

УДК 539.32

© 1992

## УПРУГИЕ И МАГНИТОУПРУГИЕ СВОЙСТВА МОНОКРИСТАЛЛА $\text{PbFe}_{12}\text{O}_{19}$

Т. П. Сорокина, С. П. Кунцевич, Л. А. Безлепкин,  
Г. М. Квашнин

Ультразвуковым методом определены температурные зависимости упругих постоянных  $C_{11}$ ,  $C_{66}$ ,  $C_{33}$ ,  $C_{44}$  в монокристалле  $\text{PbFe}_{12}\text{O}_{19}$  в интервале температур 80—300 К. Обнаружены сильное уменьшение констант  $C_{11}$  и  $C_{66}$  и изменение температурного коэффициента упругих постоянных  $C_{44}$  и  $C_{33}$  в области 200 К. Исследованы зависимости всех упругих постоянных от величины и ориентации магнитного поля. Вычислены магнитоупругие постоянные  $B_{22}$ ,  $B_{33}$ ,  $B_{41}$ .

Исследования физических свойств гексаферритов типа М ( $\text{Me}^{2+}\text{Fe}_{12}\text{O}_{19}$ ),  $\text{Me}^{2+}$ —Ba, Pb показали, что при замещении щелочноземельного иона  $\text{Ba}^{2+}$  ионом  $\text{Pb}^{2+}$  изменяются такие характеристики, как намагниченность насыщения и энергия магнитной кристаллографической анизотропии [1]; при комнатной температуре электросопротивление уменьшается в  $10^{10}$  раз [2], а с понижением температуры до 80 К магнестрикционные деформации увеличиваются на два порядка [2]. В связи с таким отличием свойств следует ожидать также и различное поведение упругих постоянных в этих соединениях.

### 1. Экспериментальная часть

Монокристаллы  $\text{PbFe}_{12}\text{O}_{19}$  выращены методом раствора в расплаве флюса  $\text{PbO}$ . Синтез производился в интервале температур 960—1050 °С на вращающейся затравке. Для затравок были использованы кристаллы, полученные спонтанной кристаллизацией. Фазовый состав контролировался рентгенографически на установке ДРОН-2 с низкотемпературной приставкой. Полученные кристаллы принадлежат гексагональной симметрии с пространственной группой  $R\bar{6}_3/mmc$  и имеют параметры кристаллической решетки при комнатной температуре  $a=5.89 \text{ \AA}$ ,  $c=23.12 \text{ \AA}$ .

Для измерения скоростей распространения акустических волн в диапазоне температур 80—300 К и в магнитном поле до 22 кЭ использовался импульсно-фазовый метод [3]. Возбуждение упругих волн осуществлялось кварцевыми преобразователями, приклеенными непосредственно к образцу, что позволило полностью устранить статические одноосные деформации образца, которые имели место в эксперименте работы [4]. Относительная точность измерения скорости была равной 0.01 %. Выбранные для исследований направления  $k$  упругих волн  $[0001]$ ,  $[2\bar{1}\bar{1}0]$  соответствовали распространению «чистых мод» в гексагональном кристалле.

