

## МАГНЕТОАКУСТИКА ОРІЄНТАЦІЙНИХ ФАЗОВИХ ПЕРЕТВОРЕНЬ В АНТИФЕРОМАГНЕТИКАХ

Л. Цимбал, М. Даньшин

Донецький фізико-технічний інститут ім. О. О. Галкіна НАН України  
бул. Р. Люксембург, 72, Донецьк, UA-340114, Україна  
(Отримано 26 червня 1997)

На основі комплексних експериментальних досліджень складних багатопідграткових антиферомагнетиків методами ультразвукової та надвисокочастотної спектроскопії доведено, що динаміка магнетичних фазових перетворень формується за рахунок взаємодії різноманітних коливальних підсистем магнетика: упорядкованої спінової, paramагнетичної, dipольної, пружності, за участю як процесії, так і подовжніх коливань намагнеченості.

**Ключові слова:** динаміка, енергетична щілина, зв'язані коливання, м'яка мода, магнетодіелектрик, спектр, намагнченість, орієнтаційний перехід, резонанс, спінова підсистема, акустика.

PACS number(s): 75.30.Kz, 75.30.Ds, 75.40.Gb

### I. ВСТУП

Дослідження взаємодії електромагнетичних та механічних (акустичних) полів з упорядкованими магнетодіелектриками є одним з найактуальніших, наукомістких та важливих для практики напрямків фізики магнетичних явищ.

Наша робота узагальнює результати комплексних експериментальних досліджень динаміки магнетичних фазових перетворень у багатопідграткових антиферомагнетиках (слабких феромагнетиках). Типовими представниками таких сполук є рідкісноземельні ортоферити. Привабливою рисою цих магнетиків є велике розмаїття орієнтаційних переходів, які можливо реалізувати температурою ( $T$ ) або магнетним полем ( $\mathbf{H}$ ).

Окреслимо конкретніше межі досліджуваної проблеми в цих експериментах та її місце серед загалу робіт, присвячених вивченю динаміки впорядкованих магнетиків.

До останнього часу вважалося, що динаміка багатопідграткових антиферомагнетиків формується, в основному, коливаннями впорядкованої спінової підсистеми, причому тільки за рахунок процесійного руху намагнченості підграток. Це припущення [1] (спін-хвильове наближення) досить добре відповідає тим динамічним властивостям сполук, що спостерігаються в магнеторезонансних та акустичних дослідах при відносно низьких температурах та далеко від будь-яких фазових переходів. При цьому небезпідставно вважають, що вимірювані в дослідах резонансні частоти є власними частотами відповідних коливальних підсистем. Наприклад, вважають, що вимірювані частоти антиферомагнетного резонансу (АФМР) відповідають власним частотам упорядкованої спінової підсистеми.

Однак такий підхід виявляється зовсім не придатним для адекватного опису високочастотних та акустичних властивостей у безпосередньому околі або

в точках фазових переходів. Ідея авторів полягає в тому, що в цій області спостережува в дослідах динаміка магнетика формується під впливом при найменні трьох співіснуючих та взаємодіючих гілок коливань: пружності, спінової та електромагнетичної (дипольної). Причому з боку спінової підсистеми відчутий внесок у динаміку може давати не тільки процесія, а й подовжні коливання намагнченості. Зauważимо, що в звичайних умовах частоти активації (тобто частоти АФМР при  $H$ ,  $k = 0$ ;  $\mathbf{k}$  — спін-хвильовий вектор) суттєво перевищують при ( $k \rightarrow 0$ ) власні частоти пружних та електромагнетичних хвиль. Тому останні не дають відчутного внеску в спостережувані магнеторезонансні ефекти в традиційних дослідах з АФМР. З другого боку, швидкості акустичних, спінових та електромагнетичних хвиль суттєво відрізняються, і вони майже не взаємодіють. Саме за таких умов виконують практично всі традиційні резонансні експерименти.

Відмінність наведених тут досліджень від інших полягає в тому, що вони навмисно виконані в умовах, де, як з'ясувалось, указане вище припущення спростовується. Ці умови полягають у тому, що магнетоакустичні властивості вивчають при таких зовнішніх параметрах ( $T$ ,  $\mathbf{H}$ ), які відповідають реалізації в конкретному магнетику орієнтаційного переходу в спіновій підсистемі. Оскільки частоти АФМР акустичних гілок, у тому числі й частоти активації, задаються енергією анізотропії, то зменшення останньої при підході до точок переходу має відповідні наслідки для спектрів АФМР. Згідно з ортодоксальною теорією, частота м'якої (найнижчої за частотою) гілки АФМР повинна обертатися на нуль у точці орієнтаційного фазового переходу другого роду (ФП-2). Однак насправді це ніколи не спостерігається. Навпаки, у цих точках є великі енергетичні щілини  $\nu_0$  (у рідкісноземельних ортоферитах — декілька десятків ГГц). Цей факт неможливо було пояснити на кількісному рівні спрощеною теорією магнетопружиної щілини [2], що існувала на час, коли були запо-

чатковані описані тут експерименти.

В остаточному підсумку з'ясувалось, що в точках ФП-2 з'являється можливість спостерігати тонкі ефекти динамічної взаємодії різних коливальних підсистем, що є недосяжним поза межами цієї області. Такі умови виникають, по-перше, завдяки тому, що в точках переорієнтації зникає маскувальний фон від енергії магнетної анізотропії, а, по-друге, тому що швидкості пружних, спінових та електромагнетичних хвиль у загальному випадку по-різному залежать від  $T$  і  $\mathbf{H}$ . То ж при наявності їх зниження в точках переорієнтації спектри відповідних коливань можуть перетинатися. Це і створює можливість їх взаємодії.

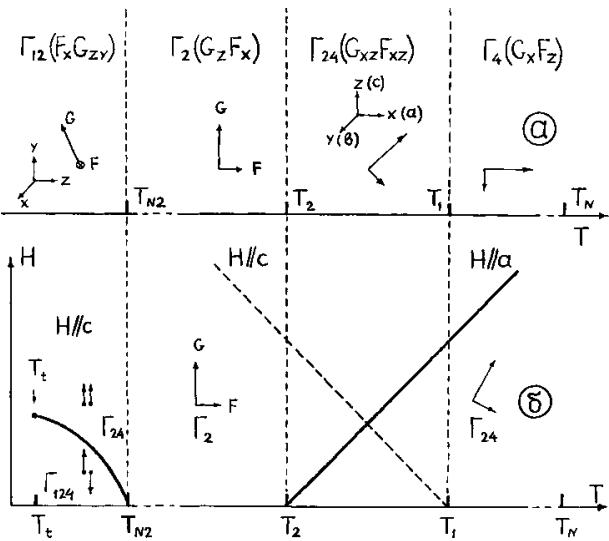


Рис. 1. 1а) Основні стани при спонтанних переходах в упорядкованій підсистемі заліза в рідкоземельних ортоферітах ( $\Gamma_4$ ,  $\Gamma_{24}$ ,  $\Gamma_2$ ,  $\Gamma_{12}$ ).  $T_N$ ,  $T_1$ ,  $T_2$ ,  $T_{N2}$  — точки спонтанних переходів другого роду відповідно з парамагнетичною фазою заліза в упорядковану  $\Gamma_4$ , спінової переорієнтації  $\Gamma_4-\Gamma_{24}$ ,  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$ ,  $\Gamma_2-\Gamma_{12}$  (остання відбувається тільки в  $\text{ErFeO}_3$ ). Позначення ( $x$ ,  $y$ ,  $z$ ) компонентів векторів  $\mathbf{G}$ ,  $\mathbf{F}$  відповідає осім кристала ( $a$ ,  $b$ ,  $c$ ). 1б) Низькопольовий фрагмент  $H$ - $T$ -фазової діаграми рідкоземельних ортоферітів в околі орієнтаційних переходів  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$  (в полі  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ ) та  $\Gamma_{24}-\Gamma_4$  (в полі  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ ) в підсистемі заліза, а також метамагнетного переходу  $\Gamma_{124}-\Gamma_{24}$  (в полі  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ ) у підсистемі ербію  $\text{ErFeO}_3$ . Температура трикритичної точки  $T_t \approx 2.7$  К. Позначення фаз та структура переходу в інтервалі  $T_{N2} \div T_N$  показані для випадку  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ .

