають відносно просту, шарувату структуру. Шари FeAs, що проводять чергуються з шарами, що містять лужні, лужноземельні або рідкісноземельні елементи, а також кисень і фтор.

Плівки FeSe досліджувалися ще в 70-х роках минулого століття, але до спроб виявлення в них надпровідності справа не дійшла. Однак слідом за відкриттям надпровідності в $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$ в 2008 році з'явилося повідомлення про її виявлення в FeSe. Сполука швидко завоювало інтерес наукової громадськості завдяки простій структурі і досить високій критичній температурі (в монокристалах $T_c \sim 8 \text{ K}$)

Кристалічна структура FeSe схематично представлена на Рис. 1.1. [19]. Селенід заліза має найбільш просту структуру серед представників класу залізовмісних надпровідників. У FeSe шари заліза чергуються шарами халькогена.

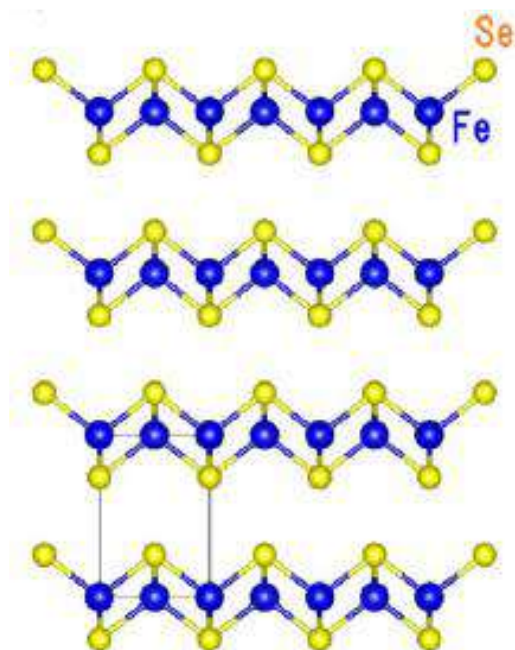


Рис.1.1. Шарувата структура селеніду заліза [19].

В селенїді заліза при $T_s \sim 90$ К спостерігається структурне тетра($P4/nmm$) – орто ($Стта$) перетворення (Рис. 1.2.) [20], що супроводжується подвоєнням елементарної комірки.

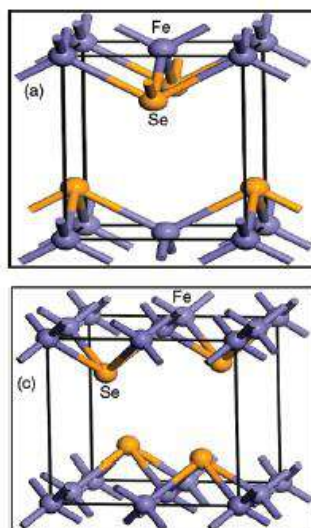


Рис. 1.2. а- тетрагональна фаза $P4/nmm$, с- орторомбїчна фаза $Стта$ [20].

Останнім часом з'ясувалася тісна кореляція структурних змін з еволюцією електронної структури [21]. Згідно з першопринципним розрахунком методом

функціонала густини, порушення C_4 симетрії при структурному перетворенні повинно супроводжується сплюсненням електронних та діркових листів поверхні Фермі (ПФ). Однак експеримент (фотоемісійна спектроскопія з кутовою роздільною здатністю) виявив, що насправді реєстроване сплюснення принаймні в кілька разів більше розрахункового, і окремі листи ПФ набувають форму «дошки». Зроблено висновок, що саме електронна нестабільність призводить до фазового перетворення з втратою C_4 симетрії, в т.ч. і до структурної тетра - орто перебудові. В цілому отриманий в результаті фазовий стан має назву «нематичного». Для такого стану в монодомених зразках слід очікувати помітну анізотропію кінетичних характеристик, проте поки автору про такі експерименти невідомо

Температурна залежність опору високоякісного монокристала FeSe демонструє типову металеву залежність зі зломом при температурі тетра - орто перетворення (Рис. 1.3.) [22].

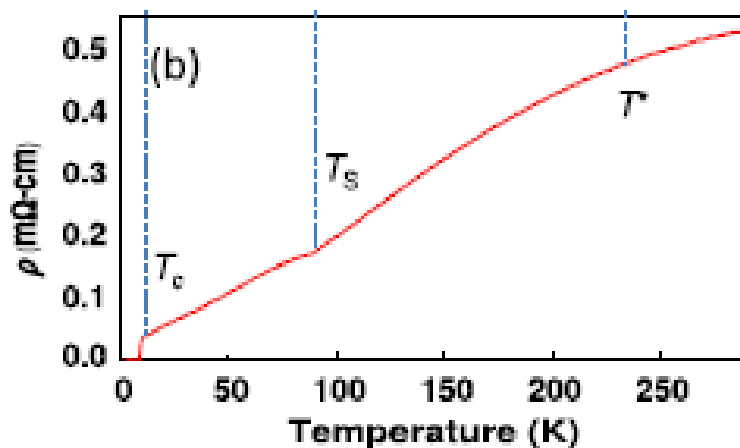


Рис. 1.3. Температурна залежність опору селеніду заліза [22].

Звернемося тепер до характеристик надпровідної фази. Вимірювання енергетичної щільності в FeSe з використанням різних спектроскопічних методів привели до досить невизначених результатів. Діапазон озвучених значень знаходиться в межах від 2 до 8 (в одиницях $2\Delta / kT_c$). Ймовірно, на даному етапі досліджень якості зразків ще недостатньо для отримання відтворюваних

результатів. Мабуть, найбільш надійні дані отримані методом Андріївської спектроскопії з використанням «м'якого» способу створення точкових контактів [23] – середнє значення $2\Delta/kT_c \sim 3.7$. Інтригуючими виявилися результати еволюції T_C під впливом гідростатичного тиску, а також в плівкових структурах. Масивні зразки FeSe при всебічному стиску до 6-7 ГПа збільшують T_C аж до 37 К. Цей процес є скорелльованим зі значним зменшенням під тиском міжшарової відстані [19]. Ще більш значне збільшення T_C спостерігається в тонкоплівкових структурах. Залежно від використаної підложки температура надпровідного переходу збільшується більш ніж на порядок. Максимальна величина $T_C \approx 100$ К була отримана на моношарових плівках FeSe, осаджених на підложку SrTiO₃ [24].

Таким чином, всі згадані залізовмісні склади можуть бути віднесені до сімейства високотемпературних надпровідників. З'явилася надія, що простота структура халькогеніду заліза, можливо, допоможе зрозуміти й явище високотемпературної надпровідності, що і пояснює, в значній мірі, підвищений інтерес дослідників до розвитку цього напрямку досліджень.

Однак аналіз літературних даних показує, що з області інтересів наукової спільноти до FeSe практично випало отримання відомостей про його пружні характеристики. На момент початку наших досліджень було лише відомо, що монокристали FeSe характеризуються низьким значенням об'ємного модуля [25]. Крім того, в роботі [22] було зафіксовано пом'якшення поздовжніх акустичних фононів. Рівень фононної енергії при фіксованому значенні хвильового вектора ($\sim 3.5 \cdot 10^5 \text{ см}^{-1}$) значно, близько 60%, знижується в районі температури структурної фазової перебудови ($T_C = 90$ К). З подальшим зниження температури рівень фононної енергії залишається постійним аж до переходу в надпровідну фазу. Нижче T_C також зафіксовано невелике зменшення енергії. Крім того, була одна теоретична робота [26], в якій розраховані модулі пружності системи FeSe_{1-x}Te_x (в тому числі і для $x = 0$) для тетрагональної фази. Однак близькість розрахованих значень в реальності перевірена не була.

1.2. Рідкісноземельні фероборати $RFe_3(BO_3)_4$

На момент початку досліджень було опубліковано три огляди, що описують властивості даного сімейства, на які автор спиралася при постановці завдання та ході досліджень: огляд Васильєва О.М. [27] опублікований в 2006 році, Кадомцева А.М. [28] - 2010 рік та огляд П'ятакова О. П., Звездіна А. К., що вийшов в 2012 році [29]. В оглядах широко висвітлена тема мультифероїків, і зокрема, рідкісноземельних фероборатів. Нижче автор дає посилання в основному на ці огляди [27-29].

Сімейство рідкісноземельних фероборатів відноситься до класу мультифероїків. Мультифероїки – клас речовин, в яких реалізуються фазові перетворення з хоча б двома з трьох параметрів порядку – електричним, магнітним або пружним (Рис. 1.4.). Незважаючи на те, що даний клас речовин вже давно був відомий, в даний час популярність мультифероїків стрімко зростає. Температури магнітних переходів і реєстрованих магнітоелектричних ефектів наближаються до кімнатних, що робить реальною перспективу їх практичного застосування. В даний час кількість речовин відносяться до цього класу значно зросла.

На Рис.1.4. наведена схематична класифікація трьох сімейств феровпорядкованих речовин, кожне з яких характеризують власні петлі гістерезису. Для позначення речовин з одночасним упорядкуванням двох підсистем: магнітної та електричної раніше був використаний термін «сегнетомагнетик» [29].

Після того як Шмідом був введений новий термін - мультифероїк, старий термін практично не використовується. Обидва терміни - мультифероїк та сегнетомагнетик, є рівнозначними. Відзначимо, що співіснування магнітного впорядкування і сегнетоелектричної поляризації можливо лише в нецентросиметричних системах.

Через ці умови число груп мультифероїків незначне, лише 13 представників з 122 груп Шубнікова відповідають цим умовам.

Мультифероїки прийнято ділити на мультифероїки першого роду - у яких температура сегнетоелектричного переходу вище температури переходу в магнітовпорядкований стан (наприклад, монокристалічний BiFeO_3), й другого роду – сегнетоелектрики з температурою магнітного переходу, що збігається або є вищою за сегнетоелектричну [29].

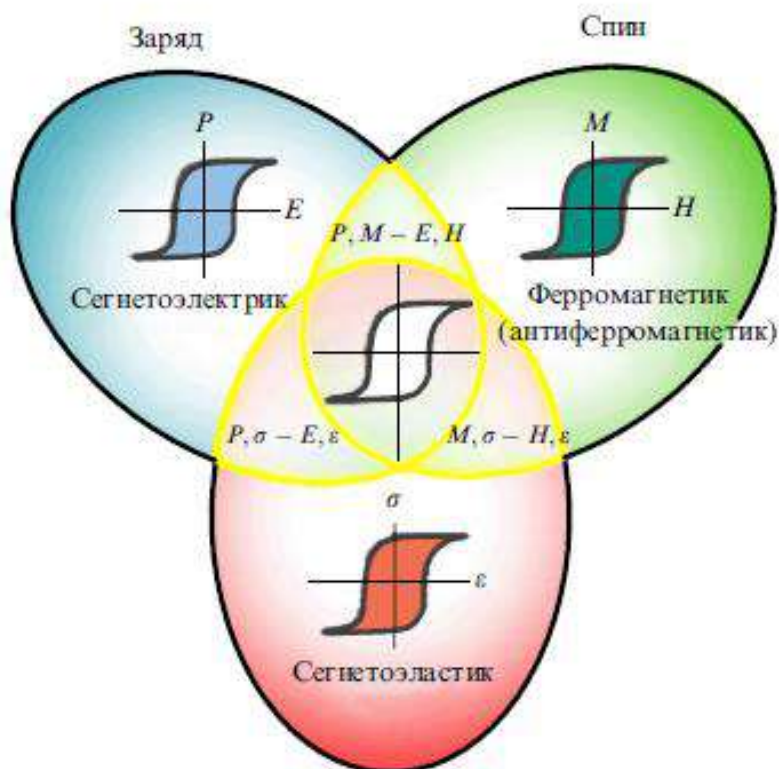


Рис.1.4. Фермовпорядковані речовини: сегнетоелектрики, ферромагнетики (антиферромагнетики), сегнетоеластики [29].

Сімейство рідкісноземельних фероборатів представляє інтерес для сучасної науки з огляду на те, що вони є не тільки мультифероїками, але й п'єзоелектриками [28]. Сімейство рідкісноземельних фероборатів об'єднує в собі речовини із загальною формулою $\text{RFe}_3(\text{BO}_3)_4$, де R- рідкісноземельний йон (РЗМ) (Pr, Nd, Sm, Eu, Y, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Yb). Дане сімейство відноситься до нецентросиметричної групи $R32$. Завдяки наявності двох магнітних підсистем (заліза й рідкісної землі), сімейству притаманна велика різноманітність фізичних властивостей.

Магнітна підсистема рідкісної землі не має власного упорядкування і знаходиться у підмагнічуючому полі залізної підсистеми. Взаємодія між йонами здійснюється шляхом *R-O-B-O-R* [28]. Близькість температур Нееля для фероборатів з різними рідкісноземельними йонами підтверджує це твердження. У Табл. 1.1 видно, що зі збільшенням йонного радіусу збільшується й T_c , це стосується й немагнітного ітрієвого фероборату. Для всього сімейства температури Нееля лежать в межах $T_N = 30-40$ К Табл. 1.1.

Таблиця 1.1. Рідкісноземельні фероборати [28].

R	$R_{\text{іон}}$, А	T_c , К	T_N , К	Δ , см^{-1}	анізотропія $g_{\parallel}/g_{\perp}, T_{sr}$
Pr	0,99	–	32		↑
Nd	0,98	–	31	8,8	→ 1,4/2,4
Sm		–	31		→
Eu	0,95	88	34		→
Gd	0,94	174	37	6,9	↑→ 10 К
Tb	0,92	241	41	32	↑ 18/0
Dy	0,91	340	39	16,7	↑ 15/7
Ho	0,89	427	39		↑→ 5 К
Er		450?	39	7,3	→ 1,3/9
Y	0,89	445	38		–

За відсутності РЗМ йонів ($\text{YFe}_3(\text{BO}_3)_4$) залізна підсистема упорядковується в легкоплощину конфігурацію. У присутності РЗМ анізотропія орієнтації магнітних моментів йонів заліза в значній мірі визначається рідкісноземельним йоном. Реалізуються дві конфігурації: легка вісь (йони Dy, Tb, Pr [28]), коли магнітні моменти впорядковані вздовж тригональної вісі c , та легка площина (йони - Sm, Nd, Eu, Er), - магнітні моменти розташовані в площині ab .

Кристалічна структура сполук з $R = \text{La}, \text{Ce}, \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}$ залишається незмінною аж до найнижчих температур. У той же час ряд представників

сімейства відчуває структурний фазовий перехід ($R = \text{Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er}$). Фазовий перехід відбувається з пониженням симетрії $R32 \rightarrow P3_121$ [28]. При цьому обсяг примітивної комірки потроюється, та комірка з ромбоїдричної стає гексагональною.

Для кількох представників сімейства, таких як неодимовий й гольмієвий фероборати, існує характерна температура T_S , нижче якої система стає неколінеарним антиферомагнетиком гелікоїдального типу – спостерігається поворот магнітного моменту по гелікоїду (Рис. 1.5.) [28].

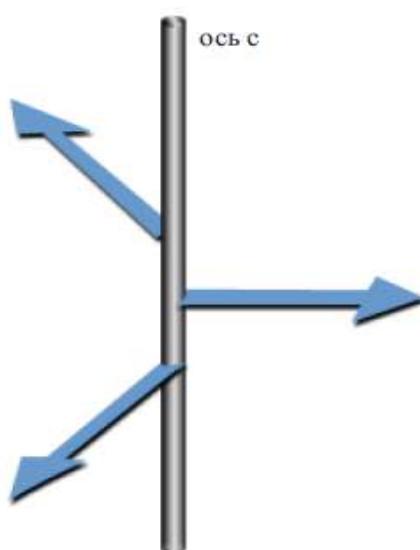


Рис. 1.5. Антиферомагнітна структура гелікоїдального типу [28].

Розглянемо температурну залежність сприйнятливості для фероборату з немагнітним йоном $\text{YFe}_3(\text{VO}_3)_4$ (Рис. 1.6.). В парамагнітній області поведінка сприйнятливості близька до теоретичної та підпорядковується закону Кюрі-Вейса

$$\chi_{Fe}(T) = \frac{C_{Fe}}{(T + \Theta_{Fe})}, \text{ значення константи } \Theta_{Fe} \approx 130 \text{ К [28].}$$

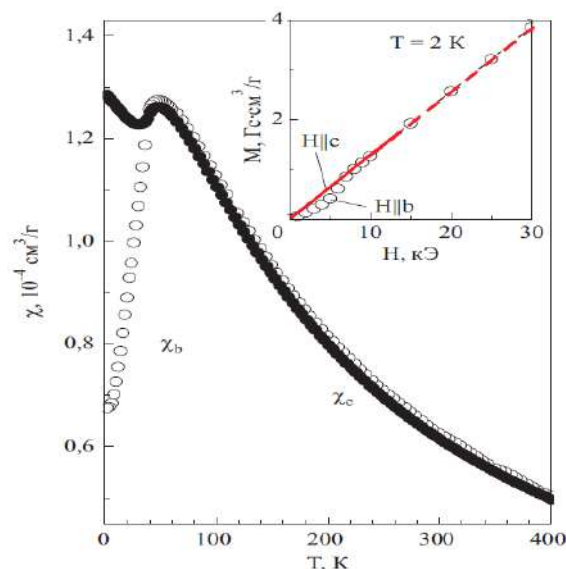


Рис. 1.6. Температурна залежність сприйнятливості $YFe_3(BO_3)_4$ вздовж χ_c та перпендикулярно χ_b вісі c . Зовнішнє магнітне поле 1 кЕ [28].

Для $YFe_3(BO_3)_4$ в парамагнітній області спостерігається ізотропне поведінка, яке змінюється анізотропною нижче температури Нееля $T_N \approx 38$ К. Температурна залежність сприйнятливості самарієвого фероборату представлена на Рис. 1.7. [28].

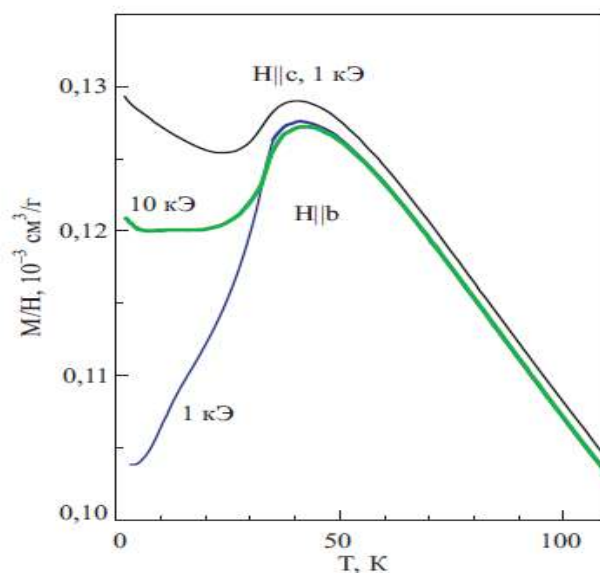


Рис. 1.7. Температурна залежність сприйнятливості $SmFe_3(BO_3)_4$ для $H||c$ та $H||b$. Зовнішнє магнітне поле 1-10 кЕ [28].

Незважаючи на наявність магнітних крамерівських іонів Sm^{3+} , якісно температурні залежності ітрієвого і та самарієвого складів схожі.

У легкоплосинних фероборатів у відсутності зовнішнього магнітного поля може спостерігатися спонтанна електрична поляризація (Рис. 1.8.), яка є наслідком неповної компенсації вкладів різних доменів [28].

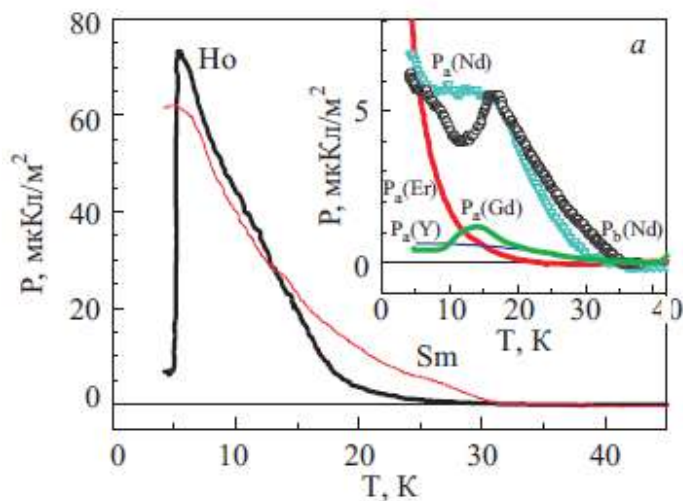


Рис.1.8. Температурна залежність спонтанної поляризації для фероборатів гольмію та самарію. Вставка – залежності для Er, Gd, Y, Nd вздовж **a** та **b** [28].

У зовнішньому магнітному полі поляризація, внаслідок монодоменізації, досягає максимальних значень: для неодимового $P \square 400$ мкКл/м² та $P \square 500$ мкКл/м² для самарієвого борату (Рис.1.9.) [28].

Польові залежності поляризації проілюстровані на Рис.1.10.. Як видно з Рис.1.10., поляризація в фероборатах змінює знак при зміні напрямку зовнішнього поля від вісі **a** до вісі **b**. Для $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ поле насичення електричної поляризації складає близько 10 кЕ, в той час як для $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ в полях близьких 50 кЕ поляризація змінює свій знак [29].

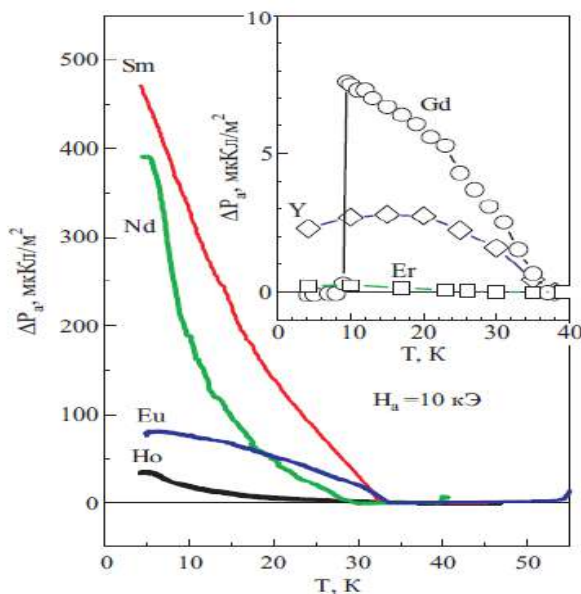


Рис. 1.9. Температурні залежності поляризації вздовж вісі **a** для легкоплотінних фероборатів $R = Sm, Nd, Eu, Ho$ [28].

Така різна поведінка пов'язана з дією на рідкісноземельний йон сумарного поля, що складається з підмагнічуючого з боку залізної підсистеми та перпендикулярного йому зовнішнього магнітного поля. Коли ж дії цих полів порівнюються, й відбувається зміна знаку поляризації.

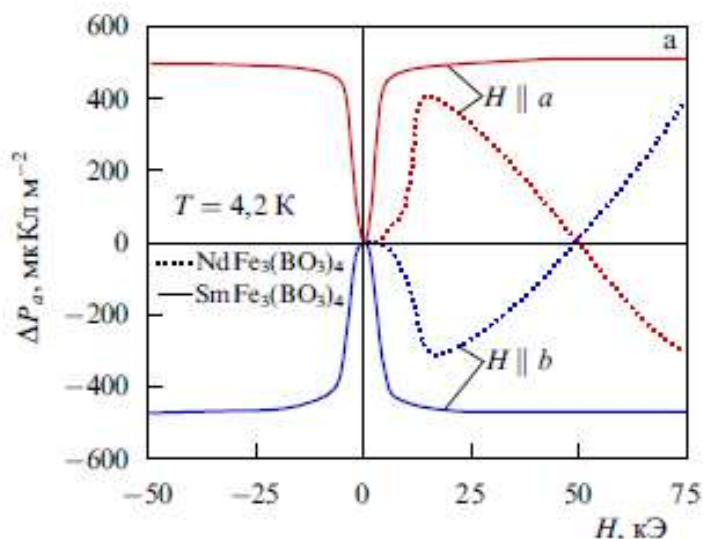


Рис. 1.10. Індукована електрична поляризація в фероборатах самарію та неодиму, зміна знаку P при переключенні напрямку вектору антиферомагнетизму від вісі **a** до вісі **b** [29].

Характерним для сімейства рідкісноземельних фероборатів є також магнітодіелектричний ефект або магнітоємність. Магнітодіелектричний ефект (МЕ) – це значне зростання діелектричної проникності (аж до десятків відсотків) нижче T_N і пригнічення ефекту зовнішнім магнітним полем $H \perp 1$ Тл (Рис.1.11.). Вигляд температурної залежності діелектричної проникності відмінний від закону Кюрі-Вейса (Рис.1.11.) [28].

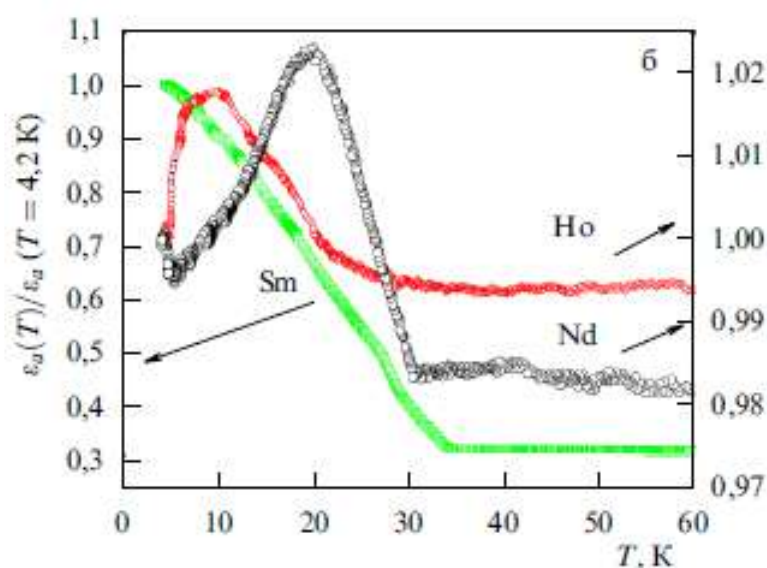


Рис. 1.11. Температурні залежності діелектричної проникності (нормировані на її величину при $T = 4.2$ К) для фероборатів Sm, Nd, Ho [28].

Таким чином, маючи низку непересічних властивостей, сімейство рідкісноземельних фероборатів є перспективним об'єктом досліджень. Проте пружні і п'єзоелектричні властивості даного сімейства до моменту початку роботи або не досліджувалися або були висвітлені лише частково [30-32]. П'єзоелектричні характеристики цих сполук, зокрема, становлять значний інтерес через можливість прикладного застосування.

1.3. Висновки до Розділу 1

Аналіз літературних даних виявляє явний недолік відомостей про характеристики пружних властивостей, як селеніду заліза, так і рідкісноземельних феробаратів. Відсутні прецизійні дані про модулі пружності цих сполук, що заслуговують бути представленими у вигляді довідкової інформації. Мало що відомо про поведінку швидкості та згасання звуку в областях надпровідного та магнітного впорядкування. Відсутні дослідження акустоелектричної трансформації в цих об'єктах, що дозволяють з'ясувати взаємодію пружної підсистеми з електронною (FeSe) та магнітною (фероборати) підсистемами. Відсутні дані про п'єзоелектричні властивості фероборатів. Відмічені прогалини в фізичних характеристиках послугували підставою для постановки описаних нижче експериментів.

Розділ 2. Методика експерименту

В роботі було використано установку, що складається з двох основних частин: криостату та приборної частини.

Усі отримані дані реєструвалися в режимі реального часу та відтворювалися у вигляді графіків на моніторі персонального комп'ютеру(ПК). Далі наведено детальний опис експериментальної установки.

2.1. Приборна реалізація

В роботі було використано апаратуру для одночасного вимірювання швидкості та поглинання звуку, розроблену Масалітіним Є.А. [33].

Блок-схема установки наведена на Рис. 2.1. Вона представляє собою стандартну компенсаційну, або мостову схему, в залежності від алгоритму обробки імпульсних сигналів, що задаються блоком імпульсно-кодової модуляції. В режимі мосту сигнал, що пройшов канал зразка, додається в протифазі з рівним йому по амплітуді сигналом порівняння. Амплітуду та фазу останнього реєструє приймач, що використовується в якості нуль-органу. Розділення сигналу розбалансу на амплітудну та фазову компоненти здійснюється високочастотними синхронними детекторами [33]. В компенсаційному режимі сигнали розкомпенсації за амплітудою та фазою виробляються за рахунок спеціальної кодової модуляції імпульсних послідовностей сигналів в обох каналах. В будь-якому варіанті реєстрованими величинами, що виводяться у комп'ютер є показання атенюатора (амплітуда сигналу порівняння) та фазометра (різниця фаз аналізованого сигналу та сигналу порівняння).

В описуваній установці:

1. застосовується електронно-керований (лінійний) фазообертач з практично необмеженим діапазоном перебудови.
2. в компенсаційному режимі алгоритм обробки інформації, підтримує зсув фаз між аналізованими сигналами 120° (або 240°). Перше забезпечує практично

необмежений динамічний діапазон при збереженні гранично високої точності вимірювань, яка визначається фактично дозволом фазометра (при відношенні сигнал шум ≥ 5).

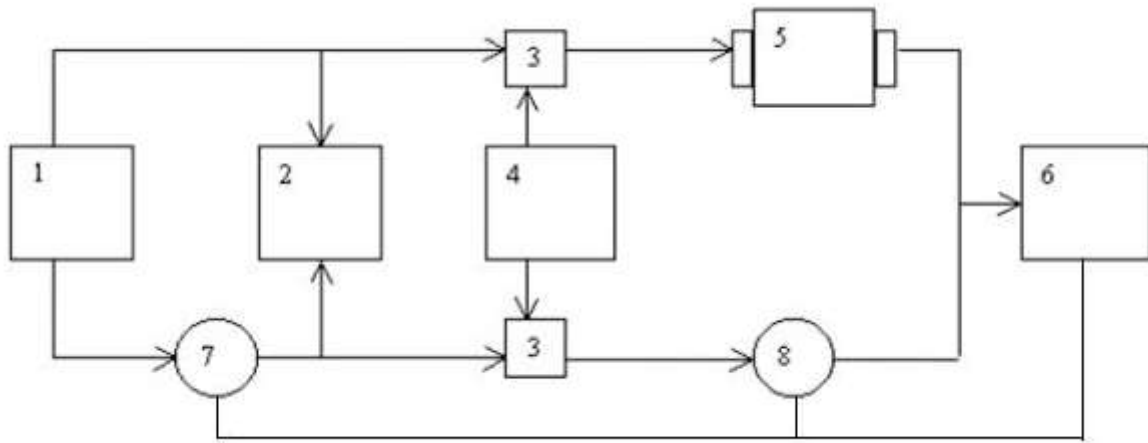


Рис 2.1. Блок-схема еспериментальної установки. 1-синтезатор частоти, 2-фазометр, 3-ключі, 4-блок імпульсно-кодової модуляції, 5-зразок з n 'єзонепретворювачами, 6-приймач, 7-електроно перестроюваний фазообертач, 8-плавний атенюатор [33].

