

## Пьезоотклик в $\text{SmFe}_3(\text{VO}_3)_4$ в непьезоактивной конфигурации. Поверхностный пьезоэффект

М.П. Колодяжная<sup>1</sup>, Г.А. Звягина<sup>1</sup>, И.А. Гудим<sup>2</sup>, И.В. Билыч<sup>1</sup>,  
Н.Г. Бурма<sup>1</sup>, К.Р. Жеков<sup>1</sup>, В.Д. Филь<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Физико-технический институт низких температур им. Б.И. Веркина НАН Украины  
пр. Науки, 47, г. Харьков, 61103, Украина  
E-mail: fil@ilt.kharkov.ua

<sup>2</sup>Институт физики им. Л.В. Киренского Сибирского отделения РАН  
Академгородок, 50, г. Красноярск, 660036, Россия

Статья поступила в редакцию 3 февраля 2017 г., опубликована онлайн 26 июня 2017 г.

Исследованы механизмы возникновения пьезоэффекта в конфигурациях, не допускающих, с точки зрения симметрии, появления пьезоотклика в парамагнитном состоянии. В настоящей работе, в противовес симметричным ограничениям, существование такого пьезоотклика обнаружено. Предполагается, что он связан с поверхностью, на которой симметричные ограничения отсутствуют. В магнитоупорядоченном состоянии в этих конфигурациях симметрично допустим и реально наблюдаем косвенный пьезоэффект, заключающийся в совместном действии магнитоэлектрического и магнитоупругого механизмов.

Досліджено механізми виникнення п'єзоефекту в конфігураціях, що не допускають, з погляду симетрії, появи п'єзовідгуку в парамагнітному стані. У поданій роботі, на протипагу симетрійним обмеженням, виявлено існування такого п'єзовідгуку. Передбачається, що він пов'язаний з поверхнею, на якій симетрійні обмеження відсутні. У магнітоупорядкованому стані в цих конфігураціях симетрійно допустимий та реально спостерігається непрямий п'єзоефект, що полягає в спільній дії магнітоелектричного та магнітоупругого механізмів.

PACS: **75.85.+t** Магнитоэлектрические эффекты;  
**77.65.-j** Пьезоэлектричество электромеханические эффекты.

Ключевые слова: магнитоэлектрические, пьезоэлектрические, магнитоупругие эффекты, мультиферройки.

Классический пьезоэффект (ПЭ) линейно связывает электрическое поле  $\mathbf{E}$  и упругую деформацию  $u_{kl}$  [1]. В термодинамическом потенциале ПЭ представлен слагаемыми типа  $e_{i,kl}E_i u_{kl}$ . Тензор пьезомодулей  $e_{i,kl}$  симметричен по двум последним индексам и для его представления обычно используются обозначения Фойгта. Структура тензора  $e_{ij}$  ( $j = 1, \dots, 6$ ) определяется симметрией кристаллической решетки. Объемный ПЭ возможен только при отсутствии центра инверсии. Другие операции симметрии определяют количество ненулевых компонент тензора  $e_{ij}$ . В классе 32, о котором идет речь ниже и к которому относится большинство ферроборатов, отличны от нуля лишь пять компонент [1].

Набор ориентаций внешних (и внутренних) полей, для которого  $e_{ij} \neq 0$ , будем называть пьезоактивной конфигурацией. К таковым относятся деформация  $u_{xx}$ ,

порождающая поле  $E_x$  (конфигурация  $E_x, u_{xx}$ ), либо  $u_{xy}$ , порождающая поле  $E_y$  (конфигурация  $E_y, u_{xy}$ ) [1]. В то же время компонента  $e_{22} \equiv e_{y,yy} = 0$ , поскольку при повороте на  $180^\circ$  вокруг оси  $C_2 \parallel x$  она меняет знак, и деформация  $u_{yy}$  не приводит к возникновению поля  $E_y$ , т.е. конфигурация  $E_y, u_{yy}$  непьезоактивна.

Кроме упомянутого выше прямого ПЭ, в магнитоупорядоченных средах, относящихся к классу мультиферройков, возможно существование и косвенного ПЭ, заключающегося в совместном действии магнитоупругого и магнитоэлектрического механизмов. Благодаря магнитоупругости деформация изменяет состояние магнитных переменных и через магнитоэлектрическую связь возбуждает электрическое поле (и наоборот). Этот эффект впервые был обнаружен в ферроборате самария [2]. Вследствие легкоплоскостной конфигурации анти-

ферромагнитной фазы переменные поля сравнительно легко модулируют угловое положение магнитных векторов, что приводит к гигантской величине эффекта — эффективный пьезомодуль в  $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$  увеличивается более чем в два раза. Постоянное магнитное поле изменяет как положение магнитных векторов, так и глубину его модуляции. В результате поля уровня нескольких тесла подавляют этот вид ПЭ, поэтому он получил название магнитопьезоэлектрического.