У роботі методами надвисокочастотної та ультразвукової спектроскопії в умовах зміни зовнішніх параметрів ( $T$ ,  $\mathbf{H}$ ) вимірювали спектри антиферомагнетного резонансу (АФМР) м'яких резонансних мод, швидкість та загасання звуку в околиці відповідних орієнтаційних ФП-2. Тільки такі комплексні експерименти дозволяють встановити парціяльні внески в динаміку спінової переорієнтації з боку кожної коливальної підсистеми антиферомагнетика.

## ІІ. ФОРМУЛЮВАННЯ ЗАДАЧІ ТА ПОПЕРЕДНІ ВІДОМОСТІ

Предметом наведених тут досліджень є високочастотні та акустичні властивості антиферомагнетиків у безпосередньому околі різноманітних орієнтаційних переходів з метою встановлення механізмів формування динаміки переорієнтації через визначення в кожному конкретному випадку відповідних внесків до неї з боку різних коливальних підсистем, а також шляхів модифікації існуючої теорії.

Про які, власне, переходи йдеться? У більшості випадків вивчали динаміку найпоширенішої в рідкоземельних сполуках переорієнтації, яка полягає в плавному повороті векторів антиферомагнетизму та слабкого феромагнетного моменту на  $90^\circ$  в *ac*-площині кристала. До останнього часу теоретичне обґрунтuvання динаміки вказаної переорієнтації базувалось, в основному, на широко відомому спін-хвильовому наближенні [1], яке враховує тільки прецесію намагнеченості та ігнорує її подовжні коливання. У двопідгратковій моделі антиферомагнетика ця умова має вигляд:  $M_1^2 = M_2^2 = \text{const}$ , де  $M_1^2$ ,  $M_2^2$  — намагнеченості підграток. Ця теорія добре пояснює магнеторезонансні експерименти при температурах, достатньо низьких у порівнянні з температурами впорядкування  $T_N$ . Однак у загальному випадку слід зважати на термодинамічну модель [3], яка враховує і подовжні коливання та релаксацію намагнеченості, неминучі при  $T > 0$  (тобто в умовах реального експерименту). Ці коливання стимулюються зростанням подовжньої сприйнятливості при підвищенні температури та відповідно ролі парапроцесів. Головний висновок цієї теорії полягає в тому, що енергетична щілина в точці завершення спінової переорієнтації  $\nu_0 \sim (\chi_{\parallel}/\chi_{\perp})^{1/2} \cdot H_{tr}$  ( $\chi_{\parallel}$ ,  $\chi_{\perp}$  — подовжня та поперечна сприйнятливості,  $H_{tr}$  — поле переходу при відповідній температурі), тобто формується під впливом двох зовнішніх параметрів — температури та магнетного поля. Як видно з наведеного виразу для щілини, термодинамічна модель дає наочний тест, завдяки якому парціяльний внесок подовжніх коливань намагнеченості у величину енергетичної щілини може бути виявлений експериментально. У той же час вона є певним відходом від дуже суттєвого постулату спін-хвильової моделі. Цей постулат полягає в тому, що підгратки вважаються намагнеченими до насичення ( $|M_1| = |M_2| = M_0$ , де  $M_0$  — намагнеченість насичення) і відповідно у динаміку дає внесок тільки прецесійний рух намагнеченості. Таким чином, в останні роки склались дві, на перший погляд, альтернативні теоретичні моделі, що описують динаміку магнетичних переходів. Одна з них базується на згадуваному спін-хвильовому наближенні. У ній м'якою є одна із звичайних резонансних гілок. Енергетична щілина в спектрі останньої формується вказаною вище взаємодією різних коливальних підсистем. Друга модель базується на врахуванні подовжніх коливань намагнеченості та диси-

пації. З погляду останньої теорії м'якими є зовсім інші — чисто релаксаційні моди, а ті, що спостерігаємо в дослідах, є не такими. Отже, вказані моделі дають зовсім різне тлумачення одного й того ж явища, яке спостерігаємо в резонансних експериментах. Ця, на перший погляд, суперечність спростована в останні роки низкою цілеспрямованих експериментів, результати яких подано далі.

На рис. 1а показана структура найпоширенішої в рідкісноземельних ортоферітах (РЗОФ) спонтанної переорієнтації між симетричними фазами  $\Gamma_2$  та  $\Gamma_4$  через кутову фазову  $\Gamma_{24}$ . Значення температур  $T_1$ ,  $T_2$  відповідають точкам завершення (початку) переорієнтації шляхом фазового переходу другого роду (ФП-2). Інтервал  $\Delta T = T_1 - T_2$  може в різних РЗОФ складати від декількох градусів Кельвіна до десятків і є індивідуальною характеристикою конкретної сполуки, як і усереднена температура переорієнтації  $T_{SR} = (T_1 + T_2)/2$ , якою ми будемо користуватись надалі. Три основні стани —  $\Gamma_2$ ,  $\Gamma_{24}$ ,  $\Gamma_4$ , показані на рис. 1а, належать до двопідграткової слабкоферомагнетної підсистеми впорядкованих спінів заліза. Тут  $\mathbf{G} = \mathbf{M}_1 - \mathbf{M}_2$ ,  $\mathbf{F} = \mathbf{M}_1 + \mathbf{M}_2$  — відповідно вектори антифери- та феромагнетизму. При змінюванні температури послідовно відбувається ряд спонтанних ФП-2. Наприклад, в  $\text{ErFeO}_3$  при зниженні температури почергово реєструється цілий каскад спонтанних переходів:  $\Gamma_4 - \Gamma_{24}$ ,  $\Gamma_{24} - \Gamma_2$ ,  $\Gamma_2 - \Gamma_{12}$ . В інших дослідженіях РЗОФ відбуваються тільки два перші пе- ретворення. Переход  $\Gamma_2 - \Gamma_{12}$  в  $\text{ErFeO}_3$  пов'язаний з антиферомагнетним упорядкуванням ербію при температурі  $T \equiv T_{N2} \approx 4$  К і є комбінованим: “лад-лад” у підсистемі заліза (вектор  $\mathbf{G}$  повертається від осі  $c$  до  $b$  на кут  $< \pi/2$ ) та “безлад-лад” у підсистемі ербію. Якщо спонтанні переходи відсутні, то при  $T < T_N$  завжди встановлюється фаза  $\Gamma_4$  (наприклад, в  $\text{YFeO}_3$ ). Включення якого завгодно малого магнєтного поля  $\mathbf{H} \parallel c$  при  $T < T_2$  або  $\mathbf{H} \parallel a$  при  $T > T_1$  зразу переводить колінеарні фази  $\Gamma_2$  та  $\Gamma_4$  в кутову  $\Gamma_{24}$ . Далі, при підвищенні поля, переорієнтація завжди відбувається в напрямку від кутової фази до тієї чи іншої колінеарної — залежно від орієнтації  $\mathbf{H}$ . Структура індукованих полем переходів показана на рис. 1б. З нього видно, що при  $\mathbf{H} \parallel a$  відбувається тільки переход  $\Gamma_{24} - \Gamma_2$ . При  $\mathbf{H} \parallel c$  у всіх дослідженіх тут ортоферітах відбувається тільки переорієнтація  $\Gamma_{24} - \Gamma_4$ , а в  $\text{ErFeO}_3$ , крім того, ще й метамагнетний переход  $\Gamma_{124} - \Gamma_{24}$  в підсистемі ербію. Останній, як і спонтанна переорієнтація  $\Gamma_2 - \Gamma_{12}$ , відбувається на фоні звичайної переорієнтації заліза.

### III. РЕЗУЛЬТАТИ ВИМІРЮВАНЬ ТА ОБГОВОРЕННЯ

В описаних тут експериментах було досліджено динаміку всіх орієнтаційних переходів здебільшого рідкісноземельних ортоферітів  $R\text{FeO}_3$  ( $R$  — Er, Tm, Ho, Yb, Sm, Nd), а також в ізоморфній сполуці  $\text{Fe}_3\text{BO}_6$ . Усі експерименти умовно можна розділити на дві ча-

стини.

