УДК 537.621.2

К расчету коэффициентов жесткости доменных границ в магнитоэлектроупорядоченных системах в линейной и слабо нелинейной областях

Л.П. Петрова, Н.М. Игнатенко, А.С. Громков

Юго-Западный государственный университет (Курск, Россия)

On Calculation of the Stiffness Coefficients of Domain Boundaries in Magnetic and Electric Ordered Systems in Linear and Weakly Nonlinear Domains

L.P. Petrova, N.M. Ignatenko, A.S. Gromkov

Southwest State University (Kursk, Russia)

В работе, опираясь на макроскопический подход, проведены исследования особенностей динамики движения доменных границ, включая методологию расчета их коэффициента жесткости, являющегося одним из важнейших релаксационных параметров магнитоэлектроупорядоченных систем.

Предлагается алгоритм нахождения коэффициентов жесткости доменных границ (ДГ) в ферромагнетиках, сегнетоэлектриках и сегнетомагнетиках в линейной и слабо нелинейной области смещения ДГ под воздействием внешней силы. При этом последняя (на единицу ее площади) определяется как разность плотностей магнитоупругих (упругоэлектрических) энергий кристаллов для доменов, разделенных ДГ. Это связано с различием их энергий, из-за того что в каждом домене имеется своя ориентация векторов спонтанной намагниченности I_S и поляризации P_S при одних и тех же величинах компонент тензора внешних напряжений σ_{ij}. При этом искомые коэффициенты жесткости ДГ определяются как вторые производные по смещениям ДГ от энергий их упругой и магнитоупругой (упругоэлектрической) подсистем. Коэффициенты жесткости первого k_1 и второго k_2 порядка малости находятся аналогично через составляющие энергий подсистем кубичные и биквадратичные по смещению ДГ, т.е. по относительной деформации кристаллов.

Ключевые слова: ферромагнетики, сегнетоэлектрики, сегнетомагнетики, доменные границы, вектор спонтанной намагниченности, коэффициенты жесткости.

This paper presents the study of the features of domain boundaries dynamics based on the macroscopic approach. In addition, a methodology for the calculation of domain boundary stiffness coefficient due to its importance among the relaxation parameters of magnetic and electric ordered systems is included in the study.

The proposed algorithm allows the calculation of stiffness coefficients of domain boundaries (DB) in ferromagnetic, ferroelectric, and ferroelectromagnetic materials in linear and weakly nonlinear DB displacement areas caused by an external force. The external force is identified as the difference in the densities of magnetoelastic (electroelastic) energies of crystals for domains separated by the DB. It is related to the difference of their energies because each domain has its own orientation of spontaneous magnetization I_S and polarization P_S vectors at the same equal values of external stress components σ_{ij}. The desired stiffness coefficients of the DB are calculated as the second derivatives of magnetoelastic (electroelastic) subsystem energies with respect to DB displacements. The stiffness coefficients of the first k_1 and the second k_2 order of smallness are obtained in a similar way using cubic and biquadratic components of energies in terms of DB displacements, i.e. relative deformation of crystals.

Key words: ferromagnets, ferroelectrics, ferroelectromagnets, domain boundaries, spontaneous magnetization vector, stiffness coefficients.

DOI: 10.14258/izvasu(2022)1-08

Введение

Исследования, посвященные изучению формы и размеров доменной границы, а также изучению движения доменной границы, являются актуальными как в прикладной, так и в фундаментальной физике. Это связано с применением электромагнитоупорядоченных систем в современных технических устройствах как гражданского, так и двойного назначения. Среди множества публикаций можно выделить [1–6].

Данная работа посвящена исследованиям особенностей динамики движения доменной границы, нахождению коэффициента жесткости доменных границ в ферромагнетиках, сегнетоэлектриках, сегнетомагнетиках, слабых ферромагнетиках, антиферромагнетиках и антисегнетоэлектриках.

Одним из важнейших релаксационных параметров, предопределяющих интенсивность диссипации энергии в магнитоэлектроупорядоченных материалах (МЭУМ) [7], к которым можно отнести системы, содержащие домены и доменные границы (ДГ), является коэффициент жесткости доменных границ. Он содержит линейную часть k, равную отношению силы F_0, действующей на единицу площади ДГ, к ее смещению x, а также коэффициенты жесткости k_1 первого и k_2 второго порядков малости.