Отметим и возможность непосредственной перенормировки прямого ПЭ с участием магнитных векторов. В классе легкоплоскостных ферророботов взаимодействие такого рода учитывается в термодинамическом потенциале слагаемым типа  $\tilde{e}_{imn,kl} E_i u_{kl} l_m l_n$ , где  $l_m, l_n$  — направляющие косинусы, которые определяют положение вектора антиферромагнетизма в легкой плоскости. Признаки такого процесса обнаружены в ферророботе неодима [3], однако перенормировка пьезомодуля при этом не превышает 1%.

Цитированные выше работы относятся к исследованию магнитопьезоэлектрического эффекта для случая пьезоактивных конфигураций. На самом деле такое требование, применительно к мультиферроикам, не является обязательным. При магнитном упорядочении полная симметрия понижается относительно кристаллографической, вследствие чего оказывается возможным появление пьезоотклика и в непьезоактивных конфигурациях. В настоящем сообщении изложены феноменологические аргументы и результаты экспериментального исследования такой ситуации для конкретной геометрии в  $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$ . Проанализировано также и изменение при этом упругого модуля. Наиболее интересным и неожиданным оказалось обнаружение нового канала формирования пьезоотклика, предположительно поверхностного происхождения, существующего как в магнитоупорядоченном состоянии, так и в парафазе.

Анализируется поведение пьезомодуля в непьезоактивной конфигурации  $E_y, u_{yy}$ . Материал удобно обсуждать в сравнении с характеристиками ПЭ в пьезоактивной конфигурации  $E_x, u_{xx}$ . Хотя основные результаты для последнего случая достаточно подробно изложены в [2], в настоящем сообщении они по мере необходимости будут также использованы.

Актуальная часть неполного термодинамического потенциала, позволяющая произвести необходимые оценки, может быть записана в виде [2]:

$$\tilde{F} = K \cos 6\varphi + e_{11} E_x u_{xx} + \frac{a}{2} (E_x \cos 2\varphi - E_y \sin 2\varphi) + \frac{b}{2} (u_{xx} - u_{yy}) \cos 2\varphi - \frac{1}{2} \chi H^2 \sin^2(\varphi_H - \varphi). \quad (1)$$

Здесь  $\varphi$  — угол между вектором антиферромагнетизма и осью  $x$ ,  $\varphi_H$  — угол между внешним полем  $H$  и осью  $x$ ,  $e_{11}$  — пьезомодуль,  $\chi$  — магнитная восприимчи-

вость. Первое слагаемое в (1) — анизотропия в базовой плоскости, второе — прямой ПЭ (обращаем внимание на отсутствие слагаемого с  $e_{22}$ ), третье и четвертое — магнитоэлектрический и магнитоупругий вклады соответственно, последний член — зеемановская энергия. Взаимодействие, ответственное за флексоэлектрический эффект, будет обсуждено ниже.

Вычисление пьезомодуля производится по схеме [1]:  $\sigma_{kl} = \partial \tilde{F} / \partial u_{kl}$ ;  $e_{ikl} = d\sigma_{kl} / dE_i$  ( $\sigma_{kl}$  — компонента тензора напряжений). При выполнении второго дифференцирования необходимо учитывать, что  $\varphi$  является неявной функцией  $E$  (а также и  $u$ ). В результате для эффективных пьезомодулей получаем:

$$\Delta e_{11} = e_{11}^{\text{eff}} - e_{11} = -\frac{ab \sin^2 2\varphi}{\partial^2 \tilde{F} / \partial \varphi^2}, \quad (2)$$

$$e_{22}^{\text{eff}} = -\frac{ab \sin 4\varphi}{2\partial^2 \tilde{F} / \partial \varphi^2}. \quad (3)$$

Здесь и далее под  $e_{11}$  подразумевается значение тензорной компоненты в парафазе.

В отсутствие внешнего магнитного поля однородный образец ниже температуры Нееля ( $T_N$ ) разбивается на домены, макроскопически сохраняющие исходную симметрию парафазы. Усредняя (2), (3) по всему образцу, видим, что разделение конфигураций на пьезо- и непьезоактивные ниже  $T_N$  сохраняется и  $e_{22}^{\text{eff}}$  (в отличие от  $\Delta e_{11}$ ), как и следовало ожидать, обнуляется. Однако в каждом индивидуальном домене  $e_{22}^{\text{eff}}$ , за исключением избранных значений  $\varphi$ , имеет ненулевое значение. Никакого противоречия с симметричной аргументацией этот факт не содержит — в каждом антиферромагнитном домене исходная симметрия парафазы уже утрачена.