До першої належать ті, результати яких можна було інтерпретувати на основі спін-хвильової моделі. Як відомо, вона вимагає такого наступного обмеження на робочу температуру:  $T \ll T_N$ . У цьому випадку намагнеченості підграток можна вважати насиченими, і тоді в динаміку дає внесок тільки їхній прецесійний рух. Ця частина експериментів стосується, в основному, спонтанних переходів. У більшості досліджених ортоферітів спонтанна переорієнтація відбувається при температурах  $T < 100$  К, тоді як середня температура впорядкування спінової підсистеми заліза  $T_N \approx 700$  К (упорядкування рідкісноземельної підсистеми можливе тільки при  $T < 10$  К). Таким чином, відповідність реальних температур переорієнтації спінів заліза в цих сполуках вимогам спін-хвильової теорії можна вважати задовільною.

Серед указаних сполук найбагатіший спектр різноманітних магнетних перетворень має  $\text{ErFeO}_3$  ( $T_1 = 100$  К;  $T_2 = 90$  К). Продемонструємо на прикладі цього РЗОФ результати експериментального дослідження спектрів м'яких мод АФМР, швидкості та загасання звуку в околі спонтанних переходів, структура яких показана на рис. 1а. Ці результати наведені на рис. 2 та 3.

На рис. 2 показано повний спектр м'яких мод АФМР в околі всіх орієнтаційних переходів, що відбуваються в  $\text{ErFeO}_3$ . Підкреслимо, що структура спонтанної переорієнтації  $\Gamma_4 - \Gamma_{24} - \Gamma_2$  у всіх наведених вище сполуках абсолютно ідентична і відповідає показаній на рис. 1а. Крім того, збігаються за структурою і фазові переходи  $\Gamma_2 - \Gamma_{24}$  та  $\Gamma_{24} - \Gamma_2$ . Виходячи з останнього, надалі акцентуємо увагу тільки на одному з них, а саме на ФП-2  $\Gamma_{24} - \Gamma_2$ . Як видно з рис. 2а, у звичайному вигляді температурну залежність частот м'якої моди АФМР реєструємо тільки в околі  $T_2$ , тобто саме в районі переходу  $\Gamma_{24} - \Gamma_2$ . У той же час у точці  $T_1$  спостерігаємо широку поодиноку лінію у всьому робочому діапазоні частот. Такий, з класичного погляду, незвичайний вигляд спектра пояснюється модифікованою теорією [4]. Остання базується на спін-хвильовому наближенні, але враховує динамічну взаємодію різних коливальних підсистем магнетика. Згідно з цією теорією спостережуваний спектр є результатом сильної взаємодії підсистем заліза та ербію. Завдяки цьому в точці  $T_2$  м'яка мода формується, в основному, коливаннями спінів заліза, тоді як при  $T_1$  вона є рідкісноземельною. Через сильне загасання в рідкісноземельній підсистемі ліній поглинання від фаз  $\Gamma_{24}$  та  $\Gamma_4$  не розділяються. Це робить неможливим вимірювання енергетичної щіlinи в точці  $T_1$ . Водночас вимірювання величини щіlinи  $\nu_{02} = (26 \pm 2)$  ГГц у точці  $T_2$  близька до розрахованого значення  $\nu_{02} = 21$  ГГц, одержаного на основі вказаної теорії.

У цілому можна констатувати, що наведений на рис. 2а спектр як у якісному, так і в кількісному планах добре пояснюється моделлю [4], яка базується на спін-хвильовому наближенні, але не враховує по-довжні коливання намагнеченості. Згідно з цією те-

орією в околі ФП-2  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$  взаємодіють між собою квазіферомагнетна гілка спектра заліза, одна з гілок ербію та поперечний звук з поляризацією вздовж осі  $a$ , що й зумовлює в результаті наявність енергетичної ціліни. А взагалі, кожній конкретній сполучці та конкретному переходові теорія [4] ставить у відповідність певну індивідуальну сукупність адитивних внесків у динаміку переорієнтації, яка враховує взаємодію відповідних коливальних підсистем, притаманних тій чи іншій сполучці. У межах цієї теорії вимірюні в до-

слідах з  $\text{YbFeO}_3$  та  $\text{TmFeO}_3$  величини  $\nu_{02}$  (відповідно 37.5 та 20 ГГц) також мають добре пояснення на кількісному та якісному рівнях. Порівняння з розрахунками експериментальних результатів, що стосуються ортоферитів з іонами  $\text{Nd}^{3+}$ ,  $\text{Ho}^{3+}$  та  $\text{Sm}^{3+}$ , поки що можливе лише на якісному рівні, але й ці результати задовільно узгоджуються з модифікованою спін-хвильовою моделлю [4]. Слід зазначити, що ця теорія була ініційована та розвинута на базі описаних тут експериментів.

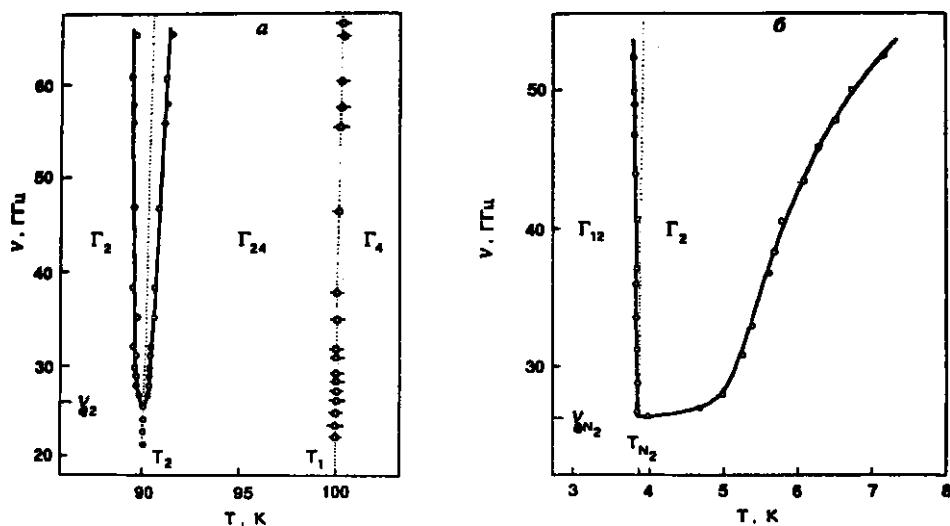


Рис. 2. Температурні залежності магнеторезонансних частот м'якої моди при спонтанних переходах в  $\text{ErFeO}_3$  (точковою лінією показані межі фаз): а)  $\Gamma_2-\Gamma_{24}-\Gamma_4$  ( $T_1 = 100$  К,  $T_2 = 90$  К — температури переходів  $\Gamma_4-\Gamma_{24}$  та  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$  відповідно;  $\nu_{02} \approx 26$  ГГц у точці  $T_2$ ); б)  $\Gamma_2-\Gamma_{12}$  у точці  $T = T_{2N} = 3.9$  К,  $\nu_{0N2} \approx 26.1$  ГГц.

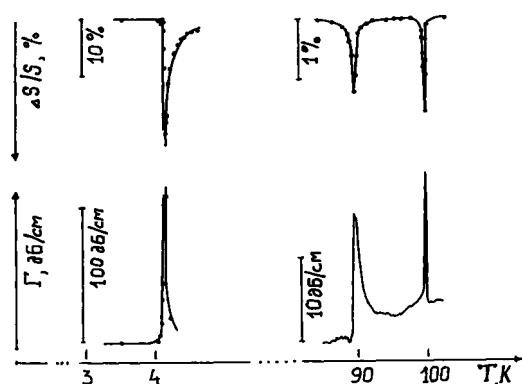


Рис. 3. Температурні залежності відносної зміни швидкості активного звуку ( $\mathbf{q} \parallel \mathbf{c}$ ;  $\varepsilon \parallel \mathbf{b}$ )  $\Delta S/S$  та загасання цього звуку  $\Gamma$  в околі спонтанних переходів  $\Gamma_{12}-\Gamma_2$  (при  $T = T_{N2} \approx 4.1$  К),  $\Gamma_2-\Gamma_{24}$  (при  $T = T_2 = 90$  К) та  $\Gamma_{24}-\Gamma_4$  (при  $T = T_1 = 90$  К).