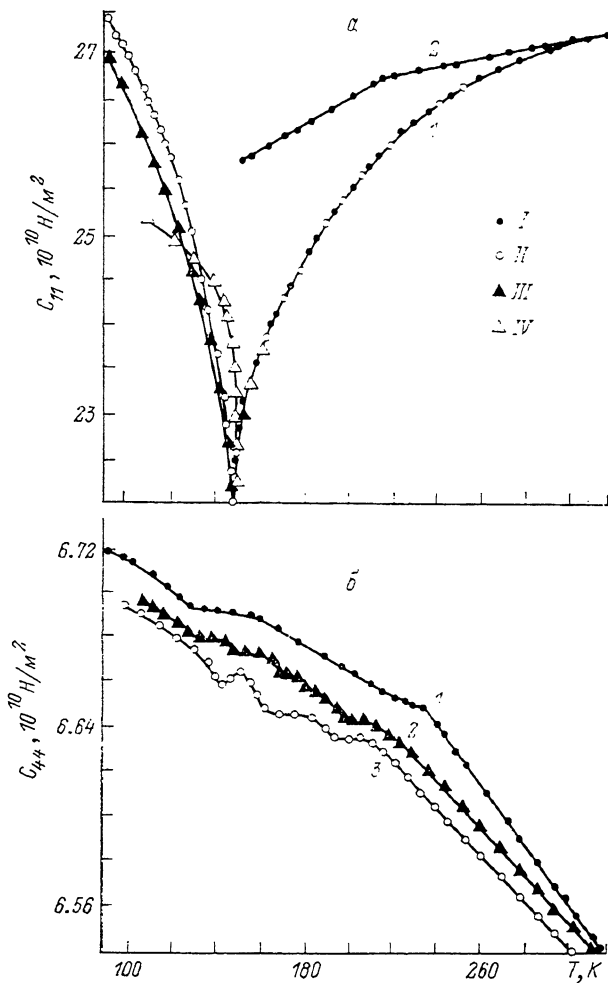


Рис. 1. Температурные зависимости упругих постоянных  $C_{11}$  и  $C_{44}$  монокристалла  $\text{PbFe}_{12}\text{O}_{19}$ .

*a*: 1 — кристалл находится в механически свободном состоянии, 2 — при внешнем одноосном давлении  $\sigma \approx 2$  кбар. I —  $H=0$ ; II —  $H \perp [2\bar{1}\bar{1}0]$ ,  $H=20$  кЭ; III — то же,  $H=10$  кЭ; IV —  $H \parallel [2\bar{1}\bar{1}0]$ ,  $H=20$  кЭ; *b*: 1 —  $H=0$ ; 2 —  $H \parallel [0001]$ ,  $H=17$  кЭ; 3 — то же,  $H=20$  кЭ.

## 2. Обсуждение результатов

Анализ температурных зависимостей упругих постоянных  $\text{PbFe}_{12}\text{O}_{19}$  ( $\text{PbM}$ ) позволяет отметить ряд особенностей (рис. 1, 2). Упругие постоянные  $C_{11}$  (рис. 1, *a*) и  $C_{66}$  (рис. 2), рассчитанные из скоростей распространения упругих волн в базисной плоскости гексагонального кристалла, при понижении температуры испытывают аномальное уменьшение. Сильное затухание претерпевает поперечная волна с волновым вектором  $\mathbf{k} \parallel [2\bar{1}\bar{1}0]$  и поляризацией  $\mathbf{u} \parallel [\bar{1}2\bar{1}0]$  в области температур  $T < 170$  К, что не позволило измерить эту скорость при более низких температурах. Для продольной волны  $\mathbf{k} \parallel [2\bar{1}\bar{1}0]$  затухание наблюдается от температуры 140 К и ниже. Упругая постоянная  $C_{11}$  в области температур 150—300 К уменьшается на 18 %, а  $C_{66}$  в области температур 170—300 К — на 52 % по отношению к  $C_{ij}$  при  $T=300$  К. Отметим, что поведение аналогичных упругих постоянных в соединении  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$  имеет нормаль-

ный температурный ход — с понижением температуры они возрастают [5]. Температурные зависимости  $C_{33}$  и  $C_{44}$  имеют в основном нормальный вид, за исключением области 190—200 К, где их наклон изменяется.

Такое поведение всех упругих постоянных  $C_{ij}$  указывает на существование фазового перехода. В литературе сведений о наличии фазового перехода в магнетопломбите в этой области температур не обнаружено. На температурных зависимостях параметров решетки  $a$  и  $c$ , а также рассчитанного из них объема  $v_0$  элементарной ячейки (рис. 3) в области температуры  $\approx 200$  К наблюдается излом, но при этом симметрия кристаллической структуры РbМ остается неизменной. Это, а также измерения теплоемкости на порошке<sup>1</sup> указывают на

существование фазового перехода II рода. Природа этого перехода в настоящее время неизвестна. В связи с обнаруженными в [6] большими магнитоэстроционными деформациями в базисной плоскости можно предположить, что обсуждаемый ФП связан с локальным изменением магнитной структуры типа «порядок—порядок» в подрешетке.

С целью более детального выяснения особенностей фазового пере-

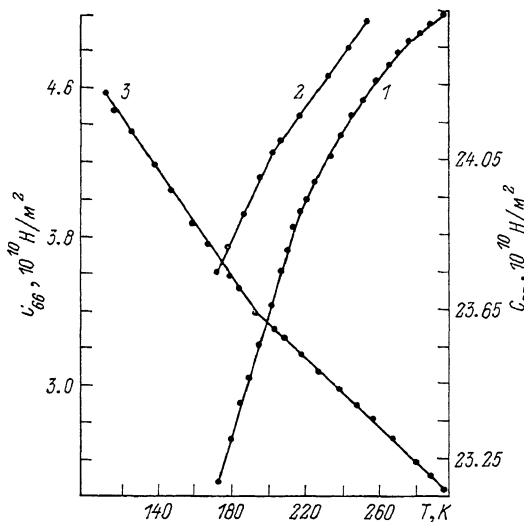


Рис. 2. Температурные зависимости упругих постоянных  $C_{33}$  и  $C_{66}$  монокристалла  $\text{PbFe}_{12}\text{O}_{19}$ .