Нами предлагается способ нахождения этих коэффициентов в ферромагнетиках, сегнетоэлектриках, сегнетомагнетиках, слабых ферромагнетиках, антиферромагнетиках и антисегнетоэлектриках. k, k_1 и k_2 имеют по несколько составляющих, каждая из которых связана с конкретным механизмом взаимодействия ДГ с дефектами кристаллической решетки (моно-, би- и поливакансии, внедренные и примесные атомы, линейные дефекты и пр.). Влияние прогиба сегментов доменных границ, закрепленных в том числе линейными дефектами, на коэффициент жесткости доменных границ исследовано в работе [8]. Но, как будет видно ниже, ДГ имеют жесткость и в идеальных (бездефектных) магнетиках.

Методы исследования

При феноменологическом описании уравнение движения доменной границы (ДГ) можно представить в виде:

$$m\ddot{x} + \beta_c \dot{x} + kx = F_0 \cos \omega \cdot t, \tag{1}$$

где m, β_c — соответственно, масса единицы площади и коэффициент вязкости ДГ, а kx — упругая сила (в линейной области), действующая на ДГ при ее смещении на расстояния x (в квазистатическом приближении) от ее исходного положения. Коэффициент жесткости k некоторые авторы связывают с взаимодействием ДГ с включениями, т.е. дефектами кристаллической решетки, а k считают структурночувствительным параметром [9].

Однако в идеальном бездефектном кристалле также есть составляющие k, k_1 и k_2. Метод их нахождения в настоящей работе основан на определении силы F_0, движущей ДГ за счет либо упругого, либо электрического, либо магнитного поля. При этом используется макроскопический подход, впервые предложенный профессором, доктором физико-математических наук А.А. Родионовым [10, 11]

Рассмотрим два домена, разделенных 90° ДГ. Сила F_0, движущая эти границы, может быть найдена как разность объемных плотностей магнитоупругих энергий для соседних доменов, и возникает она тогда, когда эти энергии в поле упругих напряжений с тензором $\sigma_{ij} = \sigma \cos\beta_i \cdot \cos\beta_j$ (однородные деформации) неодинаковы, в то время как для системы 180° ДГ они совпадают. Здесь β_i — направляющие углы для приложенного напряжения относительно главных осей <100>, например, для железа, совпадающих с «легкими» осями кристалла, для которого магнитоупругая энергия по [12]

$$\begin{aligned} F_\sigma = &-\frac{3}{2}\lambda_{100}\left(\sigma_{11}\cos^2\alpha_1 + \sigma_{22}\cos^2\alpha_2 + \sigma_{33}\cos^2\alpha_3\right) - \\ &-3\lambda_{111}\left(\sigma_{12}\cos\alpha_1\cos\alpha_2 + \sigma_{23}\cos\alpha_2\cos\alpha_3 + \sigma_{13}\cos\alpha_1\cos\alpha_3\right). \end{aligned} \tag{2}$$

Здесь α_i — направляющие углы для намагниченности I_S для 90° ДГ, разделяющей домены с $I_S \parallel [100]$ и с $I_S \parallel [010]$ и лежащей в плоскости (010). Отсюда имеем

$$F_\sigma = -\frac{3}{2}\lambda_{100}\left(\cos^2\beta_1 - \cos^2\beta_2\right)\cdot\sigma. \tag{3}$$

Видно, что $F_\sigma \sim \sigma$, а потому все компоненты тензора магнитоупругой деформации $u_{ijM} = \dfrac{\partial F_\sigma}{\partial \sigma_{ij}}$ являются величинами независимыми от σ_{ij}, т.е. и от F_σ, а суммарная деформация состоит из гуковской u_{ij} и u_{ijM}, где первая линейно связана с σ, а вторая от σ не зависит. В этом случае энергия деформированного напряжением σ тела будет равна:

$$U_0 = \frac{1}{2}\left[\left(\sigma_{xx}u_{xx} + \sigma_{yy}u_{yy} + \sigma_{zz}u_{zz}\right) + \left(\sigma_{xy}u_{xy} + \sigma_{xz}u_{xz} + \sigma_{yz}u_{yz}\right)\right], \tag{4}$$

где $u_{ij} = u_{ij\Gamma} + u_{ijM}$.