На рис. 2а наведено спектр м'якої магнеторезонансної моди в околі спонтанної переорієнтації  $\Gamma_2-\Gamma_{12}$ . На цей час з'ясовані якісні та кількісні характеристи-

стики цього спектра, виявлено його природу. Твердо встановлено [4], що ця м'яка мода зумовлена коливаннями спінів ербію. Зіставлення результатів статичних та динамічних вимірювань указує на те, що температурі початку спонтанної переорієнтації  $T_{N2}$  відповідає злом на частотно-температурній залежності. Вимірюні за його положенням значення відповідних величин такі:  $T_{N2} = (3.9 \pm 0.1)$  К;  $\nu_{0N2} = (26.1 \pm 0.2)$  ГГц. Збіг вимірюваних величин  $\nu_{02}$  та  $\nu_{0N2}$  слід уважати випадковим, хоча їх формування відбувається під впливом однакових коливальних підсистем. Згідно з [4], тут, як і в попередньому випадку, взаємодіють квазіферомагнетна гілка заліза, одна з гілок ербію та поперечна пружна гілка, але в цьому разі остання поляризована вздовж осі  $b$ . Розрахована на основі цієї теорії величина активації  $\nu_{0N2} \approx 25$  ГГц, тобто практично збігається з вимірювальною.

На рис. 3 наведені результати ультразвукових досліджень в околі вказаних вище спонтанних переходів в  $\text{ErFeO}_3$ . Передусім звернемось до акустичних ефектів в околі “високотемпературної” переорієнтації  $\Gamma_2-\Gamma_4$ . Аномалії відносної зміни швидкості  $\Delta S/S$  та зміни загасання звуку  $\Gamma$  тут не перевищують від-

повідно 2 % та 15 дБ/см. Щодо отриманої тут величини  $\Delta S/S$ , то вона дуже далека від стовідсоткового зменшення, яке витікає з класичної теорії магнетопружності взаємодії [2]. Така невідповідність дослідних результатів розрахункам пояснюється модифікованою теорією [4], згідно з якою в точці переходу  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$  в  $\text{ErFeO}_3$  слід чекати  $\Delta S/S \approx 1-5\%$ . Таке обмеження на величину аномалії швидкості звуку в порівнянні з класичними уявленнями пов'язується з відносно великими параметрами його загасання в рідкісноземельній підсистемі при підвищенні температури (в цьому випадку до 90–100 К).

На відміну від переходу  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$  в точці  $T = T_{N2}$  дипольна взаємодія не впливає на поведінку активного звуку [4]. Крім того, оскільки переход  $\Gamma_2-\Gamma_{12}$  відбувається при значно меншій температурі, загасання в рідкісноземельній підсистемі також має зменшитись (за оцінкою, майже на порядок). Два вказані факти повинні сприяти тому, що аномалія швидкості звуку в околі переходу  $\Gamma_2-\Gamma_{12}$  більша, ніж в точці  $T = T_2$ . Дійсно, як видно з рис. 3, вона тут досягає майже 25 %. Але навіть таке велике зменшення швидкості звуку в дійсності, мабуть, не є максимальним. У всяком разі вимірюванню подальшого падіння швидкості заважає стрімкий ріст загасання звуку, яке в точці  $T = T_{N2}$  досягає 100 дБ/см. При такому величному загасанні виміряти повну зміну швидкості неможливо з причини зникнення сигналів поглинання. З другого боку, навіть виміряна тут величина  $\Delta S/S$  є рекордною — нічого подібного не спостерігаємо в жодному РЗОФ.

Яким чином поводять себе енергетичні щілини  $\nu_{02}$  та  $\nu_{0N2}$  в магнетному полі? Відповідь на це запитання фактично вказує на те, який з механізмів ([3] чи [4]) є вирішальним у формуванні щілини. Головний висновок, який випливає з термодинамічної моделі [3], полягає в тому, що вимірювана на досліді енергетична щілина в точці ФП-2 практично повністю визначається добутком  $(\chi_{\parallel}/\chi_{\perp})^{1/2} \cdot H_{tr}$ . Але, як уже підкреслювалось, термодинамічна модель [3] не враховує динамічної взаємодії різних коливальних підсистем магнетика, і тому з неї випливає помилковий висновок, що при  $H_{tr} \rightarrow 0$  щілина  $\nu_0$  також має бути відсутньою. Зважаючи на цей нефізичний доробок, ефекти, пов'язані з подовжніми коливаннями намагнеченості, слідшукати в приrostі “стартових” щілин  $\nu_{02}$  та  $\nu_{0N2}$  після включення магнетного поля. Саме таким чином ми діяли при проведенні відповідних дослідів та при аналізі експериментальних результатів.

Розглянемо спочатку результати вимірювань, що стосуються переорієнтації  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$ . Насамперед підкреслимо, що у відповідних дослідах виняткове значення має точна орієнтація магнетного поля по осі, тобто  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ . Невиконання цієї вимоги може привести до помилкових висновків, оскільки при недостатньо точній орієнтації  $\mathbf{H}$  щілина росте з підвищеннем поля без будь-якого зв'язку з подовжніми коливаннями. У нашому випадку точність орієнтації досягала  $\pm 5'$ .

Результати вимірювань показані на рис. 4. Вони до-

зволяють зробити висновок, що на лінії індукованого поля  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  переходу  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$  (див. рис. 1б) в діапазоні  $H=0-10$  кЕ щілина  $\nu_{02}$  в  $\text{ErFeO}_3$  не залежить від поля (температури). Такі ж результати отримані і при вимірюванні польової залежності щілини в околі цього ж переходу в  $\text{YbFeO}_3$  ( $T_1 = 7.98$  К;  $T_2 = 6.85$  К;  $\nu_{02} = 37.5$  ГГц) та в  $\text{TmFeO}$  ( $T_1 = 93$  К;  $T_2 = 84$  К;  $\nu_{02} = 20$  ГГц). З другого боку, якби основний внесок у величину щілини був пов'язаний з подовжніми коливаннями намагнеченості, то її приріст у полі  $H = 10$  кЕ, згідно з [3], мав би складати  $\Delta\nu_{02} \geq 8$  ГГц. Це значно перевищує похибку наших вимірювань. Спостережува на поведінка щілини, на перший погляд, суперечить термодинамічній теорії [3]. Однак можна дійти й іншого висновку. Звернемо увагу на те, що наведені вище експерименти виконані в області температур  $T < 100$  К. Подовжня сприйнятливість підграток заліза при таких температурах дуже мала. Згідно з [3] при  $T \leq 90$  К співмножник у формулі для щілини  $(\chi_{\parallel}/\chi_{\perp})^{1/2} < 0.1$ . Завдяки цьому внесок подовжніх коливань намагнеченості у величину щілини може бути невідчутним у порівнянні з тим, що дають механізми [4]. У цьому випадку енергетична щілина майже цілком формується спін-хвильовими механізмами [4], тобто за рахунок взаємодії різних коливальних підсистем та внеску тільки з боку прецесійного руху намагнеченості.

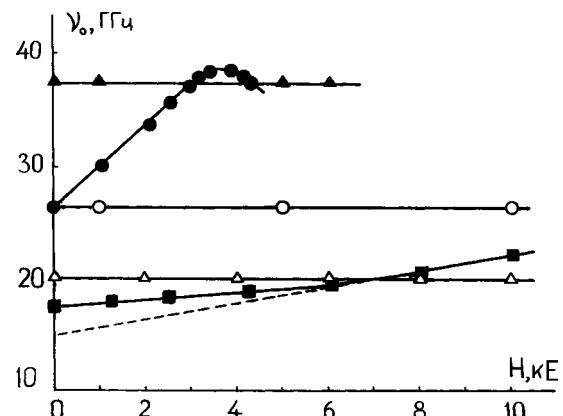


Рис. 4. Польові залежності енергетичних щілин у різних ортоферітах: на лінії індукованого поля  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  переходу  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$  в  $\text{TmFeO}_3$  ( $\Delta$ ),  $\text{ErFeO}_3$  ( $\circ$ ),  $\text{YbFeO}_3$  ( $\blacktriangle$ ) та  $\text{Fe}_3\text{BO}_6$  ( $\blacksquare$ ); на лінії індукованого поля  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  метамагнетного переходу  $\Gamma_{124}-\Gamma_{24}$  в підсистемі ербію ( $\bullet$ ). Штрихова лінія — лінійна екстраполяція польової залежності щілини в  $\text{Fe}_3\text{BO}_6$  з області поля  $H > 8$  кЕ.