1, 2 —  $C_{66}$ ; 3 —  $C_{33}$ . 1 — кристалл находится в механически свободном состоянии, 2 — при внешнем одноосном давлении  $\sigma \approx 2$  кбар.

хода в РbМ нами были проведены исследования  $C_{ij}(T)$  в присутствии магнитного поля и внешнего одноосного давления. На рис. 2 приведены температурная зависимость упругой постоянной  $C_{66}(T)$  [4], измеренной при одноосном давлении  $\sigma \parallel k$ , где  $\sigma \approx 2$  кбар, и  $C_{11}(T)$  (рис. 1, а), измеренной тем же способом, что и в [4]. Как видно, относительное температурное изменение этих постоянных меньше: так,  $C_{66}$  уменьшается на 31 %,  $C_{11}$  — на 6 % в указанных выше областях температур. По-видимому, внешнее напряжение частично искажает картину фазового перехода. Выше ФП значения упругих постоянных  $C_{11}$  и  $C_{66}$  для «зажатого» кристалла больше по сравнению с механически свободным кристаллом. Это свидетельствует о том, что внешнее одноосное механическое напряжение приводит к эффективному уменьшению сдвиговых деформаций, создаваемых упругой волной в атомных слоях, перпендикулярных гексагональной оси [0001] и содержащих ионы  $\text{Pb}^{2+}$ . Аналогично для упругой постоянной  $C_{11}$  внешнее напряжение уменьшает продольные деформации в указанных атомных плоскостях. Упругие волны, распространяющиеся вдоль гексагональной оси, вызывают одинаковые деформации при различном внешнем давлении ( $\sigma \approx 2$  кбар и  $\sigma=0$ ), т. е. для  $C_{33}$  и  $C_{44}$  влияние одноосного давления не обнаружено. Поведение параметра решетки  $a$  при  $T=200$  К свидетельствует об изменении межионного взаимодействия в базисной плоскости, что и находит отражение на величине сдвиговых и продольных деформаций, создаваемых упру-

<sup>1</sup> Благодарим И. Н. Флерова за предоставленную информацию.

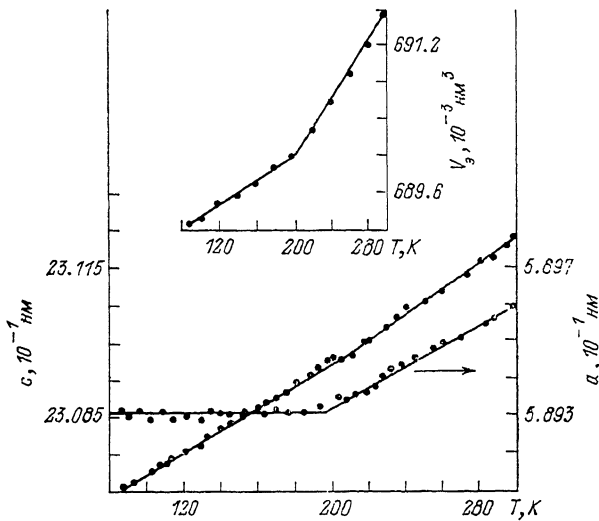


Рис. 3. Температурные зависимости параметров кристаллической решетки  $a$  и  $c$  и объема  $v$ , элементарной ячейки.

гой волной в этой плоскости, что проявляется на температурных зависимостях  $C_{66}$  и  $C_{11}$ . Значительное уменьшение этих постоянных при  $T < 200$  К, по-видимому, связано с большими магнитострикционными деформациями в базисной плоскости, которые с понижением температуры до 100 К резко возрастают [6].

На рис. 1 приведены  $C_{11}(T)$  и  $C_{44}(T)$  в магнитном поле до 20 кЭ. Как было упомянуто выше, продольная волна  $k \parallel [2\bar{1}\bar{1}0]$  в нулевом поле испытывает сильное затухание при  $T < 140$  К. Приложение внешнего магнитного поля  $H \perp k$ ,  $H \parallel [1\bar{2}\bar{1}0]$  ( $H=10-20$  кЭ) частично снимает его. При  $H \parallel k$  в поле  $H=20$  кЭ была измерена скорость продольной волны до  $T \approx 110$  К. Большое затухание звука в этом направлении поля свидетельствует о более сильной магнитоупругой связи. Для направления поля  $H \perp k$ ,  $H \parallel [1\bar{2}\bar{1}0]$  магнитоупругая связь меньше, что позволило измерить скорость до 90 К.