Обратимся теперь к изложению экспериментальных результатов и их обсуждению. Метод измерения пьезомодуля достаточно подробно описан в [2]. Отметим только некоторые важные для настоящего обсуждения подробности. Все измерения выполняются в импульсном режиме. Упругая волна вводится в исследуемый образец через линию задержки, в качестве которой использован монокристалл  $\text{Mo}$  с направлением волновой нормали вдоль оси [110]. Материал задержки достаточно загрязнен для подавления электронного вклада в характеристики распространения звука на используемых частотах (~55 МГц). Возникший на входном интерфейсе образца вследствие пьезоэлектрического взаимодействия потенциал через время электромагнитной задержки в образце (запаздывающий потенциал) поступает на низкоомный (~50 Ом) вход приемника. Как аргументировано в [2], амплитуда принимаемого сигнала при этом пропорциональна пьезомодулю. Толщины исследовавшихся образцов выбирались ~3 мм, что обеспечивало звуковую задержку не менее 0,3 мкс и

позволяло отделить анализируемый сигнал от пьезоотклика, порожденного пришедшей на выходной интерфейс упругой волной.

При  $H = 0$  в магнитоупорядоченной фазе парциальные концентрации различных доменов на возбуждающем интерфейсе (плоскость (010)) зависят от предистории, дефектности грани, скорости охлаждения и других плохо контролируемых факторов. По этим причинам отклик в конфигурации  $E_y, u_{yy}$ , в противовес измерениям  $e_{11}^{\text{eff}}$  (см. [2]), имел характер нерегулярных всплесков при сканировании температуры, не воспроизводимых в различных циклах охлаждения. Уловить какую-либо закономерность в его поведении не удалось, и этих данных мы не приводим.

Все обсуждаемые ниже результаты относятся в основном к монодоменизованному спин-флоп состоянию, реализуемому в полях  $H > 1-1,5$  Тл. Напомним, что в этом состоянии  $\varphi \approx \varphi_H + \pi/2$ . На рис. 1 представлено поведение амплитуды и фазы пьезоотклика в конфигурации  $E_y, u_{yy}$  в зависимости от  $\varphi_H$  при  $T = 1,7$  К. Для более детального воспроизведения в области малых значений амплитуд результаты приведены в логарифмических координатах. Налицо практически полное соответствие поведения отклика  $E_y$  соотношению (3) — амплитуда периодична с периодом, близким к  $\pi/4$ , а фаза с той же периодичностью меняется на  $\pm 180^\circ$ . Максимумы сигнала наблюдаются при  $\varphi_H \approx (2n+1)(\pi/8)$  ( $n = 0, 1, 2 \dots$ ). Неожиданным оказалось относительно большое значение ( $-15-17$  дБ) минимальной амплитуды отклика — в соответствии с изложенными выше соображениями ожидался гораздо более глубокий минимум.

На рис. 2 приведены первичные экспериментальные данные, представляющие температурные вариации амплитуд (логарифмический масштаб) и фаз откликов в пьезо- и непьезоактивных конфигурациях. Эти результаты получены при оптимальных значениях  $\varphi_H$ ,

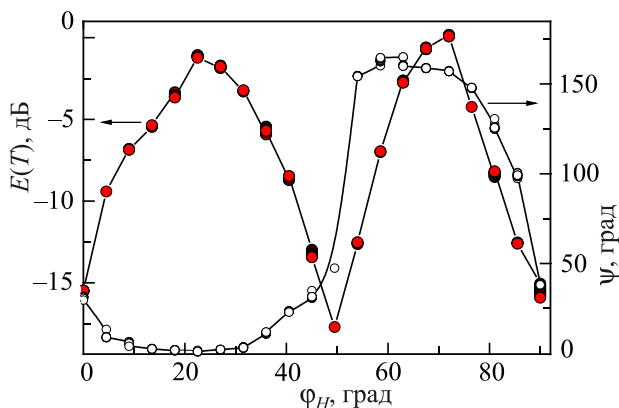


Рис. 1. (Онлайн в цвете) Зависимость амплитуды и фазы пьезоотклика от ориентации магнитного поля ( $H = 1,2$  Тл) в базовой плоскости. Заполненные символы — амплитуда, открытые — фаза. Линии — руководство для глаз.

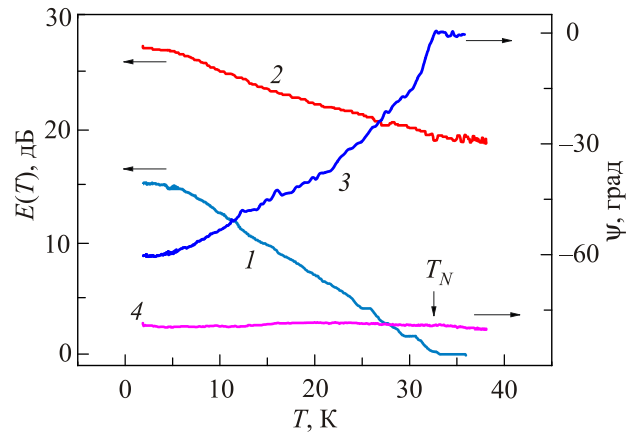


Рис. 2. (Онлайн в цвете) Температурные вариации амплитуд (1, 2) (логарифмический масштаб) и фаз (3, 4) откликов в непьезоактивной (1, 3) и пьезоактивной (2, 4) конфигурациях при оптимальных значениях  $\varphi_H$ , обеспечивающих максимальную амплитуду отклика ( $\varphi_H = \pi/8$  для конфигурации  $E_y, u_{yy}$  и  $\pi/4$  — для конфигурации  $E_x, u_{xx}$ ).  $H = 1,4$  Тл. Все величины отсчитаны от соответствующих значений при  $T = T_N$  в конфигурации  $E_y, u_{yy}$ .