При увеличении σ от нуля работа силы σ будет затрачиваться на возникновение энергии U_0 из (4). Если ДГ отпустить, то она под действием σ, а точнее F_0 из (1), сместится от исходного ее положения (при σ = 0).

Остановка ДГ произойдет тогда, когда противодействующая сила $F_0 = kx$ будет скомпенсирована созданным на нее давлением σ, т.е. $\frac{\partial U_0}{\partial x}$, если $U_0 = U_0(x)$. Если жесткость ДГ k, то $l_0\frac{\partial^2 U_0}{\partial x^2} = k$, где $l_0 = 1см$. В (4) деформации $u_{ijГ} \sim σ$. Т.е. упругая энергия $U_{0Г} \sim u^2_{ijГ} \sim σ^2$.

В то же время магнитоупругая ее составляющая $U_{0M} \sim σ$. Для нахождения коэффициента жесткости k от U_0 надо брать вторые производные. Это значит, что энергия U_{0M} вклада в жесткость ДГ не дает.

Запишем выражение для силы F_0 в (1) в общем виде. Обозначая спонтанную намагниченность в доменах a и b через $\vec{I}_a$, $\vec{I}_b$, направления приложенного напряжения определяем через $σ_{ij} = σ\cos β_i \cos β_j$, для силы F_0 получаем соотношение:

$$F_0 = F_σ(α_a, σ, β_i, β_j) - F_σ(α_b, σ, β_i, β_j) = φ(α_a, α_b, β_i, β_j)σ, \tag{5}$$

где $α_a$ — направляющие углы вектора спонтанной намагниченности в домене $α$, а φ — функция, зависящая от $α_a, α_b, β_i, β_j$. Тогда $σ = \frac{F_0}{φ(α_a, α_b, β_i, β_j)}$.

Беря далее в энергии только ее составляющую, квадратную по σ, ибо магнитоупругая энергия вклада для двухдоменной системы коэффициент жесткости не дает, выражаем U_0 через x. Беря далее для u_{ij} только гуковскую деформацию, записываем упругую энергию в виде (например, для кристалла с кубической кристаллической решеткой):

$$\begin{aligned} U_0 &= \frac{l_0}{2}\left[\left(\frac{\sigma^2_{xx}+\sigma^2_{yy}+\sigma^2_{zz}}{c_1}\right)+\left(\frac{\sigma_{xx}\sigma_{yy}+\sigma_{xx}\sigma_{zz}+\sigma_{yy}\sigma_{zz}}{c_2}\right)+\left(\frac{\sigma^2_{xy}+\sigma^2_{xz}+\sigma^2_{yz}}{c_3}\right)\right]= \\ &= \frac{T}{2}\left(\beta_i,\beta_j,c_1,c_2,c_3\right)\sigma^2 = \frac{Tk^2x^2}{2\varphi^2}, \end{aligned} \tag{6}$$

где c_1, c_2, c_3 — компоненты тензора модуля упругости по [13].

Отсюда

$$k = l_0\frac{\partial^2 U_0}{\partial x^2} = \frac{Tk^2}{φ^2}, \text{ т.е. } k = \frac{φ^2}{T}. \tag{7}$$

Результаты и обсуждение

Используя (2), например, для 90° ДГ железа с $\vec{I}_a \parallel [100]$, $\vec{I}_b \parallel [010]$, величина $\varphi = -\frac{3}{2}\lambda_{100}\left(\cos^2\beta_1 - \cos^2\beta_2\right)$. Заметим, что l_0U_0 в (5) имеет размерность эрг/см², поскольку, как и энергия $\frac{kx^2}{2}$, она реализуется на поверхности доменной границы. Произведем оценку величины k по (7), где $φ = 2{,}5 \cdot 10^{-5}$, $T = \frac{l_0}{c_1} \cong \frac{1см^3}{2\cdot 10^9 дин}$, т.е. $k = 6{,}25 \cdot 10^{-10} \cdot 2 \cdot 10^9 \approx 12 \cdot 10^{-1}\frac{дин}{см^3}$ по порядку величины. Для получения более общего и точного значения k необходимо выбрать $\vec{I}_a$, $\vec{I}_b$ и углы $β_i$, а также учесть значения c_1, c_2, c_3 из (6). Таким образом, в бездефектном кристалле железа с плоской ДГ $k \sim 1{,}2\frac{дин}{см^3}$. При таких значениях коэффициента жесткости для железа при массе ДГ на единицу ее площади $1{,}2 \cdot 10^{-10}$ *г/см²* получается $ω_0 \sim 10^5$*рад/с*, что согласуется с опытом.