В области  $T < 200$  К и в полях до 20 кЭ поведение упругой постоянной  $C_{44}(T)$  в магнитном поле отличается от зависимости при  $H=0$ . Наблюдаются небольшие отклонения от линейного хода. Вероятно, это является следствием изменения магнитной структуры при фазовом переходе II рода, что также приводит к взаимодействию продольной волны ( $k \parallel [2\bar{1}\bar{1}0]$ ) со спиновой (об этом указывалось выше). К сожалению, в литературе не существует данных о температурном поведении магнитной структуры магнетоплюмбита.

С целью изучения индуцированного внешним магнитным полем ориентационного фазового перехода (ОФП) исследована зависимость скорости поперечной волны  $k \parallel [2\bar{1}\bar{1}0]$ ,  $u \parallel [0001]$ , которая наиболее сильно связана с магнитной подсистемой кристалла [7]. Расчет зависимости  $C_{44}$  от магнитного поля дается выражением [7]

$$C_{44} = C_{44}^0 \left[ 1 - \frac{B_{44}^2}{M_0 C_{44}^0} \frac{1}{H_{06M} + H_{M\gamma} + H_A + H_i} \right], \quad (1)$$

где  $C_{44}^0$  — упругая постоянная в отсутствие магнитоупругой связи,  $H_{06M}$  — поле неоднородного обмена,  $H_A$  — поле анизотропии  $\approx 15$  кЭ,  $H_{M\gamma}$  — поле магнитоупругого взаимодействия,  $H_i$  — внутреннее поле,  $B_{44}$  — магнитоупру-

тая постоянная,  $M_0$  — намагниченность насыщения. Значения магнитных полей по сравнению с полем анизотропии малы.

Для случая  $\mathbf{H} \perp \mathbf{k}$ ,  $\mathbf{H} \parallel [0001]$  в знаменатель выражения (1) добавляется член  $\gamma 4\pi M_0$ , имеющий магнитостатическое (дипольное) происхождение, что приводит к ослаблению магнитоупругого взаимодействия. На рис. 4 представлены полевые зависимости относительного изменения скорости  $\Delta v/v_0$  ( $\Delta v = v_H - v_0 \equiv v_{H=0}$ ) при различном направлении поля.

а)  $\mathbf{H} \parallel [2\bar{1}10]$ . Наблюдается резкое уменьшение скорости при  $H \approx 14$  кЭ. С понижением температуры глубина минимума увеличивается, что свидетельствует о большем возрастании магнитоупругого взаимодействия в области индуцированного ОФП. При  $H_i = -2K_1/M_0$  параметр магнитоупругого взаимодействия  $\xi \rightarrow 1$ . При этом возрастает спин-фононное взаимодействие, что приводит к резкому уменьшению скорости и возрастанию затухания. Это соответствует изменению направления магнитного момента  $\mathbf{M}$  от оси легкого намагничивания  $[0001]$  к оси  $[2\bar{1}10]$ .

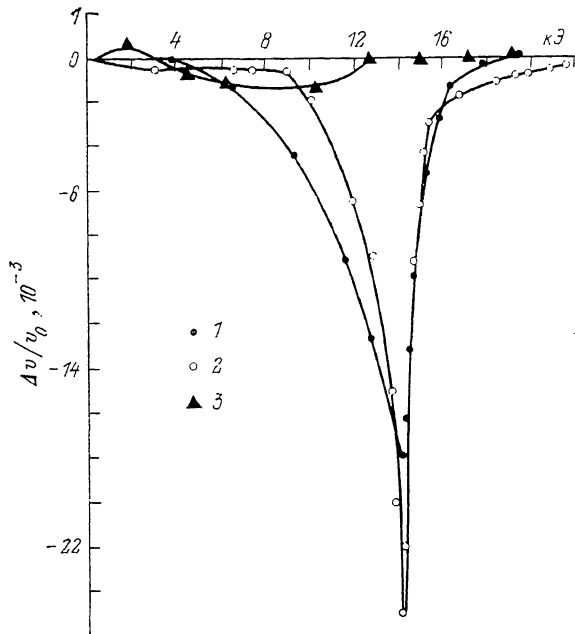


Рис. 4. Полевые зависимости относительного изменения скорости поперечной волны  $\mathbf{k} \parallel [2\bar{1}10]$ ,  $\mathbf{u} \parallel [0001]$ .