обеспечивающих максимальную амплитуду отклика ( $\varphi_H = \pi/8$  для конфигурации  $E_y, u_{yy}$ , и  $\pi/4$  — для конфигурации  $E_x, u_{xx}$ ). Непосредственно измеряемыми в эксперименте величинами являются относительные изменения обсуждаемых параметров в каждой конкретной конфигурации. Их взаимное положение достаточно просто определяется с использованием соотношений (2), (3) (см. ниже). В частности, на рис. 2 амплитуды и фазы сигналов отсчитаны от значений, характеризующих отклик  $E_y$  при  $T = T_N$ . Обращаем внимание на следующие особенности.

1. Размах температурных вариаций амплитуды  $E_y$  близок к вариациям диаграммы вращения (ср. рис. 2, кривая 1 и рис. 1). Это означает, что в минимуме диаграммы вращения амплитуда отклика неизвестной природы (обозначим его  $\tilde{E}_y$ ) от температуры практически не зависит. Более того, этот сигнал существует без заметных изменений уровня вплоть до расплавления акустического связующего ( $T > 100$  К, на рисунке не показано), и нет оснований считать, что при какой-то температуре он исчезнет.
2. В пьезоактивной конфигурации фаза сигнала при переходе через  $T_N$  практически не изменяется. Следовательно, наша рабочая частота достаточно низка по сравнению с характерными для антиферромагнетика релаксационными частотами, и фазы как прямого, так и косвенного ПЭ совпадают. Этой же фазой, в силу соотношений (2), (3), характеризуется и спин-зависимый отклик в непьезоактивной конфигурации. Фаза сигнала  $\tilde{E}_y$  при  $T > T_N$  также не меняется, и можно думать, что и при  $T < T_N$  она сохраняется. Однако ниже  $T_N$  отклик  $E_y$  испытывает значительные изменения фазы  $\psi$  в сторону умень-

шения ( $\sim 60^\circ$ ). Естественная интерпретация отмеченных особенностей — в антиферромагнитном состоянии отклик  $E_y$  представляет сумму двух сигналов, сдвинутых по фазе друг относительно друга на фиксированную величину, превышающую, по крайней мере,  $\pi/3$ . Фаза же результирующего колебания эволюционирует исключительно в результате изменения соотношения амплитуд этих сигналов:

$$E_y = \tilde{E}_y + E_{ME} = e_{22}^{\text{res}} u_{yy} = [e_{y2} + e_{22}^{\text{eff}} \exp(-i\psi_0)] u_{yy}. \quad (4)$$

В (4) под  $E_{ME}$  понимается поле, появляющееся в результате магнитопьезоэлектрического эффекта. Кроме того, введены результирующий пьезомодуль  $e_{22}^{\text{res}}$  и пьезомодуль  $e_{y2}$ , связывающий  $\tilde{E}_y$  с  $u_{yy}$  (мы использовали нестандартное обозначение, подчеркивающее нестандартность этого коэффициента). Не зависящая от температуры фаза сигнала  $\tilde{E}_y$  принята за начало отсчета, а запаздывание  $E_{ME}$  относительно  $\tilde{E}_y$  учитывается приписыванием величине  $e_{22}^{\text{eff}}$  из соотношения (3) фазового множителя с фиксированной величиной  $\psi_0$ .

Обсудим вначале возможные причины появления пьезоотклика в непьезоактивной конфигурации парамагнитной фазы, обусловленные особенностями эксперимента. Достаточно маловероятный сценарий связан с ограниченностью поперечного сечения звукового пучка. При смещении в пучке  $u_y$  на его границах определено существуют области с ненулевой пьезоактивной деформацией  $u_{xx}$ , являющейся источником поля  $E_y$ . При этом диаметрально противоположные участки сечения цилиндрического звукового пучка порождают сигналы, взаимно компенсирующиеся в симметрично расположенном регистрирующем электроде. Однако при отклонении сечения от строгой цилиндричности (неоднородность акустической склейки) появляется раскомпенсация и такой механизм возникновения пьезоотклика, в принципе, возможен. Однородность склейки является плохо контролируемым параметром, и при этом следовало бы ожидать невоспроизводимости результатов в различных измерительных циклах, чего фактически не наблюдалось. И главное — при таком сценарии невозможно объяснить появление фазового сдвига между  $\tilde{E}_y$  и  $E_{ME}$ .

К появлению  $\tilde{E}_y$  могло бы привести также и отклонение волновой нормали от требуемого направления при неточной кристаллографической ориентации как образца, так и линии задержки. Однако и в этом случае, какой-либо фазовый сдвиг между  $\tilde{E}_y$  и  $E_{ME}$  должен отсутствовать.