Найдем также коэффициенты жесткости первого и второго порядка по [14], считая в квазистатическом приближении, что $F_0 = kx + k_1x^2 + k_2x^3$. Так, записывая $U_0(x)$ с учетом, например, модулей 1 и 2 порядков и опуская слагаемые квадратичные по σ, поскольку $k_1 = \frac{\partial^3 U_0(x)}{\partial x^3} = k$, получаем:

$$\Delta U_0 = l_0[c_{11}\left(u^3_{xx}+u^3_{yy}+u^3_{zz}\right)+c_{21}\left(u^2_{xx}u_{yy}+u^2_{zz}u_{xx}+u^2_{yy}u_{zz}\right)+c_{31}\left(u^3_{xy}+u^3_{xz}+u^3_{yz}\right)], \tag{8}$$

где c_{1i} — модули упругости первого порядка малости, которые можно найти, по-видимому, лишь из эксперимента. Выражая компоненты тензора деформации u_{ij} через σ_{ij} с привлечением модулей нулевого порядка c_i, получаем:

$$\Delta U_0 = [\frac{c_{11}\left(\cos^6\beta_1+\cos^6\beta_2+\cos^6\beta_3\right)}{c_1^3}+ \\ +\frac{c_{21}\left(\cos^4\beta_1\cos^2\beta_2+\cos^4\beta_3\cos^2\beta_1+\cos^4\beta_2\cos^2\beta_3\right)}{c_2^3}+ \\ +\frac{c_{31}\left(\cos^3\beta_1\cos^3\beta_2+\cos^3\beta_1\cos^3\beta_3+\cos^3\beta_2\cos^3\beta_3\right)}{c_3^3}]\cdot\sigma^3. \tag{9}$$

Отсюда $l_0\Delta U_0 = \frac{D(\beta_i,\beta_j,c_{i1},c_i)\cdot k^3x^3}{\varphi^3}$, где в $F_0 = (kx + k_1x^2)^3$ мы ограничились ввиду относительной малости остальных слагаемых, величиной k^3x^3, ибо уже слагаемым $3k^2k_1x^4$ можно пренебречь.

Тогда $\frac{\partial^3(l_0U_0)}{\partial x^3} = k_1 = \frac{D}{\varphi^3}k^3$. Т.е. коэффициент жесткости ДГ первого порядка малости k_1 выражается через структурные постоянные кристалла и уже найденную величину k. Для нахождения коэффициента жесткости ДГ второго порядка k_2 записываем δU_0 — составляющие U_0 биквадратичные по u_{ij}, а значит, $\sim \sigma^4$:

$$\delta U_0 \cong [\frac{c_{12}\left(\cos^8\beta_1+\cos^8\beta_2+\cos^8\beta_3\right)}{c_1^4}+ \\ +\frac{c_{22}\left(\cos^4\beta_1\cos^4\beta_2+\cos^4\beta_1\cos^4\beta_3+\cos^4\beta_2\cos^4\beta_3\right)}{c_2^3}+ \\ +\frac{c_{32}\left(\cos^2\beta_1\cos^6\beta_2+\cos^2\beta_1\cos^6\beta_3+\cos^2\beta_3\cos^6\beta_1\right)}{c_3^4}]\cdot\sigma^4. \tag{10}$$

где $\sigma^4 \cong \frac{k^4x^4}{\varphi^4}$ с отбрасыванием величины высшего порядка малости.

Отсюда

$$\frac{\partial^4(l_0\delta U_0)}{\partial x^4} = k_2 = E(\beta_i, \beta_j, c_i, c_{12}, c_{22}, c_{32})\left(\frac{\partial^4 k^4x^4}{\partial x^4\varphi^4}\right) = \frac{24Ek^4}{\varphi^4}. \tag{11}$$

Из (10) и (11) аналогично видно, что $k > k_1 > k_2$.