При 120° алгоритмі сума двох рівних за амплітудою сигналів (це рівність підтримується незалежним каналом) дорівнює амплітуді кожного з сигналів (рівносторонній трикутник). При цьому на вході приймача в моменти вибірки-запам'ятовування відсутні різкі перепади амплітуди, що істотно покращує роботу системи в цілому. Помітною перевагою 120° алгоритму є відсутність необхідності частотної (фазової) модуляції задаючого генератора для отримання різнополярних сигналів разбаланса при переході через точку компенсації, необхідних для самобалансування схеми. Крім того, застосовується при 120° алгоритмі звичайне амплітудне детектування дозволяє працювати в широкому частотному інтервалі, що особливо при вимірах абсолютної швидкості звуку.

2.2. Методика вимірювання абсолютних та відносних швидкостей звуку

Розглянемо детально схему постановки зразка для вимірювання абсолютних швидкостей звуку [33].

Принцип встановлення зразка в тримач показаний на Рис.2.2.

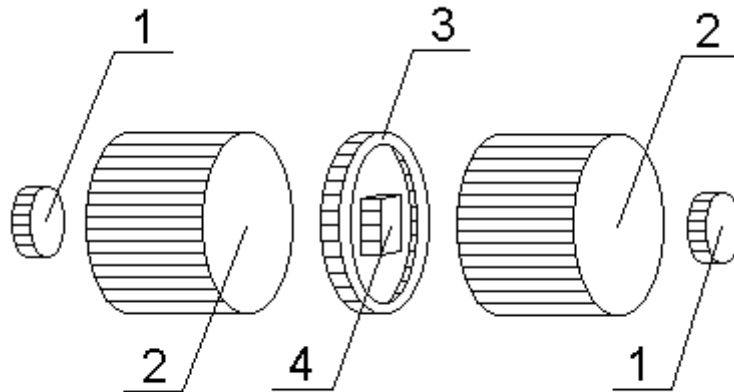


Рис.2.2. Схема монтажу зразка. 1 – п'єзоперетворювачі, 2 – лінії затримки, 3 – підтримуюче латунне кільце, 4 – зразок [33].

Зразок поміщають між двома лініями затримки (ЛЗ). До кожної з ЛЗ кріпиться датчик, виконаний з п'єзоелектричного матеріалу (LiNbO_3). Сполучною речовиною в парах датчик-ЛЗ і ЛЗ-зразок виступає ГКЖ-94, яка твердне при температурах 110-120 К і забезпечує надійний акустичний контакт. Також між затримками, навколо зразка, поміщають кільце, з латуні приготоване за розміром досліджуваного зразка. Кільце притирається на алмазному порошку разом зі зразком. Воно дозволяє надійно зафіксувати зразок на ЛЗ, а також уникнути руйнування зразка при затиску його між масивними лініями затримки.

2.3. Ноніусна методика вимірювання швидкості звуку

Нижче описана «ноніусна» процедура при розрахунку швидкості звуку [33]. На частотах порядку 55 МГц, вимірюються фазо-частотна характеристика (ФЧХ) двох ліній затримки (крок 1), а також «сендвіча», який складається з двох ЛЗ і встановленого зразка між ними (крок 2). Віднімаючи з другої ФЧХ першу, отримуємо різницеву пряму, що представляє із себе ФЧХ досліджуваного зразка. Нахил разностной ФЧХ дозволяє розрахувати швидкість в досліджуваному зразку за формулою:

$$v = \frac{360L}{S} \quad (2.1)$$

В (2.1) v -швидкість звуку (см/сек), L - товщина зразка (см), S - нахил різницевої ФЧХ (град/Гц). Прямим розрахунком неважко також переконатися, що при апроксимації ФЧХ 1 та 2 прямими лініями методом найменших квадратів (нахили відповідно S_1 та S_2):

$$S = S_2 - S_1 \quad (2.2)$$

при будь-якому відхиленні ФЧХ 1, 2 від прямих ліній. Останнє справедливо тільки в разі збігу частотних інтервалів вимірювання ФЧХ 1 і 2. Якщо S порівняно з S_1 (0,3 і більше), то в однорідних матеріалах вимірювання можуть бути обмежені цим етапом, забезпечуючи цілком прийнятну точність (0,3 % і краще).

Однак, вже в однорідних, але досить тонких зразках, накладення вторинних відображень викривляє основну частину вимірювального сигналу. Внаслідок цього для вимірювань доводиться використовувати ділянки імпульсу, що збігаються з переднім фронтом. Аналогічну процедуру, як правило, слід застосовувати по вже згадуваним причин і в неоднорідних матеріалах,

незважаючи на те, що довжина акустичного шляху в них може бути порівняно великою.

В результаті протікання різного роду перехідних процесів, швидкість яких залежить від частоти заповнення імпульсів, нахили ФЧХ 1 і 2 стають функціями від тимчасового положення зчитуючого строб-імпульсу на передньому фронті вимірювального сигналу.

Зміна $S_{1,2}$ в залежності від типу п'єзоперетворювачів становить 2-4 % (Для порівняння - в протяжних зразках на сталій частини імпульсу варіації $S_{1,2}$ перебували на рівні 0,1%). Це означає, що при переході від кроку 1 до кроку 2 зчитує імпульс повинен бути пересунутий в точності на час звуковий затримки в зразку τ_0 . Оскільки останнім спочатку невідомо, а також через дискретність кроку часового пересування строб-сигналу (в наших експериментах $5 \cdot 10^{-8}$ сек), задовільнити цій умові було практично неможливо. Для знаходження τ_0 (а, значить, і швидкості звуку) застосовувалася проста інтерполяційна процедура, яка полягала в наступному.

Для кожної серії вимірювань з певною модою (поздовжньої або поперечної) калібрується залежність S_1 від тимчасового положення зчитуючого імпульсу t_x . Потім для конкретного зразка вимірюється S_2 при якомусь відомому положенні зчитуючого імпульсу t_c на передньому фронті сигналу.

З (2.1,2.2) неважко переконатися, що τ_0 є рішенням рівняння $S(x)=360 \cdot x$, де $x \equiv t_c - t_x$ - часове зрушення зчитуючого імпульсу між набором калібрувальних вимірювань S_1 і вимірювання зі зразком S_2 . На цьому етапі процедура "грубого" визначення швидкості звуку закінчується. Для уточнення її величини використовується "ноніусний" прийом. Нехай фаза сигналу, що реєструється при якійсь певній частоті f_0 фазометром на кроці 1 є Φ_1 . На кроці 2 на тій же частоті фаза сигналу буде Φ_2 . Повна фаза, яку вносить зразок $\Phi_0 = n \cdot 360 + (\Phi_2 - \Phi_1)$. ($n = 0, 1, 2, \dots$). Оскільки $\Phi_0 = 360 f_0 \cdot L/v$, то, перебираючи значення n , знаходимо уточнене значення v , найближчим до "грубої" оцінки.

У роботі всі експерименти проведені на монокристаллах. Зразки рентгенівськ орієнтувалися методом Лауе. Далі зразки притиралися на алмазному порошку для отримання плоскопараллельних граней. Плоскопараллельність граней досліджуваного зразка забезпечує отримання коректного набору даних під час експерименту.

2.4. Схема криогенної частини установки

На Рис 2.3. представлено внутрішній устрій криостату в розрізі. Під час експерименту камера «2» наповнена рідким азотом N_2 . При цьому температура в криостаті встановлювалася на рівні 77 К. Після стабілізації температури в об'єм «4» заливався рідкий гелій He^4 . В експерименті використовувався криостат з «холодною камерою». При роботі з криостатом в діапазоні температур від кімнатних до температури $\sim 1,7$ К здійснювався режим прокачування He^4 . Температура в камері регулюється швидкістю відкачування. Підвищуючи швидкість відкачування - знижувалася температура аж до досягнення температури 1,7 К. Змінюючи швидкість відкачування, можна зареєструвати плавно змінну температурну залежність або ж швидко охолодити камеру з кімнатної температури до 1,7 К.

Температура в процесі експерименту визначалася вугільним і платиновим термометрами опору, розташованими поблизу зразка. Вугільний термометр застосовувався в діапазоні температур 1,7÷50 К, був включений за чотирьохточковою схемою і живився каліброваним струмом, що не призводить до перегріву термометра. Платиновий термометр застосовувався в діапазоні температур 50÷300 К.

Падіння напруги на термометричному опорі вимірювалося цифровим приладом Щ-302 і через блок зв'язку "КАМАК" вводилося в ПК, який, використовуючи калібровану криву $R(T)$, розраховував поточне значення температури.

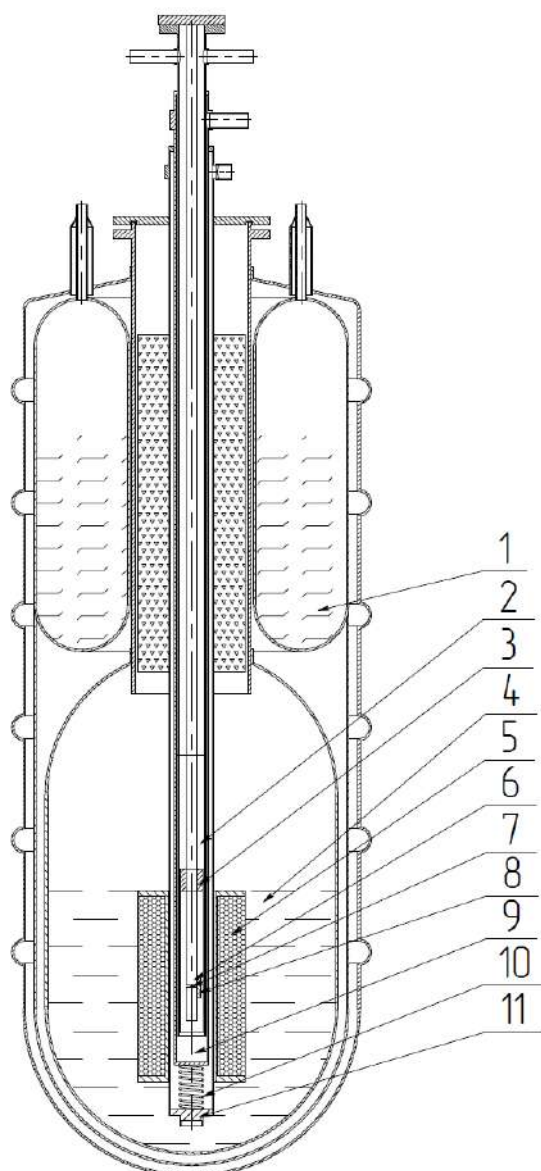


Рис 2.3. Внутрішній устрій криостату

- | | |
|--|---------------------------------------|
| 1. азотна камера, рідкий азот N_2 . | 7. зразок |
| 2. об'єм, зі зразком, заповнений теплообмінним газом | 8. вугільний та платиновий термометри |
| 3. нагрівач | 9. холодная камера |
| 4. об'єм заповнений гелієм He^4 | 10. дроссель напуску He^4 (капіляр) |
| 5. надпровідний соленоїд | 11. фільтр He^4 |
| 6. тримач зразка | |

У разі вимірювань при фіксованій температурі остання була забезпечена ПІД-регулятора. Точність підтримки в гелієвої області температур $\sim 0,001$ К.

Магнітне поле створювалося надпровідним соленоїдом «5». Діапазон магнітних полів до 5,5 Тл. Про величину поля судили за падінням напруги на манганіновому опорі $R = 0,02$ Ом, включеному послідовно з надпровідним соленоїдом. Розраховане на ПК поточне значення магнітного поля виводилося на екран дисплея ПК в режимі реального часу.

2.5. Методика акустoeлектричної та акустoeлектромагнітної трансформації

Для здійснення експерименту по акустoeлектромагнітної трансформації (АЕМТ), на п'єзодатчик, прикріплений до лінії затримки, подають радіоімпульс, який перетворюється п'єзодатчиком в поперечну звукову хвилю [2].

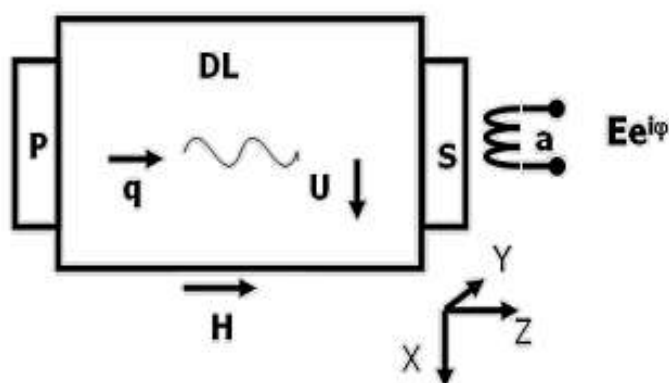


Рис. 2.4. Схема встановлення зразка в АЕМТ експерименті [2].

Хвиля проходить через лінію затримки і зразок. Ультразвукова хвиля, проходячи через досліджуваний зразок, деформує решітку. Внаслідок деформації в зразку збуджується електромагнітне поле, що випромінюється у вільний простір. Приймальна антена реагує, звичайно, на магнітну складову ЕП, але оскільки поблизу інтерфейсу останнє представляє плоску хвилю, ми не розрізняємо E і H компоненти. Всі зареєстровані дані відтворюються в режимі

реального часу на моніторі персонального комп'ютера. Отримані експериментальні дані зберігаються і обробляються на ПК в графічному редакторі.

При проведенні експерименту по акустoeлектричних трансформації (АЕТ) зразок встановлюється в тримач таким же чином, як і для АЕМТ експерименту з котушкою, за винятком того, що остання замінена електродом. Електрод розташований на верхній грані зразка. Подавався радіоімпульс на п'єзоперетворювач, розташований на лінії затримки. Радіоімпульс перетворювався датчиком в звукову хвилю, як і в АЕМТ експерименті з використанням котушки. Звукова хвиля проходила через лінію затримки і зразок. На поверхні деформованого звуком зразка з'являється потенціал, який реєструється електродом.

Розділ 3. Акустичні характеристики та акустоелектромагнітна трансформація в FeSe

3.1. Акустичні характеристики залізовмісного надпровідника FeSe

Досліджено монокристали номінального складу $\text{FeSe}_{0.963 \pm 0.005}$ вирощені в МДУ. Вони мали форму пластинок зі слідами природної огранки з характерними розмірами $2 \times 2 \times 0,4$ мм та віссю $[001]$, ортогональної площині пластинки. Висока якість зразків підтверджується спостереженням добре вираженою λ -аномалії теплоємності в точці надпровідного упорядкування на зразках того ж походження [34].

В даній сполучі при $T \sim 90$ К спостерігається структурне тетра ($P4/nmm$) – орто($Cmma$) перетворення. Тетра-орто перетворення відбувається з пом'якшенням C_{11} та $(C_{11}-C_{12})$ мод. Ніякі заходи по монодомінізації не проводилися, і результати вимірювань представляють собою середнє по полідоміній структурі. Тому нижче для позначення напрямків в кристалі при будь-якій температурі використовується тетрагональна індикація.

Таблиця 3.1. Значення швидкостей звуку при $T = 77$ К.

Мода	C_{11}	C_{33}	C_{66}	C_{44}	$C' = 0.5(C_{11} + C_{12}) + C_{66}$
$s(10^5)\text{см/с}$	2.94	2.69	2.14	1.38	3.59

У таблиці 3.1 не наведено швидкість $C_{11}-C_{12}$ моди. Через сильне загасання отримати надійні результати для неї, навіть при мінімальній довжині зразка ($\sim 0,25$ мм), не вдалося [1,7,8].

Поведінка модулів пружності, дані розраховані з використанням виміряних температурних варіацій швидкостей звуку (густина $\rho = 5,65 \text{ г / см}^3$), представлено на Рис.3.1.

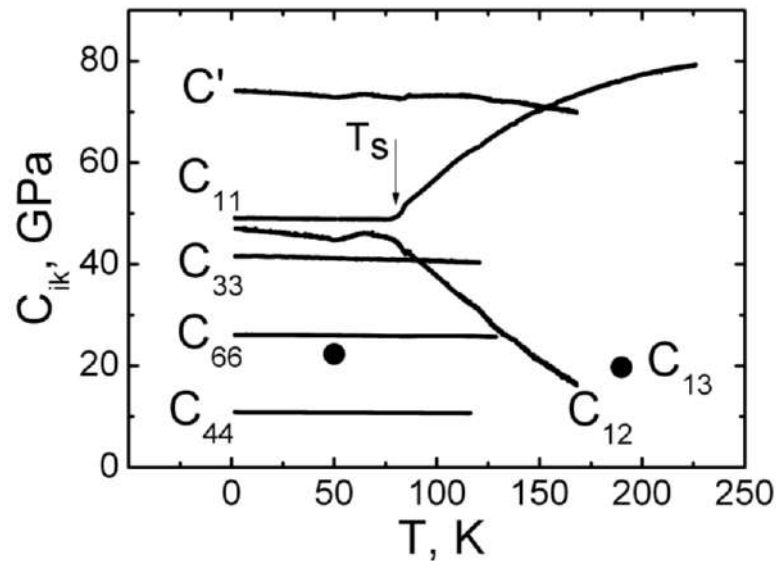


Рис.3.1. Температурні залежності деяких компонент тензору модулів пружності. • – розраховані з літературних даних по стисливості [35] значення C_{13} .

З технічних причин ми не могли виготовити зразок, придатний для вимірювань величини C_{13} (зріз типу [101]). Величина C_{13} була розрахована для температур 50 К і 190 К, виходячи з відомих значень об'ємного модуля B [35] й отриманих нами результатів для C_{11} , C_{33} та C_{12} .

Формула для розрахунку:

$$C_{13} = B \pm \sqrt{(B - C_{33}) \left(B - \frac{C_{11} + C_{12}}{2} \right)} \quad (3.1)$$

З двох можливостей вибирається той варіант, який забезпечує відповідні експерименту додатні знаки парціальних стисливостей уздовж окремих вісей (в нашому випадку був обраний нижній знак). Можна перевірити узгодженість наших вимірів з даними, отриманими при структурних дослідженнях під тиском [35]. Порівняємо співвідношення парціальних стисливостей K уздовж осі c , і в базовій площині. З урахуванням зазначеного вище усереднення по доменній структурі маємо:

$$\frac{2K_c}{K_a + K_b} = \frac{C_{11} + C_{12} - 2C_{13}}{C_{33} - C_{13}} \quad (3.2)$$

З наших даних отримуємо $2,6 \pm 0,1$ (50 К) та $2,5 \pm 0,1$ (190 К). В роботі [35] виміряно, відповідно, 2,67 та 2,57.

Слід звернути увагу на нестандартну поведінку пружних модулів в FeSe при тетра-орто структурному перетворенні. Зазвичай існує лише одна м'яка мода (C_{66} або $C_{11}-C_{12}$), яка має сильне пом'якшення при наближенні до точки переходу, але майже настільки ж швидко відновлює свою жорсткість при подальшому зниженні температури. У нашому випадку моди C_{11} та $(C_{11}-C_{12})$ не тільки значно пом'якшуються при наближенні до переходу, а й залишаються «м'якими» при подальшому зниженні температури. Пом'якшення поздовжньої акустичної моди зафіксовано також в [22].

На Рис.3.2 представлено поведінку загасання C_{11} моди, яке демонструє аномально велике зростання нижче температури структурного перетворення.

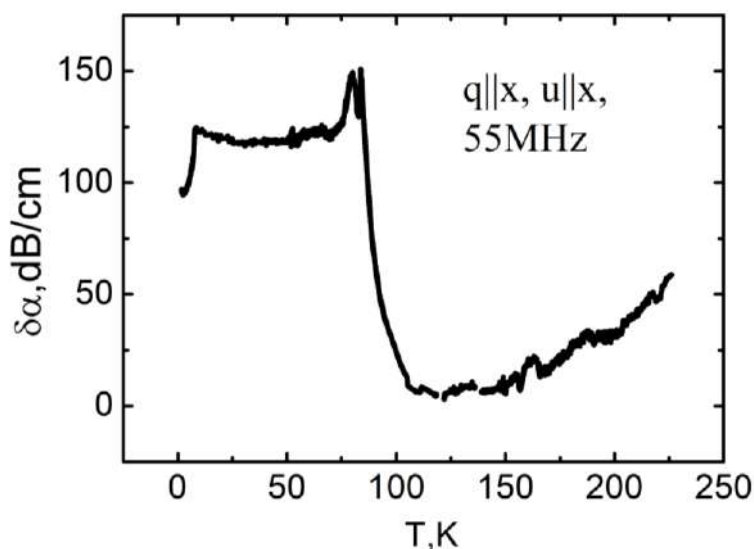


Рис.3.2. Температурна залежність змін поглинання C_{11} моди

Можна подумати, що це є наслідком розсіювання зазначеної моди на полідоменній структурі при значній неузгодженості акустичних імпедансів окремих доменів (тобто більшої різниці орторомбичних C_{11} та C_{22} модулів).

Варто відзначити ще одну особливість поведінки швидкості звуку - усі вивчені моди, за винятком C_{66} , нижче структурного переходу демонструють лінійну по температурі зміну (Рис.3.3.). Така поведінка зазвичай характерна для аморфних або розупорядкованих систем [36,37].

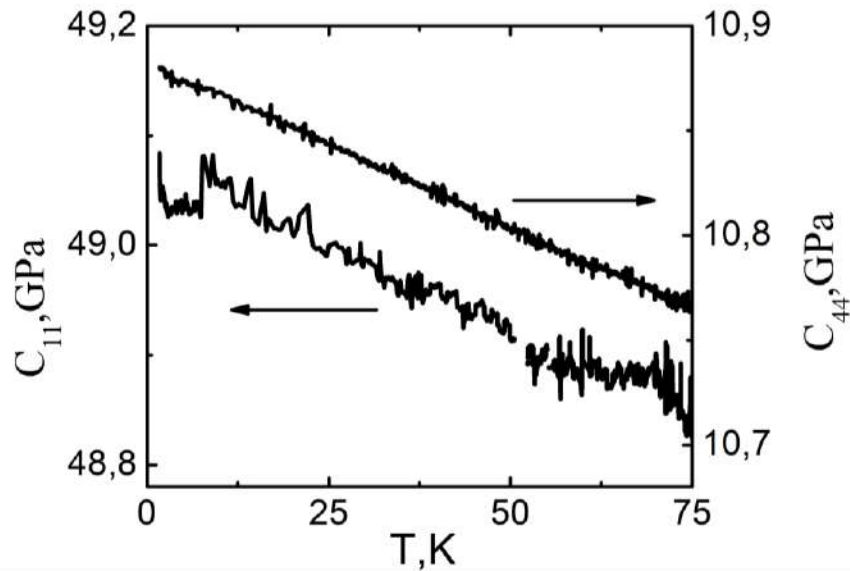


Рис.3.3. Низкотемпературні крила залежностей модулів пружності

Температура Дебая розрахована за формулою [38]:

$$\Theta_D = 0.003625 \left(\frac{\rho n}{MI} \right)^{\frac{1}{3}} (3.3)$$

де $n = 2$ – кількість вузлів на молекулу, M – молекулярна вага, I – сума обернених кубів швидкостей звуку, що усереднена за напрямками хвильової нормалі. Для орторомбічної фази $\Theta_{Dortho} = 159\text{K}$, дещо нижче оцінки з теплоємності (210 K) [34]. Для тетрагональної фази $\Theta_{Dtetra} \approx 200\text{K}$.

3.2. Вплив надпровідного переходу на поведінку пружних характеристик

Аналіз в рамках феноменологічної теорії фазових переходів II роду Ландау стосовно надпровідників, дає такий вираз для зміни модулів пружності в T_C [39]:

$$\delta C = -\left(\frac{dT_C}{d\varepsilon}\right)^2 \frac{\Delta C_Q}{T_C} + A_1 \frac{T}{T_C} \left(1 - \frac{T}{T_C}\right) + A_2 \left(1 - \frac{T}{T_C}\right)^2 \quad (3.4)$$

де ε – відповідна модулю C деформація, ΔC_Q -стрибок теплоємності в T_C в розрахунку на одиницю об'єму, константи A_1 та A_2 сформовані з похідних першого і другого порядків по деформації від T_C [39]. Перший доданок відноситься тільки до поздовжніх коливань і представляє стрибок модуля в T_C . Другий та третій доданки описують еволюцію модуля нижче T_C . На Рис.3.4. наведено зміну швидкостей поздовжніх мод в районі температури надпровідного переходу. Фактично це стрибки, накладені на вищезгадану лінійну фонову залежність. Величини стрибків аномально великі, вони знаходяться на рівні рекордних значень, які спостерігаються в важкоферміонних системах [39] та обумовлені рекордною залежністю T_C від тиску.

З Рис.3.4 видно, що величина ефекту практично ізотропна. Тому для оцінок можна використовувати dT_C/dp при всебічному стиску, а в якості модуля

пружності - об'ємний модуль. Тоді для стрибка швидкості звуку можна написати

$$\delta s/s = B/2 \left(dT_C/dp\right)^2 \Delta C_Q/T_C. \quad \text{Використовуючи } B = 33 \text{ ГПа [35], } dT_C/dp = 7 \text{ К/ГПа}$$

$$[25] \text{ та } \Delta C_Q/T_C = 3.4 \cdot 10^3 \text{ эр}^2/\text{см}^3 \cdot \text{К}^2 \text{ [34], отримуємо } \delta s/s \approx 2.5 \cdot 10^{-4}, \text{ що добре}$$

узгоджується з Рис.3.4.

В [22] зареєстровано на два порядки більше пом'якшення в T_C енергії поздовжньої фононної моди. Можливо, така відмінність пов'язано з тим, що

експерименти [22] були проведені з набагато більш високими фононними частотами ($\omega \sim 10^{11} \text{сек}^{-1}$).

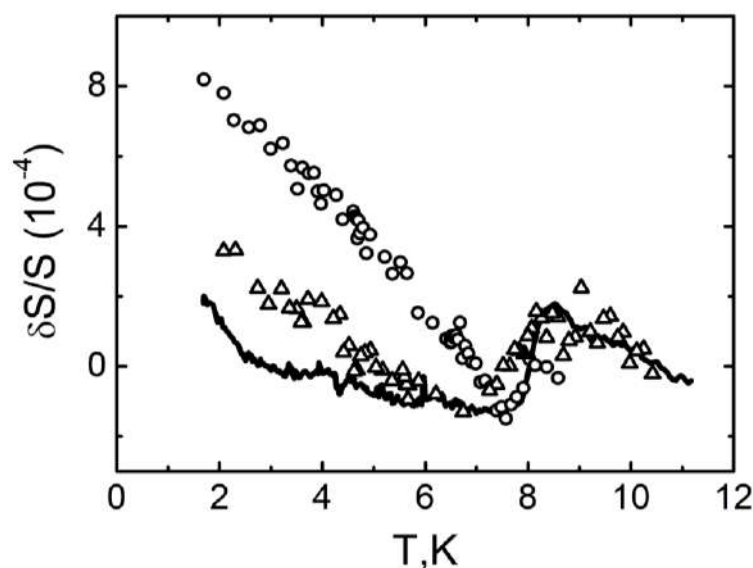


Рис.3.4. Вплив надпровідного переходу на швидкість поздовжніх звукових коливань. Суцільна лінія – C_{11} мода, \circ – C' , Δ – C_{33} .

На Рис.3.5. наведено зміна швидкості і згасання поперечної C_{66} моди. Швидкість досить добре описується другим доданком в наведеному вище співвідношенні (3.4) з $A_1 \approx -0,001$. На відміну від коливань поздовжньої поляризації, цей ефект є анізотропним – C_{44} -мода будь-яких помітних змін в T_C не зазнає.

Вже на Рис.3.2. видно, що в T_C згасання C_{11} моди зазнає помітних змін. Мабуть, ми стикаємося з унікальною для сучасних надпровідних систем ситуацією - проявом взаємодії досить низькочастотного звуку з електронами.

Добре відомо, що структура коефіцієнта поглинання звуку електронами для Фермі поверхні загального виду має вигляд:

$$\alpha / q = (\Lambda / \varepsilon_F)^2 \cdot s / v_F \cdot f(q\ell) \quad (3.5)$$

де Λ – деформаційний потенціал, ε_F - енергія Фермі, V_F - фермієвська швидкість, q - хвильове число, l - довжина вільного пробігу.

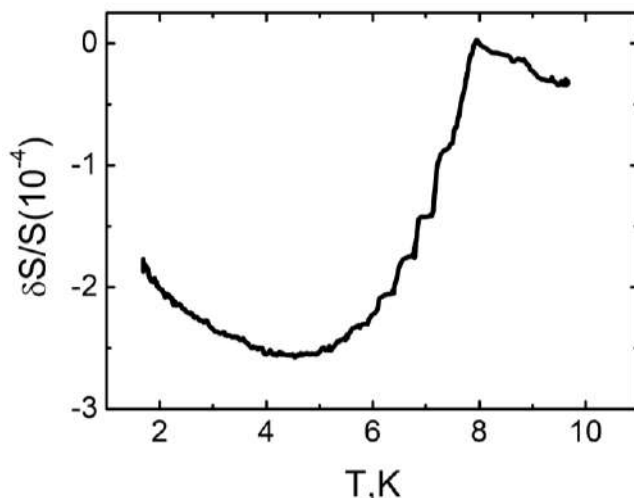


Рис.3.5. Вплив надпровідного переходу на швидкість та згасання C_{66} моди.

Останній співмножник описує частотну залежність. При $ql < 1$ $f(ql) \sim ql$, тобто поглинання квадратично по частоті. В протилежному випадку $f(ql)$ виходить на константу. Якщо на поверхні Фермі є досить велика плоска ділянка, електрони якої ефективно взаємодіють зі звуком, замість множника s/v_F слід підставити відносну площу уплощення [40].

Результат більш детального вивчення загасання різних мод (в т.ч. і частотної залежності) нижче T_C представлений на Рис.3.6., з якого виходять несподівані висновки:

1) поглинання C_{11} моди виявилось рекордним для металів, включаючи і самі високочисті [41]. Це може бути пов'язано як з великою Λ , так і з сплюсненням поверхні Фермі (ПФ).

2) коефіцієнт поглинання C_{11} моди змінюється з частотою практично лінійно, що передбачає виконання умови $ql \geq 1$,

3) ефект є анізотропним – для C_{33} и C' мод він не спостерігається.

Оцінимо час релаксації τ . Питомий опір зразків, аналогічних нашим, ~ 40 мкОм \cdot см [22]. Щільність носіїв з холлівських вимірювань $\sim 10^{20} \div 10^{21}$ см $^{-3}$

[42]. Оскільки FeSe по електронній структурі близький до компенсованого металу [43], ця оцінка, швидше за все, завищена. Наша оцінка щільність носіїв $\sim 10^{19}$ (див. нижче). Це дає $\tau \geq 10^{-12}$ сек та $ql \geq 10^{-1}$, тобто наші зразки не надто далекі від чистої межі.

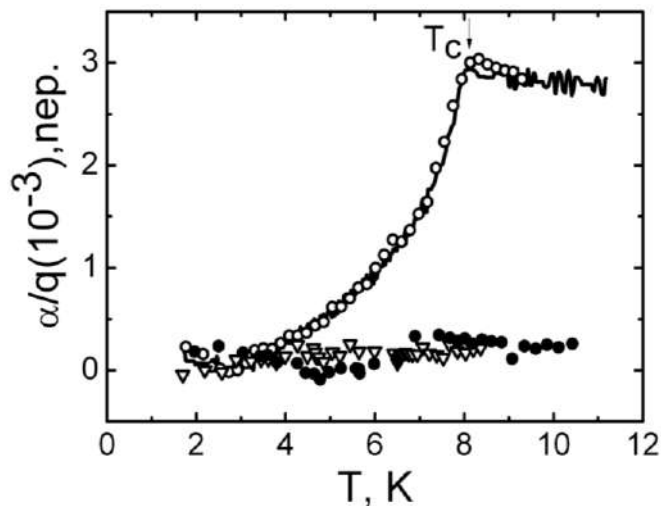


Рис.3.6. Вплив надпровідного переходу на згасання повздовжнього звуку. Суцільна – C_{11} -мода, ($F = 55 \text{ МГц}$); \circ – C_{11} (100 МГц), Δ – C' (55 МГц), \bullet – C_{33} (55 МГц).