1 —  $\mathbf{H} \parallel [2\bar{1}10]$ ,  $T = 300\text{ К}$ ; 2 —  $\mathbf{H} \parallel [2\bar{1}10]$ ,  $T = 140\text{ К}$ ; 3 —  $\mathbf{H} \perp [2\bar{1}10]$ ,  $\mathbf{u} \parallel [0001]$ .

б)  $\mathbf{H} \perp [2\bar{1}10]$ . Магнитоупругое взаимодействие в указанной области изменения магнитных полей отсутствует, что объясняется описанным выше магнитостатическим вкладом  $\gamma 4\pi M_0$  в частоту спиновых волн.

в)  $\mathbf{H} \perp \mathbf{k}$ ,  $\mathbf{u}$ . В этом случае магнитоупругое взаимодействие также отсутствует, что соответствует результатам работы [7].

Для расчета магнитоупругой константы  $B_{44}(T)$  были использованы выражение (1) и зависимости  $(\Delta v/v_0)(H)$  (рис. 4). В результате расчета при  $T = 300\text{ К}$   $B_{44} = 14.8 \cdot 10^6$  Дж/м<sup>3</sup>, при  $T = 140\text{ К}$   $B_{44} = 16.6 \cdot 10^6$  Дж/м<sup>3</sup>.

Знание упругих констант и значений магнитострикции позволяет вычислить магнитоупругие постоянные  $B_{22}$  и  $B_{33}$ , определяющие взаимодействие упругой и магнитной подсистем для продольных упругих волн. Расчет  $B_{22}$  и  $B_{33}$  проводился по следующим формулам [8]:

$$B_{22} = -\lambda_2^{\alpha, 2} C_{13} - \lambda_1^{\alpha, 2} (C_{11} + C_{12}),$$

$$B_{33} = -\lambda_2^{\alpha, 2} C_{33} - 2\lambda_1^{\alpha, 2} C_{13}. \quad (2)$$

Используя из работы [2] величины  $\lambda_1^{\alpha, 2}$  и  $\lambda_2^{\alpha, 2}$  для  $\text{PbFe}_{12}\text{O}_{19}$  и упругие постоянные, получим: при  $T = 300\text{ К}$   $B_{22} \approx 7.95 \cdot 10^6$ ,  $B_{33} \approx 3.7 \cdot 10^6$  Дж/м<sup>3</sup>, при  $T = 80\text{ К}$  значения магнитоупругих постоянных резко возрастают:  $B_{22} \approx -180 \cdot 10^6$ ,  $B_{33} \approx -15 \cdot 10^6$  Дж/м<sup>3</sup>.

Таким образом, при изучении упругих свойств магнетоплюмбита можно сделать вывод о наличии фазового перехода II рода при  $T=200$  К, в результате которого наблюдаются значительное уменьшение упругих постоянных  $C_{11}$  и  $C_{66}$  и возрастание затухания ультразвука при понижении температуры, а также изменение температурного коэффициента  $C_{44}$ ,  $C_{33}$  при  $T \approx 200$  К. Из полевых зависимостей скоростей поперечных волн следует, что при определенной величине внешнего магнитного поля наблюдается индуцированный ОФП в Fe-подрешетке.

#### С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Мамалуй Ю. А., Мураховский А. А., Ольховик Л. П. // Изв. АН СССР. 1975. Т. 2. № 5. С. 1337—1339.
- [2] Безлепкин А. А., Кунцевич С. П., Палехин В. П. // Изв. вузов, физика. 1985. № 9. С. 106—107.
- [3] McSkimin H. J. // J. Acoust. Soc. Amer. 1950. V. 22. N 4. P. 413—418.
- [4] Капитонов А. М., Квашнина О. П., Смокотин Э. М., Безматерных Л. Н., Тимофеева В. А. // Тез. докл. XV Всес. конф. по ФМЯ. Пермь, 1981.
- [5] Сорокина Т. П., Капитонов А. М., Безматерных Л. Н., Темеров В. Л., Квашнина О. П. // Тез. докл. XVIII Всес. конф. по ФМЯ. Калинин, 1988.
- [6] Кунцевич С. П., Безлепкин А. А. // УФЖ. 1989. Т. 34. № 1. С. 126—131.
- [7] Туров Е. А., Шавров В. Г. // УФН. 1983. Т. 140. № 3. С. 429—462.
- [8] Klimker H., Rosen H. // Phys. Rev. B. 1973. V. 7. N 5. P. 2054—2061.

Красноярский сельскохозяйственный институт

Поступило в Редакцию  
18 декабря 1990 г.  
В окончательной редакции  
11 июня 1991 г.