Фундаментальными механизмами возникновения  $\tilde{E}_y$  являются флексоэлектричество [4] и поверхностный пьезоэффект [5].

Флексоэлектричество — это возникновение поляризации в диэлектрической среде под действием неодно-

родной деформации. При малых возмущениях флексоэлектрическая связь выражается линейным соотношением между поляризацией и градиентом деформации:  $P_m = \mu_{mlik} \partial u_{ik} / \partial x_l$ . Четвертый ранг флексоэлектрического тензора  $\mu_{mlik}$  разрешает существование эффекта при любой симметрии, в том числе и в centrosymmetric среде. Несложно убедиться, что в классе 32 компонента  $\mu_{yyyy}$ , аналогично соответствующей компоненте тензора модулей упругости, отлична от нуля. Обратим также внимание, что при  $\mu < 0$  флексоэлектрический отклик на  $90^\circ$  опережает пьезоэлектрический. Качественно связь появления отклика  $\tilde{E}_y$  с флексоэлектрическим эффектом вполне допустима, и проблема сводится к количественному сравнению. Теоретические оценки и доступные результаты измерений для монокристаллов со стандартными величинами диэлектрической проницаемости ( $\sim 10$ ) показывают, что значения флексоэлектрического коэффициента  $\mu$  не превышают  $10^{-8}$  Кл/м (см. обзор [4], табл. 2). Применительно к звуку флексоэлектрическое взаимодействие формально сводится к эффективному пьезоэлектрическому с зависящим от частоты пьезомодулем ( $e^{fe} = \mu q$ ,  $q$  — волновое число). При использованных в работе частотах величина  $e^{fe}$ , в соответствии с [4], не превышает  $10^{-3}$  Кл/м<sup>2</sup>. Учитывая, что в  $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$   $e_{11} \approx 1,4$  Кл/м<sup>2</sup> [6], на рис. 2 видно, что это значение  $e^{fe}$  более чем на два порядка меньше реально наблюдаемого ( $e_{y2}(T_N) \approx 0,15$  Кл/м<sup>2</sup>). Если не предполагать в  $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$  аномально большой флексоэлектрической связи, то от этой гипотезы следует отказаться.

Термин «поверхностный пьезоэффект» подразумевает его отличие от классического ПЭ, носящего объемный характер. Он обусловлен тем, что на интерфейсной поверхности кристаллического тела теряются почти все элементы симметрии, включая и центр инверсии. Например, в обсуждаемой геометрии в кристалле класса 32 «утеряны» оси симметрии как третьего, так и второго порядков. Отсутствие симметричных ограничений разрешает появление пьезоотклика практически в любой конфигурации, в том числе и в обсуждаемой, и вопрос по-прежнему сводится к количественным оценкам. Проведенные в работе [5] расчеты для кубических перовскитных наноструктур (несколько атомных слоев) показали, что ожидаемая величина эффективного пьезомодуля находится на уровне  $0,1$  Кл/м<sup>2</sup>, что вполне согласуется с нашим результатом. Хотя наши эксперименты выполнены на макроскопических объектах, использованная методика, мы полагаем, выделяет именно поверхностный вклад.

Появление фазового сдвига между  $\tilde{E}_y$  и  $E_{ME}$  в таком сценарии на качественном уровне также вполне объяснимо. Поверхностный пьезоэффект формируется на длинах, сравнимых с межатомными, и фаза связанного с ним отклика, с точностью до электромагнитной задержки, совпадает с фазой  $u_{yy}$ . Область формирования



объемного ПЭ, в том числе магнитопьезоэлектрического, распространяется, по-видимому, на толщины  $\delta$ , сравнимые с длиной волны, что и приводит к отставанию  $E_{ME}$  относительно поверхностного отклика на конечную долю периода ( $\psi_0 \sim q\delta$ ).

Как отмечалось выше, физически регистрируемыми в эксперименте величинами являются амплитуды и фазы электрических полей. В силу линейности задачи их относительные изменения совпадают с относительными изменениями интересующих нас тензорных компонент, и поэтому в дальнейшем будет использована «тензорная» терминология. Температурные вариации модуля комплексного параметра  $\kappa = e_{22}^{\text{res}}(T)/e_{y2}(T_N)$  приведены на рис. 3. Разделим  $\kappa$  на квадратурную

$$\frac{e_{22}^{\text{res}} \sin \psi}{e_{y2}(T_N)} = \frac{e_{22}^{\text{eff}} \sin \psi_0}{e_{y2}(T_N)} \quad (5)$$

и синфазную

$$\frac{e_{22}^{\text{res}} \cos \psi}{e_{y2}(T_N)} = \frac{e_{y2}(T)}{e_{y2}(T_N)} + \frac{e_{22}^{\text{eff}} \cos \psi_0}{e_{y2}(T_N)} \quad (6)$$

части. Фазовый сдвиг  $\psi_0$  близок к  $\pi/2$ , поэтому квадратурная составляющая практически совпадает с  $e_{22}^{\text{eff}}/e_{y2}(T_N)$  (рис. 3). Для нахождения температурной зависимости  $e_{y2}(T)$  необходимо знать более точное значение  $\psi_0$ . Нам неизвестно, как поверхностный ПЭ модифицируется в магнитоупорядоченном состоянии. Если предположить, что его вариации подобны вариациям магнитопьезоэлектрического вклада, изученного в [2], и в магнитоупорядоченной фазе он возрастает примерно вдвое, то мы должны принять  $\psi_0$  в интервале ( $75^\circ$ – $80^\circ$ ).