Звернемося далі до резонансних властивостей метамагнетного переходу  $\Gamma_{24}-\Gamma_{124}$  в підсистемі ербію. Згідно з [5] на лінії метамагнетного ФП-2 (див. рис. 1б) м'якою є релаксаційна мода. Це означає, що якісні висновки розвинутої в останній час теорії [3] для індукованої переорієнтації  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$  можуть бути поширені і на метамагнетний перехід. Як видно з

рис. 4, після ввімкнення поля  $\mathbf{H} \parallel$  с щілина  $\nu_{0N2}$  почине стрімко збільшуватися при підвищенні поля. На лінії ФП-2 вона зростає від “стартового” значення  $\nu_{0N2} = 26.1$  ГГц до  $\nu_{N2} \approx 38$  ГГц в полі, близькому до 4 кЕ, проходячи при цьому через незначний максимум. Для пояснення такого збільшення щілини звернемо увагу на те, що умови реалізації цього переходу з погляду співвідношення температур перерієнтації та впорядкування відповідної спінової підсистеми суттєво відрізняються від таких же для розглянутого вище ФП-2  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$ . Тут навіть найнижча робоча температура  $T = T_t$  не відповідає вимогам спін-хвильової моделі —  $T/T_{N2} \ll 1$ . Якщо для підсистеми заліза  $T_2/T_N \ll 1$ , то в підсистемі ербію це співвідношення змінюється від  $T_t/T_N \approx 0.7$  у трикритичній точці  $T = T_t$  до 1 при  $T = T_{N2}$ . У підсистемі заліза це відповідало б зміні  $\chi_{\parallel}/\chi_{\perp}$  від 0,7 до 1; що, своєю чергою, привело б до значного збільшення щілини. Виявлене тут суттєве збільшення щілини у відносно малому полі наштовхувало на думку, що це пов’язано з подовжньою сприйнятливістю. Як відомо, характерною властивістю метамагнетиків є надзвичайно висока подовжня сприйнятливість при такій же малій поперечній. Тому навіть чисто формальне звернення до теорії [3] дозволяло сподіватись на відповідне збільшення щілини на лінії цього переходу.

Проведене вимірювання високочастотної подовжньої  $\chi_{\parallel}$  та поперечної  $\chi_{\perp}$  сприйнятливостей показало, що відношення  $(\chi_{\parallel}/\chi_{\perp})^{1/2}$  дійсно корелює зі щілиною (див. рис. 5). Якісно це відповідає термодинамічній моделі [3]. Звернемо увагу на те, що тут відношення подовжньої сприйнятливості до поперечної досягає  $\sim 7$ , тоді як при звичайній переорієнтації підграток заліза  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$  гранична величина цього відношення не може перевищувати одиниці. Останнє випливає з теорії молекулярного поля. Порівняння динаміки обговорюваних тут переходів показує, що при однакових значеннях магнетного поля щілина не залежить від поля (температури) у випадку переорієнтації  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$ , але різко зростає на лінії метамагнетного переходу  $\Gamma_{124}-\Gamma_{24}$  — майже в 1.5 рази при підвищенні поля всього до 4 кЕ. Це своєю чергою означає, що спостережуване збільшення щілини в порівняно слабкому полі слід пов’язати з подовжньою сприйнятливістю. Таким чином, на одній і тій же сполучі спостерігаються дві різні поведінки щілини в полі, одна з яких відповідає спін-хвильової моделі [4], а друга — термодинамічній [3]. У той же час у нульовому полі (тобто при спонтанних переходах) як  $\nu_{02}$ , так і  $\nu_{0N2}$  добре пояснюються спін-хвильовою теорією [4]. Звідсіля випливає висновок, що спостережувана на лінії ФП-2  $\Gamma_{124}-\Gamma_{24}$  польова залежність щілини в порівняно слабкому полі зумовлена, в основному, величиною подовжньої сприйнятливости, яка своєю чергою цілком залежить від температури переорієнтації.

Якщо внески у величину щілини від подовжньої сприйнятливости та магнетного поля є адитивними, то вони можуть бути експериментально розділені. Це можна реалізувати двома шляхами. Перший —

виключити з механізму формування щілини температуру. Для цього треба було б провести досліди при максимально низьких температурах (тобто при  $\chi_{\parallel} \rightarrow 0$ ) без обмежень на величину магнетного поля. У цьому випадку внесок подовжніх коливань намагнеченості у величину щілини був би майже цілком зумовлений зовнішнім полем. Для таких вимірювань на РЗОФ потрібні поля до 60–100 кЕ.

Другий шлях — виключити з чинників формування щілини магнетне поле і мати справу тільки з температурою. Така можливість реалізується в околі спонтанних переходів, де переорієнтація може бути індукована яким завгодно малим полем.

Як показали наші досліди на багатьох РЗОФ, величина абсолютної температури переорієнтації не зумовлює відповідного внеску подовжніх коливань намагнеченості у величину щілини. Це наочно демонструють наведені вище результати дослідів на  $\text{ErFeO}_3$ . Далі це буде показано і на прикладі інших сполук. Для характеристики перерозподілу спін-хвильового та термодинамічного внесків у величину щілини слід користуватись параметром  $\tau_{SR} = T_{SR}/T_N$ , який ми назвали відносною температурою спонтанної переорієнтації. Він є індивідуальним для кожного конкретного РЗОФ, а його зростання, як показали наші досліди, веде до перерозподілу внесків у динаміку від спін-хвильового до термодинамічного.

Роль лише подовжньої сприйнятливості у формуванні енергетичних щілин (тобто при  $H \rightarrow 0$ ) може бути встановлена в серії експериментів, що охоплюють широкий діапазон параметра  $\tau_{SR}$ . Наші досліди на вказаному вище переліку сполук дозволили простежити еволюцію цієї ролі в інтервалі  $\tau_{SR} = 0.01 \div 1$ . Хоча термодинамічна модель [3] розвинена для переходів, індукованих полем, із загальних міркувань можна дійти висновку, що внесок подовжніх коливань намагнеченості в динаміку переорієнтації слід чекати і при спонтанних переходах, якщо останні реалізуються при достатньо високих температурах. В умовах  $H \rightarrow 0$  фактично фіксуємо саме цей внесок.

Оскільки термодинамічна модель [3] ігнорує спін-хвильові механізми формування щілини [4], то з неї випливає, як уже зазначалось, нефізичний наслідок: при  $H_{tr} \rightarrow 0$  щілина в спектрі також зникає. З другого боку, навіть модифікована спін-хвильова модель [4] ігнорує подовжні коливання намагнеченості і не передбачає пов’язане з ними збільшення щілини в полі. Оскільки більшість експериментів проведено в області, у якій строго не задовільняються ні умови спін-хвильової моделі ( $T \rightarrow 0$ ), ні термодинамічної ( $T \rightarrow T_N$ ), то в загальному випадку в дослідах слід чекати суперпозиції внесків від обох механізмів формування щілини.

З урахуванням цього загальний методичний прийом полягав у тому, що спочатку вимірювали щілину в спектрі при спонтанному переході, а потім включали магнетне поле відповідної орієнтації і зімали польову залежність щілини з метою пошуку її збільшення, пов’язаного з подовжніми коливаннями намагнеченості. Позитивні наслідки такого

пошуку найліпше можна спостерігати на прикладі метамагнетного переходу в  $\text{ErFeO}_3$  (див. рис. 4). Тут “стартова” щілина  $\nu_{0N2} \approx 26$  ГГц при  $H = 0$  формується спін–хвильовими механізмами, тоді як її приріст у полі до  $\sim 38$  ГГц зумовлений високою подовжньою сприйнятливістю при метамагнетному переході, тобто термодинамічним механізмом.

У менш виразному вигляді таке співіснування конкурючих механізмів формування щілини спостерігаємо і в дослідах з  $\text{Fe}_3\text{VO}_6$ , де “стартова” щілина в точці спонтанного переходу  $\nu_{02} \approx 15$  ГГц. У полі вона збільшується і досягає при  $H = 10$  кЕ майже 22 ГГц. Тут треба зробити зауваження про те, що в  $\text{Fe}_3\text{VO}_6$  спонтанна переорієнтація  $\Gamma_2$ – $\Gamma_4$  відбувається шляхом фазового переходу першого роду, тоді як уся теорія динамічних властивостей переорієнтаційних переходів чинна тільки у випадку  $\Phi\text{P}-2$ . А останній, тобто перехід  $\Gamma_{24}$ – $\Gamma_2$ , у цій сполуці може реалізуватись лише в полі. Тому  $\nu_{02}$  в цьому випадку вимірюється не безпосередньо за польовою залежністю щілини (див. рис. 4), а шляхом екстраполяції цієї залежності з області максимального поля, де  $\Phi\text{P}-2$  найстійкіший.

