

Магнитная динамика в мультиферроике
 $\text{TbFe}_3(\text{VO}_3)_4$

Авторы работы: **А.К. Овсяников**, И.В. Голосовский,
М. Boehm, L-P. Regnault, А.А. Мухин

Мотивация

Для приложений современной электроники важно управление и контроль над магнитными и электрическими свойствами материалов. Перспективным направлением для решения этой задачи является использование мультиферроиков - материалов обладающих магнитоэлектрическим эффектом.

1. Семейство $RM_3(BO_3)_4$ (где $R=Y, La-Lu$; $M=Al, Fe$):

- $HoAl_3(BO_3)_4$ - значение поляризации 3600 мкКл/м^2 при поле 70 кЭ (рекорд на 2012 год)
- $SmFe_3(BO_3)_4$ - гигантский магнитоэлектрический эффект, диэлектрическая постоянная возрастает в 3 раза при понижении температуры от $T_N = 40 \text{ К}$ до 4.2 К

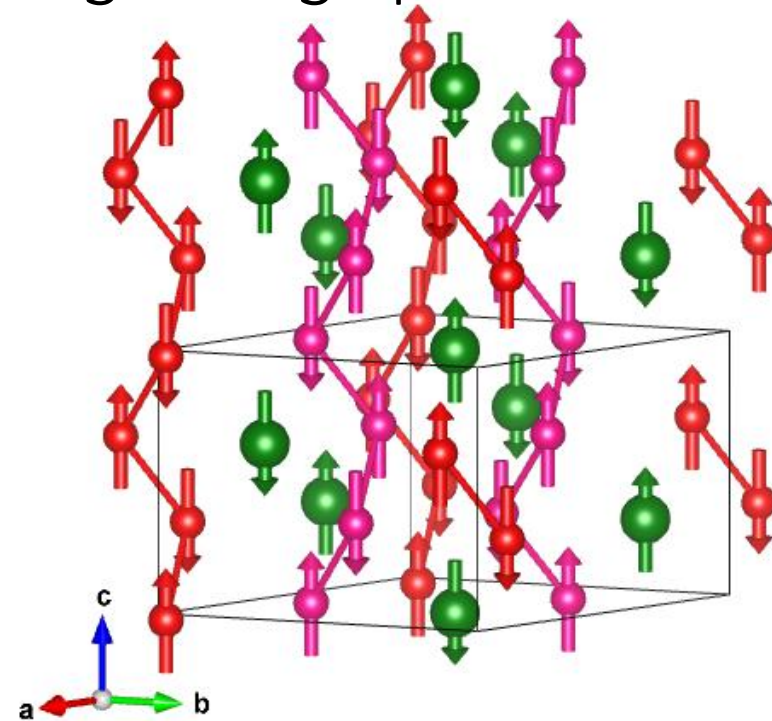
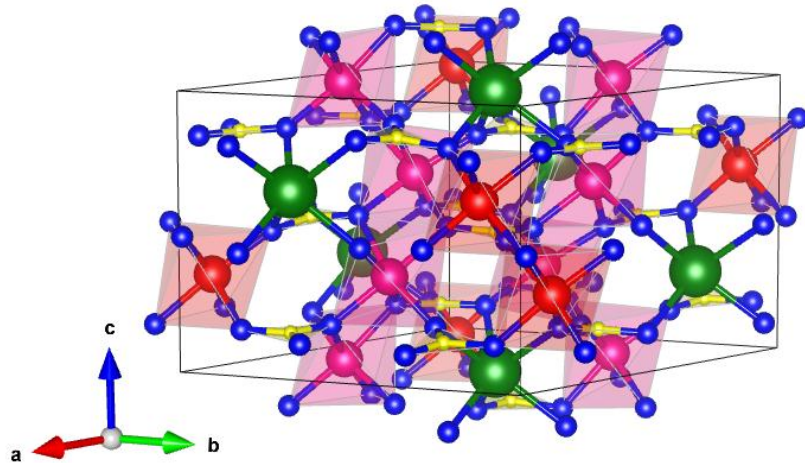
2. Объекты исследований – система $Nd_{1-x}Tb_xFe_3(^{11}BO_3)_4$.

$NdFe_3(BO_3)_4$ обладает магнитной структурой типа «легкая плоскость», а $TbFe_3(BO_3)_4$ - «легкая ось».

N. I. Leonyuk, V.V. Maltsev, E.A. Volkova et al., Opt.Mater. 30, 161 (2007).

А.А. Мухин и др. Письма в ЖЭТФ, 93,305. (2011).

Структура $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$



При комнатной температуре структура $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$ соответствует группе $R32$.