Используя (2), (3), для зависимостей, полученных при оптимальных  $\phi_H$ , можно написать

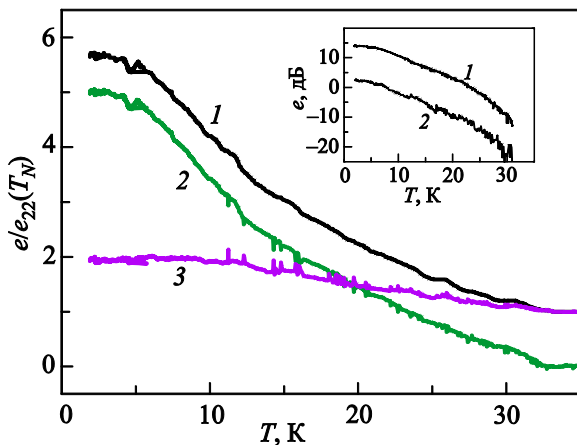


Рис. 3. (Онлайн в цвете) Температурные изменения  $e_{22}^{\text{res}}$  (1),  $e_{22}^{\text{eff}}$  (2) и  $e_{y2}$  (3). Все величины нормированы на  $e_{y2}(T_N)$ . Вставка — температурные зависимости  $e_{22}^{\text{eff}}/e_{y2}(T_N)$  (1) и  $\Delta e_{11}/e_{11}$  (2). Сдвиг между кривыми  $(13 \pm 1)$  дБ.

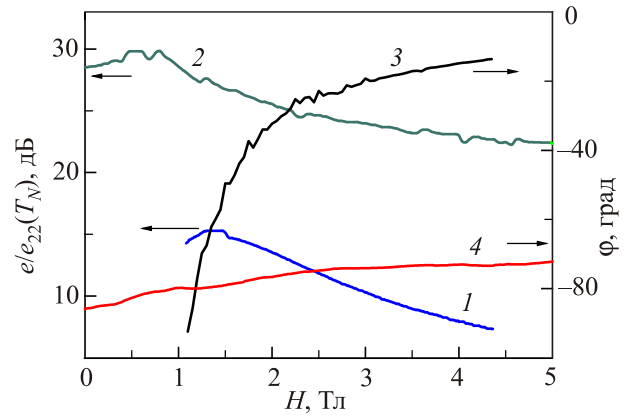


Рис. 4. (Онлайн в цвете) Магнитополевые зависимости амплитуд (1, 2) и фаз (3, 4) откликов в непьезоактивной (1, 3) и пьезоактивной (2, 4) конфигурациях.  $T = 1,7$  К. Нормировка и значения  $\phi_H$  такие же, как и на рис. 2.

$$\{\Delta e_{11}/e_{11}\} e_{11}/2e_{y2}(T_N) = \{e_{22}^{\text{eff}}/e_{y2}(T_N)\}.$$

Непосредственно измеряемые в этом равенстве параметры отмечены фигурными скобками и их температурные или магнитополевые зависимости должны совпадать с точностью до масштабного множителя. Поэтому в логарифмических координатах эти зависимости должны быть представлены конгруэнтными линиями, сдвинутыми на величину, определяемую соотношением между  $e_{11}$  и  $e_{y2}(T_N)$ . Вставка на рис. 3 демонстрирует справедливость этого заключения. Сдвиг близок к  $(13 \pm 1)$  дБ, что с учетом 2 в масштабном множителе дает соотношение  $e_{11}/e_{y2}(T_N) \approx 10$ . Прямые измерения методом сравнения в пределах погрешности дают такое же соотношение. Представленные на рис. 2 результаты приведены с использованием этого значения и с параметром запаздывания  $\psi_0 = 80^\circ$ .