Кількісною характеристикою внеску подовжніх коливань намагнеченості в динаміку переорієнтації може бути величина похідної  $\partial\nu_n/\partial H$  (у випадку  $\text{ErFeO}_3$  індекс  $n = 02$  або  $0N2$ ). Якщо польова залежність щілини (наприклад,  $\nu_{02}$ ) така, що  $\partial\nu_{02}/\partial H \neq 0$  при  $H \rightarrow 0$ , то можна стверджувати, що подовжні коливання намагнеченості дають внесок не тільки в індуковану, але й в спонтанну переорієнтацію. Дійсно, оскільки поле переходу при цьому може бути достатньо малим, то при деякій його величині домінуючий внесок у щілину буде зумовлений тільки подовжньою сприйнятливістю. Звичайно таку “безпользову” ситуацію не передбачає термодинамічна теорія, а результати апробації цієї моделі на  $\text{YFeO}_3$  та  $\text{DyFeO}_3$  при  $H = 70$ –100 кЕ [3] виглядають швидше як ефект сильного поля. Тому детальне зіставлення спостережуваної тут динаміки спонтанних переходів із цією теорією навряд чи є коректним. Але ми скористаємося її головним висновком (і тестом у дослідах) — свідченням внеску подовжніх коливань намагнеченості в динаміку переорієнтації будемо вважати збільшення щілини при підвищенні магнетного зовнішнього поля.

Аналіз експериментальних результатів у послідовності, що відповідає зростанню параметра  $\tau_{SR}$ , показує, що в РЗОФ з відносно низькими температурами переорієнтації ( $\tau_{SR} \leq 0.15$ ) градієнт  $\partial\nu_{02}/\partial T = 0$ . Це стосується  $\text{YbFeO}_3$ ,  $\text{TmFeO}_3$  та  $\text{ErFeO}_3$ , у яких  $\tau_{SR}$  дорівнює відповідно 0.01; 0.14; 0.15. Більш того, у цих сполуках узятий градієнт дорівнює нулеві не тільки при  $H = 0$ , але й у полі до 6–10 кЕ. Це видно з польових залежностей щілин, наведених на рис. 4. Загальний результат вимірювань на цих ортоферітах полягає в наступному: щілина  $\nu_{02}$ , притаманна спонтанному переходу  $\Gamma_{24}$ – $\Gamma_2$ , не міняється при включені порівняно малого поля і відповідному підвищенні температури переорієнтації (згідно з  $H$ – $T$ -фазовою діаграмою на рис. 1б). Це означає, що

тут енергетичні щілини формуються прецесійними механізмами і їх пояснення може не виходити за межі спін–хвильової моделі. При  $\tau_{SR} < 0.15$  внесок подовжніх коливань намагнеченості у величину щілини на цьому фоні невідчутно малий і в межах досягнутої точності не виявляється в дослідах. Але й для  $\text{NdFeO}_3$  ( $\tau_{SR} = 0.17$ ), який не вимірювався у польових експериментах, мабуть, можна передбачити той же висновок, а тим більш — для  $\text{DyFeO}_3$  ( $\tau_{SR} = 0.06$ ).

Серед РЗОФ рекордне за величиною значення  $\tau_{SR}$  має  $\text{SmFeO}_3$  ( $\approx 0.7$ ). Однак безпосереднє вимірювання польової залежності щілини в цій сполуці наштовхнулося на дуже сильне поглинання з боку рідкісноземельної підсистеми. Це в остаточному підсумку унеможливило проведення дослідів, спрямованих на пошук ефектів прояву подовжніх коливань намагнеченості. Саме з цих причин ми звернулись до ізоморфної ортоферитам сполуки  $\text{Fe}_3\text{VO}_6$ , у якій теж відбувається як спонтанний, так і індукований  $\Phi\text{P}-2$   $\Gamma_{24}$ – $\Gamma_2$ , а параметр  $\tau_{SR} = 0.8$ , тобто ще більший, ніж у  $\text{SmFeO}_3$ . Останнє подавало надію на виявлення в цій сполуці очікуваного ефекту. Як уже відзначалось, у  $\text{Fe}_3\text{VO}_6$  дійсно енергетична щілина зростає при підвищенні поля (див. рис. 4).

Таким чином, тільки у  $\text{Fe}_3\text{VO}_6$  та  $\text{ErFeO}_3$  (2) при  $H \rightarrow 0$  спостерігаємо ненульові градієнти щілини по полю — відповідно 0.7 та 4 ГГц/кЕ. Це означає, що навіть “стартова” щілина, притаманна спонтанному переходу, формується не тільки за рахунок прецесійних механізмів [4], але й подовжніми коливаннями намагнеченості [3]. Щоправда, у випадку з  $\text{ErFeO}_3$  (2) такий великий градієнт щілини на лінії метамагнетного переходу може бути зумовлений не тільки подовжніми коливаннями, але й зміною структури суміжних фаз після включення поля  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ . Поле  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  трансформує спонтанний орієнтаційний переход у підсистемі заліза  $\Gamma_2$ – $\Gamma_{12}$  у комбінований —  $\Gamma_{24}$ – $\Gamma_{124}$ , домінуючу складовою якого є метамагнетний перехід у підсистемі рідкісної землі. Тому останній реалізується тільки в полі. Найімовірніше, саме з цією трансформацією пов’язані максимальні градієнти за температурою всіх вимірюваних тут величин біля  $T = T_{N2}$ ,  $H = 0$ , що видно з рис. 5. До речі, як видно з того ж малюнка, у полі  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  щілина  $\nu_{0N2}$  не тільки не збільшується в полі, а навіть має тенденцію до зменшення. Це не дивно, бо при  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  індукований орієнтаційний перехід  $\Gamma_2$ – $\Gamma_{12}$  має однакову структуру з спонтанним. Це означає, що енергетична щілина в полі  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  також (як і без поля) формується поперечними коливаннями в підсистемі ербію та нечутлива до його подовжніх коливань.

На рис. 6 подана підсумкова двовимірна діаграма, яка характеризує еволюцію  $\partial\nu_n/\partial H$  в нульовому полі при зростанні параметра  $\tau_{SR}$ . Плавна лінія, що поєднує “експериментальні” точки, може дати уявлення про величини  $\partial\nu_n/\partial H$  при  $H = 0$ , які слід чекати в деяких інших сполуках, виходячи з відомих величин  $\tau_{SR}$ . Ми вже висловлювали думку про те, що в слабкому полі  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$  похідні  $\partial\nu_{02}/\partial H$  в ортоферітах диспрозію та ніодиму не залежать від поля і в цьому

плані не відрізняються від вимірюваними польовими залежностями щілин в ортоферітах ітербію, тулю та ербію. Дійсно, як видно з наведеної діяграми, в усіх перерахованих РЗОФ вказана похідна дорівнює нульеві не тільки в полі, але й при  $H = 0$ . У той же час у SmFeO<sub>3</sub> внесок подовжніх коливань у динаміку спонтанної переорієнтації має бути достатньо відчутним — з  $\partial\nu_{02}/\partial H \approx 0.3$  ГГц/кЕ. Це природно, бо в SmFeO<sub>3</sub> перехід Г<sub>24</sub>—Г<sub>2</sub> відбувається при порівняно великій подовжній сприйнятливості. З температурної залежності  $\chi_{\parallel}/\chi_{\perp}$ , одержаної в [3], та величини  $\tau_{SR}$  у SmFeO<sub>3</sub> випливає, що в ньому спонтанний перехід відбувається при відношенні сприйнятливостей  $\approx 0.7$ . Тому цей ортоферіт займає належне місце на поданій діяgramі. Вона дозволяє стверджувати, що на сучасному рівні точності вимірювань та якості відповідних монокристалів внесок подовжніх коливань намагнеченості в динаміку спонтанної переорієнтації є сенс шукати при  $\tau_{SR} > 0.5$ . З іншого боку, ефекти, пов'язані з подовжніми коливаннями, слід чекати у всіх перерахованих тут “низькотемпературних” ортоферітах, коли вказана переорієнтація буде ініціюватись достатньо сильним магнетним полем (це вже реалізовано в DyFeO<sub>3</sub> [3]). Для ErFeO<sub>3</sub> (1) воно повинно досягати 60–70 кЕ. Тільки в такому полі відносна температура індукованого переходу Г<sub>24</sub>—Г<sub>2</sub> досягне величини  $\tau_{IR} = T_{IR}/T_N = 0.5$  ( $T_{IR}$  — температура переходу в полі).