Однак очікувати, що параметр ql близький до одиниці на всій ПФ, малоймовірно. В цьому випадку в магнітопольових залежностях загасання слід було б очікувати прояви як магнітоакустичних, так і квантових осциляцій, супроводжуваних також помітною зміною монотонної частини. Всі наші спроби виявити будь-які ознаки змін амплітуди сигналів з магнітним полем в полях до 5 Тл призвели до негативного результату. Можливо, на ПФ є виділений напрям, на якому довжина пробігу має гострий максимум, що і призводить до спостережуваних особливостей поглинання.

Теорія надпровідності БКШ безвідносно до величини параметра ql дає для відношення згасання в надпровіднику до згасання в нормальному металі залежність:

$$\frac{\alpha_s}{\alpha_n} = \frac{2}{\exp\left(\frac{\Delta(T)}{kT}\right) + 1} \quad (3.6)$$

де $\Delta(T)$ – енергетична щілина. Обертаючи цю формулу, можна оцінити значення щілини (Рис.3.7.), що виявилось трохи нижче БКШ значення, але збігається з оцінкою [22] ($\sim 1.6 kT_C$).

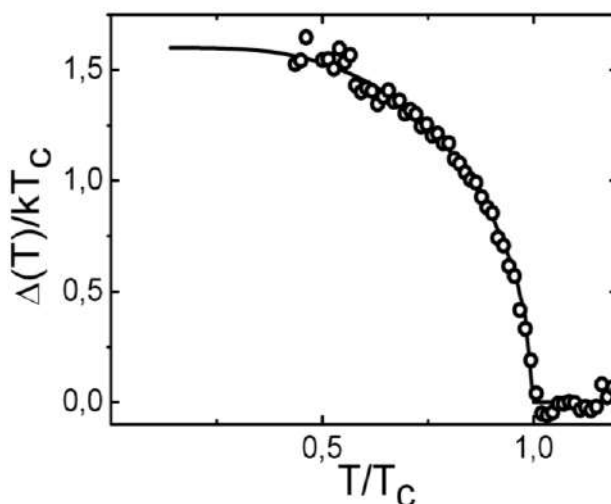


Рис.3.7. Температурна залежність енергетичної щілини. \circ – експеримент, суцільна лінія – БКШ залежність ($\Delta(0)=1,6kT_C$)

Температурна залежність щілини від теоретичної практично не відрізняється.

3.3. Акустoeлектромагнітні характеристики халькогеніду заліза

Проблема взаємодії магнітного порядку і надпровідності в залізовмісних системах *11* в даний час є досить заплутаною. В першу чергу це пов'язано з невизначеністю магнітного стану репрезентативних представників цієї системи. Епітаксіальні плівки тетрагональної фази FeSe спочатку були вивчені при кімнатній температурі, як феромагнітні об'єкти з намагніченістю насичення ~ 500 емо / см^3 (В гаусовій системі) [42]. В [42] також згадується про прояв в плівках FeSe аномального ефекту Хола (АЕХ). Нажаль, відомості про

надпровідні властивості цих плівок не було отримано. АЕХ спостерігався також в епітаксціальних надпровідних плівках $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ [44], однак природа ефекту (феро або антиферомагнітна) залишилася нез'ясованою. У полікристалах FeSe магнітний порядок (ймовірно антиферомагнітний) виявлений при підвищених ($> 0,8$ ГПа) тисках в мюонному експерименті [45]. ЯМР результати [46] вказують на збільшений рівень антиферомагнітних флуктуацій при наближенні до температури надпровідного переходу в полікристалічних зразках FeSe . Слабкий феромагнетизм з намагніченістю насичення $\sim 0,2$ емо / см^3 зареєстрований в монокристалах FeSe [47]. Але експерименти по дифракції нейтронів [45], а також Месбауерівські дослідження [48] не виявили магнітний порядок в полікристалах FeSe .

У всіх цитованих роботах досліджувалися рентгенівські однофазні об'єкти і тому немає підстав приписувати магнітне впорядкування (або його сліди) можливим домішковим фазам. Мабуть, вірна точка зору, висловлена в роботі [46], що FeSe знаходиться на межі переходу в магнітовпорядкований стан, і незначні варіації складу, або внутрішня напруга, можуть його провокувати (або навпаки). У зв'язку з цим великого значення набувають дослідження досконалих монокристалів в області складів, що забезпечують гомогенність системи. Далі наведені результати експериментів по дослідженню акустоелектромагнітної трансформації (АЕМТ) в високоякісних монокристалах $\text{FeSe}_{0.963\pm 0.005}$, що вказують, на існування в них п'єземагнітного ефекту [2, 9,16]. П'єземагнетизм, як відомо [49], можливий тільки в магнітовпорядкованій фазі.

При пружному зміщенні $u = (u, 0, 0)$, хвильовому векторі $q = (0, 0, q)$ і часовій залежності $\sim \exp(i\omega t)$ в одновимірному випадку з рівнянь Максвелла маємо:

$$\frac{d^2 \mathbf{E}}{dz^2} = \frac{4\pi i \omega}{c^2} \mathbf{j} + \frac{4\pi i \omega}{c} \text{rot} \mathbf{M} \quad (3.7)$$

тут j – алгебраїчна сума електронного та йонного струмів, M – індукований звуком магнітний момент. У немагнітному металі в полі $H=(0,0,H_0)$ струм в

локальній границі визначається матеріальним рівнянням $\mathbf{j} = \hat{\sigma}(\mathbf{E} + \mathbf{W})$, де $\hat{\sigma} = \frac{ne^2\tau}{m}$ - тензор провідності [50], $\mathbf{W} = (U_{ST}, U_{ind}, 0)$ - стороння електрорушійна сила [40]. $U_{ST} = \frac{m}{e}\omega^2 u$ - поле Стюарта - Толмена, $U_{ind} = \frac{i\omega}{c}Bu = \frac{i\Omega}{\omega}U_{ST}$ - індукційне поле (B - індукція в зразку, Ω - циклотрона частота). В лінійному за параметром $\Omega\tau \ll 1$ (τ - час релаксації) наближенні розв'язок (1) при $M = 0$ має вигляд [40]:

$$\begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = -\frac{k^2 U_{ST}}{q^2 + k^2} \begin{pmatrix} 1 - \frac{\alpha}{q} \left(\frac{v_F}{s}\right)^2 - i\Omega\tau \frac{q^2}{q^2 + k^2} \frac{\Omega}{\omega} \\ \frac{i\Omega}{\omega} \end{pmatrix} \quad (3.8)$$

тут k – характерне скінове число, v_F та s – швидкості фермієвська та звуку відповідно, α – коефіцієнт поглинання звуку. (σ – статична провідність). Таким чином, за відсутності магнітного поля можлива тільки поява слабкого інерційного поля (E_x компонента).

Однак, всупереч очікуванням, за відсутності зовнішнього магнітного поля були зареєстровані сигнали АЕМТ, що на два - три порядки перевищують можливу величину інерційного поля і спостерігаються в y -поляризації. Поляризаційна діаграма (ПД) для ряду температур і залежність амплітуди від температури наведені на Рис.3.8. Сигнали з'являються при затвердінні сполучної замазки (~ 110 К) і мають особливість (стрибок похідної) при температурі структурного тетра-орто перетворення.

Чудовий вигляд мають польові залежності (Рис.3.9). Амплітуда і фаза ЕП при протилежних напрямках H представляють результат інтерференції двох сигналів, один з яких непарний по магнітному полю. Беручи за початок відліку сигнал при $H = 0$ і розділяючи відгук АЕТ на парну і непарну складові (Рис.3.9, вставка), ми бачимо, що один із сигналів являє нормальну холлівських

компоненту, лінійну по магнітному полю. Амплітуда другого сигналу від H практично не залежить.

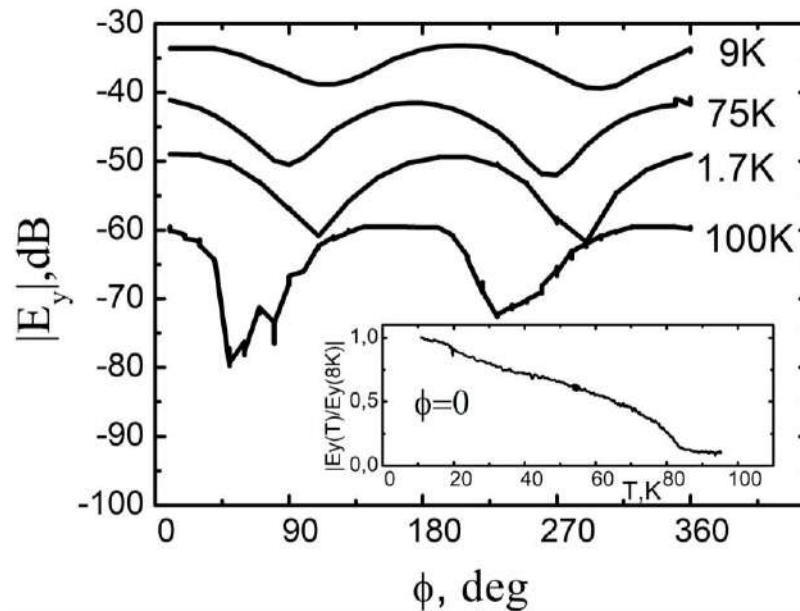


Рис.3.8. Поляризаційні діаграми сигналів АЕМТ. На осі абсцис – кут між напрямом пружних зсувів та нормалю к площині витків приймальної антени. Вставка - температурна залежність амплітуди АЕМТ.

На Рис.3.9 представлений найбільш показовий випадок, коли інтерферуючі сигнали або збігаються по фазі, або знаходяться в протифазі. При повороті антени фази цих сигналів змінюються по-різному, мабуть, внаслідок крайових ефектів, тому положення інтерференційного мінімуму зміщується і зменшується глибина. В принципі вдається визначити місце розташування антени, коли сигнали взаємно ортогональні, і тоді мінімум відсутній. Положення мінімуму залежить також від якості обробки поверхні, зрушуючи іноді в область недосяжних в наших експериментах полів ($> 5,5$ Тл). Але в будь-якому випадку парна і непарна компоненти поведуться аналогічно вставці на Рис.3.9, змінюється лише співвідношення між ними. Відзначимо також відсутність гістерезису при запису аналогічних Рис.3.9 залежностей і будь-яких стрибкоподібних змін, які супроводжують ефекти типу спін флопа.

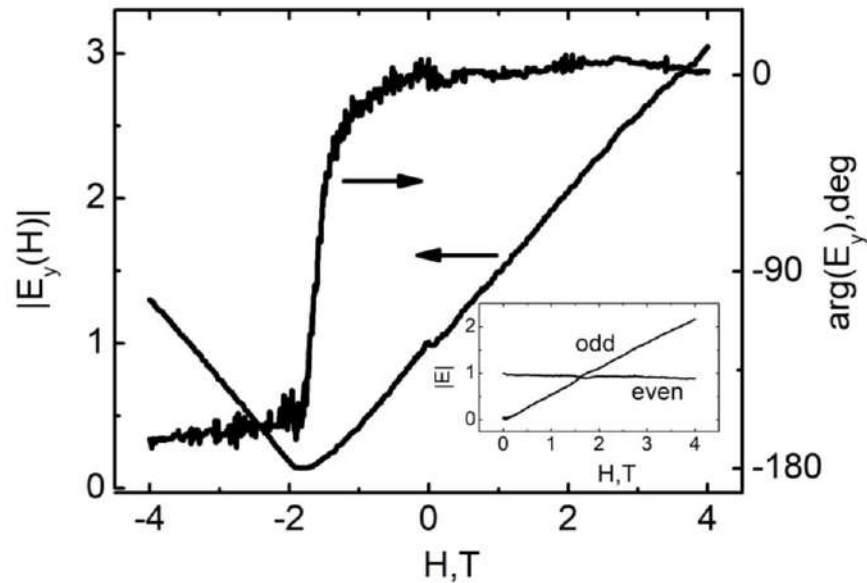


Рис.3.9. Польова залежність амплітуди та фази сигналу АЕТ. Вставка – парна і непарна по полю компоненти сигналу.

Можна вказати два механізми, які можуть, в принципі, привести до ефекту, який спостерігається – це аномальний ефект Хола (АЕХ) і п'єзомагнетизм. Під першим зазвичай розуміється поява надлишкового холловського струму (або холловського електричного поля) в феромагнітних провідниках (див. [51] і посилання там), але подібні явища мають місце і в антиферомагнетиках [52, 53].

Спочатку слід розглянути можливість прояву в нашому випадку феромагнітного АЕХ, який передбачає існування в зразку спонтанного магнітного моменту. Спроба виявити для одного із зразків (розміри $1.4 \times 1 \times 0.3$ мм) поле розсіювання за допомогою ферозонду виявилася безуспішною. При розмагнічуючому факторі $\sim 0,7$ це означає, що якщо спонтанний момент і існує, то він або досить малий, або зосереджений в тонкому приповерхневому шарі. Запишемо рівняння (3.7) для E_y -компоненти, нехтуючи внеском другого доданка справа:

$$\frac{d^2 E_y}{dz^2} = \frac{4\pi i \omega}{c^2} (\sigma E_y + j_{an}) \quad (3.9)$$

тут j_{an} – аномальний струм, відгалуджуючийся в y напрямі при $H = 0$ [54]. Запишемо його в вигляді $j_{an} = \eta(i\omega neu)M/M_{max}$, де скобками виділено x -компоненту електронного струму в звуковому пучку (аналог транспортного струму), η – частка відгалуджуючогося струму, M_{max} – момент насичення. Якщо передбачуваний момент постійний по товщині зразка, то $d^2/dz^2 = -q^2$, якщо ж він зосереджений в шарі товщиною $a \ll q^{-1}$, то $d^2/dz^2 \approx -a^{-2}$. Питомий опір наших зразків $\rho \geq 40 \text{ мкОм/см}$ [54], що дає $k_0^2 \leq 10^5$. При швидкості C_{44} моди $1,38 \cdot 10^5 \text{ см/с}$ [1], $q^2 = 6,25 \cdot 10^6 \gg k_0^2$ та першим доданком зправа в (3.9) можна знехтувати. З огляду на те, що наш сигнал порівнюється з нормальним холлівських при $H_0 \sim 2 \text{ Тл}$ і комбінуючи рівняння (3.8) і (3.9), отримаємо оцінку мінімально необхідних $\eta \geq 0,3$. Насправді при АЕХ величина η не перевищує 10^{-2} [54]. Подібну оцінку можна виконати і для антиферомагнітного АЕХ, розуміючи в j_{an} під останнім множником $L/M_{max} \sim 1$ (L – вектор антиферомагнетизму), і отримати таку ж нереальну величину $\eta \sim 0,03$. Таким чином, можна сказати, що АЕХ не підходить для трактування ефекту, що спостерігається.

Розглянемо п'єзомагнетизм, як можливий механізм ефекту. Переписавши рівняння (3.9) для E_y -компоненти, враховуючи п'єзомагнетизм і нехтуючи аномальною складовою струму:

$$\frac{d^2 E_y}{dz^2} = k^2 E_y - \frac{4\pi i \omega}{c} \frac{dm_x}{dz} \quad (3.10)$$

тут m_x – x – компонента індукованого пружною деформацією магнітного моменту. У нашому конкретному випадку вона може бути представлена [52]: $m_x = \Pi_{xixz} L_i C_{44} du/dz$. Тут C_{44} – модуль пружності, L_i – i -та компонента вектору антиферомагнетизму. Вид матриці п'єзомагнітних коефіцієнтів Π_{ijkl} для різних магнітних структур наведено в [52].

Замінюючи d/dz на $-iq$, отримуємо:

$$E_y = -\frac{q^2}{q^2 + k^2} \Pi_{xixz} L_i C_{44} u \quad (3.11)$$

Провівши порівняння з холлівських сигналом, отримуємо $\Pi_{xixz} L_i = 2.4 \cdot 10^{-10}$ Гс см² / дин. Це цілком прийнятна величина, вона на порядок менше максимальних значень, виміряних Боровиком-Романовим в СоF₂ [55]. Цілком можливо, в разі великої величини Π_{xixz} ефект спостерігаємо і при впорядкуванні заліза, що знаходиться в нізкоспіновому стані, (малі L_i), що затрудняє виявлення магнітного порядку традиційними методами. Не виключено, що ефект взагалі обумовлений флуктуаційним антиферомагнетизмом. Слід, однак, відзначити, що вищенаведені міркування справедливі лише за відсутності 180- градусних доменів (флуктуацій), або хоча б при перевазі доменів (флуктуацій) одного знаку.

Поведінка сигналу АЕМТ в надпровідній фази при $H_0 = 0$ приведена на Рис.3.10: поле E_y нижче T_c зменшується, проте не до повного зникнення, а зупиняється на цілком вимірному значенні.

Враховуючи що $k_0^2 \ll q^2$, а в надпровіднику $k^2 = \lambda_L^{-2}(T)$, з (3.11) отримуємо

$$\frac{E_y^n(T_c)}{E_y^s(T)} = \left(1 + \frac{1}{q^2 \lambda_L^2(T)}\right) f(T) \quad (f(T) \text{ символізує можливу зміну в надпровідній фазі}$$

п'єзомагнітного коефіцієнту). Якщо припустити, що $f(T) \equiv 1$, легко знайти $\lambda_L^{-2}(T)$ (Рис.3.10 вставка). Величина $\lambda_L(0)$ визначається як граничним значенням при $T \rightarrow 0$ ($1,82 \pm 0.03 \mu$) так і може бути знайдена з нахилу апроксимуючої прямої

$$\text{поблизу } T_c, \text{ де } \lambda_L^{-2}(T) = \lambda_L^{-2}(0) \frac{2(T_c - T)}{T_c} \quad [50] \quad (1,65 \pm 0.1 \mu).$$

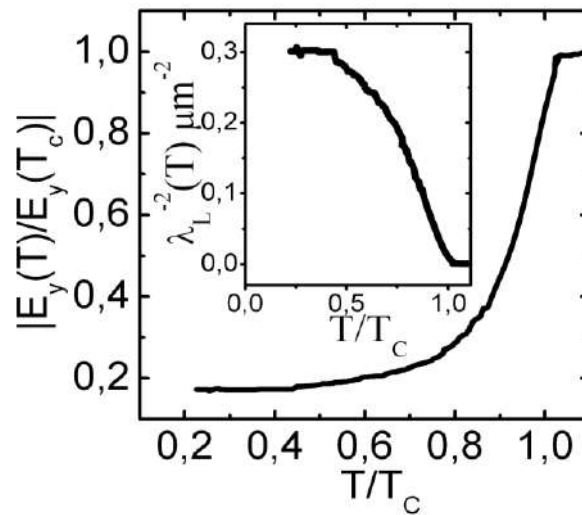


Рис.3.10. Поведінка сигналу АЕМТ в надпровідній фазі. Вставка – квадрат зворотної величини лондонової глибини проникнення.

Близькість цих оцінок виправдовує наше припущення про незмінність п'єземагнітного коефіцієнту нижче T_C , тобто надпровідність та п'єземагнетизм «мирно» співіснують. В роботі [56] для полікристалу $\text{FeSe}_{0.95}$ знайдено трохи менше значення $\lambda_L(0)$ ($\sim 0,5\mu$). Можливо, така розбіжність пов'язано зі значною залежністю ступеня компенсування від агрегатного стану зразка і його складу. Оцінюючи з значення σ довжину вільного пробігу, можна зробити висновок, що досліджувані зразки знаходяться в чистій межі ($l > \xi$). В цьому випадку справедлива проста формула $\lambda_L(0) = \left(\frac{mc^2}{ne^2}\right)^{1/2}$ [50]. Вона сумісна з отриманим значенням $\lambda_L(0)$ при $n \sim 10^{19}\text{см}^{-3}$.

3.4. Висновки до Розділу 3

Визначені всі компоненти тензора модулів пружності монокристалів FeSe , виявлено значне пом'якшення C_{11} та $C_{11} - C_{12}$ мод при структурному перетворенні. Вивчено вплив надпровідного переходу на швидкість і згасання звукового сигналу, що виявилось значним. Оцінено величину надпровідної енергетичної щільності. Досліджено процес акустоелектромагнітної трансформації в

монокристалах FeSe. За відсутності постійного магнітного поля виявлена інтенсивна генерація електромагнітного випромінювання під впливом ультразвуку. Найбільш ймовірною причиною існування ефекту є п'єзомагнетизм. Оцінена величина п'єзомагнітної константи. У надпровіднику еволюція сигналу акустоелектромагнітної трансформації визначається зміною лондоновської глибини проникнення $\lambda_L(T)$ при сталості п'єзомагнітних взаємодій. Величина $\lambda_L(0)$ виявилася досить великою, що можливо пов'язано з малою електронною щільністю.

Розділ 4. Дослідження акустичних характеристик та акустoeлектромагнітної трансформації в CoF_2

Після виявлення явища п'єзомагнетизму в залізовмісному FeSe [2] наступним кроком було дослідження методом акустoeлектромагнітної трансформації (АЕМТ) [3,10,11] класичного п'єзомагнетіку, дослідженого раніше Боровиком-Романовим (CoF_2) [55].

Історично CoF_2 був першим антиферромагнетиком, в якому в середині минулого століття був виявлений п'єзомагнетизм (ПМ). Симетрійний аналіз, виконаний Дзялошинським [57], дозволив вказати необхідні конфігурації експериментів, незабаром здійснених Боровиком-Романовим [55]. Крім принципового підтвердження самого факту існування ефекту, в [55] були проведені кількісні вимірювання величини коефіцієнта п'єзомагнітного зв'язку, які показали, зокрема, що в CoF_2 він на два порядки перевищує значення для MnF_2 . Експерименти [55] фактично представляли собою прямі статичні вимірювання магнітного моменту, що виникає в зразку під дією прикладеної здвигової напруги. АЕМТ експеримент в деякому сенсі слід вважати непрямим, оскільки вимірюваними величинами є амплітуда і фаза електромагнітного поля, випромінюваного із зразка в результаті появи змінного в часі магнітного моменту, що збуджується пружною хвилею досить високої частоти. У зв'язку з вищесказаним було принципово важливим провести АЕМТ експеримент в зразку з відомою величиною п'єзомагнітного зв'язку з метою порівняння результатів вимірювань і підтвердження придатності методу для вивчення п'єзомагнітних ефектів. Останнє заздалегідь не було очевидним з огляду на можливий вплив релаксаційних процесів.

За відсутності зовнішнього магнітного поля результати експериментів практично збіглися з результатами [55], підтвердивши правомірність використання АЕМТ для вивчення п'єзомагнетизму. У той же час в магнітному полі при температурах, що помітно перевищують температуру Нееля, виявлені яскраво виражені ефекти, лінійні по магнітному полю, що мають нестандартну

температурну залежність, добре апроксимується експонентою і вказують на значний внесок ближнього порядку в амплітуду АЕМТ.

Підрозділ 4.1 присвячено визначенню модулів пружності CoF_2 . У параграфі 4.2 наведені та обговорені результати експериментів за відсутності магнітного поля. Параграф 4.3 присвячений магнітопольовим залежностям. Крім того, в цьому параграфі наведено результати вимірювань магнітної сприйнятливості, які виявляють кореляцію з АЕМТ даними.

4.1. Дослідження акустичних характеристик CoF_2

Незважаючи на більш ніж піввікову історію досліджень фізичних характеристик CoF_2 і доступність високоякісних монокристалів прийнятних розмірів, в літературі відсутні акустичні дані про модулі пружності цієї сполуки. Є лише результати, отримані при дослідженні непружного розсіяння нейтронів [58] і мандельштам-бріллюєновського розсіювання світла [59], між якими будь-яка кореляція практично повністю відсутня. Оскільки для подальших оцінок знання модулів пружності виявилось необхідним, то були виконані вимірювання швидкостей звуку з використанням «ноніусної» методики [33] на частотах ~ 55 МГц при азотної температурі ($T \sim 77$ К). Характерні розміри акустичних довжин $1 \div 1.5$ мм, точність орієнтації кристалографічних напрямків $\sim 1^0$.

Значення швидкостей звуку s для різних мод представлені в Табл.4.1. Тут, моди з нижнім індексом «45» представляють швидкості коливань з хвильової нормаллю, паралельної бісектрисі кута між осями x та z (T - чиста поперечна мода з поляризацією, паралельною осі y , QT і QL - квазіпоперечна і квазіповздовжна відповідно). Всі значення виміряні з точністю не гірше 0,5%.

Таблиця 4.1. Швидкості звуку в CoF_2 .

мода	C_{11}	C_{33}	C_{44}	C_{66}	$C_{11} - C_{12}$	C'	C_{45}^T	C_{45}^{QT}	C_{45}^{QL}
$s(10^5 \text{см/сек})$	5.44	6.65	2.87	4.29	1.72	6.71	3.62	2.72	6.19

Величини модулів пружності в порівнянні з доступними літературними даними наведені в Табл.4.2. При їх обчисленні використовувалася кристалографічна щільність $\rho = 4,6 \text{ г/см}^3$ [60].

Таблиця 4.2. Модули пружності CoF_2 (10^{11} дин/см^2)

C_{11}	C_{33}	C_{44}	C_{66}	C_{12}	C_{13}	T вимір.	Джерело
13.6	20.3	3.79	8.46	12.2	9.9 ± 0.1 ($10. \pm 0.3$)	77К	[3]
13	19.6	3.5	8.5	9.5	9.2	293К	[59]
31 ± 2	48 ± 3	10 ± 1	-	-	-	80К	[58]

Щодо цієї таблиці необхідно сказати наступне. Недіагональні модулі (C_{12} та C_{13}) можна знаходити зі швидкостей як квазіпоперечної, так і квазіповздожної мод – результат, природно, повинен бути той самий. Користуючись Табл.4.1, легко бачити, що значення C_{12} , визначені з швидкостей (C_{11} - C_{12}) і C' мод, в межах точності вимірювань, збігаються. Однак в разі C_{13} це не виконується - в Табл.4.2 в шостому стовпці в дужках наведено середнє значення модуля, отримане з швидкостей C_{45}^{QT} та C_{45}^{QL} мод, а в якості інтервалу використаний розкид цих величин. Очевидно, останній перевищує потенційну точність вимірювань. Причина цього пов'язана з неточним орієнтуванням відповідного зразка. При вимірюваннях уздовж головних осей тензору модулів пружності (а також і вздовж вісі [110]) поправки в обчислювані модулі квадратичні по куту відхилення від осі і при розумній точності орієнтування на результат не впливають. У разі ж C_{13} модуля відхилення α от 45^0 в xz площині вже дає лінійну поправку. Зокрема, швидкість C_{45}^T моди в лінійному по α наближенні має вигляд:

$$\rho s^2 = 0.5(C_{44} + C_{66}) + (C_{66} - C_{44})\alpha \quad (4.1)$$

Використовуючи дані вищенаведених таблиць, була отримана оцінка $\alpha \approx -0,02$, тобто хвильова нормаль в даному випадку, очевидно, була відхилена від бісектриси в сторону осі x на кут $\sim 1,2^0$. Вводячи цю поправку в

обчислення C_{13} , отримуємо уточнене значення, наведене в Табл.4.2. Інтервал значень при цьому як і раніше відображає розбіжність результатів при використанні для обчислень швидкостей C_{45}^{OT} та C_{45}^{OL} мод і вже вкладається в рамки потенційної точності.

З розгляду Табл. 4.2. видно, що результати вимірів практично збігаються з даними [59] з урахуванням температурних змін і можливих відхилень закону дисперсії фононів від лінійності. У той же час розбіжність з результатами [58] не може бути пояснено будь-якими помилками вимірювань, хоча співвідношення між наведеними величинами близьке до отриманих в [3] та [59].

4.2. П'єзмагнетизм за відсутності магнітного поля

Електромагнітне поле на пружно вільному приймальному інтерфейсі формується під дією пружної деформації (хвиля що надходить та відбита хвиля, вимушене рішення) та електромагнітної хвилі, що йде у зразок (рішення однорідного рівняння).

Розглянемо напівграничний простір $z \geq 0$, що зайнятий антиферомагнітним діелектриком, на поверхні якого задане пружне зміщення $u(t) = u_0 \exp(i\omega t)$, ($u_0 = (u_x, 0, 0)$ – пружна амплітуда). Комбінуючи перше і друге рівняння Максвела, для ЕМП, отримуємо рівняння:

$$\nabla^2 \mathbf{E} = -k_c^2 \varepsilon \mu \mathbf{E} + 4\pi i k_c [\nabla \mathbf{m}] \quad (4.2)$$

Намагніченість m індукується головним чином пружни полем. Вона пов'язана з деформаційним тензорним співвідношенням $m_i = \Lambda_{i,kl}^u u_{kl}$ (тут і далі кома в тензорних позначеннях, як це зазвичай прийнято, відокремлює індекси, симетричні щодо перестановок). Модуляцію намагніченості електромагнітної хвилею можна не розглядати, тому що її облік призводить лише до перенормування амплітуди вільного рішення (4.2).

Якщо довжина звукової хвилі багато менше діаметру звукового пучка, то одномірний опис ($\partial/\partial x = \partial/\partial y = 0, \partial/\partial z \neq 0$) є хорошим наближенням. Випромінене ЕМП поблизу поверхні також можна вважати плоскою хвилею, для якої $E_x = H_y$ (та навпаки). Внаслідок неперервності тангенціальних компонент ЕМП це і є гранична умова на поле в зразку. Компонента H може бути знайдена інтегруванням другого рівняння Максвелла. З урахуванням цього для нашої геометрії з (4.2) отримуємо:

$$E_i = -4\pi i k_c \varepsilon_{imz} \Lambda_{m,xz}^u \left(\frac{\sqrt{\varepsilon}}{\sqrt{\varepsilon} + 1} \right) u_x \quad (4.3)$$

тут ε_{imz} - компоненти тензору Леві-Чівіта, u_x -амплітуда пружних зсувів на приймальному інтерфейсі (тобто подвоєна амплітуда збудження). В [55,57] в якості зовнішнього параметра, що індукує магнітний момент, використано сдвигова напруга σ_{kl} : ($m_i = \Lambda_{i,kl}^\sigma \sigma_{kl}$). Інваріантність тензору Λ^σ щодо перетворень магнітної групи призводить до того, що в легковісних антиферомагнетиках зі структурою рутилу, до яких належить CoF_2 , ненульові значення мають лише компоненти $\Lambda_{y,xz}^\sigma \equiv \Lambda_{x,yz}^\sigma$ і $\Lambda_{z,xy}^\sigma$. Оскільки трансформаційні властивості тензорів σ_{ik} та u_{ik} збігаються, то тензор Λ^u має таку ж структуру. Це означає, що в нашій геометрії ($u_{xz} \neq 0$) повинні індукуватися намагніченість m_y та поле E_x . Зв'язок між компонентами тензорів Λ^σ та Λ^u легко отримати, враховуючи їх симетрію за німими індексам і використовуючи стандартні співвідношення теорії пружності. Зокрема, маємо $\Lambda_{y,xz}^u = 2\Lambda_{y,xz}^\sigma C_{44}$ (C_{44} – модуль зсуву). Варто звернути увагу на те, що автором [55], мабуть, також через симетрію за німими індексам, в якості п'єзомагнітних модулів озвучені величини $2\Lambda_{i,kl}^\sigma$ (див. наприклад, [63]).