Таким образом, можно находить также коэффициенты жесткости ДГ в сегнетоэлектриках, ферритах, сегнетомагнетиках. Величина F_0 при этом по-прежнему определяется как разность упругоэлектрической составляющей энергии для соседних доменов, разделенных ДГ, в которых компоненты σ_{ij} одинаковы в обоих соседних доменах, а векторы спонтанной поляризации $\vec{P}_a$ и $\vec{P}_b$ разные. При этом, например, в титанате бария упругоэлектрическая энергия — это электрострикционная составляющая термодинамического потенциала $\sim \sigma \cdot P^2$, а в сегнетовой соли есть еще и пьезострикционная его часть, которая пропорциональна $\sim \sigma \cdot P$, т.е. вклад в F_0 в сегнетовой соли дают обе стрикции для 90° ДГ, однако в l_0U_0 входит только упругая энергия сегнетокристалла.

Для титаната бария, пренебрегая малой степенью его тетрагональности, записываем:

$$F_e = \frac{1}{2}c_1\left(u_{xx}^2+u_{yy}^2+u_{zz}^2\right)+c_2\left(u_{xx}u_{yy}+u_{xx}u_{zz}+u_{yy}u_{zz}\right)+2c_3\left(u_{xy}^2+u_{xz}^2+u_{yz}^2\right). \tag{12}$$

Выражая отсюда из системы $\frac{\partial F_e}{\partial u_{ij}} = \sigma_{ij}$ компоненты u_{ij} через σ_{ij} и вынося общий множитель в правой части (12), получаем $F_e = \Phi(c_1, c_2, c_3, \beta_1, \beta_2, \beta_3)\sigma^2$. Для нахождения величины силы F_0, движущей ДГ, разделяющей домены с $P_{01} = P_0$ и с $P_{02} = P_0$, разность упругоэлектрических энергий $F_{e1} - F_{e1} = F_0 = \Phi\sigma^2 = P_0^2\ (\chi_1 - \chi_2)(\cos^2\beta_1 - \cos^2\beta_2)\sigma^2$ по [8], где χ_1 и χ_2 компоненты тензора электрострикции. Здесь предполагается, что нет сопровождающего электрического поля или упругого, которые могут создавать индуцированную поляризацию $p << P_0$. Далее для нахождения жесткости этой ДГ вводим обозначение $F_0 = T \cdot \sigma$ и получаем $l_0 \frac{\partial^2}{\partial x^2}\left(\frac{\Phi k^2 x^2}{T^2}\right) = k = \frac{2\Phi k^2}{T^2}$.

В перовскитовых сегнетомагнетиках структурная составляющая термодинамического потенциала (упругая, упругоэлектрическая, магнитоупругая) такая же, как и в титанате бария. При наложении σ ДГ смещается за счет сил F_{01} и F_{02}, действующих на ДГ, а суммарная жесткость $k_z = k_p + k_j$.

Для сегнетовой соли (квасцы) можно показать, что:

$$F_0 = q_{25}P_0\sigma_{31} + \chi_{22}P_0^2\sigma_{22} + \chi_{23}P_0^2\sigma_{33} - q_{14}P_0\sigma_{23} - \chi_{11}P_0^2\sigma_{11} - \chi_{12}P_0^2\sigma_{22} - \chi_{13}P_0^2\sigma_{33} \quad (13)$$

Если, например, магнитное поле силой F_1 тянет ДГ влево, а электрическое вправо силой F_2, то эта ДГ при критическом значении суммарной растягивающей ее силы может расщепиться на ее составляющие, если при этом превышается удерживающая ее сила, наведенная магнитоэлектрической энергией $(F_1 + F_2)_{кр} = \frac{\partial W_{ме}}{\partial x}$. Измеряя поля $H_{кр}$ и $e_{кр}$, когда ДГ разрывается, можно оценить магнитоэлектрическую энергию W_{me}.