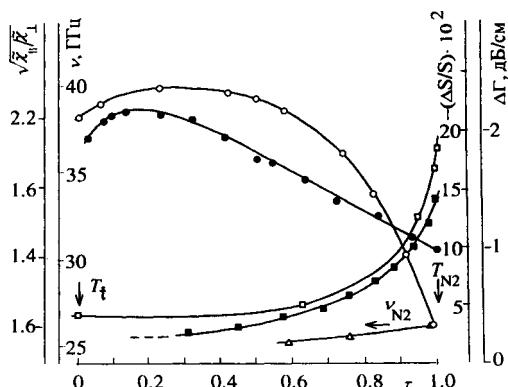


Рис. 5. Температурно-польові залежності різних динамічних параметрів на лінії метамагнетного фазового переходу другого роду в ErFeO<sub>3</sub>: ● — відношення високочастотних сприйнятливостей  $(\chi_{\parallel}/\chi_{\perp})^{1/2}$ ; ○ — енергетичної щілини  $\nu_{N2}$  при  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ ; □ — відносної зміни швидкості активної поперечної звукової хвилі ( $\mathbf{q} \parallel \mathbf{c}, \boldsymbol{\varepsilon} \parallel \mathbf{b}$ )  $\Delta S/S$ ; ■ — зміни загасання подовжнього звуку  $\Delta\Gamma$ ; Δ — енергетичної щілини  $\nu_{N2}$  при  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{a}$ .  $\tau = (T - T_t)/(T_{N2} - T_t)$ .

Звернемо увагу на те (див. рис. 4), що немає ніякої кореляції між величиною “стартової” щілини в тій чи іншій сполучі та величиною притаманної їй похідної  $\partial\nu_{02}/\partial H$  при  $H = 0$ . Це здивує раз говорить про те, що “стартове” значення щілини та її приріст у полі зумовлені різними механізмами. Вони дають адитивні внески в динаміку. Конкуренція цих внесків у деякій переходній області  $T$  та  $H$  може привести до того, що один із цих внесків стає невідчутним на фоні

іншого, який, навпаки, стає домінуючим.

Наприкінці звернемось до наслідків ультразвукових досліджень ErFeO<sub>3</sub> в околі метамагнетного переходу, що для наочності наведені на рис. 5 разом з результатами резонансних досліджень. Для цього переходу активною, тобто взаємодіючою з магніонами, є поперечна акустична мода з хвильовим вектором  $\mathbf{q} \parallel \mathbf{c}$  та поляризацією вектора деформації зсуву  $\boldsymbol{\varepsilon} \parallel \mathbf{b}$ . На рис. 5 наведені залежності величини зменшення швидкості активної звукової хвилі, а також ріст загасання подовжньої (неактивної) звукової хвилі від безрозмірної температури  $\tau = (T - T_t)/(T_{N2} - T_t)$ . Звертання до безрозмірної температури дозволяє співвідносити результати, одержані на зразках, виготовлених з різних партій сировини. Як видно з наведеного малюнка, точці спонтанного переходу ( $\tau = 1$ ) відповідають максимальні зміни акустичних характеристик обох звукових мод ( $\Delta S/S \sim 20\%$ ;  $\Delta\Gamma \sim 1.2$  дБ/см). У вибраній тут геометрії експерименту досліджувані акустичні моди є відповідно поперечною та подовжньою не тільки стосовно  $\mathbf{q}$ , але та-кож і вектора антиферомагнетизму ербію. Це дозволяє шукати зв'язок поперечних та подовжніх коливань намагнеченості ербію з відповідними акустичними модами. Як і раніше, очікувані ефекти прояву подовжніх коливань намагнеченості будемо шукати в температурних (польових) градієнтах “стартових” параметрів, притаманних точці спонтанного переходу  $H = 0$ ,  $T = T_{N2}$ . Усі наведені на рис. 5 температурні залежності фактично є температурно-польовими, оскільки кожному значенню  $\tau$  відповідає конкретна величина магнетного поля переходу, що визначається  $H-T$ -фазовою діяграмою (рис. 16). Характерною відмінністю цієї діяграми є монотонний ріст поля переходу при зниженні температури.

Як видно з рис. 5, у точці спонтанного переходу екстремальні всі наведені характеристики та їхні градієнти за температурою (полем). Але в міру зниження температури вони зменшуються і вже при  $\tau \leq 0.3-0.5$  майже не залежать від зовнішніх параметрів. Якщо не брати до уваги деякої немонотонності в поведінці  $\nu_{N2}$  та  $(\chi_{\parallel}/\chi_{\perp})^{1/2}$  при зниженні температури в область  $\tau \leq 0.3$ , то можна стверджувати про наявність кореляції динамічних характеристик спінової та пружної підсистем на лінії метамагнетного переходу. Відомо [4], що аномалія швидкості звуку при спонтанному переході зумовлена зв'язком поперечної звукової хвилі з поперечними коливаннями намагнеченості на магнеторезонансній частоті м'якої (в цьому випадку рідкісноземельної) моди. У полі  $\mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$  подовжня сприйнятливість ербію суттєво перевищує поперечну та зростає з підвищенням поля та зниженням температури в інтервалі  $T_{N2}-T_t$ . Але поперечна звукова хвіля не взаємодіє з подовжніми коливаннями намагнеченості. Тому аномалія швидкості цієї хвилі зменшується при зниженні температури в міру перерозподілу ролі подовжніх та поперечних коливань у формуванні спінової підсистеми на акустичну через магнетопружний зв'язок.

Для підсистеми заліза область температур метамагнетного переходу, безумовно, задовільняє спінхвильове наближення, оскільки  $T_{N2} \ll T_N$ . Тому коливання подовжніх компонент векторів  $\mathbf{F}$  та  $\mathbf{G}$  тут відсутні. Водночас їхні поперечні компоненти можуть брати участь у формуванні динаміки. Логічно припустити, що залишкова аномалія швидкості в інтервалі  $\tau = 0 - 0.3$ , що складає  $\sim 4\%$  від  $S$ , пов'язана саме з цими коливаннями. Дійсно, за порядком величини вона близька до такої в області "високотемпературної" переорієнтації заліза  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$ , про яку йшла мова вище. Причини, з яких аномалія швидкості в останньому випадку значно менша, ніж у точці  $\Phi\text{П-2}$   $\Gamma_{12}-\Gamma_2$ , докладно проаналізовані в [4].

На цей час у багатьох експериментах встановлено, що акустичні хвилі загасають (подовжні меншою мірою, поперечні — більшою) при різноманітних переходах у РЗОФ. У цьому випадку нас цікавить подовжня хвиля з  $\mathbf{q} \parallel \mathbf{H} \parallel \mathbf{c}$ . З рис. 5 видно, що температурні залежності  $\Delta\Gamma$  та  $\Delta S/S$  зовні дуже схожі. Найочевиднішою причиною зменшення загасання звуку при зниженні температури є зростання жорсткості магнетних підграток ербію. Це може відбуватись під впливом як спонтанного насищення намагнеченості підграток ербію, так і під впливом зростаючого зовнішнього поля в міру просування від  $T_{N2}$  до  $T_t$ . Хоча при цьому сумарна подовжня сприйнятливість росте, проте загасання подовжнього звуку скоріше пов'язане з її флюктуаційною частиною, відносна роль якої максимальна в точці  $T = T_{N2}$  та обертається в нуль при  $T = T_t$  [6].

#### IV. ЗАГАЛЬНІ ВИСНОВКИ

У підсумковому вигляді загальні висновки та результати, що випливають з досліджень динаміки спонтанної переорієнтації, полягають в наступному:

1. Висунуто та експериментально підтверджено ідею про те, що динаміка орієнтаційних переходів у складних багатопідграткових антиферомагнетиках є результатом взаємодії різних коливальних підсистем: упорядкованої підсистеми спінів заліза, парамагнетної підсистеми рідкісноземельних іонів, пружної та дипольної підсистем. Це означає, що тих спектрів вільних коливань, які є вдалини від переходів, у точках переорієнтації вже, як правило, не існує. Сам факт наявності енергетичної щілини говорить про взаємодію спінової хвилі при найменні з однією з інших за природою хвиль. Але насправді, як показали наші досліди, енергетична щілина в багатопідграткових антиферомагнетиках є результатом взаємодії декількох коливальних підсистем. В кількісному плані її неможливо пояснити лише магнетопружиною взаємодією, як це намагались зробити в багатьох попередніх теоретичних та експериментальних дослідженнях. Кінець кінцем з'ясувалось, що енергетична щілина є своєрідною сумарною мірою внутрішніх динамічних взаємодій різних коливальних підсистем магнетика.