Результати вимірювань наведені на Рис.4.1 Сигнал АЕМТ демонструє максимальну похідну при температурі Нееля ($T_N \approx 38.4$ К). Є невелика

температурна область вище температури Нееля ($T - T_N \leq 2$ К), де також є ПМ відгук, добре помітний на Рис.4.1 завдяки логарифмічному масштабу, і пов'язаний або з флуктуаціями, або з поверхневими магнітними неоднорідностями.

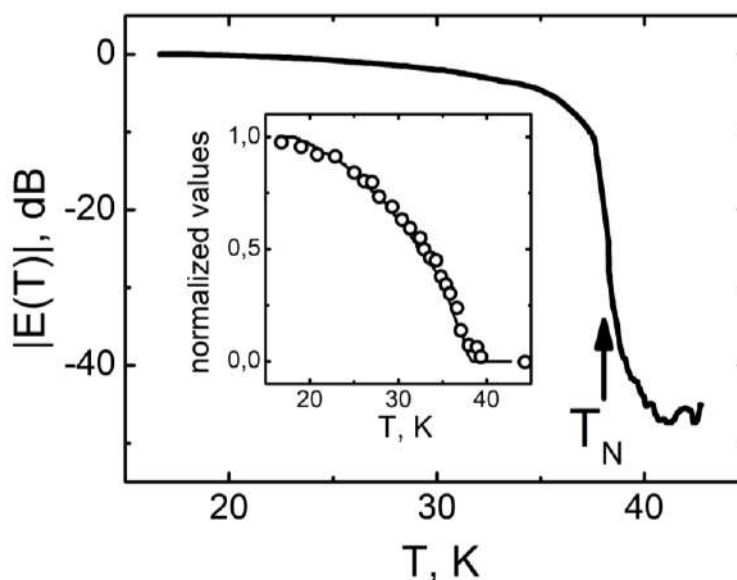


Рис.4.1. Амплітуда п'єзомагнітного відгуку CoF_2 . Вставка – порівняння нормованих величин ПМ відгуку та інтенсивності магнітного розсіювання $I(T)$; ° – розсіювання нейтронів [60], суцільна лінія – квадрат амплітуди ПМ відгуку.

На Рис.4.2 наведено поляризаційні діаграми - залежності амплітуди й фази сигналу від кута φ між площиною витків прийомної антени та напрямком зсувів в акустичній хвилі.

Амплітуда, як й очікувалося, поводитья практично як $|\cos(\varphi)|$, і має максимум для E_x -поляризації, а фаза змінюється на 180° при переході амплітуди через мінімум.

Цікавлячись залежністю величини АЕМТ відгуку від температури, зручно виразити величину п'єзомагнітного моменту через залежний від температури параметр порядку - вектор антиферомагнетизму [54]. Тоді, $\Lambda_{i,kl} \equiv \Pi_{ij,kl} L_j$, где L_j -де відповідна компонента вектора антиферомагнетизму (в нашому випадку L_z). Тут $\Pi_{ij,kl}$ вже звичайний i -тензор, інваріантний щодо операції обернення часу, компоненти якого також можуть залежати від температури.

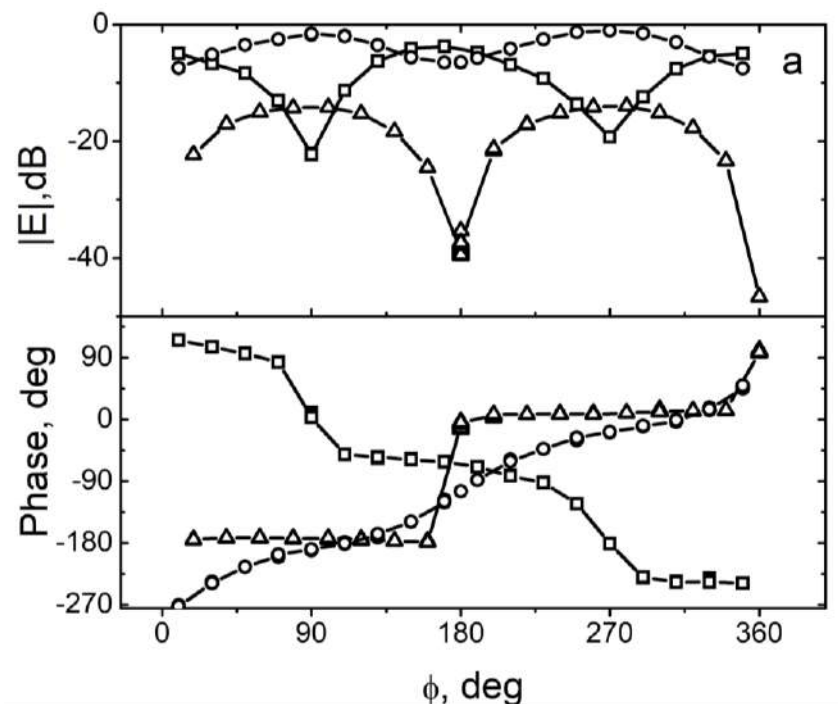


Рис.4.2. Поляризаційні діаграми а) амплітуда АЕМТ сигналів, б) фаза.

\square - $T=1,63 \text{ K}, H=0$. \triangle - $T=43 \text{ K}, H=1 \text{ Tl}$, \circ - $T=1,63 \text{ K}, H=4 \text{ Tl}$.

На вставці до Рис.4.1 наведено квадрат нормованої амплітуди сигналу АЕМТ спільно з інтенсивністю піка магнітного розсіювання нейтронів (також нормованого), взятого нами з роботи [60]. Оскільки останній пропорційний квадрату підрешіткової намагніченості, то збіг залежностей говорить про те, що в межах точності експериментів компонента $\Pi_{yz,xz}$ від температури не залежить.

Кількісно величина реєстрованого сигналу АЕТ залежить від ефективності прийомальної антени та коефіцієнту її зв'язку з випромінюваним полем. Для отримання чисельних оцінок ми замінили зразок CoF_2 монокристалом Nb приблизно такого ж розміру, що досліджувався раніше в [51]. В цьому випадку в магнітному полі компонента E_y описується простим виразом

$$E_y = ik_c \left(\frac{k_0^2}{q^2 + k_0^2} \right) B u_x \quad (4.4)$$

де k_0^2 – квадрат скинового хвильового числа, B – індукція, створювана зовнішнім полем. Для нашого зразка Nb модуль спімножника в круглих дужках в (4.4) дорівнює 0.9. Виміряна нами діелектрична проникність CoF_2 при направленні поля уздовж z (вісь симетрії C_4) $\varepsilon \approx 4.8$. Виходячи з аналогії з MnF_2 [62], можна очікувати $\varepsilon \sim 7$ для напрямків поля в x - площині, що дає для вираження в круглих дужках в (4.3) величину $\sim 0,7$.

Було визначено, що реєстрована амплітуда АЕМТ сигналу при співпадаючих рівнях збудження стає порівнянної з такою для Nb при $B \approx 1$ Тл. Прирівнюючи (4.3) і (4.4), отримуємо $\Lambda_{y,xz}^u \approx 10^3$ емо/см³. Звичайно, ця оцінка - наближена, оскільки розподілу ЕМП над діелектриком і провідником відрізняються. Тим не менш, вона близька до значення, отримуємо при перерахунку Λ^σ з [55] ($\Lambda_{y,xz}^u \approx 760$ емо/см³). Для цієї оцінки було використано виміряне значення $C_{44} = 3,79 \cdot 10^{11}$ дин/см².

4.3. Акустoeлектромагнітна трансформація в магнітному полі

У магнітному полі ($H \parallel q \parallel z$) з'являється ще один канал генерації ЕМП поперечною пружною хвилею, який існує як в антиферомагнітної фазі, так і при температурах, які значно перевищують T_N , де відсутній внесок обговорюваного в попередньому розділі механізму. Остання обставина дозволяє з'ясувати його властивості в чистому вигляді. На Рис.4.2 приведена і поляризаційна діаграма для $T > T_N$ ($H = 1$ Тл, $T = 43$ К), з якої випливає, що в цьому випадку ми маємо справу з полем E_y , і, отже, з m_x компонентою магнітного моменту. Оскільки остання також індукується пружною деформацією, цей процес теж може бути віднесений до класу п'єзомагнітних явищ.

Польові залежності амплітуди сигналу АЕМТ при різних температурах в подвійних логарифмічних координатах наведено на рис.4.3.

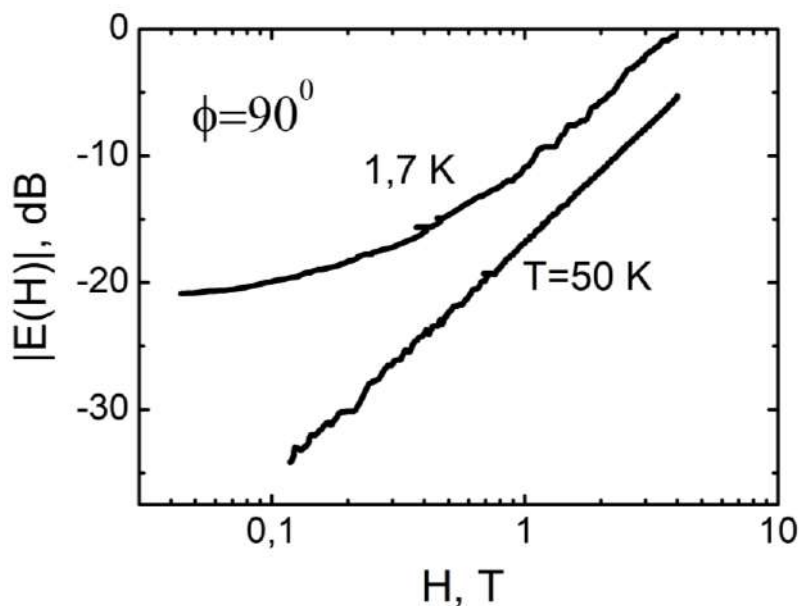


Рис.4.3. Польові залежності амплітуд АЕМТ сигналів. $T=50\text{ K}$, $T=1,7\text{ K}$.

При $T > T_N$ зміна $|E(H)|$, як це впливає з нахилу відповідної прямої, підпорядковується лінійному закону. У антиферромагнітній фазі лінійна залежність проглядається тільки в області досить сильних полів ($H > 1\text{ Тл}$). Відхилення від лінійності в менших полях пов'язано з тим, що в даному випадку поле АЕМТ представляє результат інтерференції двох механізмів збудження ПМ відгуку. Поляризаційна діаграма (Рис.4.2) при $H = 0$ має недостатню глибину модуляції ($\sim 90\%$), що обумовлено, мабуть, викривленнями розподілу ЕМП внаслідок обмеженості розмірів зразка. Хоча залежності, наведені на Рис.4.3, вимірювалися при положенні антени, що відповідає мінімуму АЕМТ відгуку за відсутності поля ($\varphi = 90^\circ$), вклад останнього в області малих полів виявляється помітним. Очевидно, що нижче T_N при $H \neq 0$ збуджуються одночасно як не залежна від H компонента E_x , яка формується за сценарієм, обговореним в підрозділі 4.2, так й індукована в присутності H компонента E_y . Остання, як і раніше змінюється з полем за лінійним законом. Амплітуди двох компонент вирівнюються в полі $\sim 3\text{ Тл}$.

Звернемо також увагу на поляризаційну діаграму, відповідну співіснування обох механізмів ПМ відгуку (Рис.4.2). Модуляція амплітуди АЕТ значно ослаблена, а залежність фази сигналу від кута повороту антени наближається до

лінійної. Така поведінка можлива, якщо зсув фаз між E_x та E_y компонентами близький до $\pi/2$, тобто випромінюється ЕМП еліптично поляризоване.

Температурні залежності логарифмічних амплітуд сигналів АЕМТ для різних полів представлено на Рис.4.4.

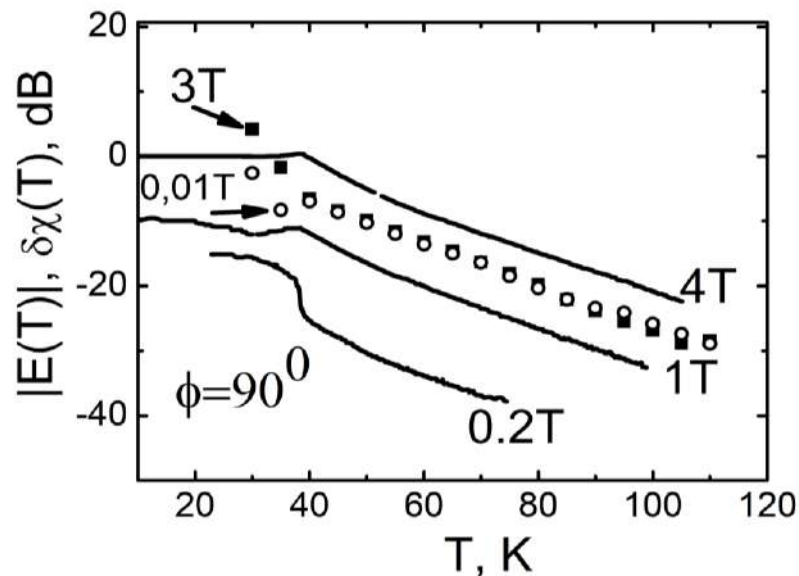


Рис.4.4. Температурні залежності амплітуд АЕМТ сигналів та χ .

Суцільні лінії – АЕМТ сигнали в різних полях $\delta\chi(T) = \chi_{CW} - \chi_{\parallel}$, \circ – $H = 0,01$ Тл, \blacksquare – $H = 3$ Тл.

Для $H \geq 1$ Тл амплітуда в T_N змінюється безперервно, але зі стрибком похідної. У малих полях стає помітним також й стрибок амплітуди внаслідок вимерзання в точці переходу вкладу компоненти E_x . При $T > 60$ К температурні залежності являють собою практично прямі лінії. Вище 110 К подібна поведінка, судячи з даних Рис.4.1, мабуть, зберігається, проте для суворого докази цього необхідні додаткові експерименти з іншою сполучною речовиною. Таким чином, в досить широкому температурному інтервалі ПМ відгук добре апроксимується експонентою $\exp(-T/T_0)$ з $T_0 \sim 30$ К.

Можна думати, що поява ПМ відгуку вище T_N пов'язана з існуванням при цих температурах антиферомагнітних кореляцій, або, іншими словами, ближнього порядку. Подібного роду ефекти спостерігалися раніше в CoF_2 при дослідженні

двопроменезаломлення [63] і температурної поведінки постійних ґратки [60]. Внесок ближнього порядку в цих експериментах проявлявся як поправка до фонові зміни досліджуваної властивості, що визначається шляхом екстраполяції. У нашому випадку ситуація принципово інша - принаймні для $T \leq 110$ К внесок ближнього порядку визначається з первинних експериментальних даних. Можна порівняти прояв ближнього порядку в описуваних експериментах з таким в поведінці магнітної сприйнятливості $\chi_{||}$ при $H // z$ та $T > T_N$. Теоретичний аналіз показує, що за відсутності парних кореляцій сприйнятливість високосиметричних магнетиків в парафазі слідує закону Кюрі-Вейса [64,65]. Будь-яка спроба врахувати кореляційні поправки призводить до відхилень від цього закону при наближенні до T_N . Таким чином, можна вважати, що відхилення експериментально виміряних значень $\chi_{||}$ від закону Кюрі-Вейса обумовлено в основному внеском ближнього порядку.

Незважаючи на те, що в загальних рисах температурна поведінка сприйнятливості CoF_2 вже давно відома [66], ми не змогли знайти в літературі докладні експериментальні дані. У зв'язку з цим співавтором роботи Десненко В.О. [3] була виміряна залежність $\chi_{||}(T)$ з використанням некомерційного СКВІД-магнітометру з дозволом по магнітному моменту $\sim 2 \cdot 10^{-7}$ емо в магнітних полях до 3 Тл. Результати наведені на Рис.4.5.

При $T > 150$ К сприйнятливість досить добре підкоряється закону Кюрі-Вейса ($\chi_{CW} = \frac{C}{T + \Theta}$, $\theta \approx 101$ К, $C=0.039$ при $H = 3$ Тл), на що вказує різнична крива (Рис.4.5, вставка). Відхилення, що з'являються при наближенні до T_N , спрямовані в бік зменшення сприйнятливості, тобто вони обумовлені саме антиферомагнітними кореляціями. Було проведено порівняння їх з АЕМТ відгуком накладенням відформатованих відповідним чином результатів для $\delta\chi_{||}$ на Рис.4.4. Дивно, але температурні зміни всіх представлених на Рис.4.4 величин близькі. Навряд чи такий збіг випадковий, тобто як АЕМТ відгук, так й $\delta\chi_{||}$ відображають внесок одного і того ж фізичного процесу, що розвивається внаслідок спін-кореляційної взаємодії.

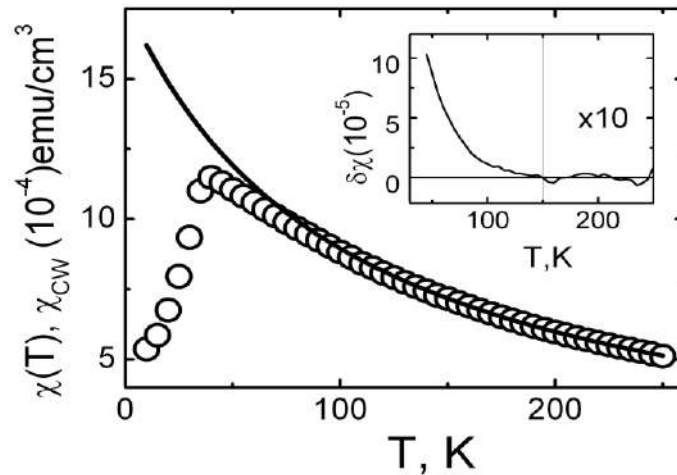


Рис.4.5. Магнітна сприйнятливість CoF_2 . \circ - χ_{\parallel} , суцільна лінія – закон Кюрі-Вейса χ_{CW} . Вставка - $\delta\chi(T) = \chi_{CW} - \chi_{\parallel}$, $H=3$ Тл.

Обговоримо коротко висновки, що випливають з феноменологічного аналізу обговорюваної ситуації. Оскільки індукований звуком момент m_x є лінійним по прикладеному магнітному полю, в термодинамічній потенціал повинні бути утримані тільки квадратичні по моментам складові. Частина термодинамічного потенціалу, що описує в нашому випадку магнітопружні властивості в гранично спрощеному вигляді, можна записати [49]:

$$\tilde{\Phi} = \frac{B}{2} \left(m_x + 0.5 m_z \frac{du_x}{dz} \right)^2 + \lambda m_z m_x \frac{du_x}{dz} - 0.5 H_z m_x \frac{du_x}{dz} \quad (4.5)$$

В (4.5) B та λ – безрозмірні коефіцієнти. Опущені також складові, що відповідальні за слабкий феромагнетизм. Їх облік ніяких принципових змін не вносить. Модифікація в (4.5) першого і останнього (зеємановських) доданків обумовлена тим, що зсувна деформація в лабораторній системі координат призводить до повороту решітки та пов'язаних з нею сил анізотропії моментів на кут $\varphi = 0.5 \text{rot} \mathbf{u}$ [49]. Момент m_z можна замінити на $\chi_{\parallel} H_z$. В результаті, мінімізуючи $\tilde{\Phi}$, отримуємо:

$$m_x = (\lambda\chi_{\parallel}B^{-1}H_z + 0.5\chi_{\parallel}H_z - 0.5B^{-1}H_z) \frac{du_x}{dz} \quad (4.6)$$

Вирішуючи (4.2) з таким m_x , отримуємо АЕМТ відгук (E_y), аналогічний (4.3) із заміною $\Lambda_{y,xz}^u$ на круглу дужку в (4.6). Як зазначалося раніше, в антиферомагнітній фазі поля E_x та E_y зрівнюються по амплітуді в поле $H_z \sim 3$ Тл, тобто використовуючи раніше вимірне значення, отримуємо $\lambda\chi_{\parallel}B^{-1} + \chi_{\parallel} - 0.5B^{-1} \approx 3 \cdot 10^{-2}$. Нижче T_N значення $\chi_{\parallel} \leq 10^{-3}$ емо/см³ ([66], див. також Рис.4.5), $B^{-1} \sim \chi_{\perp} \approx 3 \cdot 10^{-3}$ емо/см³ [66], тому внеском другого і третього доданків в (4.6) (тобто урахуванням повороту решітки) можна знехтувати. Весь АЕМТ відгук визначається лише другим доданком в (4.5).

Звернувшись до Рис.4.4, видно, що нижче T_N АЕМТ відгук в досить великих полях від температури практично не залежить, в той час як χ_{\parallel} спадає приблизно в два рази (Рис.4.5). χ_{\perp} при цих температурах також змінюється слабо [66]. Узгодити таку поведінку з (4.6) можливо, тільки лише припустивши, що коефіцієнт λ при $T < T_N$ має температурну залежність, що компенсує спад χ_{\parallel} .

4.4. Висновки до Розділу 4

Правомочність застосування методики акустoeлектромагнітної трансформації (АЕМТ) при дослідженні п'єзомагнетика була підтверджена в CoF_2 [3]. Дані про величину п'єзомагнітного сигналу (відгуку), а також вимірних модулів пружності виявилися близькі до відомих значеннях [55].

Таким чином, за відсутності магнітного поля АЕМТ-експеримент фактично підтвердив результати статичних вимірювань. Треба відзначити, що використовуваний метод технічно набагато простіше використаного в [55] і добре підходить для вивчення тендітних зразків. Крім того, він дозволяє експериментувати з тонкими зразками, які мають субміліметрові товщини.

При накладенні поля уздовж вісі легкого намагнічення з'являється новий канал виникнення п'єземагнітного відгуку. При цьому індукований пружною деформацією магнітний момент орієнтований паралельно напрямку зсуву в поперечній акустичній хвилі. Ефект існує як в антиферомагнітній фазі, так і при температурах, які значно перевищують T_N . В останньому випадку амплітуда п'єземагнітного відгуку експоненціально спадає з підвищенням температури, відображаючи зміну числа антиферомагнітно скорельованих спінів. Аналогічна залежність відзначена також і в поведінці магнітної сприйнятливості.

Розділ 5. Пружні та п'єзоелектричні характеристики фероборатів самарію та неодиму

5.1. Пружні та п'єзоелектричні модули фероборатів Nd й Sm

Рідкісноземельні фероборати (загальна формула $\text{ReFe}_3(\text{BO}_3)_4$) відносяться до групи сегнетомагнетиків (мультифероїків) – матеріалів, які суміщають в собі властивості магнітовпорядкованих і сегнетоелектричних середовищ. Виникнення антиферомагнітного порядку викликає одночасно появу електричної поляризації. Сімейство рідкісноземельних фероборатів має два варіанти орієнтації вектора антиферомагнетизму – легка вісь (гадоліній, тербий) та легка площина (самарій і неодим). У гольмієвому феробораті відбувається спін-переорієнтаційний перехід від легкої вісі в легку площину. Всі сполуки даної групи відносяться до нецентросиметричного п'єзоелектричного класу D_3 .

Знання пружних і п'єзоелектричних модулів важливо і як технічна характеристика досліджуваних сполук, і як тест для розвитку теоретичних схем їх розрахунку. Визначення швидкості і згасання звуку є важливою процедурою, що дозволяє охарактеризувати речовину, тому робота з фероборатами починалася саме з таких вимірювань.

Були виконані систематичні вимірювання пружних характеристик репрезентативних представників сімейства рідкісноземельних фероборатів (самарієвого і неодимового) для визначення повного набору компонент тензора модулів пружності. Вибір неодиму та самарію диктувався відносною простотою їх поведінки в парамагнітному стані – відсутністю структурних перетворень [28].

Нижче наведені результати акустичних вимірювань швидкостей звуку в цих сполуках в парафазі [4,12]. Монокристали, з яких вирізалися рентгенівськи орієнтовані зразки, вирощено в Інституті фізики РАН (м Красноярськ). Характерний розмір зразків ~ 2 мм.

Швидкості звуку вимірювалися при температурі рідкого азоту в імпульсному режимі фазовим методом (див. Розділ 2, 2.2) [33].

П'єзоелектрична взаємодія перенормує компоненти тензора Крістофеля, що визначає величину швидкості звуку. У загальному випадку його елементи мають вигляд [49]:

$$\Lambda_{ik} = C_{iklm} n_l n_m + 4\pi \frac{(e_{l,mi} n_l n_m)(e_{p,qk} n_p n_q)}{\varepsilon_{rs} n_r n_s} \quad (5.1)$$

де C_{iklm} - матриця модулів пружності, n_i - направляючі косинуси вектора хвильової нормалі, ε_{rs} - тензор діелектричної проникності, $e_{l,mi}$ - тензор п'єзоелектричних модулів, що зв'язує поляризацію з деформацією, що її викликає ($P_i = e_{i,kl} u_{kl}$). Зв'язок (5.1) означає, що, вимірявши з достатньою точністю фазові швидкості звукових коливань для декількох напрямків хвильової нормалі, можна відновити всі компоненти тензорів, як модулів пружності, так і п'єзоелектричних модулів.

У класі D_3 , до якого відносяться всі фероборати, відмінні від нуля п'ять елементів п'єзоелектричного тензора, з яких лінійно незалежні всього два [49]. У позначеннях Фойгта це:

$$e_{11} = -e_{12} = -e_{26}, \quad e_{14} = -e_{25} \quad (5.2)$$

Для виконання програми перебування всіх компонент тензорів C та e необхідно виміряти швидкості звуку при хвильовій нормалі, спрямованій уздовж вісі x (вісь симетрії C_2) і в площині yz ($z \parallel C_3$). У першому випадку ($n_l=1$) матричне рівняння Крістофеля має вигляд:

$$\begin{pmatrix} \rho s^2 - C_{11} - \frac{4\pi e_{11}^2}{\varepsilon_{11}} & 0 & 0 \\ 0 & \rho s^2 - C_{66} & -C_{14} \\ 0 & -C_{14} & \rho s^2 - C_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_x \\ u_y \\ u_z \end{pmatrix} = 0 \quad (5.3)$$

тобто в цій геометрії п'єзоактивна тільки повздовжня мода. Для хвильової нормалі, що лежить в площині yz ($n_1 = 0$) маємо:

$$\begin{pmatrix} \rho s^2 - (C_{66}n_2^2 + C_{44}n_3^2 + 2n_2n_3C_{14}) - \frac{4\pi(e_{11}n_2^2 + e_{14}n_2n_3)^2}{\varepsilon_{11}n_2^2 + \varepsilon_{33}n_3^2} & 0 & 0 \\ 0 & \rho s^2 - (C_{11}n_2^2 + C_{44}n_3^2 - 2n_2n_3C_{14}) & C_{14}n_2^2 - (C_{13} + C_{44})n_2n_3 \\ 0 & C_{14}n_2^2 - (C_{13} + C_{44})n_2n_3 & \rho s^2 - (C_{44}n_2^2 + C_{33}n_3^2) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_x \\ u_y \\ u_z \end{pmatrix} = 0 \quad (5.4)$$

За винятком виродженого випадку ($n_2=0$), п'єзоактивна тільки чисто поперечна мода з поляризацією, паралельною вісі C_2 . При $q \parallel z$ всі моди неп'єзоактивні.

Поляризація в зразку може бути визначена також через напругу, що прикладається до зразка σ_{kl} : $P_i = d_{i,kl}\sigma_{kl}$. Компоненти тензора $d_{i,kl}$ підкоряються тим же співвідношенням (5.2). Легко переконатися, що при всебічному стиску ($\sigma_{kl} = p\delta_{kl}$) поляризація в зразку не виникає. Фізично це пов'язано з тим, що всебічне стиснення не змінює симетрії решітки. В результаті п'єзоелектрична взаємодія не позначається на об'ємній стисливості, і, незалежно від граничних умов (кристал закорочено або розімкнуто), парціальні стисливості визначаються формулами:

$$K_x = K_y = \frac{C_{33} - C_{13}}{(C_{11} + C_{12})C_{33} - 2C_{13}^2}, \quad K_z = \frac{C_{11} + C_{12} - 2C_{13}}{(C_{11} + C_{12})C_{33} - 2C_{13}^2}$$

Значення модуля всебічного стиску знаходиться зі співвідношення:

$$B = \frac{(C_{11} + C_{12})C_{33} - 2C_{13}^2}{C_{11} + C_{12} + 2C_{33} - 4C_{13}} \quad (5.5)$$

Алгоритм вимірювання наступний:

1) зі швидкостей s повздовжнього та поперечного звуку для $q \parallel z$ ($n_3=1$) визначаються C_{33} та C_{44} (рівняння (5.4)).

- 2) при відомій величині C_{44} швидкості квазіповздовжної та квазіпоперечної мод при $q \parallel y$ ($n_2=1$) дозволяють знайти C_{11} та $|C_{14}|$ (рівняння (5.4)).
- 3) зі швидкості повздовжньої моди для $q \parallel x$ (при відомих C_{11} та ϵ_{xx}), знайдемо e_{11} (рівняння (5.3)).
- 4) величину C_{66} , або C_{12} ($C_{12} = C_{11} - 2C_{66}$), знаходимо з швидкості поперечної моди при $q \parallel y$ (при відомому e_{11}).
- 5) бракуючі константи (C_{13} , e_{14}) обчислюються з результатів вимірювань в повернутих у - зрізах ($n_3 = n_2 = 1/\sqrt{2}$, або $n_3 = -n_2 = 1/\sqrt{2}$) (рівняння (5.4)).

Потенційна точність методики в зразках міліметрових розмірів – краще 0,3%. Але реалізація програми вимірювань в даному випадку виявилася утрудненою через сильну неоднорідності зразків, особливо самарієвого. Конверсія мод на неоднорідностях призводить до появи вторинних хвиль, що інтерферують з корисним сигналом, в результаті чого фазовий зсув, властивий останньому, залежить від часу його приходу на приймальний інтерфейс. Основний прийом в використанні методу [33] при цьому полягає у визначенні повного числа довжин хвиль n , що укладаються на довжині зразку. Застосуванням диференціальної методики визначається в чистому вигляді фрагмент частотної залежності фазового зсуву ($\delta\varphi = -\delta qL$, q – хвильове число, L - довжина акустичного шляху), внесеного зразком. Ця залежність апроксимується прямою лінією (див. Рис.5.1а), нахил якої визначається швидкістю звуку, однак реальне її положення на вісі ординат відомо лише з точністю $2\pi n$ (n - ціле число). Швидкість може бути розрахована з нахилу прямої, але через малість частотного інтервалу δf , що задається технічними обмеженнями, точність такої оцінки в разі коротких зразків недостатньо висока. Її можна підвищити, враховуючи, що апроксимуюча пряма перетинає вісь ординат в точці $2\pi n$. Оптимальне значення n визначається при цьому умовою максимальної близькості величини $2\pi n$ до координати перетину первинної (без додаткового умови) апроксимації з віссю ординат. Обґрунтованість такого вибору перевіряється методами статистичної обробки. Зрозуміло, всі ці міркування можна застосувати тільки до монофазних сигналів,

для яких фазовий зсув є лінійним за частотою. В іншому випадку результуюча фаза залежить від співвідношення амплітуд сигналів, що беруть участь в процесі та її частотна залежність більш складна, що і спостерігається в неоднорідних зразках.