Магнитополевые зависимости амплитуд и фаз сигналов, измеренных при оптимальных значениях  $\phi_H$  и  $T = 1,7$  К, приведены на рис. 4. Результаты для непьезоактивной конфигурации  $E_y, u_{yy}$  представлены только для значений  $H$ , превышающих спин-флоп поле. Взаимное положение кривых на рис. 4 для разных конфигураций определено согласованием с рис. 2 при  $T = 1,7$  К и  $H = 1,4$  Тл. Поступая, как и ранее, разделим результирующий комплексный пьезомодуль на синфазную и квадратурную компоненты (рис. 5). Последняя, согласно (2), (3), при увеличении  $H$  должна спадать как квадрат магнитного поля ( $\partial^2 \tilde{F}/\partial \phi^2 \approx \chi H^2$ ), что и демонстрирует вставка на рис. 5, хорошо аппроксимируемая линейной зависимостью от  $H^{-2}$ . На той же вставке приведена аналогичная зависимость для приращения пьезомодуля в конфигурации  $E_x, u_{xx}$ . В области достаточно больших полей ( $H > 2,5$  Тл) закон ее изменения также близок к линейному. Соотношение наклонов

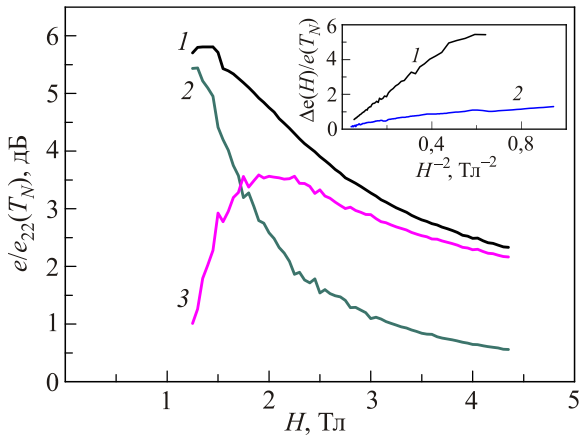


Рис. 5. (Онлайн в цвете) Магнитополевые вариации  $e_{22}^{\text{eff}}$  (1),  $e_{y2}^{\text{eff}}$  (2) и  $e_{y2}$  (3). Все величины нормированы на  $e_{y2}(T_N)$ . Вставка —  $e_{22}^{\text{eff}}/e_{y2}(T_N)$  (1),  $\Delta e_{11}/e_{11}$  (2). Соотношение наклонов аппроксимирующих прямых ( $5 \pm 0,5$ ).

этих зависимостей ( $5 \pm 0,5$ ) согласуется с приведенной выше оценкой  $e_{11}/e_{y2}(T_N)$ .

Обсудим теперь поведение скорости продольного звука в обсуждаемой конфигурации. Для ее вычисления, аналогично [2], найдем производную  $d\sigma_{yy}/du_{yy}$ , по-прежнему учитывая неявную зависимость  $\varphi$  от  $E$  и  $u$ . Заметим также, что скорость звука — это объемная характеристика, и вклад поверхностных эффектов практически отсутствует при используемых толщинах образцов. В результате для изменений скорости звука получаем уравнение

$$\frac{\Delta s}{s} = - \frac{b^2 \sin^2 2\varphi}{\frac{\partial^2 \tilde{F}}{\partial \varphi^2} + \frac{4\pi a^2}{\epsilon_{\perp}} \cos^2 2\varphi} \frac{1}{2\rho s_{Ly}^2}. \quad (7)$$

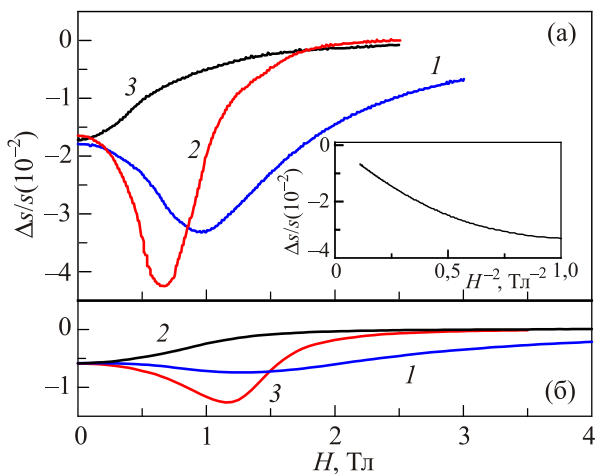


Рис. 6. (Онлайн в цвете) Магнитополевые изменения скорости звука ( $T = 1,7$  К) поляризации  $u_{yy}$  (а) и  $u_{xx}$  (б).  $\varphi_H = \pi/4$  (1),  $\varphi_H = \pi/2$  (2),  $\varphi_H = 0$  (3), вставка — зависимость  $\Delta s/s(H^{-2})$  при возбуждении  $u_{yy}$  и  $\varphi_H = \pi/4$ .

В (7)  $\epsilon_{\perp}$  — диэлектрическая проницаемость парафазы в базовой плоскости,  $\rho$  — плотность,  $s_{Ly}$  — скорость продольного звука вдоль оси  $y$ .