2. Сформульовано напрямки модифікації існуючої теорії з метою повнішого врахування механізмів формування динаміки орієнтаційних переходів, не виходячи за межі спін-хвильового наближення. Основна ідея полягала в тому, що в точці орієнтаційного  $\Phi\text{П-2}$  спостережувана в дослідах динаміка може бути адекватно описана тільки при сумісному розв'язані системи при найменні трьох рівнянь: руху магнетного моменту, пружності та рівнянь Максвелла. Причому спінові колективні коливання та магнетопружність потрібно враховувати не лише в упорядкованій підсистемі спінів, але таож і в системі парамагнетних іонів.

3. З урахуванням усієї сукупності результатів експериментальних досліджень рідкісноземельних ортоферітів та модифікованої у вказаному вище напрямку теорії була висунута і вперше експериментально підтверджена ідея про те, що м'які магнеторезонансні моди можуть походити не лише від упорядкованої підсистеми спінів, але й від парамагнетної. У рідкісноземельних ортоферітах ця можливість настає завдяки обмінній взаємодії між впорядкованою підсистемою спінів заліза та парамагнетними іонами рідкої землі, і в останній теж виникають колективні коливання. Уперше ми експериментально виявили та пояснили рідкісноземельні м'які моди в дослідах на  $\text{ErFeO}_3$  та  $\text{YbFeO}_3$ .

4. Уперше виявлено та пояснено гіантські аномалії швидкості та загасання звуку в точках метамагнетного переходу в упорядкованій підсистемі ербію в  $\text{ErFeO}_3$ . Такі могутні аномалії ні раніше, ні в подальшому не спостерігались в жодному експерименті з вивчення динаміки орієнтаційних переходів.

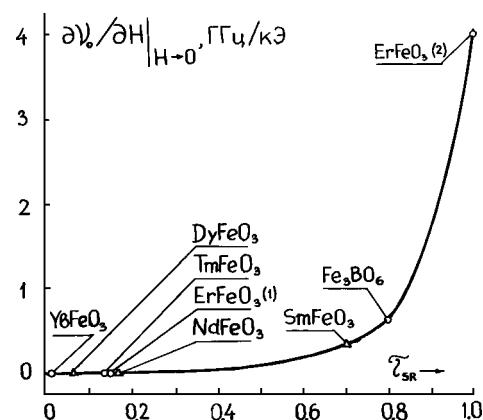


Рис. 6. Значення  $\frac{\partial \nu_0}{\partial H}$  в точках спонтанних переходів у різних сполуках при відповідних безрозмірних температурах  $\tau_{SR} = (T_1 + T_2)/2T_N$ :  $\circ$  — вимірювані величини,  $\Delta$  — очікувані. Індекси (1) та (2) при  $\text{ErFeO}_3$  означають, що в першому випадку мається на увазі переход  $\Gamma_{24}-\Gamma_2$  в підсистемі заліза, а в другому —  $\Gamma_{124}-\Gamma_{24}$  в підсистемі ербію.

Наведені вище результати отримані з урахуванням динамічної взаємодії різних коливальних підсистем магнетика, що є певним відходом від традиційних

уявлень про механізми формування динаміки переорієнтації тільки спіновою підсистемою.

Друга частина роботи пов'язана з відходом ще від одного дуже суттєвого постулату спін–хвильової моделі — про збереження за модулем намагнеченості підграток при збудженні спінових хвиль, у тому числі й однорідного АФМР. Доповнено перераховані загальні висновки такими, що випливають з досліджень, які враховують не лише прецесію, але й подовжні коливання намагнеченості:

1. Динаміка орієнтаційних переходів у реальних експериментальних умовах (тобто при  $T > 0$ ) в загальному випадку формується під впливом як прецесії, так і подовжніх коливань намагнеченості. Співвідношення спін–хвильового та термодинамічного внесків у величини енергетичних щілин залежить переважно від статичних характеристик конкретної сполуки.

2. Параметром, що характеризує співвідношення вказаних внесків у динаміку переорієнтації, є відношення температури спонтанного переходу до температури впорядкування відповідної спінової підсистеми, індивідуальне для кожного конкретного магнетика.

3. Установлено, що при величині цього відношення  $< 0.15$  подовжні коливання не роблять суттєвого внеску в спостережувану в дослідах динаміку. Водночас при його величині  $> 0.7$  внесок подовжніх коливань намагнеченості відчутний навіть у нульовому полі. В останньому випадку енергетична щілина може бути результатом адитивних та сумірних внесків з боку спін–хвильових та термодинамічних механізмів.

4. Виявлено на лінії метамагнетного переходу в  $\text{ErFeO}_3$  кореляція різних динамічних характе-

ристик: високочастотної сприйнятливості, енергетичної щіlinи, швидкості та загасання звуку, — вказує на необхідність врахування магнетопружної взаємодії також і в термодинамічній теорії динаміки орієнтаційних переходів. Це врахування важливе ще й тому, що переорієнтація в більшості багатопідграткових антиферомагнетиків відбувається в області температур, де жодна з існуючих теоретичних моделей не може претендувати на адекватний опис реального експерименту.

5. Перераховані висновки вказують на те, що спін–хвильова та термодинамічна теорії не є взаємозаперечними. Динаміка спінової переорієнтації навіть в одній і тій же сполуці залежно від параметрів та властивості конкретного переходу може найкращим чином бути описана як одною, так і другою моделлю. З цього випливає потреба нової, повнішої та універсальнішої теорії, розрахованої на будь–яку температуру та магнетне поле. Тоді існуючі спін–хвильова та термодинамічна моделі могли бути її крайніми межами — відповідно при  $T \rightarrow 0$  та  $T \rightarrow T_N$ . Зрозуміло, що при цьому природа спостережуваних магнетоакустичних властивостей уже не може бути ідентифікована ні як чисто прецесійна, ні як чисто релаксаційна і вже жодним чином не лише спінового походження. Більше того, м'які магнеторезонансні моди (в класичному розумінні) не лише ніколи не спостерігаються в реальному експерименті, але вони в принципі не можуть спостерігуватись із причин наявності обмежень фундаментального характеру, наприклад, через спонтанно порушену симетрію [2].

Наведені дослідження підтримує Фонд фундаментальних досліджень МНТ України.

- 
- [1] А. И. Ахиезер, В. Г. Баряхтар, С. В. Пелетминский, *Спиновые волны* (Наука, Москва, 1967).
  - [2] Е. А. Туров, В. Г. Шавров, Усп. физ. наук **140**, 429 (1983).
  - [3] А. М. Балбашов, Ю. М. Гуфан, П. Ю. Марчуков, Е. Г. Рудашевский, Журн. эксп. теор. физ. **94**, 305 (1988).
  - [4] В. Д. Бучельников, Н. К. Даньшин, Л. Т. Цымбал, В. Г. Шавров, Усп. физ. наук **166**, 585 (1996).
  - [5] Ю. М. Гуфан, А. Н. Садков, Физ. тверд. тела **28**, 2991 (1986).
  - [6] И. М. Витебский, Н. К. Даньшин, Н. М. Лавриненко, Г. Г. Левченко, М. А. Сдвиженков, Д. Я. Яблонский, Физ. тверд. тела **29**, 2738 (1987).

## MAGNETOACOUSTIC OF ORIENTATIONAL PHASE TRANSITIONS IN ANTIFERROMAGNETS

L. Tsymbal, M. Dan'shin

O. O. Galkin Donetsk Physical-technical Institute of the National Academy of Sciences of Ukraine  
Donetsk, UA-340114, Ukraine

Complex experimental investigations results of the compound many-sublattice rare-earth antiferromagnets, as obtained by radiofrequency and ultrasound spectroscopy, are given. On their basis it has been established that the magnetic phase transitions dynamics is shaped by the interactions between all the magnetic subsystems involved, including the ordered ferrous, elastic, paramagnetic rare-earth, dipole (electromagnetic) subsystems. The necessity is shown for taking into account not only the precession, but the longitudinal oscillations of magnetization to describe the dynamics.