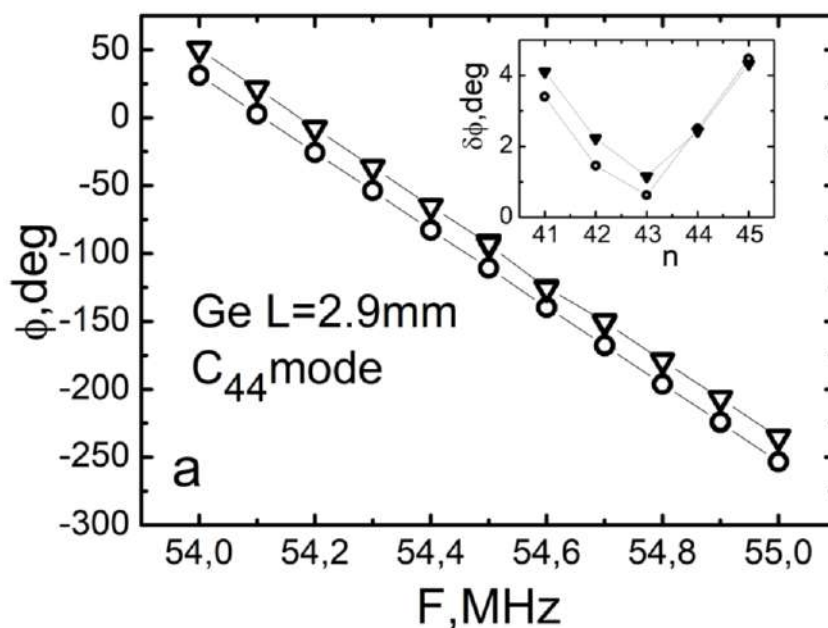


Рис.5.1.а. До поясненням використаної методики вимірювання швидкостей звуку. а) Фазо-частотні характеристики досить досконалого монокристала Ge, зняті при здвинутих на 10^{-7} сек положеннях зчитувального строб імпульсу. Характеристики зміщено по відношенню один до одного на 20^0 . Вставка - залежність стандартних відхилень від передбачуваного числа цілих довжин хвиль, що укладаються в зразку і визначають ординату перетинання апроксимуючої прямої з віссю у.

На Рис.5.1.а наведені фазо-частотні характеристики досить досконалого монокристала Ge. Ці дані отримані при двох положеннях зчитувального строб імпульсу, що відрізняються на 10^{-7} сек., зміщено по відношенню один до одного на 20^0 (без зсуву графіки в використаному масштабі зливаються). Незважаючи на велику «прицільну» відстань, відхилення точок перетину апроксимуючих прямих з віссю ординат від величини, кратної 2π , не перевищує сотні градусів, не

залишаючи сумнівів в обґрунтованості вибору відповідного $n = 43$. Оптимальність такого вибору підтверджує вставка на тому ж малюнку. Стандартне відхилення, незалежно від положення пристрою, що зчитує строб імпульсу, мінімальне при обраному значенні повного числа довжин хвиль, що укладаються в зразку. Внаслідок фактичного розширення частотного інтервалу точність визначення швидкості поліпшується більш ніж на порядок.

Ситуація, характерна для феробората Nd представлена на Рис.5.1.б. Результати отримані при такому ж зсуві зчитують строб імпульсу. В цьому випадку взаємне зміщення фазо-частотних характеристик виникло вже в вимірюваннях, а розбіжність нахилів видно навіть неозброєним оком. Вставка на малюнку свідчить, що положення мінімумів середньоквадратичного відхилення залежить від місця розташування строб імпульсу, не дозволяючи обґрунтовано вибрати значення n .

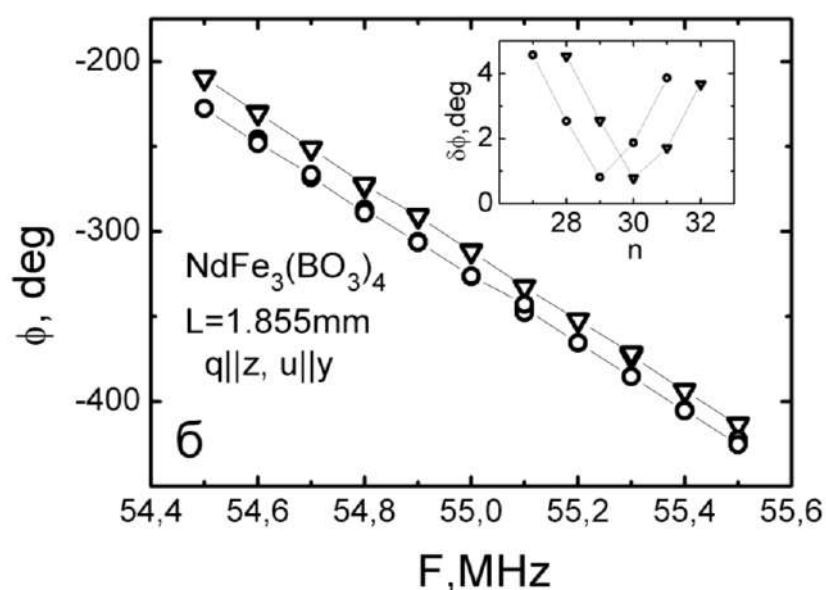


Рис.5.1.б. Те ж саме для монокристала $NdFe_3(BO_3)_4$. Зсув характеристик і розбіжність мінімумів стандартних відхилень обумовлено мінливістю фазового зсуву, що вноситься зразком, на довжині вимірювального імпульсу.

Проведені експерименти показали, що ступінь неоднорідності залежить від багатьох недостатньо добре контрольованих факторів, таких, як ступінь скутості

кристалу, швидкість охолодження, кількість циклів термоциклювання і т.п. Особливо сильними фазові викривлення були при вимірах в повернених y -зрізах, що, можливо, пов'язане з енантіоморфізмом досліджуваних сполук.

У зв'язку з цим довелося набирати статистику і співставляти результати, отримані на зразках різної довжини. В останньому випадку малося два різних набору можливих швидкостей, майже дотичних при певному значенні, яке вважалося близьким до істини.

Бралися до уваги також обмеження, що випливають з рівнянь (5.4): а) швидкість QT моди при $q // y$ повинна бути менше швидкості T моди при $q // z$; б) квадрати швидкостей T мод в повернених на $\pm \pi / 4$ y -зрізах повинні бути більше

$$\frac{1}{\rho} \left(\frac{C_{44} + C_{66}}{2} + \text{sign}(n_2) C_{14} \right)$$

Неоднорідності практично не позначалися на точності вимірювання швидкостей поздовжніх коливань при зніманні інформації поблизу переднього фронту першого імпульсу, що пройшов, оскільки в цьому випадку все вторинні хвилі запізнювалися щодо первинного сигналу. Оскільки на фронті імпульсу фаза сигналу принципово залежить від місця зчитування, процедура вимірювань в цьому випадку має свою специфіку, описану в підрозділі 2.3.

Результати вимірювань швидкості представлені в Табл.5.1. Тут L , T , QL , QT , відповідно, поздовжня, поперечна, квазіпродольная, квазіпоперечная моди. Точність вимірювання поздовжніх швидкостей $\pm 0,5\%$.

Таблиця 5.1 Швидкості звуку (10^5 см/сек) в $NdFe_3(BO_3)_4$ та $SmFe_3(BO_3)_4$

n_1, n_2, n_3	0,0,1		1,0,0	0,1,0			0,1/\sqrt{2}, 1/\sqrt{2}			0,-1/\sqrt{2}, 1/\sqrt{2}		
Мода	L	T	L	QL	QT	T	QL	QT	T	QL	QT	T
$NdFe_3(BO_3)_4$	6,9	3,3	8.62	8.46	3.19	4.42	6.8	3.95	4.6	8.08	3.64	2.68
$SmFe_3(BO_3)_4$	6.9	3.35	8.7	8.52	3.25	4,27	-	-	-	-	-	-

Для поперечних швидкостей наведені найбільш ймовірні значення, точність їх оцінки $\sim 0,5\%$, однак внаслідок можливої помилки у визначенні повного числа довжин хвиль, що укладаються на довжині зразку, не виключені і відхилення на $5 \div 7\%$. В межах досягнутої точності швидкості звуку в неодимовому і самарієвому компаундах збігалися, тому вимірювання в повернених у-зрізах фероборату самарію, де вплив неоднорідностей був максимальним, не проводилися.

Величини модулів пружності та п'єзомодулів, в порівнянні з розрахунковими значеннями, отриманими для $\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ [67], див. Табл.5.2.. Чисельні значення модулів отримані з використанням щільності $\rho = 4,5 \text{ г/см}^3$.

Таблиця 5.2 Модулі пружності (ГПа) та п'єзомодулі (К/м²) фероборатів.

Сполука	C_{11}	C_{33}	C_{44}	C_{12}	C_{13}	C_{14}	B	e_{11}	e_{14}
$\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$	319	214	49	174	$117 \pm 3(129 \pm 21)$	29.6	172	$1,4 \pm 0,3$	$0,4 \pm 0,2$
$\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$	324	214	50.5	194	-	28.6	175	$1,4 \pm 0,3$	-
$\text{HoFe}_3(\text{BO}_3)_4$ [67]	370	159	68	125	72	30	130	0,99	-

Знак C_{14} залежить від вибору системи координат. Теорія пружних властивостей кристалів для класу D_3 передбачає координатну вісь x спрямованою уздовж осі C_2 [38], однак вибір її позитивного спрямування будь-якими симетрійними міркуваннями не регламентується і вимагає додаткової аргументації. Легко бачити, що при двох можливих напрямках осі x модуль C_{14} , так само як і п'єзомодуль e_{11} , змінюють знаки. У сімморфному феробораті α -кварці позитивний вихід осі x зв'язується з гранню, на якій при деформації розтягування утворюється позитивний поляризаційний заряд. Позитивний напрямок також характеризується певним знаком повороту площини поляризації світла (див. докладніше в [68]). Випадково чи ні, але при прийнятому додатковою угодою виборі осі x знак C_{14} (в α -кварці) виявляється позитивним. Було також прийнято за позитивний напрямок вісі x , той який забезпечує позитивність C_{14} . Відрізнити цей напрямок на експерименті можна і з акустичних вимірювань - як

впливає з (5.4), в цьому випадку сума квадратів швидкостей квазіповздовжної і квазіпоперечної мод в повернутому y - зрізі при $n_2 > 0$ менше, ніж при $n_2 < 0$. Фактично це правило зводиться до твердження - при правильному виборі напрямку осі x швидкість квазіповздовжної моди в таких зрізах менше при $n_2 > 0$. Визначити знак e_{11} описувані експерименти не дозволяють - можна лише стверджувати, що при такому виборі напрямку осі x знаки e_{11} та e_{14} в досліджених сполуках совпадають.

Розрахунок п'єзомодулів вимагає знання компонент тензора діелектричної проникності. Для самарієвого фероборату приймалося $\epsilon_{11} = 13,5$ [69], для неодимового - були використані значення, отримані в власних вимірах ($\epsilon_{11} = 15$, $\epsilon_{33} = 22,5$).

Величини e_{11} для досліджених сполук практично на порядок перевищують аналогічне значення для кварцу ($4,3 \cdot 10^5$ од. СГСЕ проти $5 \cdot 10^4$ од. СГСЕ для SiO_2 [70]). Це значення ми вважаємо досить надійним, оскільки визначається воно, в основному, впевнено вимірюваною різницею швидкостей повздовжніх мод в x і y напрямках. Крім того, оскільки в співвідношення (5.3) входить $(e_{11})^2$, енантіоморфізм не вносить похибки в ці вимірювання.

Модуль C_{13} , в принципі, може бути визначений (при вже знайдених C_{11} , C_{33} , C_{44} та C_{14}) з використанням будь-якого значення швидкості для повернених 45- градусних y -зрізів, взятого з колонок 8, 9, 11, 12 - Табл. 5.1. Середнє всіх визначених таким чином величин наведено в дужках в колонці 6 -Табл. 5.2, а в якості довірчого інтервалу використаний розкид цих значень. Очевидно, він помітно виходить за рамки можливих помилок і може бути пов'язаний з різними факторами: 1) з «невдалими» поєднаннями енантіоморфних форм, що призводить до взаємної компенсації вкладів від областей з протилежними знаками C_{14} ; 2) як і в роботі [3], з неточним орієнтуванням нормалі до робочих граней зразка в площині yz . У «ідеальному» випадку для кожного обговорюваного зрізу сума квадратів швидкостей QL і QT мод, помножена на щільність, повинна дорівнювати

$$\frac{C_{11} + C_{33}}{2} + C_{44} - \text{sign}(n_2)C_{14}$$

Перший фактор повинен привести до зменшення ефективного параметра C_{14} , внаслідок чого зазначені суми повинні опинитися всередині зазначеного інтервалу ($2C_{14}$). Користуючись Табл. 5.1 та 5.2, можна бачити, що це правило для $n_2 = -1/\sqrt{2}$ не виконується. Поправка ж, пов'язана з неточним орієнтуванням, може мати будь-який знак відхилення від ідеалізованого випадку. При невеликому відхиленні ψ від ідеального напрямку величина його легко може бути знайдена з рівнянь (5.4):

$$\rho(s_{QL}^2 + s_{QT}^2) = \frac{C_{11} + C_{33}}{2} + C_{44} - \text{sign}(n_2)C_{14} + \psi \text{sign}(n_2)(C_{33} - C_{11})$$

Вводячи ψ – поправку в обчислення C_{13} , природно, отримуємо одне єдине значення при використанні обох мод для кожного зрізу. Однак виявилось, що знайдені таким чином величини C_{13} для обох зрізів практично збігаються (колонка 6 - Табл. 5.2), що дозволяє вважати наведене значення близьким до істинного. Відхилення кутів від 45° для цих зрізів знаходилися на рівні 4-5 градусів, що цілком відповідало можливих помилок методики їх підготовки на зразках міліметрових розмірів. Обчислені таким чином поправки на неточне орієнтування використовувалися також в оцінках e_{14} .

Теоретичний розрахунок [67], виконаний стосовно фероборату гольмію, якісно правильно описує основні особливості пружних характеристик даного класу сполук - підвищену жорсткість в базисної площини щодо деформацій розтягування - стиснення і помітну інтенсивність п'єзоелектричної взаємодії.

5.2. Магнітоп'єзоелектричний ефект й магнітоємність в $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$

У викладених нижче експериментах вивчалися спін-залежні ефекти в поведінці п'єзомодуля і діелектричної проникності фероборату Sm [5]. Перш ніж перейти до результатів, опишемо більш детально техніку таких вимірювань. Всі вимірювання проведені з використанням описаної раніше високочастотної (~ 55 МГц) установки [33], однак її застосування до п'єзоелектричних середовищ вимагає додаткових пояснень.

При вимірюванні ε (ε -експеримент) зразок разом з металевими обкладками утворює конденсатор досить малої місткості (0,2-0,5 пФ), навантажений на вхідний опір приймальної системи (~ 50 Ом). При подачі на такий контур радіоімпульса в п'єзоактивних зразках порушуються дві власні моди - швидка поляризаційна (запізнюючий потенціал) і повільна акустична. Оскільки на наших частотах таке включення є диференціюючим ланцюжком, амплітуда переданого через неї потенціалу φ , пов'язаного з швидким сигналом, пропорційна діелектричній проникності. Амплітуда повільного сигналу (не реєструється) при роботі далеко від механічного резонансу була мала.

Вимірювання п'єзомодуля здійснювалося за схемою АЕТ (в оригінальній публікації [5] було прийнято визначення p - експеримент). У цьому випадку той же диференціюючий ланцюжок порушується високочастотним пружним імпульсом. У зразку виникають ті ж самі власні моди, що і в ε - експерименті, але з іншим співвідношенням амплітуд.

Потенціал φ , пов'язаний з поляризаційною модою, оцінимо наступним чином. Актуальна для нас частина термодинамічної потенціалу, що збуджується на вісі x поздовжньої пружної хвилею u_{xx} , має вигляд [49]: $\tilde{F} = -\varepsilon E_x^2 / 8\pi - e_{11} E_x u_{xx}$ (тут ε та e - ефективні значення, що включають в себе всі можливі взаємодії). З урахуванням $E_x = -\partial\varphi/\partial x$, інтегруючи умову стаціонарності ($\partial\tilde{F}/\partial E_x = 0$), знаходимо $\varphi = \frac{4\pi e}{\varepsilon} u_x$. З огляду на передачу диференціюючого контуру ($\sim \varepsilon$),

отримуємо, що ε з відповіді випадає, і потенціал, поляризаційної хвилі, пропорційний тільки ефективному п'єзомодулю.

Перейдемо до отриманих даних. На Рис.5.2.а наведені результати p -експерименту в досліджених зразках під час відсутності магнітного поля при поширенні поздовжньої хвилі в п'єзоактивному x напрямку [5,15,17,18].

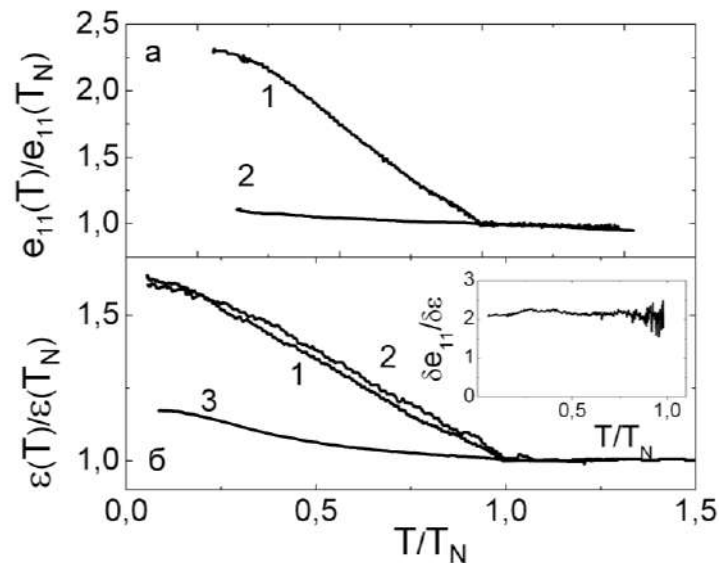


Рис.5.2. Температурні варіації електричних параметрів в ферборатах у магнітовпорядкованій фазі.а) зміни п'єзомодуля в самарієвому (1) та неодимовому (2) ферборатах ($H=0$).б) зміни діелектричної проникності в $SmFe_3(BO_3)_4$: 1) $E \parallel x$, $H=0$, 2) $E \parallel y$, $H=0$, 3) $E \parallel x$, $H=2.5$ Тл, $H \parallel [110]$. Вставка: температурна поведінка співвідношення відносних змін e та ε ($H=0$).

У самарієвому фербораті нижче температури Нееля спостерігається значне зростання п'єзомодуля, абсолютно нехарактерне для невласного сегнетоелектрику. За характером температурної залежності і масштабом ефекту явище нагадує поведінку діелектричної сприйнятливості в $SmFe_3(BO_3)_4$ [69]. У зв'язку з цим на Рис.5.2.б представлені результати наших власних ε -експериментів в фербораті самарію. Зростання діелектричної проникності нижче температури Нееля за відсутності магнітного поля хоча і велике, але приблизно в два рази менше, ніж зареєстровано в [69] на низьких частотах.

Припущення про спад відгуку вже при використаних в наших експериментах частотах не підтвердилося - при підвищенні робочої частоти до 250 МГц спостерігалось навіть невелике зростання зміни ε ($\sim 20\%$). Причина такої розбіжності з результатами [69] невідома. Звернемо увагу на відсутність помітної анізотропії при зміні напрямку поля між x і y вісями. Поведінка відгуків в обох експериментах в магнітному полі при $T = 1,7$ К представлено на Рис.5.3.

При певних напрямках поля величини, що реєструються, повертаються до значень, що фіксуються в парафазі, вже в полях ~ 2 Тл, але є напрямки, де й 5 Тл недостатньо для придушення впливу антиферомагнетизму. Звертають на себе увагу очевидна схожість результатів різних експериментів, їх яскраво виражена анізотропія, і діаметрально протилежна поведінка при зміні напрямку електричного поля (пор. Рис.5.2.а та Рис.5.3.в.). У парафазі магнітне поле будь-якої орієнтації величини p і ε відгуків не змінює. Поле, орієнтоване уздовж вісі z , на p - відгук також практично не впливає.

Зміна діелектричної проникності під дією магнітного поля прийнято називати магнітодіелектричним ефектом або магнітоємністю. Описану в нашому випадку поведінку п'єзовідгуку можна за аналогією визначити як магнітоп'єзоелектричний ефект.

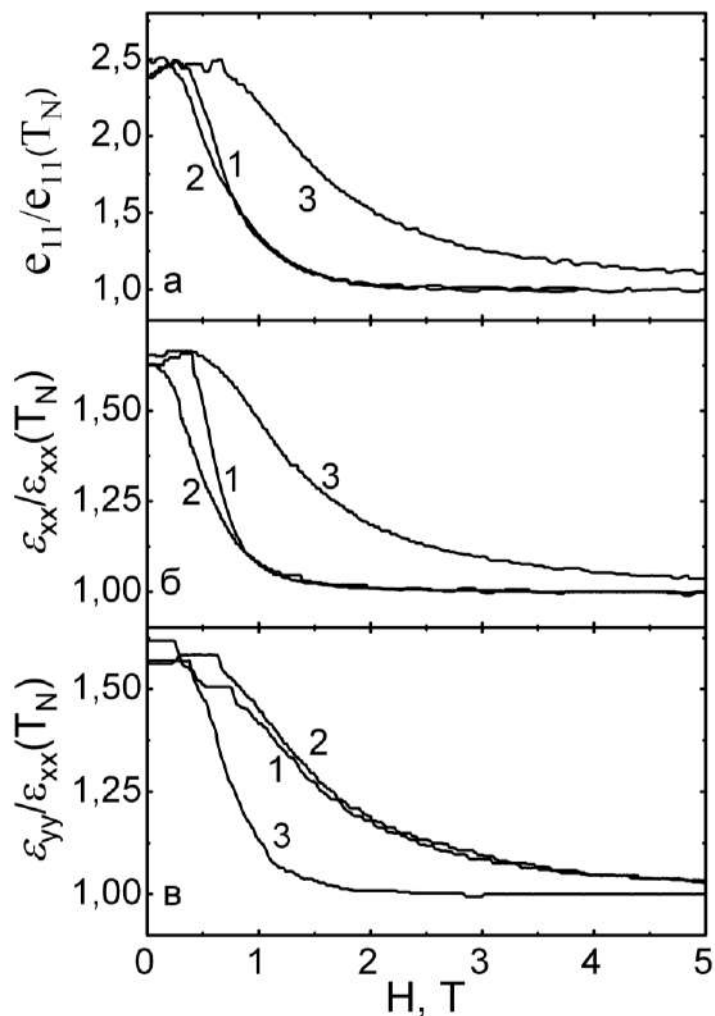


Рис.5.3. Магнітопольові залежності p - та ϵ -відгуків при $T=1,7$ К, $1 - H \parallel x$, $2 - H \parallel y$, $3 - H \parallel [110]$. а) n 'єзомодуль, б) діелектрична проникність, $E \parallel x$, в) діелектрична проникність, $E \parallel y$.

При «конструюванні» термодинамічного потенціалу, що враховує тригональну симетрію задачі, дуже зручно застосувати простий прийом, використаний в [49]. Вводяться нові комплексні координати: $\zeta = x + iy$, $\eta = \zeta^* = x - iy$, $z = z$. Як завжди, векторні змінні перетворюються за тим же законом (наприклад, $E_\zeta = E_x + iE_y$), а тензорні - як добуток координат ($u_{\eta\eta} = u_{xx} - u_{yy} - 2iu_{xy}$). При повороті на кут $2\pi/3$ навколо осі z координати ζ , η (а також відповідні польові змінні) набувають множники $\exp(\pm 2\pi i/3)$. Оскільки такий поворот є операція симетрії, в термодинамічному потенціалі може бути присутнім доданок, в індексах якого міститься будь-яке число парних комбінацій ζ , η . Число ж непарних індексів кожного виду при цьому повинно бути кратна трьом. Операція

симетрії $C_2 // x$ перетворює $\xi \rightarrow \eta$, $\eta \rightarrow \xi$, $z \rightarrow -z$, тому такий доданок обов'язково супроводжується «комплексно сполученим» (тобто з взаємозаміненим індексами ξ , η). Коефіцієнти при обох доданках або рівні, або «антірівні» (при непарному числі z індексів). Ці правила дозволяють легко виписати різні інваріантні комбінації польових і магнітних змінних в нових координатах. Здійснюючи зворотне перетворення, приходимо до розкладання термодинамічного потенціалу в декартовій системі.

Основний стан в легкоплощинній фазі в присутності змінних електричного і пружного полів і в зовнішньому магнітному полі H описується потенціалом:

$$\tilde{F} = F_0(L^2, L_z) + F_{anis} + F_{piezo} + F_E + F_{ME} + F_{MU} - 0.5(\mathbf{M} + \mathbf{m})\mathbf{H} \quad (5.6)$$

тут доданок F_0 відповідає за встановлення антиферомагнітної легкоплощинної фази і нас воно не цікавить, F_{anis} визначає орієнтацію спінів в ab площині, F_{piezo} , F_E , F_{ME} та F_{MU} - п'єзоелектрична, електрична, магнітоелектрична і магнітопружна енергії відповідно. Останній доданок - зєємановська енергія, M та $\mathbf{m} = \sum_i \mathbf{m}^i$ - магнітні моменти, пов'язані із залізною та рідкісноземельною підсистемами.

У фероборатах обмін всередині рідкісноземельної системи дуже малий. Система R^{3+} йонів поляризована обмінними полем $\pm H_{ex}$, діючими з боку антиферомагнітних залізних підґраток, перенормуючи взаємодію останніх і в значній мірі визначаючи їх анізотропію. Напрямок рідкісноземельних магнітних моментів при досить низькій температурі збігається з напрямком ефективного поля, що представляє собою векторну суму зовнішнього поля і ортогонального йому поля $f-d$ обміну. У самарієвому феробораті $H_{ex} \sim 20$ Тл, тому в актуальному діапазоні зовнішніх полів ($H \leq 5$ Тл) напрямок магнітних моментів S_m практично співнаправлений з моментами Fe, і їх можна розглядати в рамках схеми двопідградкового антиферомагнетика.

Магнітна комірка фероборатів містить антітрансляцію. З цієї причини в розкладання термодинамічних потенціалів магнітні вектори входять тільки в

парному ступені. Зокрема, п'єземагнетизм і лінійний електромагнітний ефект в фероборатах заборонені.

Надалі будемо оперувати з направляючими косинусами вектора антиферомагнетизму ($l_k=L_k/L$), «сховавши» його величину в відповідні коефіцієнти. З огляду на те, що магнітні вектори в нашому випадку можуть увійти в розкладання тільки в парному ступені, анізотропний доданок буде виглядати

$$F_{anis} = K(l_{\xi}^6 + l_{\eta}^6) = K \cos 6\varphi \quad (5.7)$$

тут K – константа легкоплощинної анізотропії, φ - кут між вектором L і віссю x . Доданки виду $l_{\xi} l_{\eta}$ відсутні, тому що вони від φ не залежать і вже містяться в F_0 . При $K < 0$ та $H = 0$ умова мінімуму потенціалу задає орієнтацію вектора антиферомагнетизму уздовж осі x ($\varphi=0$, або $\pi/3$, $2\pi/3$) і т.д. в симетрично еквівалентних доменах).

Умова стаціонарності $\partial\tilde{F}/\partial\varphi=0$ означає, що φ є неявною функцією електричного поля і пружної деформації. Використовуючи стандартні формули $\sigma_{xx} = \frac{\partial\tilde{F}}{\partial u_{xx}} = C_{11}u_{xx} + e_{11}E_x + \frac{b}{2}\cos 2\varphi$ і $e = \partial\sigma/\partial E$ [49], для ефективного п'єзомодуля отримуємо:

$$e_{11}^{eff} = e_{11} - b \sin 2\varphi \frac{\partial\varphi}{\partial E} = e_{11} - \frac{ab \sin^2 2\varphi}{\partial^2\tilde{F}/\partial\varphi^2} \quad (5.8)$$

При отриманні (5.9) використано правило диференціювання неявних функцій. Зовнішні поля E та u можуть бути обрані як завгодно малими, тому при знаходженні похідної в (5.9) вони не враховуються. Це, однак, не відноситься до статичних деформацій, які, в принципі, можуть бути значними і в деяких випадках повинні бути враховані [89]. Проте, при достатній величині поля

магнітний внесок за рахунок зростання зеєманівського доданку в знаменнику дробу зникає і п'єзомодуль повертається до своїх значень в парафазі, що й демонструють експериментальні результати.

З (5.8) випливає, що перенормування п'єзомодуля насправді має непрямий характер. Вона являє собою спільну дію магнітоелектричного і магнітопружного механізмів: акустична деформація викликає кутову модуляцію положення вектора антиферомагнетизму, що приводить, в свою чергу, до зміни поляризації та електричного поля (або навпаки). З симетричної точки зору допустима поява в термодинамічному потенціалі і доданків, що призводять до прямого впливу магнітних змінних на п'єзоефект. Наприклад, актуальна для нас частина такого інваріанта пропорційна комбінації $E_x u_{xx} \cos 2\varphi$. Перенормування п'єзомодуля в цьому випадку існувало б і в межі великого магнітного поля, змінюючи знак при повороті H між осями x та y . Як випливає з Рис.5.1.б, така поведінка фактично відсутня.

Звернемося тепер до обговорення поведінки діелектричної проникності. Використовуючи співвідношення $\mathbf{D} = -4\pi \frac{\partial \tilde{F}}{\partial \mathbf{E}}$ та $\varepsilon = \frac{\partial D}{\partial E}$ [49], знаходимо ефективну діелектричну проникність, що фактично збігається з обчисленої в [69]:

$$\varepsilon_{xx}^{eff} = \varepsilon_{xx} + 4\pi a \sin 2\varphi \frac{\partial \varphi}{\partial E_x} = \varepsilon_{xx} + \frac{4\pi a^2 \sin^2 2\varphi}{\partial^2 \tilde{F} / \partial \varphi^2} \quad (5.9a)$$

$$\varepsilon_{yy}^{eff} = \varepsilon_{xx} + 4\pi a \cos 2\varphi \frac{\partial \varphi}{\partial E_y} = \varepsilon_{xx} + \frac{4\pi a^2 \cos^2 2\varphi}{\partial^2 \tilde{F} / \partial \varphi^2} \quad (5.9б)$$

Таким чином, в антиферомагнітному стані кристал стає двохвісьовим. Зазначена вище відсутність анізотропії діелектричних властивостей при зміні напрямку електричного поля (Рис.5.1.б) пояснюється тим, що результат вимірювань являє собою середнє за трьома типами доменів, яке й виникло для збереження вихідної тригональної макроскопічної симетрії.