Здесь q_{ij} — компоненты тензора пьезострикции, а χ_{ij} — электрострикции. Энергия же F_e, необходимая для нахождения жесткости ДГ k по [13], равна

$$\frac{1}{2}c_1u_{xx}^2 + \frac{1}{2}c_2u_{yy}^2 + \frac{1}{2}c_3u_{zz}^2 + c_4u_{xx}u_{yy} + c_5u_{xx}u_{zz} + c_6u_{yy}u_{zz} + 2c_7u_{xy}^2 + 2c_8u_{xz}^2 + 2c_9u_{yz}^2 +$$
$$+2c_{10}u_{xx}u_{xy} + 2c_{11}u_{yy}u_{yx} + 2c_{12}u_{xy}u_{zz} + 4c_{13}u_{xz}u_{yz}.$$

В случае если ДГ 180° и располагаются в плоскости (010) в одном домене, а $P_{01} = P_0$, а в соседнем $P_{01} = -P_0$, из (13) получаем, что сила $P_0 = 2q_{14}P_0\sigma_{23}$.

Порядок величины этой критической силы $(F_1 + F_2)_{кр}$, а значит, и полей $H_{кр}$ и $e_{кр}$ определяется из соотношения $\frac{F_{кр}}{2}\delta = l_0 W_{ME}$, где δ толщина совмещенной ДГ сегнетомагнетика. Здесь $F_1 = I_s H_{кр}$, а $F_2 = e_{кр}P_s$.

Заключение

Предложенный алгоритм поиска величин k, k_1 и k_2 применим для ферромагнетиков, сегнетоэлектриков и сегнетомагнетиков. Однако он работает также и для антиферромагнетиков, в которых магнитный вектор изначально (до наложения внешних полей) нулевой, и мультиферроиков (слабые ферромагнетики, у которых по модулю магнитный вектор заметно меньше спонтанных намагниченностей его подрешеток), а также пригоден и для антисегнетоэлектриков. То же самое можно сказать и о нахождении силы F_0, движущей ДГ, в бездефектных (идеальных) кристаллах. При наличии же несовершенств в них к найденным значениям k, k_1 и k_2 для идеальных МЭУМ необходимо добавить соответствующие составляющие, учитывающие все необходимые параметры этих несовершенств.

Библиографический список

1. Williams H.J., Walker J.G. Domain Patterns on Nickel // Phys. Rev. Vol. 83. Iss. 3. 1951. DOI: 10.1103/PhysRev.83.634.

2. Gumerov A.M., Ekomasov E.G., Kudryavtsev R.V., Fakhretdinov M.I. The effect of dissipation and an external magnetic field on the resonance dynamics of a domain wall in a five-layer ferromagnetic structure // Letters on Materials. 10 (3). 2020. DOI: 10.22226/2410-3535-2020-3-260-265.

3. Hrabec A. Domain wall dynamics in magnetic nanostructures : Effect of magnetic field and electric current. Materials Science [cond-mat.mtrl-sci]. Université de Grenoble, 2011. English. NNT : 2011GRENY056.

4. Belashchenko K.D., Tchernyshyov O., Kovalev A.A., Tretiakov O.A. Magnetoelectric domain wall dynamics and its implications for magnetoelectric memory // Applied Physics Letters. 108, 132403 (2016). DOI: 10.1063/1.4944996.

5. Evans D.M., Garcia V., Meier D., Bibes M. Domains and domain walls in multiferroics // Physical Sciences Review. Vol. 5. № 9. 2020. DOI: 10.1515/psr-2019-0067.

6. Шамсутдинов М.А., Назаров В.Н., Харисов А.Т. Введение в теорию доменных стенок и солитонов в ферромагнетиках : учебное пособие. Уфа, 2010.

7. Родионов А.А., Игнатенко Н.М. Упругие и неупругие явления в сегнетоэлектриках в области линейного отклика : монография. Курск, 2006.

8. Гадалов В.Н., Родионов А.А., Самойлов В.В. О коэффициенте жесткости доменных границ в магнитоэлектроупорядоченных системах, связанном с прогибом их сегментов во внешних полях // Фундаментальные исследования. 2012. № 6–3.

9. Мишин Д.Д. Магнитные материалы. М., 1981.

10. Родионов А.А. Релаксационные эффекты в ферромагнетиках в сложных полях : дисс. … д-ра физ.-мат. наук. Курск, 1994.

11. Петрова Л.П. Диссипация волновых процессов, генерируемых в магнетиках переменным магнитным и упругим полем : дисс …. канд. физ.-мат. наук. Курск, 2004.

12. Кринчик Г.С. Физика магнитных явлений. М., 1976.

13. Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. Теоретическая физика. Т. VII. Теория упругости. М., 1965.

14. Постников В.С. Внутреннее трение в металлах. М., 1969.