Магнитополевые зависимости скорости звука в конфигурации  $E_y, u_{yy}$  в сравнении с данными для конфигурации  $E_x, u_{xx}$  приведены на рис. 6. Спин-зависимый вклад в скорость звука в обеих конфигурациях в спин-флоп состоянии ( $H > 1,5$  Тл) максимален при  $\varphi_H = \pi/4$ . Это согласуется как с формулой (7), так и с соответствующим выражением для  $\Delta s/s$ , приведенным в [2]. Видно, что масштаб эффекта в первом случае в несколько раз превышает таковой для второго. Причина этого заключается в следующем. Как показано в [2], поведение  $\Delta s/s$  определяется двумя противоположно действующими факторами — ужесточением за счет перенормировки пьезомодуля в магнитоупорядоченной фазе и смягчением вследствие магнитоупругости. Этот вывод справедлив для любой геометрии эксперимента. На оси  $x$  эти два фактора в значительной степени компенсируют друг друга, в то время как на оси  $y$  при  $\varphi_H = \pi/4$  вклад пьезоэффекта полностью подавлен и остается в чистом виде только магнитоупругое взаимодействие. Высокополевое крыло  $\Delta s/s$  при этом также спрямляется в зависимости от  $H^{-2}$  (рис. 6(а), вставка). Используя значение  $\rho s_{Ly}^2 = 327$  ГПа [6] и  $\chi = 5,4 \cdot 10^{-4}$  [7], из наклона линейной аппроксимации получаем величину  $b \approx 1,45 \cdot 10^7$  Дж/м<sup>3</sup>. Это значение близко к прежней оценке [2] ( $b \approx 1,7 \cdot 10^7$  Дж/м<sup>3</sup>).

Из представленных на рис. 6 результатов видно, что скорость звука при  $\mathbf{q} \parallel \mathbf{H}$  в области полей, предшествующих спин-флоп переходу, проходит через достаточно глубокий минимум. Мы полагаем, что этот эффект обусловлен взаимодействием звука с доменными стенками, которые в предпереходной области выстраиваются ортогонально к приложенному полю.

Сформулируем в заключение основные результаты проведенных исследований. Изучено появление пьезоэлектричества в непьезоактивной (с точки зрения парафазы) конфигурации мультиферроика  $\text{SmFe}_3(\text{VO}_3)_4$ . Обнаружено несколько каналов возникновения пьезоэффекта. Косвенный ПЭ появляется в монодоменированной фазе антиферромагнетика в результате совместного действия магнитоэлектрического и магнитоупругого механизмов. Выделен вклад в изученные зависимости поверхностного пьезоэффекта, существующего и в парафазе, и опережающего объемный ПЭ любой природы примерно на четверть периода. Количественно значение «поверхностного» пьезомодуля отнюдь не мало, и по порядку величины согласуется с имеющимися теоретическими оценками. Мы полагаем, это обстоятельство обязательно должно учитываться при работе с нанообъектами. Измерено изменение скорости продольного звука в непьезоактивной конфигурации, оказавшееся заметно больше аналогичных показателей в противоположном случае, и показано, что

эти особенности хорошо описываются существующими феноменологическими выражениями.

1. Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц, *Электродинамика сплошных сред*, Наука, Москва (1982).
2. T.N. Gaydamak, I.A. Gudim, G.A. Zvyagina, I.V. Bilych, N.G. Burma, K.R. Zhekov, and V.D. Fil, *Phys. Rev. B* **92**, 214428 (2015).
3. И.В. Билыч, К.Р. Жеков, Т.Н. Гайдамак, И.А. Гудим, Г.А. Звягина, В.Д. Филь, *ФНТ* **42**, 1419 (2016) [*Low Temp. Phys.* **42**, 1112 (2016)].
4. P. Zubko, G. Catalan, and A. Tagantsev, *Ann. Rev. Mater. Res.* **43**, 387 (2013).
5. S. Dai, M. Gharbi, P. Sharma, and H.S. Park, *J. Appl. Phys.* **110**, 104305 (2011).
6. Т.Н. Гайдамак, И.А. Гудим, Г.А. Звягина, И.В. Билыч, Н.Г. Бурма, К.Р. Жеков, В.Д. Филь, *ФНТ* **41**, 792 (2015) [*Low Temp. Phys.* **41**, 614 (2015)].
7. 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* **93**, 305 (2011).

Piezoelectric response in  $\text{SmFe}_3(\text{BO}_3)_4$   
in a non-piezoactive configuration.  
Surface piezoelectricity

M.P. Kolodyazhnaya, G.A. Zvyagina, I.A. Gudim,  
I.V. Bilych, N.G. Burma, K.R. Zhekov, and V.D. Fil

The mechanisms of the onset of the piezoelectric effect in configurations that do not allow the occurrence of the piezoelectric response in the paramagnetic state by the symmetry have been investigated. In this paper, in contrast to the symmetry constraints, the existence of such a piezoelectric response was detected. It is assumed that the response is due to the surface on which no symmetry restrictions. In the magnetically ordered state in these configurations, the indirect piezoelectric effect consisting in the joint action of the magnetoelectric and magnetoelastic mechanisms symmetrically admitted and really observed.

PACS: **75.85.+t** Magnetoelastic effects,  
multiferroics;  
**77.65.-j** Piezoelectricity and electromechanical effects.

Keywords: magnetoelastic, piezoelectric and magnetoelastic effects, multiferroics.