Згідно (5.8) та (5.9а), поведінка e_{11}^{eff} та ε_{xx}^{eff} описується досить схожими виразами. Оскільки в стаціонарному стані $\partial^2 \tilde{F} / \partial \varphi^2 > 0$, з росту e_{11}^{eff} нижче T_N робимо висновок, що коефіцієнти a і b мають різні знаки. Надалі будемо оперувати відносними приростами вимірюваних величин: $\delta e_{11}(T) = (e_{11}^{eff}(T) - e_{11}(T_N)) / e_{11}(T_N)$ та $\delta \varepsilon_{xx}(T) = (\varepsilon_{xx}^{eff}(T) - \varepsilon_{xx}(T_N)) / \varepsilon_{xx}(T_N)$. У термінах цих збільшень співвідношення між коефіцієнтами b та a має вигляд:

$$\delta e_{11}(T) / \delta \varepsilon_{xx}(T) = -b \varepsilon_{xx}(T_N) / 4\pi a e_{11}(T_N) \quad (5.10)$$

З вигляду температурних залежностей, представлених на Рис.5.2, випливає, що константи b та a якщо і змінюються з температурою, то подібним чином, так що їхнє відношення від температури практично не залежить (Рис.5.2.б вставка).

Обговоримо тепер вплив розглянутої трансформації електричних параметрів на модулі пружності, що визначають поведінку швидкості звуку. Як і раніше, обмежимося лише повздовжнім звуком, що розповсюджується вздовж п'єзоактивного напрямку x . Відповідно з основним рівнянням руху теорії пружності ($\rho \ddot{u}_x = \partial \sigma_{xx} / \partial x$) обчислимо $\partial \sigma_{xx} / \partial x$:

$$\frac{\partial \sigma_{xx}}{\partial x} = C_{11} \frac{\partial u_{xx}}{\partial x} + e_{11} \frac{\partial E_x}{\partial x} - b \sin 2\varphi \left(\frac{\partial \varphi}{\partial u_{xx}} \frac{\partial u_{xx}}{\partial x} + \frac{\partial \varphi}{\partial E_x} \frac{\partial E_x}{\partial x} \right) \quad (5.11)$$

Для виключення з (5.11) електричного поля скористаємося рівнянням електронейтральності:

$$\operatorname{div} D = \varepsilon \frac{\partial E_x}{\partial x} - 4\pi e_{11} \frac{\partial u_{xx}}{\partial x} + 4\pi a \sin 2\varphi \left(\frac{\partial \varphi}{\partial u_{xx}} \frac{\partial u_{xx}}{\partial x} + \frac{\partial \varphi}{\partial E_x} \frac{\partial E_x}{\partial x} \right) = 0$$

В результаті отримуємо:

$$\frac{\partial \sigma_{xx}}{\partial x} = \left[C_{11} + \frac{4\pi(e_{11}^{eff})^2}{\varepsilon_{xx}^{eff}} - \frac{b^2 \sin^2 2\varphi}{\partial^2 \tilde{F} / \partial \varphi^2} \right] \frac{\partial u_{xx}}{\partial x} \quad (5.12)$$

Комбінація в квадратних дужках грає роль ефективного модуля пружності. Змагаються два конкуруючих вклади - посилення внаслідок п'єзоелектричного взаємодії і пом'якшення за рахунок магнітопружності. Щоб зрозуміти, в якому напрямку буде змінюватися модуль нижче T_N , потрібно відняти його значення в точці переходу $C_{11}^{eff}(T \geq T_N) = C_{11} + \frac{4\pi e_{11}^2}{\varepsilon_{xx}}$ [49]. В результаті для зміни швидкості звуку отримуємо:

$$\frac{\Delta s}{s} = \frac{C_{11}^{eff}(T) - C_{11}^{eff}(T_N)}{2C_{11}^{eff}(T_N)} = - \frac{\delta \varepsilon_{xx}}{1 + \delta \varepsilon_{xx}} \left(\frac{\delta e_{11}}{\delta \varepsilon_{xx}} - 1 \right)^2 \frac{2\pi e_{11}^2}{\varepsilon_{xx} \rho s_{Lx}^2} \quad (5.13)$$

тут s_{Lx} – швидкість поздовжньої моди в x напрямку, ρ - щільність. Всі співмножники в (5.13) є позитивними, тобто швидкість звуку в x напрямку у всіх сполуках даної симетрії завжди повинна падати, принаймні поблизу T_N . На Рис.5.4. передбачувальна залежність при $H=0$, побудована за результатами Рис.5.2.б, порівнюється з експериментально вимірною. При розрахунку використано середнє значення $\frac{\delta e_{11}}{\delta \varepsilon_{xx}}$ (див. вставку на Рис.5.2.б), $\rho=4,5\text{г/см}^3$, значення $s_{Lx}=8,7 \cdot 10^5$ см/сек та $e_{11}=1,4$ Кл/м². Відзначимо якісне узгодження. Однак близький чисельний збіг, швидше за все, випадковий, оскільки зазначена вище варіативність результатів, представлених на Рис.5.1, може до двох разів змінити величину другого співмножнику в (5.13). На Рис.5.4 наведені також дані про поведінку швидкості звуку в неодимовому компаунді - до жодних драматичних подій магнітне впорядкування в цьому масштабі не призводить.

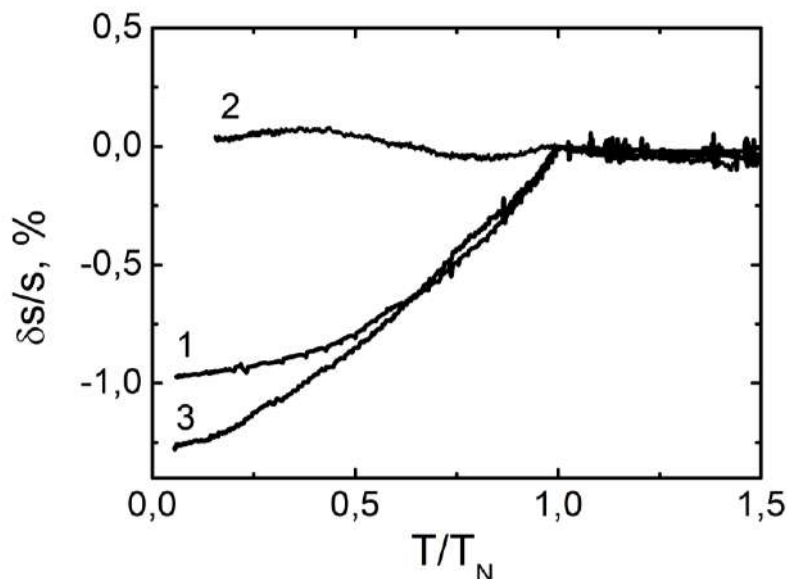


Рис.5.4. Зміна швидкості повздожнього звуку ($q||x$) в антиферромагнітній фазі. 1 - $SmFe_3(BO_3)_4$, 2 - $NdFe_3(BO_3)_4$, 3 – розрахунок для $SmFe_3(BO_3)_4$ згідно рівнянню (5.13).

Магнітопольові залежності також описуються рівняннями (5.8-5.9). В ідеальному монодоменному кристалі при $H = 0$ в залежності від знака K вектор L розташовується уздовж осі x або y , або уздовж симетрійного еквівалентних їм напрямків. При збільшенні магнітного поля до значення поля спін-флопа H_{sf} вектор L встановлюється під прямим кутом до H , причому, як правило, це відбувається стрибком.

При $\varphi_H \neq 0$ в поведінці електричних характеристик при наближенні до H_{sf} з'являються розбіжності, пов'язані з оберненням в нуль другої похідної $\partial^2 \tilde{F} / \partial \varphi^2$. Експериментально в польових залежностях e_{11} та ε іноді з'являлися невеликі імітації сходинки, однак будь-яких значних стрибків, тим більше розбіжностей, ніколи не спостерігалось. Така ситуація детально обговорена в роботі [69]; її автори припускають, що в кожному домені внаслідок неоднорідних статичних напруг реалізуються стан з розподіленим набором полів H_{sf} , в результаті чого перехід в стан $\mathbf{L} \perp \mathbf{H}$ при зростанні магнітного поля відбувається плавним чином. Раніше було вказано (підрозділ 5.1) на сильну неоднорідність зразків, що мають спільне походження з дослідженими в [69]. Хотілося б однак відзначити наступне:

запис термодинамічного потенціалу у вигляді (5.6) та наступні співвідношення, що впливають з нього, відносяться виключно до монодоменого стану. Застосовувати їх до полідоменого зразку простим алгебраїчним підсумовуванням вкладів окремих доменів можна тільки при відсутності междоменної взаємодії (що з'являється, наприклад, внаслідок вкладу дальнодіючих деформаційних полів). В іншому випадку в знаменниках формул (5.8,5.9) з'являться перехресні члени, що залежні від стану всіх доменів, і зовсім не очевидно, що при цьому можливість появи розбіжність збережеться.

При будь-якому варіанті детальна інтерпретація поведінки електричних характеристик в полях, менших або порівнянних з $H_{sf} \sim 10$ кЕ, вимагає залучення додаткових припущень, які важко піддаються строгому обґрунтуванню. Інша ситуація складається в полях, більших H_{sf} - ми маємо справу з монодоменованим зразком, і всі вищенаведені формули застосовуються без будь-яких застережень. При цьому інтерпретація наведених на Рис.5.2 залежностей стає абсолютно прозорою.

Оскільки $H > H_{sf}$, то $\varphi \approx \varphi_H + \pi/2$, й кутові залежності δe_{11} і $\delta \varepsilon$ описуються в основному чисельником формул (5.8,5.9), що і підтверджує вставка на Рис.5.1.а. При $\varphi_H = 0, \pi/2$ чисельник в (5.8,5.9а) - $\sin^2 2\varphi$ - прямує до нуля, що призводить до швидкого спаду реєстрованих при цих напрямках поля збільшень обговорюваних характеристик. Але при $\varphi_H = \pi/4$ чисельник максимальний, і спад відповідних величин здійснюється тільки за рахунок зростання з'ємановської енергії.

В результаті для зворотної величини p -відгуку маємо вираз:

$$\delta e_{11}^{-1}(H) = \frac{e_{11}}{|ab|} (2bu_{xy}^0 + \chi_{\perp} H^2).$$
У обговорюваної області полів χ_{\perp} від поля не залежить [28]; тому δe_{11}^{-1} є лінійною функцією H^2 . Аналогічний висновок відноситься і до ε -відгуку: при $E \parallel x$
$$\delta \varepsilon_{xx}^{-1}(H) = \frac{\varepsilon_{xx}}{4\pi a^2} (2bu_{xy}^0 + \chi_{\perp} H^2).$$
На Рис.5.5 наведено перебудовані відповідно до цього аналізу дані Рис.5.3.

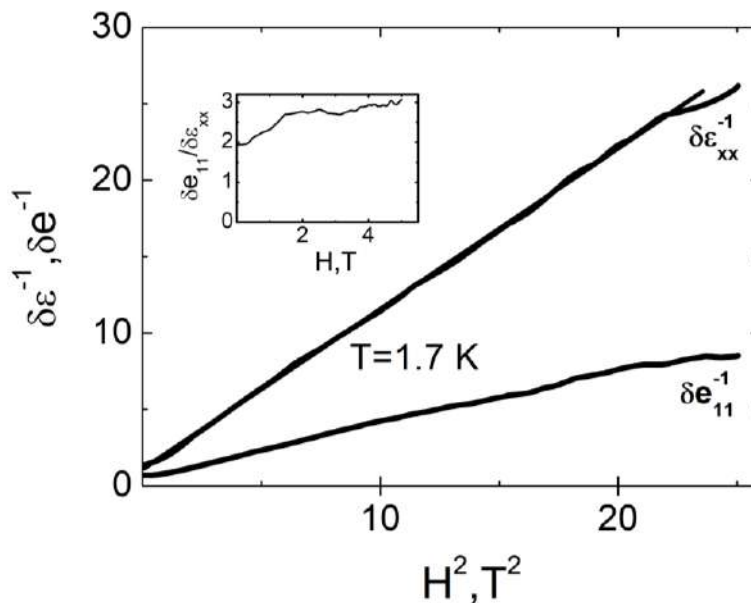


Рис.5.5. Магнітопольові залежності зворотних величин відносних змін ρ та ϵ - відгуків в $SmFe_3(BO_3)_4$, що демонструють квадратичне зростання. Вставка - польова поведінка співвідношення обговорюваних параметрів.

Ці залежності дійсно близькі до лінійних з невеликим постійним зсувом, який в даному випадку може бути асоційований з u_{xy}^0 . Співвідношення між цими відгукми, як і раніше визначається величиною b/a .

В області малих полів (Рис.5.5, вставка) воно близьке до визначеного раніше, але з ростом H дещо збільшується.

При $E // y$, як з очевидністю випливає з співвідношення (5.96), і як свідчать залежності, наведені на Рис.5.1.с, все висновки залишаються тими ж самими, але з взаємної заміною характерних кутів, і з підстановкою $u_{xx}^0 - u_{yy}^0$ замість u_{xy}^0 .

Частина констант, що входять в (5.6), нам вже відома - $e_{11} = 4.3 \cdot 10^5$ од. СГСЕ, $\epsilon_{xx} = 13.5$ [69], $\chi_{\perp} \approx 4.5 \cdot 1.2 \cdot 10^{-4}$ [28]. Інші параметри легко можуть бути оцінені з вимірів в полі $H // [110]$ при $H > H_{sf}$, коли можливими поправками, пов'язаними з u_{xy}^0 , в $\partial^2 \tilde{F} / \partial \varphi^2$ вже можна знехтувати, і остання величина визначається тільки зєсмановською складовою.

Температурна залежність ε -відгуку в присутності магнітного поля (наприклад, крива 2 на Рис.5.2.б, знята при $H = 2,5$ Тл та $\varphi_H = \pi/4$) дозволяє визначити температурнозависимий магнітоелектричний коефіцієнт a ($4\pi a^2/\varepsilon_{xx} = \delta\varepsilon_{xx}(T, H) \cdot \chi_{\perp} H^2$).

Деякі результати, отримані в різних магнітних полях, та демонструючі незалежність a від магнітного поля, представлені на Рис.5.6. Магнітопружний коефіцієнт b , як впливає зі співвідношення (5.10) і залежності, що представлена на вставці до Рис.5.2.б, з точністю до масштабного множника збігається з a . Його значення визначаються шкалою, нанесеною на праву сторону Рис.5.6.

Далі, з поведінки ε -відгуку при $H = 0$ (5.10), визначаємо ефективний (перенормований можливим внеском внутрішніх статичних напруг) параметр анізотропії: $K^{eff} = \frac{1}{2} \cdot \frac{4\pi a^2}{36\varepsilon_{xx}} \cdot \frac{1}{\delta\varepsilon_{xx}}$

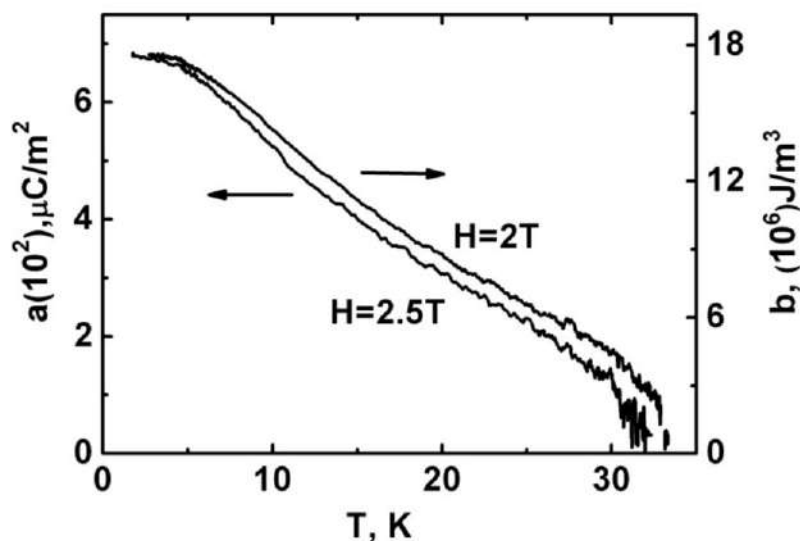


Рис.5.6. Температурні залежності магнітоелектричного a й магнітопружного b коефіцієнтів.

У цьому співвідношенні множник $1/2$ з'явився в результаті найпростішого усереднення, який передбачає адитивність вкладів всіх трьох типів доменів.

Графік K^{eff} наведено на Рис.5.7. Там же представлена розрахункова залежність спін-флоп поля, отримана з використанням формули $H_{sf} \approx 6\sqrt{K/\chi_{\perp}}$.

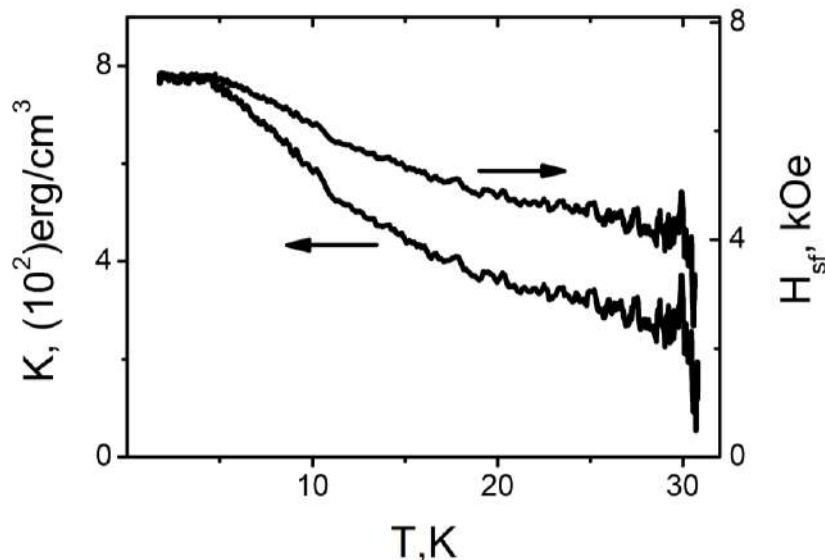


Рис.5.7. Температурні залежності параметра легкоплосинної анізотропії K^{eff} (ліва шкала) і розрахункової величини спін-флоп поля H_{sf} (права шкала)

Отримані чисельні значення феноменологічних коефіцієнтів дозволяють зробити деякі оцінки. Граничне розрахункове значення поляризації, яке може бути досягнуто в сильному полі $P_{lim} = a/2 \approx 335$ мкКл/м². Прямі статичні вимірювання дають 400 мкКл/м² [69] та 500 мкКл/м² [28]. Розбіжність незначна, але тим не менш змушує задуматися. Навряд чи воно пов'язане з властивостями конкретних зразків, оскільки в спін-флоп фазі неоднорідності вже не повинні надавати помітного впливу. Мабуть все-таки якась частотна дисперсія магнітоелектричної зв'язку має місце. Визначимо ефективний параметр площинної анізотропії співвідношенням $36K^{eff} = 36K + 2b(u_{xx}^0 - u_{yy}^0)$. Якщо асоціювати зрушення лінійної залежності на Рис. 5.5 ($\delta\epsilon^{-1} = \frac{2\varepsilon_{xx} b u_{xy}^0}{4\pi a^2} \sim 1$) із середнім значенням пружних неоднорідностей, то виходить, що ефективна анізотропія в значній мірі ними і визначається.

5.3. Магнітодіелектричний й магнітоп'єзоелектричний ефекти в $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$

У феробораті самарію був виявлений гігантський магнітоп'єзоелектричний ефект (МПЕ) [5]: більш ніж двократне зростання ефективного п'єзомодуля в антиферомагнітній фазі і придушення цього зростання порівняно невеликим магнітним полем. Було показано, що ефект виникає в результаті спільної дії магнітоелектричного і магнітопружного механізмів, що приводить також до помітного зменшення швидкості звуку вздовж деяких напрямків. Ці вимірювання укупі з дослідженням магнітоємності (МЄ) при певній геометрії експерименту дозволили відновити параметри магнітоелектричної і магнітопружної взаємодій. В [5] були також наведено попередні результати досліджень феробората неодиму, що вказують на більш слабкий прояв МПЕ в цьому матеріалі. Відзначимо і відносно невелику величину МЄ, короткі відомості про яку без обговорення наведені в [28]. Такий результат видався нам дивним у світлі літературних даних [69], які свідчать про практично однакові величини електричної поляризації, що реєструються в цих сполуках, і мотивував проведення детальних досліджень МПЕ і МЄ в $\text{NdFe}_3(\text{BO}_4)_3$ [6,13-15,17,18].

У неодимовому феробораті нижче температури Неєля ($T_N \sim 32$ К) спіни заліза антиферомагнітно упорядковуються в площині [001] в легкоплощинну конфігурацію, головною причиною появи якої вважається взаємодія заліза з анізотропними РЗМ йонами. Далі, при температурі T_{IC} (13 – 20 К, в залежності від зразка), в $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$, згідно з нейтронним даними [71-72], з'являється несумірна гелікоїдальна фаза з хвильовим вектором, паралельним вісі c .

Електрична поляризація P вивчена в [73], магнітна сприйнятливість в [74]. У магнітному полі $H \parallel a$, P_x швидко зростає, досягаючи значень значень ~ 400 мкКл/м² при $H \sim 1$ Тл. На цьому етапі роль магнітного поля зводиться тільки лише до встановлення в зразку монодоменого (спін-флоп) стану і P_x від H не залежить. При подальшому збільшенні поля P_x починає спадати, змінюючи в деякому полі H_0 знак. Автори [73] пов'язують таку поведінку зі спільним внеском полів зовнішнього й обмінного H_{ex} , створюваного на йонах Nd атомами заліза.

Оцінка величини H_{ex} дає від 5 Тл [73] до 8 Тл [74]. Мабуть, найбільш близьке до істини значення $H_{ex} = 7,3$ Тл, отримане при аналізі повного масиву даних з магнітної сприйнятливості, наведено в [75].

Досліджувалися два монокристали $NdFe_3(VO_4)_3$, вирізані з одного зливка [76]. Зразок Nd_1 мав розміри $4 \times 3,8 \times 2,9$ мм, (відповідно уздовж вісей $x \times y \times z$), зразок Nd_2 - $1,5 \times 2,6 \times 1,8$ мм. Отримані наступні результати: за відсутності магнітного поля діелектрична проникність нижче температури Нееля починає зростати з нахилом, близьким до лінійного (Рис.5.8.) Швидкість зростання в обох зразках практично збігається, але вона приблизно в 6 разів менше, ніж в $SmFe_3(VO_3)_4$ [5]. При температурах 15-20 К (в залежності від зразка) зростання ϵ змінюється невеликим спадом. Результат вимірювання ϵ для Nd_2 близький до представленого в [28].

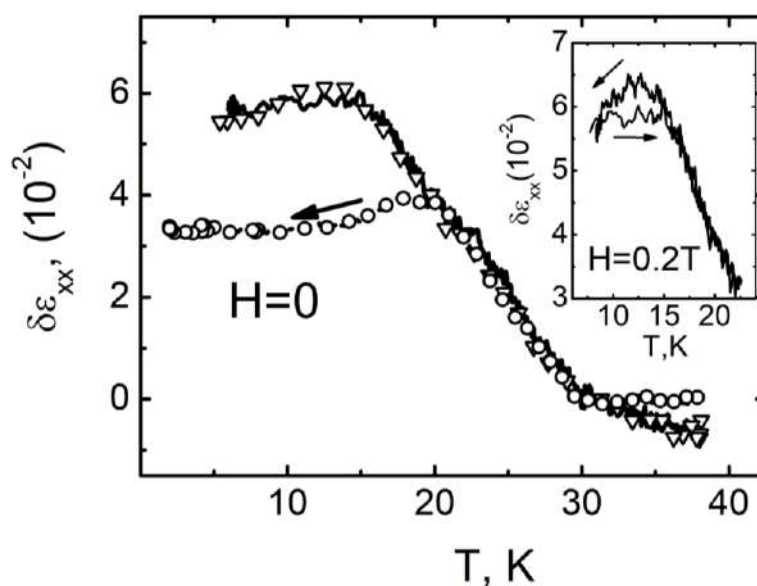


Рис.5.8. Температурна залежність відносних змін діелектричної проникності за відсутності магнітного пол.. \blacktriangledown - Nd_1 , T вниз; суцільна лінія – T вверх; \circ – Nd_2 , T вниз. Вставка – Nd_1 невеликому полі, напрямок зміни температури показано стрілками.

Ми асоціюємо залежну від зразка точку перегину на $\epsilon(T)$ з появою гелікоїдальної фази [71-72]. Перехід до гелікоїда гістерезисний, цей висновок

можна зробити з даних для Nd₁. Для більшої переконливості на вставці до Рис.5.8 наведено зміну ε в невеликому магнітному полі, при якому зазначена гістерезисні більш очевидна.

Для феноменологічного опису гелікоїдальної фази вираз для термодинамічного потенціалу (5.6) слід доповнити складовою, що враховує можливість появи неоднорідного стану. «Неоднорідний» доданок в координатах ξ, η при хвильовому векторі гелікоїду, орієнтованому уздовж вісі z , може бути представлено у вигляді [49]:

$$F_{het} = -i\gamma(l_{\xi} \frac{dl_{\eta}}{dz} - l_{\eta} \frac{dl_{\xi}}{dz})c + \alpha \frac{dl_{\xi}}{dz} \frac{dl_{\eta}}{dz} c^2 \quad (5.14)$$

Параметр c в (5.14) за порядком величини збігається з постійною решітки. Він введений для того, щоб коефіцієнти γ та α мали розмірність енергії. Константа α обмінного походження і вона завжди більше нуля, забороняючи появу значної неоднорідності в магнітовпорядкованій фазі. Перший доданок в (5.14) релятивістської природи ($\gamma \ll \alpha$), і, як неважко бачити, в декартових координатах він зводиться до так званого інваріанту Ліфшиця. Вважаючи $l_{\xi}(z) \sim l_{\xi}(0)\exp(iqz)$ (і, відповідно $l_{\eta}(z) \sim l_{\eta}(0)\exp(-iqz)$), отримуємо $F_{het} = -2\gamma qc + \alpha q^2 c^2$. Цей вираз є мінімальним при $q = \gamma/\alpha c$, і якщо енергія в цьому мінімумі ($-\gamma^2/\alpha$) виявиться нижче анізотропного доданка, в системі встановиться гелікоїдальна фаза. Процес зміни фаз носить гістерезисний характер, оскільки при $q \neq 0$ усереднений за обсягом внесок F_{anis} практично миттєво обнуляється.

Зміну п'єзомодуля e_{11} , виміряну в Nd₁, наведено на Рис.5.9.

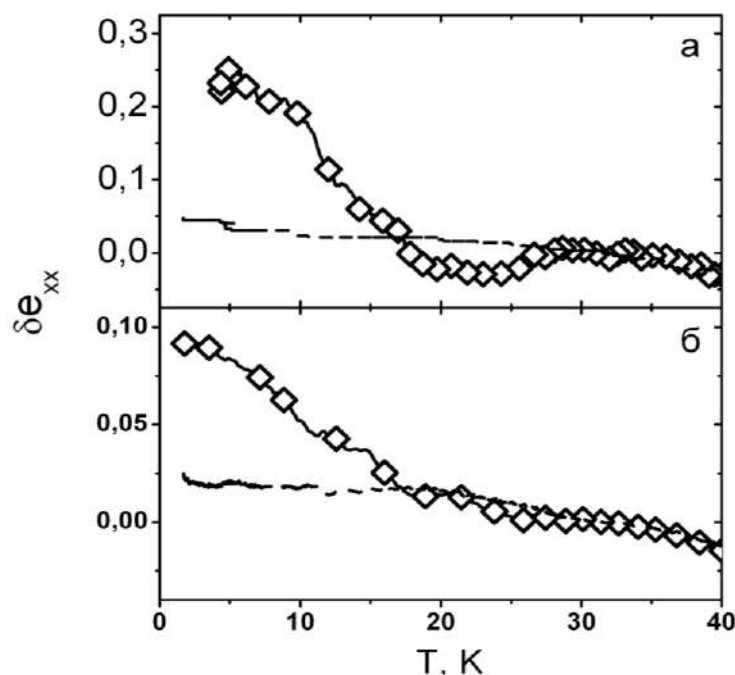


Рис.5.9. Температурна залежність відносних змін п'єзомодуля. Зразок Nd₁. а) збудження u_{xy} , б) збудження u_{xx} , пунктир – фоновий сигнал.

Цей параметр може бути визначений або при порушенні зразка деформацією u_{xx} (Рис.5.9б), або деформацією u_{xy} (Рис.5.9а). В останньому випадку зміни, що реєструються, як і впливає з феноменологічного аналізу (див. нижче), в два рази більші.

Для орієнтування на Рис.5.9. наведені також фонові температурні зміни п'єзомодуля, отримані при відповідній орієнтації H , що перевищує поле спін-флопа (див. також нижче). Характер зміни e_{11} відрізняється від такого в самарієвому складі. В останньому п'єзомодуль змінювався практично за тим же законом, що і діелектрична проникність [5]. В обговорюваному випадку e_{11} безумовно спочатку падає, і тільки нижче 20 К починається його зростання.

Поведінка діелектричної проникності в магнітному полі, орієнтованому в ab площині, представлено на Рис.5.10.

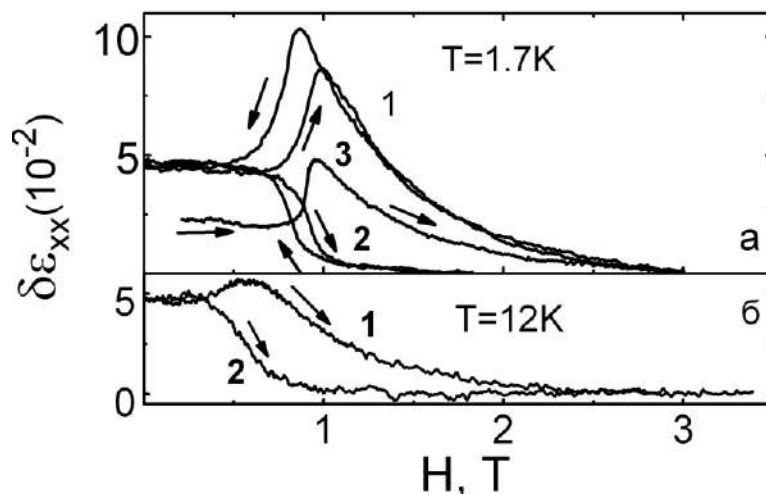


Рис.5.10. Польові залежності відносних змін діелектричної проникності.

а) $T=1.7\text{ K}$, б) $T=12\text{ K}$ 1) Nd_1 , $\varphi_H = \pi/4$, 2) Nd_1 , $\varphi_H = 0$. 3) Nd_2 , $\varphi_H = \pi/4$, напрям змін магнітного поля вказано стрілками.

Для цих залежностей характерна стрибкоподібна зміна ε в полях $\sim 1\text{ Тл}$. «Напрямок» стрибка залежить від орієнтації H в базовій площині, в той час як його положення від такої не залежить (Рис.5.11.). Мабуть, стрибок відповідає переходу від спіральної структури до спін-флоп фази (або навпаки), а його гістерезисність свідчить, що ця перебудова проходить за сценарієм фазового перетворення I роду.

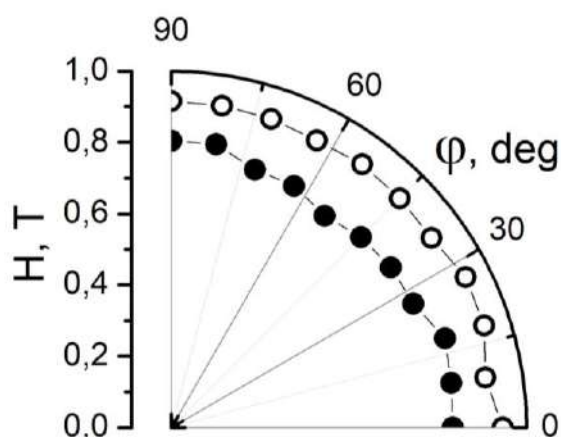


Рис.5.11. Анізотронія поля при переході в гелікоїд – спін-флоп фаза в базовій площині. Nd_1 , $T=1,7\text{ K}$. \circ – поле, що зростає, \bullet – поле, що спадає.

Фрагмент H - T діаграми для Nd_1 , яка відділяє гелікоїдальну фазу від легкоплощинної, наведено на Рис.5.12. Він отриманий комбінацією даних температурних та польових сканів.

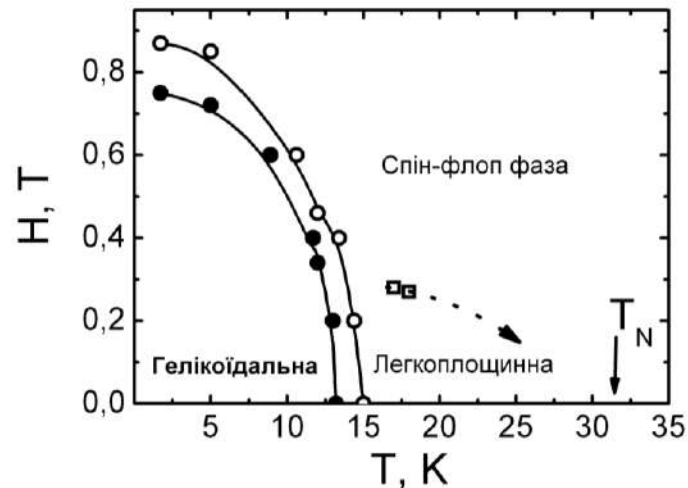


Рис.5.12. H - T діаграма ліній розділу фаз $NdFe_3(BO_3)_4$ (Nd_1) \circ – при зростанні поля чи температури, \bullet – при зменшенні вказаних параметрів. Пунктиром вказана ймовірна лінія поділу легкоплощинних полідоменного і спін-флоп фаз.

Характер змін з магнітним полем п'єзомодуля ілюструє Рис.5.13. Як і в $\varepsilon(H)$, спостерігається стрибкоподібна зміна з незалежних від орієнтації H «напрямок» стрибка.

Особливістю $NdFe_3(BO_3)_4$ є досить мале значення поля f - d обміну H_{ex} , порівнянне за величиною з використовуваними в експерименті зовнішніми полями. В результаті при $H \neq 0$ магнітні моменти йона Nd і найближчої до нього підгратки йонів Fe вже не можна вважати співнаправленими. Наслідком цього є польова залежність магнітної сприйнятливості, а також зміна знака індукованої полем електричної поляризації [73]. Для коректного розгляду цих питань вклади заліза і РЗМ йона слід враховувати окремо. Залізна система при цьому як і раніше характеризується вектором антиферромагнетизму L . Для неодимовою системи використовуємо модель, прийняту в [73] при аналізі поляризаційних ефектів.

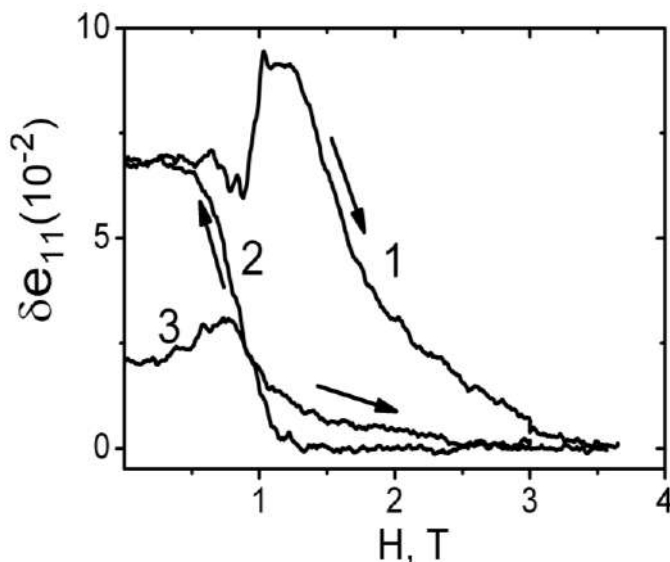


Рис.5.13. Польові залежності відносних змін п'єзомодуля зразок Nd_1 . 1) $T=1,7$ K, $\varphi_H = \pi/4$, 2) $T=1,7$ K, $\varphi_H = 0$, 3) $T=12$ K, Напрямок зміни магнітного поля вказано стрілками.

Згідно [73], при всіх актуальних для даного експерименту температурах, основний стан йонів Nd може бути описано найнижчих крамерсовим дублетом, розщепленим ефективним полем H_{eff}^i , що представляє векторну суму обмінного і зовнішнього полів ($\mathbf{H}_{eff}^i = (-1)^i \mathbf{H}_{ex} + \mathbf{H}$). Індекс $i = 1, 2$ диференціює йони Nd, що знаходяться в обмінному полі різних залізних підґраток. Магнітний момент в розрахунку на один йон Nd може бути записаний [73]:

$$\mathbf{m}^i = m_0 \frac{\mathbf{H}_{eff}^i}{|\mathbf{H}_{eff}^i|} \tanh \frac{g \mu_B H_{eff}^i}{2kT} \quad (5.15)$$

Тут $m_0 = g \mu_B / 2$, g та μ_B - g -фактор и магнетон Бора. При $T < 5$ K температурно-залежний множник можна покласти рівним 1, і тоді (5.15) являє максимально можливий магнітний момент РЗМ йона, орієнтований в напрямку \mathbf{H}_{eff}^i .

В (5.14) феноменологічні константи (a , значить, і ефективна величина L) визначаються вкладом обох систем магнітних йонів та завдання їх поділу не поставлена. Ці складові значущі тільки при $H \leq H_{SF} \sim 1$ Тл. При таких полях

відхилення точних значень обговорюваних доданків від (5.14) по порядку величини не перевищують $(H/H_{ex})^2 \leq 10^{-2}$.

При аналізі взаємодії магнітної підсистеми із зовнішніми полями враховуємо, що в нашій задачі всі матеріальні вектори, як магнітні, так і польові, не мають значних z компонент. Магнітоелектрична взаємодія буде виглядати:

$$F_{ME} = \frac{a_{Fe}}{4} (E_{\zeta} l_{\zeta}^2 + E_{\eta} l_{\eta}^2) + \frac{a_{Nd}}{8} \sum_i (E_{\zeta} \mu_{\zeta}^{i2} + E_{\eta} \mu_{\eta}^{i2}) \quad (5.16)$$

В (5.16) під l та μ маються на увазі напрямляючі косинуси векторів антиферомагнетизму, пов'язаного тільки з йонами Fe, і магнітного моменту на йоні Nd відповідно. Крім того, введені парціальні коефіцієнти магнітоелектричного зв'язку. В декартових координатах (5.16) зводиться до:

$$F_{ME} = \frac{a_{Fe}}{2} (E_x (l_x^2 - l_y^2) - 2E_y l_x l_y) + \frac{a_{Nd}}{4} \sum_i (E_x (\mu_x^{i2} - \mu_y^{i2}) - 2E_y \mu_x^i \mu_y^i) \quad (5.17)$$

Магнітопружна взаємодія в координатах ζ, η має вигляд, близький до (5.16) з іншими парціальними коефіцієнтами (b_{Fe}, b_{Nd}) і з заміною $E_{\zeta} \rightarrow u_{\eta\eta}$ (і навпаки).

У декартовій системі:

$$F_{MU} = \frac{b_{Fe}}{2} ((u_{xx} - u_{yy})(l_x^2 - l_y^2) + 4u_{xy} l_x l_y) + \frac{b_{Nd}}{4} \sum_i ((u_{xx} - u_{yy})(\mu_x^{i2} - \mu_y^{i2}) + 4u_{xy} \mu_x^i \mu_y^i) \quad (5.18)$$

П'єзоелектричний внесок: $F_{piezo} = \frac{e}{2} (E_{\zeta} u_{\zeta\zeta} + E_{\eta} u_{\eta\eta}) = e(E_x (u_{xx} - u_{yy}) - 2E_y u_{xy})$ та

електричний: $F_E = -\frac{\varepsilon E^2}{8\pi}$.

Введемо кутові координати положення магнітних векторів відносно вісі x : φ – для поля H_{ex} , φ_H – для зовнішнього поля H , γ_i – для поля H_{eff}^i . Тоді $l_x^2 - l_y^2 = \cos 2\varphi$, $2l_x l_y = \sin 2\varphi$. Користуючись (5.15), неважко показати, що

$$\begin{aligned} \sum_i \mu_x^{i2} - \mu_y^{i2} &= \sum_i \cos 2\gamma^i = \frac{2(H_{ex}^2 - H^2)(H_{ex}^2 \cos 2\varphi - H^2 \cos 2\varphi_H)}{(H_{ex}^2 + H^2)^2 - 4H_{ex}^2 H^2 \cos^2(\varphi - \varphi_H)} \\ 2\sum_i \mu_x^i \mu_y^i &= \sum_i \sin 2\gamma^i = \frac{2(H_{ex}^2 - H^2)(H_{ex}^2 \sin 2\varphi - H^2 \sin 2\varphi_H)}{(H_{ex}^2 + H^2)^2 - 4H_{ex}^2 H^2 \cos^2(\varphi - \varphi_H)} \end{aligned} \quad (5.19)$$

Використовуючи рівність $\mathbf{D} = -4\pi \frac{\partial \tilde{F}}{\partial \mathbf{E}}$ [49], знаходимо поляризацію, обумовлену магнітоелектричною взаємодією. При малих H в гелікоїдальній фазі вважаючи $\varphi = qz$ і усереднюючі, отримаємо, що поляризація мала по параметру $(H/H_{ex})^2$. Таке ж твердження справедливо і для полідоменного стану. У спін-флоп фазі зразок монодоменизований і $\varphi = \varphi_H + \pi/2$. Для поляризації маємо:

$$P_x = -\left(\frac{a_{Fe}}{2} + \frac{a_{Nd}}{2} \frac{H_{ex}^2 - H^2}{H_{ex}^2 + H^2}\right) \cos 2\varphi_H \quad (5.20)$$

Аналогічне співвідношення справедливо і для P_y з заміною $\cos 2\varphi_H$ на $\sin 2\varphi_H$. З (5.20) випливає, що в деякому полі поляризація повинна змінити знак. Автори [73] спостерігали зміну знака в поле $H_0 \sim 5$ Тл при 4 К ($\varphi_H = 0, \pi/2$) і, вважаючи, що внесок залізної системи дуже малий, отримали оцінку $H_{ex} \approx H_0 \approx 5$ Тл. Це значення H_{ex} в світлі магнітних вимірів тих же авторів [74] і розрахунків [75] представляється заниженими, і внесок залізної системи, мабуть, відчутний. Нижче ми дамо свою оцінку співвідношення між коефіцієнтами a_{Fe} і a_{Nd} . З урахуванням цього знаходимо ефективну діелектричну проникність:

$$\varepsilon_{xx}^{eff} = \frac{dD_x}{dE_x} = \varepsilon_{xx} - 4\pi \frac{\partial^2 \tilde{F}}{\partial E_x \partial \varphi} \frac{\partial \varphi}{\partial E_x} = \varepsilon_{xx} + 4\pi \frac{(\partial^2 \tilde{F} / \partial \varphi \partial E_x)^2}{\partial^2 \tilde{F} / \partial \varphi^2} \quad (5.21)$$

Співвідношення (5.21) і аналогічний йому вираз для п'єзомодуля дозволяють з використанням (5.17-5.18) знайти відгук антиферромагнетика на зовнішній вплив при будь-якому значенні магнітного поля. При малих H відповіді збігаються з отриманими в [5]. Відносна зміна діелектричної проникності:

$$\delta\varepsilon_{xx}(T, H) = \frac{\varepsilon_{xx}^{eff}(T, H) - \varepsilon(T_N)}{\varepsilon(T_N)} = \frac{4\pi a^2 \sin^2 2\varphi}{\varepsilon \partial^2 \tilde{F} / \partial \varphi^2} \quad (5.22)$$

завжди додатня ($a = a_{Fe} + a_{Nd}$). Усереднення по рівноважній полідоменній (або гелікоїдальній) структурі обов'язково дає ненульовий результат. Зміна нахилу $\delta\varepsilon_{xx}(T)$ при переході між цими фазами пов'язана, можливо, з появою в

$$\tilde{F} \text{ додаткових доданків типу } E_\xi l_\xi \frac{dl_\xi}{dz} - E_\eta l_\eta \frac{dl_\eta}{dz}.$$

Відносна зміна п'єзомодуля при збудженні u_{xx} виглядає подібним чином:

$$\delta e_{11}(T) = \frac{e_{11}^{eff}(T) - e_{11}(T_N)}{e_{11}(T_N)} = -\frac{ab \sin^2 2\varphi}{e_{11} \partial^2 \tilde{F} / \partial \varphi^2} \quad (5.23)$$

($b = b_{Fe} + b_{Nd}$). При збудженні u_{xy} , як випливає з (5.17), відгук аналогічний з заміною $\sin^2 2\varphi$ на $2\cos^2 2\varphi$, тобто в два рази більше, що і спостерігається на експерименті (Рис.5.9). Немонотонна зміна п'єзомодуля обумовлена, швидше за все, тим, що параметр b змінює знак. Можна думати, що саме ця причина є «спусковим механізмом», який ініціює появу гелікоїдальної фази.

З точки зору інформативності найбільший інтерес представляють вимірювання в монодоменному спін-флор стані. Оскільки при цьому $\varphi \approx \varphi_H + \pi/2$, з (5.21) і аналогічного співвідношення для п'єзомодуля видно, що

при $\varphi_H = 0, \pi/2$ обговорювані відгуки відсутні. Вимірювання в такій геометрії при $H \sim (2-3)H_{SF}$ забезпечували надійний рівень відліку для вимірювань в інших геометріях, зокрема при $\varphi_H = \pm \pi/4$, в разі, коли відгуки максимальні. Саме так були отримані фонові залежності п'єзомодуля на Рис.5.9 (Звертаємо увагу, при вимірах ε_{yy} , або п'єзовідгука на u_{xy} , характерні кути міняються місцями).

При $H \sim H_{SF}$ поведінка знаменника в рівнянні (5.21) і йому подібних визначається, в першу чергу, зєсмановською енергією, а також енергією анізотропії та можливими неоднорідними напруженнями [5, 69]. У найбільш цікавому випадку $\varphi_H = \pm \pi/4$ внесок енергії анізотропії (5.7) обнулений, чого не можна сказати про неоднорідності. Останні описуються співвідношенням (5.17), в якому зовнішні деформації замінені на деяке внутрішнє поле статичних неоднорідностей.

Припустимо спочатку, що внеском неоднорідностей можна знехтувати. Тоді, вводячи парціальні сприйнятливості і використовуючи (5.15), в нижчому порядку за H/H_{ex} отримуємо $\partial^2 \tilde{F} / \partial \varphi^2 = (\chi_{Fe} + \chi_{Nd}(1 - 3H^2/H_{ex}^2))H^2$. Використовуючи це співвідношення, а також рівняння (5.17, 5.19) в тому ж наближенні, для МО ефекту знаходимо:

$$\delta\varepsilon_{xx} = \left((-6\frac{a_{Nd}}{a} + 3\frac{\chi_{Nd}}{\chi})\frac{1}{H_{ex}^2} + \frac{1}{H^2} \right) \frac{4\pi a^2}{\varepsilon\chi} \sin^2 2\varphi \quad (5.24)$$

де $\chi = \chi_{Fe} + \chi_{Nd}$. З (5.24) слідує: відносні зміни діелектричної проникності при $H_{SF} < H \ll H_{ex}$ в антиферромагнітній фазі лінійні по зворотному квадрату зовнішнього магнітного поля. Апроксимуюча пряма в координатах $\delta\varepsilon_{xx}, 1/H^2$ перетинає вісь ординат в точці, яка визначається величиною H_{ex} і співвідношенням вкладів залізної і неодимової систем.

На Рис.5.14 результати, наведені на Рис.5.10, представлені в нових координатах. Вони демонструють залежності, які практично не відрізняються від лінійних при $H > H_{SF}$, і перетинаються з віссю ординат в від'ємній області.

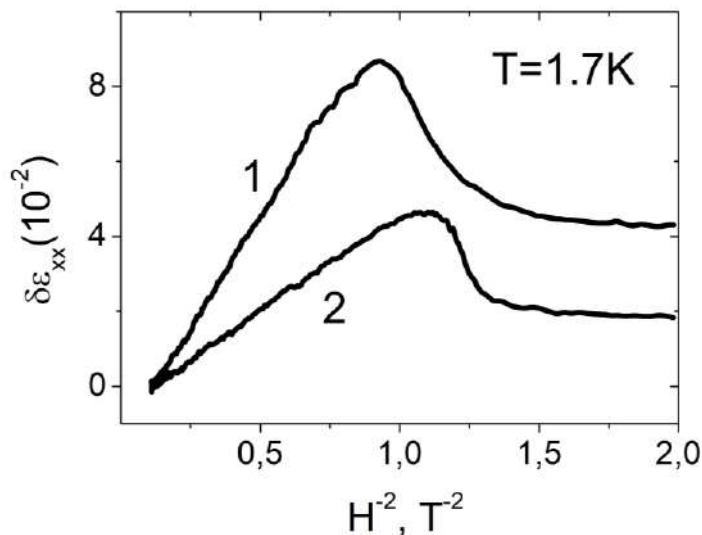


Рис.5.14. Результати, що наведено на Рис.5.10а ($\varphi_H = \pi/4$), в координатах $\delta\epsilon_{xx}$, H^2 . 1 – Nd_1 , 2 – Nd_2 .

Рис.5.14. виправдовує можливість використання рівняння (5.24) в межі низьких температур. Підкреслимо наступне: положення апроксимуючої прямої на площині параметрів залежить від зразка, проте співвідношення між ординатою точки перетину і нахилом відповідної прямої r виявляється однаковим в межах помилки вимірювань ($r = -0,115 \pm 0,01$) і стійким в різних циклах охолодження. Для Nd_1 нахил апроксимуючої прямої близький до $0,11Tл^2$. Використовуючи відомі значення $\epsilon_{xx} \approx 15$ [4] та $\chi_{\perp c} \approx 1,38 \cdot 10^{-3}$ [74], з нахилу апроксимуючої прямої (5.22) отримуємо $a \sim 450$ мкКл/м². Очікуване максимальне значення поляризації, як випливає з (5.19), $P_x = a/2 = 225$ мкКл/м². Прямі вимірювання [73] дали P_x від 250 до 400 мкКл/м². Також, як і в феробораті самарію [5], наші оцінки трохи нижче цього результату. Причина такої розбіжності може бути пов'язана з частотною дисперсією МЄ (і МПЕ) відгуку. Всі обговорювані вище ефекти припускають модуляцію кутового положення магнітних векторів електричним

(або пружним) полем. Наявні в зразку локальні неоднорідності можуть грати роль «пасток», що ускладнюють досягнення миттєво рівноважного стану на відносно високих частотах у порівнянні з квазістаціонарним режимом вимірювання поляризації [73]. Зі співвідношення (5.24) слідує:

$$\frac{a_{Nd}}{a} = \frac{-\kappa H_{ex}^2 + 3\chi_{Nd}/\chi}{6}$$

Прийнявши $H_{ex}=7,3$ Тл, $\chi_{Nd}/\chi \approx 0,5$ [75] і використовуючи знайдене значення $r = 0,115 \pm 0,01$, отримуємо $a_{Nd}/a=1,27 \pm 0,1 > 1$, тобто вклади в сумарний електромагнітний потенціал неодимовою і залізною систем протилежні за знаком. Іншими словами, остання відіграє роль баласту, що зменшує кутову модуляцію магнітної структури в цілому.

При підвищенні температури зменшуються H_{SF} та χ_{Nd} , що робить внесок неоднорідностей більш помітним. На Рис.5.15. представлений в перебудованому до нових координатах вигляді результат Рис.5.10б. (крива 1).

Ця процедура «спрямляє» спостережені зміни і дозволяє оцінити рівень неоднорідностей.

Очевидно, що лінійна апроксимація недостатньо задовільна. Цікаво відзначити - експериментальна залежність легко лінеаризується переходом до координат (Рис.5.15., крива 2), де $H_d \sim 0,4$ Тл - деяке ефективне поле, яке імітує внесок статичних неоднорідностей.

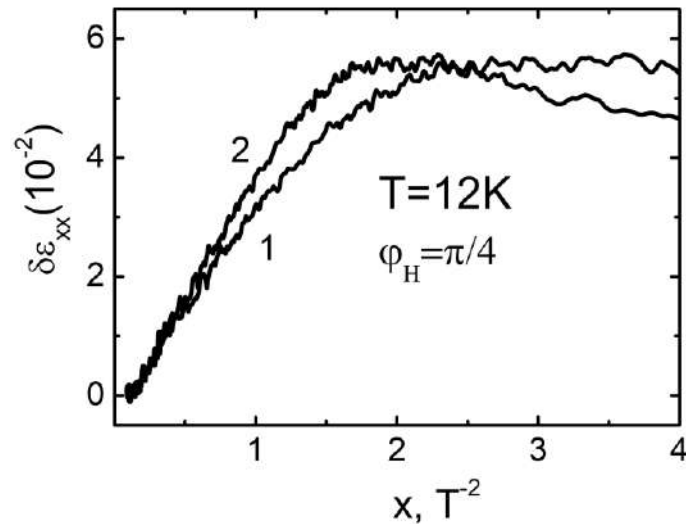


Рис.5.15. Результати приведені на Рис.5.1. ($\varphi_H = \pi/4$) 1 – на вісі абсцис $1/H^2$, 2 - на осі абсцис $1/(0,4^2 + H^2)$.

Насправді коефіцієнт a являє собою компоненту тензора третього рангу, що відрізняється знаком в «лівій» і «правій» модифікаціях. У полідоменном стані кутова модуляція положення магнітних векторів в кожному домені відбувається, мабуть, за незалежним сценарієм, і знак a відповідно до (5.22) не впливає на результат усереднення по всьому зразку. У спін-флоп же фазі весь зразок поводить як єдине ціле, тобто усереднюється безпосередньо компонента тензора магнітоелектричного відгуку, що й приводить до розбіжностей результатів в різних зразках.

Вищенаведений аналіз кутової та польовий залежності МЄ відгуку в рівній мірі застосовний і до МПЕ ефектів. Дані Рис.5.13, представлені в координатах $\delta e_{1,1}/H^2$. (Рис.5.16) також при $H > H_{SF}$ добре апроксимується прямими лініями. При $T = 1,7$ К нахил близький до $0,18T^2$.

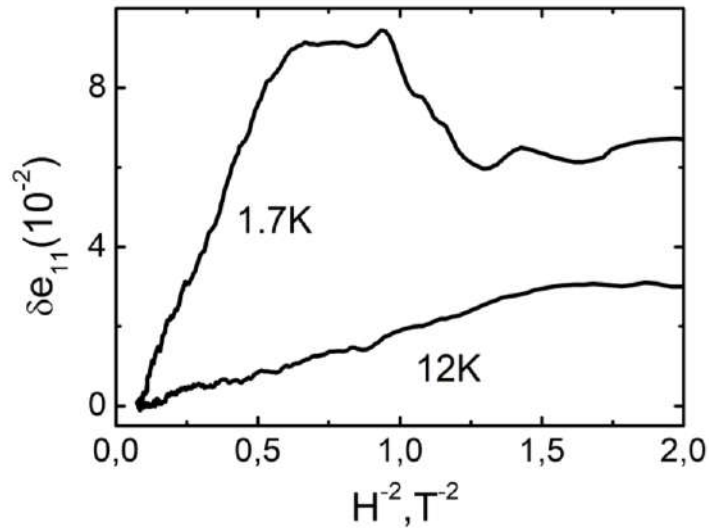


Рис.5.16. Результати, що приведені на Рис.5.13 ($\varphi_H = \pi/4$), в координатах δe_{11} , H^2 .

Обговорювані ефекти дають внесок і в модулі пружності. На Рис.5.17 представлено зміна швидкості u_{xx} моди за відсутність магнітного поля.

За своїм масштабом спостерігаються варіації значно менше, ніж спостерігалися в $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ і вони істотно немонотонні. Вище наведено співвідношення, яке описує внесок магнітоелектричного і магнітопружного механізмів в швидкість звуку (5.13). Рівняння (5.13) з урахуванням того, що δe_{11} (тобто константа b) змінює знак (Рис.5.9), дійсно описує немонотонну залежність. Однак швидкість звуку при цьому може бути тільки менше, ніж в парафазі.

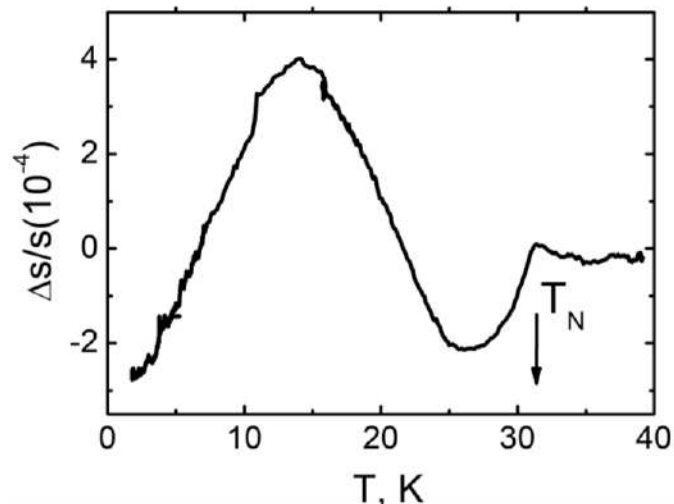


Рис.5.17. Температурна зміна швидкості звуку за відсутності поля. Зразок Nd_1 .

Інтерпретація Рис.5.17 зводиться до того, що на зміну s , що описується вищенаведеним співвідношенням, накладається дія додаткового механізму, що не врахований при виведенні (5.13). Таким може бути пряме перенормування п'єзоелектричної взаємодії в магнітовпорядкованому стані. З урахуванням симетрії в координатах ξ, η відповідний внесок в термодинамічний потенціал пропорційний комбінації $E_\xi u_{\xi\eta} l_\xi^2 + E_\eta u_{\xi\eta} l_\eta^2$. В декартових координатах додаткова енергія буде виглядати: $F_{piezol} = \tilde{e}_{11}(E_x \cos 2\varphi - E_y \sin 2\varphi)(u_{xx} + u_{yy})$.

Поступаючи так само, як і при виведенні (5.13), обчислимо швидкість C_{11} моди з урахуванням додаткової взаємодії. Залишаючи тільки лінійні по амплітудам зовнішніх полів складові, в головному наближенні по співвідношенню:

$$\left(\frac{\Delta s}{s}\right) = \left\{ -\frac{\delta\epsilon_{xx}}{1 + \delta\epsilon_{xx}} \left(\frac{\delta e_{11}}{\delta\epsilon_{xx}} - 1\right)^2 + \frac{2\tilde{e}_{11} \cos 2\varphi}{e_{11}(1 + \delta\epsilon_{xx})} \right\} \frac{2\pi e_{11}^2}{\epsilon_{xx} \rho s_{Lx}^2} \quad (5.25)$$

В (5.25) другий доданок в фігурних дужках залежить від магнітного поля головним чином тільки через кут φ . Нагадаємо, в спін-флоп фазі $\varphi = \varphi_H + \pi/2$, тому в межі великих H ($\delta\epsilon_{xx} \rightarrow 0$) значення швидкості при $\varphi_H = 0$ та $\varphi_H = \pi/4$ повинні відрізнятися як раз на величину цього доданка. На Рис.5.18 наведені польові залежності швидкості u_{xx} моди, що підтверджують такий висновок - при $\varphi_H = 0$ швидкість в межі сильного поля менше, ніж при $\varphi_H = \pi/4$.

Для величини додаткового п'єзомодуля з Рис.5.18 маємо $\tilde{e}_{11}/e_{11} \approx 6 \cdot 10^{-3}$. В принципі внесок \tilde{e}_{11} можна було б шукати і в кутовий залежності МПЕ, як це і було безуспішно зроблено в Sm [5]. Однак наведена оцінка показує, що очікувана величина ефекту в цьому випадку знаходиться на межі можливих похибок методу.

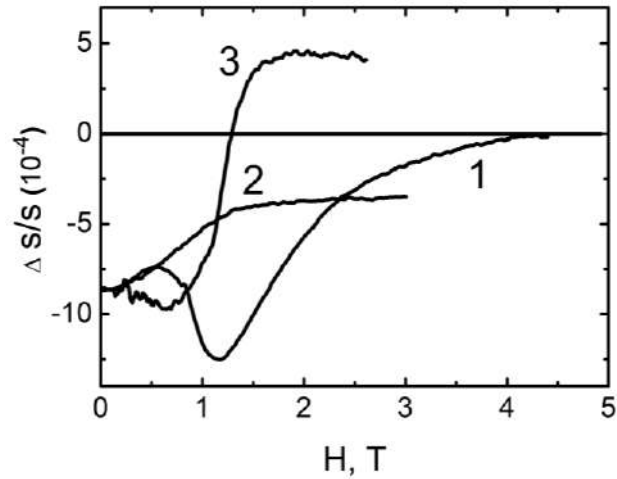


Рис.5.18. Польова залежність швидкості звуку. Зразок Nd_1 , $T=1,7$ К. 1) $\varphi_H = \pi/4$, 2) $\varphi_H = 0$, 3) $\varphi_H = \pi/2$.

При $\varphi_H = \pi/4$ функціональна залежність швидкості звуку від магнітного поля, згідно (5.25), визначається множником $\delta\epsilon_{xx}$ і вона також повинна випрямлятися в координатах $\Delta s/s, H^{-2}$. Рис.5.19. підтверджує цей висновок.

Нахил апроксимуючої прямої ($T = 1,7$ К) $\sim 2,6 \cdot 10^{-3}$ Тл², хоча оцінка з (5.25) дає величину $\sim 10^{-3}$ Тл². Така розбіжність не повинно нас бентежити. Оціночна величина ефекту дуже сильно залежить від співвідношення $\delta e_{11}/\delta\epsilon_{xx}$ - підвищення останнього на 30% збільшує оцінку більш ніж в три рази.

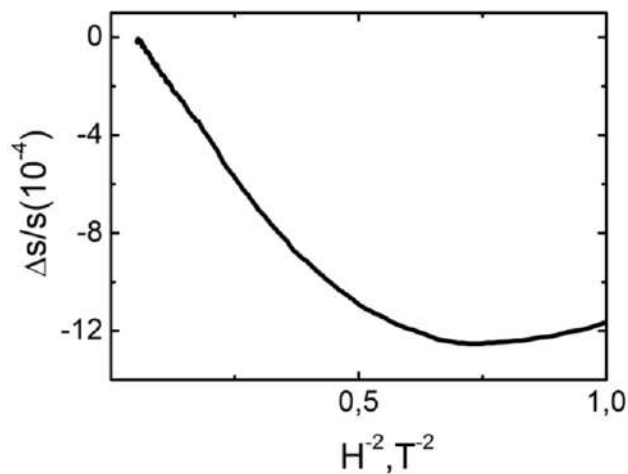


Рис.5.19. Польова залежність швидкості звуку. Зразок Nd_1 , $T=1,7$ К. ($\varphi_H = \pi/4$) в координатах $\Delta s/s, H^{-2}$.

У МПЕ експерименті це відношення визначається тільки для приповерхневого шару (порядку довжини пружною хвилі), в той час як рівняння (5.25) передбачає усереднення на повній довжині акустичного шляху.

5.4. Висновки до Розділу 5

У парамагнітному стані виміряні швидкості звуку в монокристалах неодимового і самарієвого фероборатів для набору напрямків, достатнього для відновлення елементів тензорів пружних і п'єзоелектричних модулів. Пружна система характеризується підвищеною жорсткістю в базовій площині по відношенню до деформацій розтягу - стиску. Інтенсивність п'єзоелектричних взаємодій досить висока, п'єзоелектричні модулі на порядок перевищують відповідні величини для α -кварцу.

Вивчено вплив антиферомагнітного впорядкування на акустоелектричні характеристики самарієвого феробората. Виявлено гігантський магнітоп'єзоелектричний ефект - аномально велике зростання ефективного п'єзомодуля нижче температури Нееля і придушення цього зростання магнітним полем. Це головний результат проведених експериментів. Природа ефекту - спільний внесок магнітоелектричної і магнітопружної взаємодій і еволюція цього вкладу під впливом магнітного поля в процесі спінової перебудови. Ідейно магнітоп'єзоелектричний ефект близький до виявленого раніше в [69] магнітодіелектричного ефекту, для якого в даній роботі отримані додаткові дані по його залежності від орієнтації H . Виписано феноменологічні співвідношення, що дозволяють пояснити поведінку в антиферомагнітній фазі ефективного п'єзомодуля і швидкості звуку. Показано, що при певній геометрії експерименту, навіть в глибоко розвиненій спін-флоп фазі, зовнішні поля (пружне і електричне) модулюють взаємну орієнтацію векторів L і H . Вимірювання в цій геометрії дозволили відновити чисельні значення і температурні залежності ряду феноменологічних параметрів, що входять в розкладання термодинамічного потенціалу по компонентам параметра порядку.

Систематично досліджено МПЕ і МЄ ефекти в монокристалічних зразках $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$. Незважаючи на менший масштаб, істотних якісних відмінностей від самарієвого складу, в якому вперше був спостережений МПЕ ефект, не знайдено. Виявлено, що константа магнітопружного зв'язку нижче температури Нееля змінює знак. У магнітному полі температурна поведінка МЄ і МПЕ даних демонструє стрибкоподібні зміни, пов'язані з переходом від гелікоїдальної до спін-флоп фази. Цей перехід носить ознаки фазового перетворення I роду. Знайдено межі існування гелікоїдальної фази на H, T площині. Вимірювання в спін-флоп стані показали, що для оптимальної геометрії експерименту амплітуди всіх ефектів при низькій температурі спадають, як H^{-2} . Визначено співвідношення вкладів неодимової і залізної систем в спостережувані явища. Показано, що магнітна система заліза відіграє роль баласту, гальмуючого розвиток МЄ і МПЕ ефектів. Оцінка максимально можливої величини магнітоелектричної поляризації призводить до значення, меншого в порівнянні з результатами прямих вимірювань. Магнітопольові залежності швидкості звуку продемонстрували існування нового спін-залежного явища - пряму перенормировку константи п'єзоелектричного зв'язку в магнітовпорядкованому стані. Дана феноменологічна інтерпретація всіх вивчених ефектів.

ВИСНОВКИ

1. Вперше експериментально й з високою точністю ($\sim 1\%$) виміряні швидкості звуку в монокристалах FeSe, $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ й $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$. Розраховано величини основних компонент тензорів модулів пружності. Для фероборатів Sm и Nd отримані значення п'єзоелектричних модулів. Показано, що інтенсивність п'єзоелектричної взаємодії в досліджуваних фероборатах на порядок перевищує відповідну характеристику для α - кварцу.
2. Вперше запропоновано та розвинуто експериментальну методику дослідження п'єземагнітних явищ акустичними методами. До переваг методики варто віднести можливість її використання для дослідження крихких зразків міліметрового і, навіть, субміліметрового розміру.
3. Вперше експериментально зареєстровано електромагнітний відгук з поверхні монокристала FeSe, що з'являється під дією ультразвуку за відсутності зовнішнього магнітного поля. Найбільш вірогідною причиною цього явища є п'єземагнетизм.
4. Вперше виявлено гігантський магнітоп'єзоелектричний ефект в антиферомагнетиках. Ефект є наслідком спільного впливу магнітоелектричної та магнітопружної взаємодій на орієнтаційний стан магнітної структури антиферомагнетика і полягає в аномально великому зростанні ефективного п'єзомодуля нижче температури Нееля та пригніченні цього зростання магнітним полем. Ефект досліджено в $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ й $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$.
5. Вперше визначено параметри магнітоелектричної й магнітопружної взаємодій в мультифероїках $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ й $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$. Виявлено, що параметр магнітопружного зв'язку в $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ змінює знак при зміні температури. Визначено границі існування гелікоїдальної фази в $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$.

СПИСОК ВИКОРИСТАНИХ ДЖЕРЕЛ

- 1) Acoustic characteristics of FeSe single crystals / G.A. Zvyagina, **T.N. Gaydamak**, K.R. Zhekov, I.V. Bilich, V.D. Fil, D.A. Chareev, A.N. Vasiliev // Europhysics Letters. – 2013. – V.101, Iss.5. – P. 56005-56005.
- 2) Piezomagnetism of FeSe single crystals / V.D. Fil, D.V. Fil, K.R. Zhekov, **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, D.A. Chareev, A.N. Vasiliev // "Europhysics Letters. – 2013. – V. 103, Iss.5. – P. 47009-47009.
- 3) 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 // Физика низких температур. – 2014. – Т. 40, № 6. – С. 676–684.
- 4) Упругие и пьезоэлектрические модули ферроборатов Nd и Sm / **Т.Н. Гайдамак**, И.А. Гудим, Г.А. Звягина, И.В. Билыч, Н.Г. Бурма, К.Р. Жеков, В.Д. Филь // Физика низких температур. – 2015. – Т. 41, № 8. – С. 792-797.
- 5) Magnetopiezoelectric effect and magnetocapacitance in $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ / **T.N. Gaydamak**, I.A. Gudim, G.A. Zvyagina, I.V. Bilych, N.G. Burma, K.R. Zhekov, V.D. Fil // Phys. Rev. B. – 2015. – V. 92, Iss.21. – P. 214428-1–214428-7.
- 6) Магнитодиелектрический и магнитопьезоэлектрические эффекты в $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ / И.В. Билыч, К.Р. Жеков, **Т.Н. Гайдамак**, И.А. Гудим, Г.А. Звягина, В.Д. Филь // Физика низких температур. – 2016. – Т. 41. № 12. – С. 792-797.
- 7) Elastic properties of FeSe / **T.N. Gaydamak**, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, G.A. Zvyagina, V.D. Fil', E.S. Kozlyakova, D.A. Chareev // III International Conference for Young Scientists —“Low Temperature Physics”, May 14 – 18, 2012 : book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2012. – P. 66.
- 8) Акустические исследования монокристалла FeSe / **Т.Н. Гайдамак**, К.Р. Жеков, И.В. Билыч, Г.А. Звягина, В.Д. Филь, Е.С. Козлякова, Д.А. Чареев // ЭВРИКА–2012, Апрель 19–22, 2012: тезисы докладов. – Украина, Львов 2012. – Д50.

- 9) FeSe – piezomagnetic/ **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, D.A. Chareev // IV International Conference for Young Scientists—“Low Temperature Physics”, June 3 – 7, 2013 : book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2013. – P. 29.
- 10) Пьезомагнетизм 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 // XI Международная научная конференция «Физические явления в твердых телах», 3 – 6 декабря 2013: тезисы доклада – Украина, Харьков 2013. – С. 125.
- 11) Acoustopiezomagnetic effect in CoF_2 / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, V.A. Desnenko // V International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics», June 2 – 6 2014: book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2014. – P. 78.
- 12) Ultrasonic in Nd and Sm ferrobates. Magnetopiezoelectric effect/ **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilych, K.R. Zhekov, I.A. Gudim // VI International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics», June 2 – 5 2015: book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2015. – P. 47.
- 13) Magnetopiezoelectric effect and magnetocapacitance in neodymium ferrobate / **T.N. Gaydamak**, I.A. Gudim, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, K.R. Zhekov, V.D. Fil // VII International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics», June 1 – 5 2016: book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2016. – P. 79.
- 14) Magnetopiezoelectric and magnetodielectric effects in $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ / **T.N. Gaydamak**, I.A. Gudim, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, K.R. Zhekov, V.D. Fil // International school & conference on nanoscience and quantum transport (nano QT–2016), October 8–14 2016.
- 15) Magnetopiezoelectric effect in Sm and Nd ferroboraes / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilych, K.R.Zhekov, I.A. Gudim // VIII International Conference for Professionals and Young Scientists «Low Temperature Physics», May 29 – June 2 2017 : book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2017. – P. 84.

- 16) Piezomagnetism in FeSe / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, D.A. Chareev // International conference on strongly correlated electron systems (SCES–2017), July 17–21 2017: book of abstracts. – Czech Republic, Prague, 2017. – P. 36.
- 17) Magnetopiezoelectric effect in Sm and Nd ferrobates / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, K.R. Zhekov, I.A. Gudim // V International Research and Practice Conference «Nanotechnology and nanomaterials», 23 – 26 August, 2017 : book of abstracts. – Chernivtsi, Ukraine, 2017. – P. 237.
- 18) Easy-plane ferrobates. Magnetopiezoelectric effects / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, K.R. Zhekov, I.A. Gudim // “6th International Symposium in Optics and its Applications”, OPTICS–2018, 17–20 February, 2018 : book of abstracts. – Trento, Italy, 2018. – P. 47.
- 19) Physics and chemistry of layered chalcogenide superconductors / K. Deguchi, Y. Takano, Y. Mizuguchi // Sci. Technol. Adv. Mater. –2012. –V.13. – P. 054303.
- 20) Crystal and Electronic Structure of FeSe at High Pressure and Low Temperature / R.S. Kumar, Y. Zhang, S. Sinogeikin, Y. Xiao, S. Kumar, P. Chow, A.L. Cornelius, C. Chen // J. Phys. Chem. B. – 2010. – V.114. – P. 12597–12606.
- 21) Пустовіт Ю. В. FeSe: високотемпературна надпровідність, нематичність та електронна структура / Ю.В. Пустовіт, О.А. Кордюк // Успехи физ.мет. – 2017. – Т.18.№1. – С.1-26.
- 22) Quasiparticle Dynamics and Phonon Softening in FeSe Superconductors /C.W. Luo, I.H. Wu, P.C. Cheng, J.-Y. Lin, K.H. Wu, T.M. Uen, J.Y. Juang, T. Kobayashi, D.A. Chareev, O.S. Volkova, A.N. Vasiliev // Phys. Rev. Lett. – 2012. – V.108, Iss. 25. – P. 257006-1–257006-5.
- 23) Superconducting gaps in FeSe studied by soft point-contact Andreev reflection spectroscopy / Yu.G. Naidyuk, O.E. Kvitnitskaya, N.V. Gamayunova, D.L. Bashlakov,

L.V. Tyutrina, G. Fuchs, R. Hühne, D.A. Chareev, A.N. Vasiliev // *Phys. Rev. B.* – 2017. –V.96, Iss. 9. –P. 094517-1- 094517-7.

24) Monolayer FeSe on SrTiO₃ / D. Huang, J.E. Hoffman // *Annual Review of Condensed Matter Physics.* –2017. –V.8. – P.311-336.

25) Pressure evolution of the low-temperature crystal structure and bonding of the superconductor FeSe ($T_C=37$ K) /S. Margadonna, Y. Takabayashi, Y. Ohishi, Y. Mizuguchi, Y. Takano, T. Kagayama, T. Nakagawa, M. Takata, K. Prassides // *Phys. Rev. B.* –2009. – V.80, Iss.6. – P.064506-1–064506-6.

26) Chandra S. Elastic properties of mono- and poly-crystalline PbO-type FeSe_{1-x}Te_x ($x = 0-1.0$): A first-principles study / S. Chandra, A.K.M.A. Islam // *Physica C.* –2010. – V.470, Iss.22. – P.2072-2075.

27) Васильев А.Н. Редкоземельные ферробораты / А.Н. Васильев, Е.А. Попова // *Физика низких температур.* –2006. –Т. 32, № 8/9. – С. 968–984.

28) Магнитоэлектрические и магнитоупругие свойства редкоземельных ферроборатов / А.М. Кадомцева, Ю.Ф. Попов, Г.П. Воробьев, А.П. Пятаков, С.С. Кротов, К.И. Камилов // *Физика низких температур.* –2010. –Т. 36, № 6. – С.640–653.

29) Магнитоэлектрические материалы и мультиферроики / А.П. Пятаков, А.К. Звездин // *УФН.* –2012. –Т.182, №6. – С.593–620.

30) Magnetic phase transitions in the NdFe₃(BO₃)₄ multiferroic / G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, A.A. Zvyagin, I.A. Gudim, V.L. Temerov // *Low Temperature Physics.* –2011. –V. 37, Iss.12. – P.1010-1020.

31) Magnetoelastic effects in terbium ferroborate / G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov, L.N. Bezmaternykh, I.A. Gudim, I.V. Bilych, A.A. Zvyagin // *Low Temperature Physics.* –2008. – V.34, Iss.11. – P.901-908.

- 32) Low-temperature phase transitions in rare-earth ferroborate $\text{Nd}_{0.75}\text{Dy}_{0.25}\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ / G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, A.A. Zvyagin, L.N. Bezmaternykh, I.A. Gudim // *Low Temperature Physics*. –2010. – V.36, Iss.3. – P.279-282.
- 33) Модули упругости борокарбидов. Новый подход к технике акустических измерений / Е.А. Масалитин, В.Д. Филь, К.Р. Жеков, А.Н. Жолобенко, Т.В. Игнатова // *Физика низких температур*. –2003. –Т.29, №1. –С.93-98.
- 34) Coexistence of isotropic and extended s-wave order parameters in FeSe as revealed by low-temperature specific heat / J.-Y. Lin, Y. S. Hsieh, D.A. Chareev, A.N. Vasiliev, Y. Parsons, H.D. Yang // *Phys. Rev. B*.– 2011. – V.84, Iss.22.–P.220507-1-220507-5.
- 35) Pressure-Induced Effects on the Structure of the FeSe Superconductor / J.N. Millican, D. Phelan, E.L. Thomas, J.B. Leao, E. Carpenter // *Solid State Commun.* – 2009. – 149. –P.707-710.
- 36) Belessa G. Frequency and Temperature Dependence of the Sound Velocity in Amorphous Materials at Low Temperatures / G. Belessa // *Phys. Rev. Lett.* –1978. – V.40, Iss.22. – P.1456-1459.
- 37) Низкотемпературное поведение скорости звука в аморфных металлах / С.В. Жерлицын, В.В. Попова, В.Д. Филь, Х.Г. Хабибуллин // *Физика низких температур*. –1989. –Т.15, №1. –С.24-31.
- 38) Фёдоров Ф.И. Теория упругих волн в кристаллах / Ф.И. Фёдоров. – Наука, Москва, 1965. – 388 с.
- 39) Sound wave anomalies in superconducting compounds / B. Luthi, S. Zherlitsyn, B. Wolf // *Eur. Phys. J.B.* – 2005. – V.46, Iss.2 –P.169-176.
- 40) Конторович В.М. Динамические уравнения теории упругости в металлах / В.М. Конторович // *УФН*. –1984. –Т.142. –С.265–307.

- 41) Rayne J.A. Ultrasonic Attenuation in Normal Metals and Superconductors: Fermi-Surface Effects / J.A. Rayne, C.K. Jones // *Physical Acoustics*. –1970. –V.7. –P.149-218.
- 42) Ferromagnetic FeSe: Structural, electrical, and magnetic properties / Q.J. Feng, D.Z. Shen, J.Y. Zhang, B.S. Li, B.H. Li, Y.M. Lu, X.W. Fan, H.W. Liang // *Appl. Phys. Lett.* – 2006. –V.88, Iss.2 – P.012505-1-012505-3.
- 43) First-Principles Calculations of the Electronic Structure of Tetragonal α -FeTe and α -FeSe Crystals: Evidence for a Bicollinear Antiferromagnetic Order / F. Ma, W. Ji, J. Hu, Z.-Y. Lu, T. Xiang // *Phys. Rev. Lett.* – 2009. –V.102, Iss.17.–P.177003-1-177003-5.
- 44) Hall effect in superconducting Fe(Se_{0.5}Te_{0.5}) thin films / I. Tsukada, M. Hanawa, S. Komiya, T. Akiike, R. Tanaka, Y. Imai, A. Maeda// *Phys. Rev. B*. –2010. –V.81, Iss.5 – P.054515-1-054515-6.
- 45) Coexistence of superconductivity and magnetism in FeSe_{1-x} under pressure / M. Bendele, A. Ichsanow, Yu. Pashkevich, L. Keller Th. Strässle, A. Gusev, E. Pomjakushina, K. Conder, R. Khasanov, H. Keller // *Phys. Rev. B*. – 2012. –V.85, Iss.6. –P.064517-1-064517-11.
- 46) Why does undoped FeSe become a high-T_c superconductor under pressure? /T. Imai, K. Ahilan, F.L. Ning, T.M. McQueen, R.J. Cava // *Phys. Rev. Lett.* –2009. – V.102, Iss17. – P.177005-1-177005-4.
- 47) Electronic and magnetic phase diagram of β -Fe_{1.01}Se with superconductivity at 36.7 K under pressure / S. Medvedev, T.M. McQueen, I.A. Troyan, T. Palasyuk, M.I. Eremets, R.J. Cava, S. Naghavi, F. Casper, V. Ksenofontov, G. Wortmann, C. Felser // *Nat. Mater.* –2009. –V.8, Iss.8 – P.630-633.
- 48) Synthesis, crystal structure, and magnetism of β -Fe_{1.00(2)}Se_{1.00(3)} single crystals / R. Hu, H. Lei, M. Abeykoon, E.S. Bozin, S.J.L. Billinge, J.B. Warren, T. Siegrist, C. Petrovic // *Phys. Rev. B*. –2011. – V.83,Iss.22. – P.224502-1-224502-8.

- 49) Ландау Л.Д. Электродинамика сплошных сред / Л.Д.Ландау, У.М.Лифшиц. – Наука. –Москва. –1982. – 621с.
- 50) Абрикосов А.А. Основы теории металлов / А.А. Абрикосов. –Наука. – Москва. –1987. –520с.
- 51) Magnus force and acoustic Stewart-Tolman effect in type-II superconductors / V.D. Fil, D.V. Fil, A.N. Zholobenko, N.G. Burma, Yu.A. Avramenko, J.D. Kim, S.M. Choi, S.I. Lee // Europhys. Lett. –2006. –V.76,Iss.3. –P.484-490.
- 52) Anomalous Hall effect / N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda, A.H. Mac-Donald, N.P. Ong // Rev. Mod. Phys. –2010. –V.82,Iss.2. – P.1539-1592.
- 53) Dynamic and Kinetic Properties of Anti-ferromagnets / К.В.Власов, Е.А.Росенберг, А.Г.Титова, У.М.Яковлев // Sov. Phys. Solid State. –1980. –V.22. – 967p. [Fiz. Tverd. Tela. –1980. –V. 22. –P.1656].
- 54) Симметрия и физические свойства антиферромагнетиков / Е.А. Туров, А.В. Колчанов, В.В. Меньшенин, И.Ф. Мирсаев, В.В. Николаев . –Физматлит. – Москва. –2001. –559с.
- 55) Боровик-Романов А.С. Пьезомагнетизм в антиферромагнитных фторидах кобальта и марганца / А.С. Боровик-Романов // Журнал экспериментальной и теоретической физики. –1960. –Т. 38, №.4 – С.1088-1098.
- 56) Evolution of Two-Gap Behavior of the Superconductor FeSe_{1-x} / R. Khasanov, M. Bendele, A. Amato, K. Conder, H. Keller, H.-H. Klauss, H. Luetkens, E. Pomjakushina // Phys. Rev. Lett. – 2010. – V.104,Iss.8. – P.087004-1-087004-4.
- 57) Дзялошинский И.Е. Термодинамическая теория «слабого» ферромагнетизма антиферромагнетиков / И.Е. Дзялошинский // Журнал экспериментальной и теоретической физики. –1957. –Т.32. –С.1547-1562.

- 58) Martel P. Experimental studies of the magnetic and phonon excitations in cobalt fluoride / P. Martel, R.A. Cowley, R.W.H. Stewenson // *Canad. J. Phys.* –1968. –V.46.– P.1355-1370.
- 59) Popkov Yu.A. Mandelstam brillouin scattering of light in manganese fluoride, cobalt fluoride, potassium manganese trifluoride and rubidium manganese trifluoride crystals / Yu.A. Popkov, V.I. Fomin // *Light Scattering in Solids.* – M. Balkanski, Flammarion. –Paris. –France,1971. –502p.
- 60) Magnetoelastic effect in MF_2 ($M = Mn, Fe, Ni$) investigated by neutron powder diffraction / T. Chatterji, G.N. Iles, B. Ouladdiaf, T. C. Hansen // *J. Phys.: Condens. Matter.* –2010. –V.22,Iss.31. –P.096001.
- 61) Borovik-Romanov A.S., Grimmer H. International tables for crystallography. Vol. D: Physical properties of crystals. Ch. 1.5: Magnetic properties / A.S. Borovik-Romanov, H. Grimmer. – A. Authier, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Boston, London, 2003.
- 62) Elastic and magnetic effects on the infrared phonon spectra of MnF_2 / R. Schleck, Y. Nahas, R.P.S. M. Lobo, J.Varignon, M.B. Lepetit, C.S. Nelson, and R.L. Moreira // *Phys. Rev. B.* –2010. – V82, Iss.5, P.054412-1-054412-10.
- 63) Магнитное двупреломление света в антиферромагнитных фторидах переходных металлов / А.С. Боровик-Романов, Н.М. Крейнс, А.А. Панков, М.А. Талалаев // *ЖЭТФ.* –1973. –Т.61, №5. –С.1762-1775.
- 64) Смарт Дж. Эффективное поле в теории магнетизма/ Дж. Смарт. – Мир, Москва, 1968. –271с.
- 65) Lines M.E. Magnetic Properties of CoF_2 / M.E. Lines // *Phys. Rev.* –1965. – V137,Iss.3A. – P.A982–A993.

66) Foner S. High field magnetic moment and antiferromagnetic resonance measurements in α -Fe₂O₃, CoF₂, FeF₂ and (MnF₂)_{1-x}(ZnF₂) / S. Foner // International Conference on Magnetism: book of abstr. – Nottingham, 1964. –P. 438.

67) Колебательные спектры, упругие, пьезоэлектрические и магнитоэлектрические свойства кристаллов HoFe₃(BO₃)₄ и HoAl₃(BO₃)₄ / В.И. Зиненко, М.С. Павловский, А.С. Крылов, Е.В. Еремин // ЖЭТФ. –2013. – Т.144, №6. –С.1174-1183.

68) Кэди У. Пьезоэлектричество и его практические применения / У. Кэди. – Изд-во Иностранной литературы, Москва, 1949. –718с.

69) Гигантский магнитодиэлектрический эффект в мультиферроике SmFe₃(BO₃)₄ / А.А. Мухин, Г.П. Воробьев, В.Ю.Иванов, А.М. Кадомцева, А.С.Нарижная, А.М. Кузьменко, Ю.Ф. Попов, Л.Н. Безматерных, И.А. Гудим // Письма в ЖЭТФ. –2011. –Т.93, №5. –С.305-311.

70) Шаскольская М.П. Акустические кристаллы / М.П. Шаскольская. – Наука, Москва, 1982. –632с.

71) Simultaneous antiferromagnetic Fe³⁺ and Nd³⁺ ordering in NdFe₃(¹¹BO₃)₄ / P. Fischer, V. Pomjakushin, D. Sheptyakov, L. Keller, M. Janoschek, B. Roessli, J. Schefer, G. Petrakovskii, L. Bezmaternikh, V. Temerov, D. Velikanov // J. Phys.: Condens. Matter. –2006. –V.18, Iss.34. –P.7975.

72) Single magnetic chirality in the magnetoelectric NdFe₃(¹¹BO₃)₄ / M. Janoschek, P. Fischer, J. Schefer, B. Roessli, V. Pomjakushin, M. Meven, V. Petricek, G. Petrakovskii, L. Bezmaternikh // Phys. Rev. B. –2010. – V.81, Iss.9. –P.094429-1-094429-13.

73) Магнитоэлектрические и магнитоупругие взаимодействия в мультиферроиках NdFe₃(BO₃)₄ / А.К. Звездин, Г.П. Воробьев, А.М. Кадомцева, Ю.Ф. Попов, А.П. Пятаков, Л.Н. Безматерных, А.В. Кувардин, Е.А. Попова // Письма в ЖЭТФ. –2006. –Т.83, №11. –С.600-605.

74) Магнитные и тепловые свойства монокристалла $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ / Е.А. Попова, Н. Тристан, Х. Хесс, Р. Клиндер, Б. Бюхнер, Л.Н. Безматерных, В.Л. Темеров, А.Н. Васильев // ЖЭТФ. –2007. –Т.132,№1. –С.121-124.

75) Магнитные свойства легкоплоскостного тригонального антиферромагнетика $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ / Д.В.Волков, А.А. Демидов, Н.П. Колмакова // ЖЭТФ. –2007. –Т.131, №6. –С.1030-1039.

76) Flux growth and spin reorientation in trigonal $\text{Nd}_{1-x}\text{Dy}_x\text{Fe}_3(\text{BO}_3)_4$ single crystals / I.A. Gudim, E.V. Eremin, V.L. Temerov // J.Cryst.Growth. –V.312, №16. –P.2427-2430.

77) И.А. Гудим, В.Л. Темеров, Е.В. Еремин, Н.В. Волков, М.С. Молокеев, Рацемия и макроскопические магнито-электрические эффекты в тригональных редкоземель-ных оксиборатах, Тез. докл. V Байкальской международной конференции «Магнитные материалы. Новые технологии», Иркутск (2012), С. 82.

ДОДАТОК А

СПИСОК ОПУБЛІКОВАНИХ ПРАЦЬ ЗА ТЕМОЮ ДИСЕРТАЦІЇ

Наукові праці, в яких опубліковані основні наукові результати дисертації:

1. Acoustic characteristics of FeSe single crystals / G.A. Zvyagina, **T.N. Gaydamak**, K.R. Zhekov, I.V. Bilich, V.D. Fil, D.A. Chareev, A.N. Vasiliev // Europhysics Letters. – 2013. – Vol.101. – 56005– p1– 56005– p5.
2. Piezomagnetism of FeSe single crystals / V.D. Fil, D.V. Fil, K.R. Zhekov, **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, D.A. Chareev , A.N. Vasiliev // "Europhysics Letters. – 2013. Vol. 103. – 47009– p1– 47009– p6.
3. 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 // Физика низких температур. – 2014. Т. 40, № 6. с. 676–684.
4. Упругие и пьезоэлектрические модули ферроборатов Nd и Sm / **Т.Н. Гайдамак**, И.А. Гудим, Г.А. Звягина, И.В. Билыч, Н.Г. Бурма, К.Р. Жеков, В.Д. Филь // Физика низких температур. – 2015. Т. 41, № 8. с. 792– 797.
5. Magnetopiezoelectric effect and magnetocapacitance in $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ / **T.N. Gaydamak**, I.A. Gudim, G.A. Zvyagina, I.V. Bilych, N.G. Burma, K.R. Zhekov, V. D. Fil // Phys. Rev. B. – 2015. Vol. 92. 214428.
6. Магнитодиэлектрический и магнитопьезоэлектрические эффекты в $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ / И.В. Билыч, К.Р. Жеков, **Т.Н. Гайдамак**, И.А. Гудим, Г.А. Звягина, В.Д. Филь // Физика низких температур. – 2016. Т. 41. № 12. с. 792–797.

Наукові праці, які засвідчують апробацію результатів:

7. Elastic properties of FeSe / **T.N. Gaydamak**, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, G.A. Zvyagina, V.D. Fil', E.S. Kozlyakova, D.A. Chareev // III International

Conference for Young Scientists —“Low Temperature Physics”, May 14 – 18, 2012 : book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2012. – P. 66.

8. Акустические исследования монокристалла FeSe / **Т.Н. Гайдамак**, К.Р. Жеков, И.В. Билыч, Г.А. Звягина, В.Д. Филь, Е.С. Козлякова, Д.А. Чареев // ЭВРИКА–2012, Апрель 19–22, 2012: тезисы докладов. – Украина, Львов 2012. – Д50.

9. FeSe – piezomagnetic/ **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, D.A. Chareev // IV International Conference for Young Scientists—“Low Temperature Physics”, June 3 – 7, 2013 : book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2013. – P. 29.

10. Пьезомагнетизм 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 // XI Международная научная конференция «Физические явления в твердых телах», 3 – 6 декабря 2013: тезисы доклада – Украина, Харьков 2013. – С. 125.

11. Acoustopiezomagnetic effect in CoF_2 / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, V.A. Desnenko // V International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics», June 2 – 6 2014: book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2014. – P. 78.

12. Ultrasonic in Nd and Sm ferrobates. Magnetopiezoelectric effect/ **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilych, K.R. Zhekov, I.A. Gudim // VI International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics», June 2 – 5 2015: book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2015. – P. 47.

13. Magnetopiezoelectric effect and magnetocapacitance in neodymium ferrobate / **T.N. Gaydamak**, I.A. Gudim, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, K.R. Zhekov, V.D. Fil // VII International Conference for Young Scientists «Low Temperature Physics», June 1 – 5 2016: book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2016. – P. 79.

14. Magnetopiezoelectric and magnetodielectric effects in $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ / **T.N. Gaydamak**, I.A. Gudim, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, K.R. Zhekov, V.D. Fil //

International school & conference on nanoscience and quantum transport (nano QT–2016), October 8–14 2016.

15. Magnetopiezoelectric effect in Sm and Nd ferroboraes / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilych, K.R. Zhekov, I.A. Gudim // VIII International Conference for Professionals and Young Scientists «Low Temperature Physics», May 29 – June 2 2017 : book of abstracts. – Ukraine, Kharkiv, 2017. – P. 84.

16. Piezomagnetism in FeSe / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, K.R. Zhekov, I.V. Bilych, D.A. Chareev // International conference on strongly correlated electron systems (SCES–2017), July 17–21 2017: book of abstracts. – Czech Republic, Prague, 2017. – P. 36.

17. Magnetopiezoelectric effect in Sm and Nd ferroboraes / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, K.R. Zhekov, I.A. Gudim // V International Research and Practice Conference «Nanotechnology and nanomaterials», 23 – 26 August, 2017 : book of abstracts. – Chernivtsi, Ukraine, 2017. – P. 237.

18. Easy-plane ferroboraes. Magnetopiezoelectric effects / **T.N. Gaydamak**, G.A. Zvyagina, I.V. Bilich, K.R. Zhekov, I.A. Gudim // “6th International Symposium in Optics and its Applications”, OPTICS–2018, 17–20 February, 2018: book of abstracts. – Trento, Italy, 2018. – P. 47.