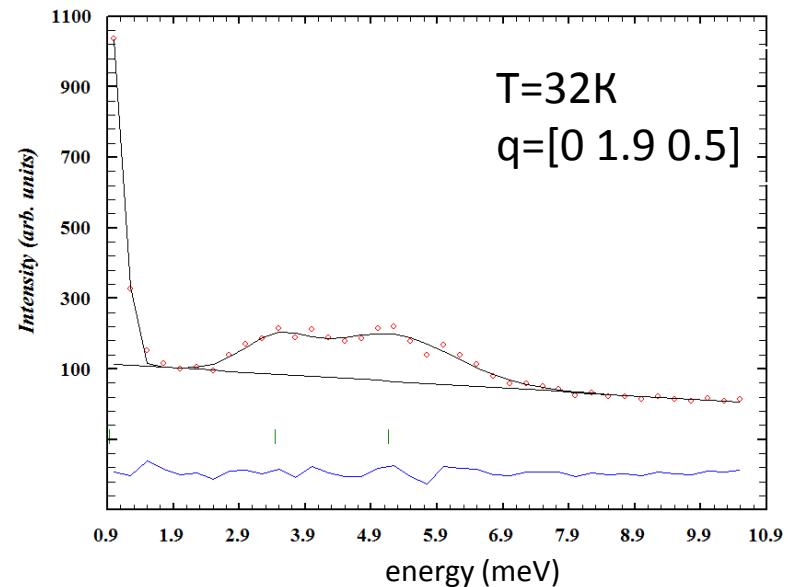
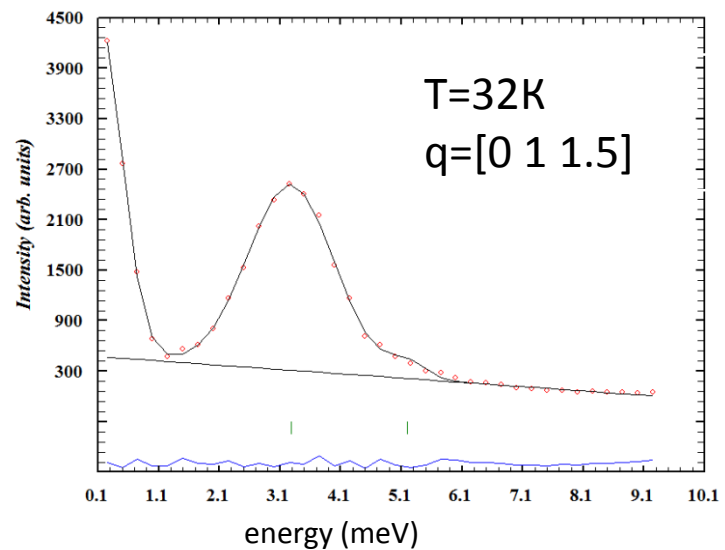
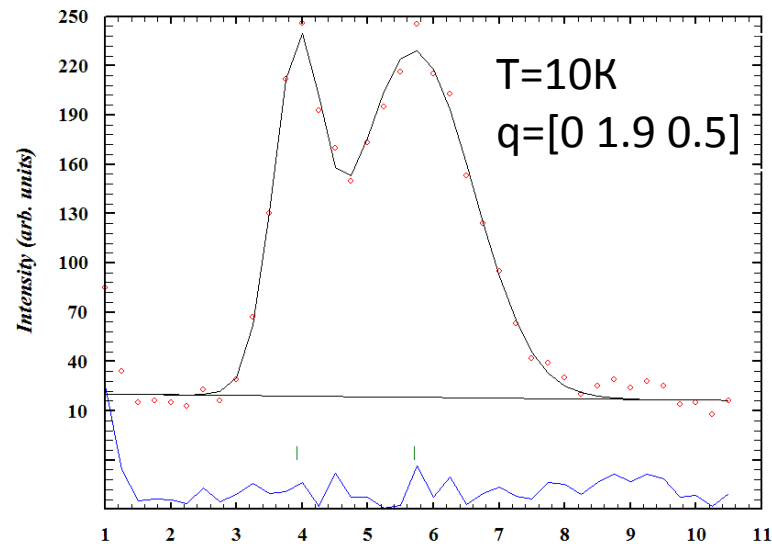
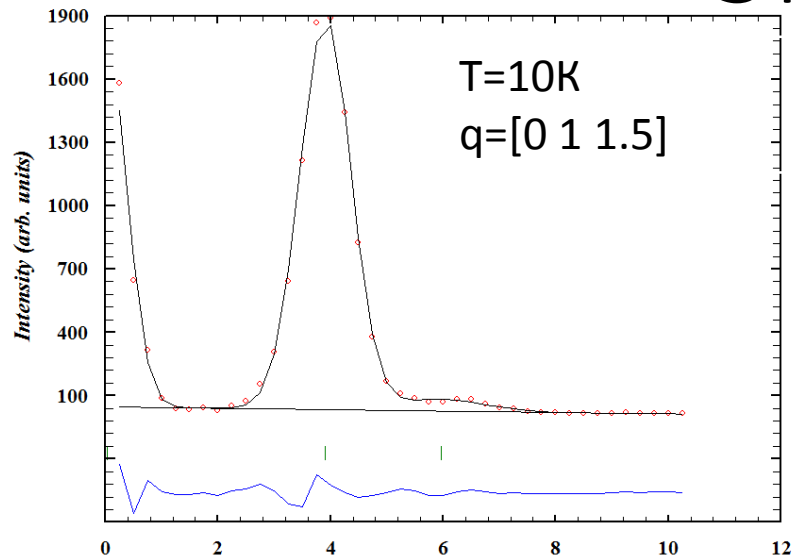
$T_s = 192\text{K}$ - структурный фазовый переход к пространственной группе $P3_1 21$.

$T_N = 41\text{K}$ - соразмерная магнитная структура с вектором распространения $k = [0\ 0\ 1/2]$.

Ионы Fe^{3+} занимают позиции $3a$ и $6c$ (красный и розовой соответственно) образуют цепочки расположенные вдоль оси c . Ионы Tb^{3+} занимают позицию $3a$, обозначены зелёным цветом.

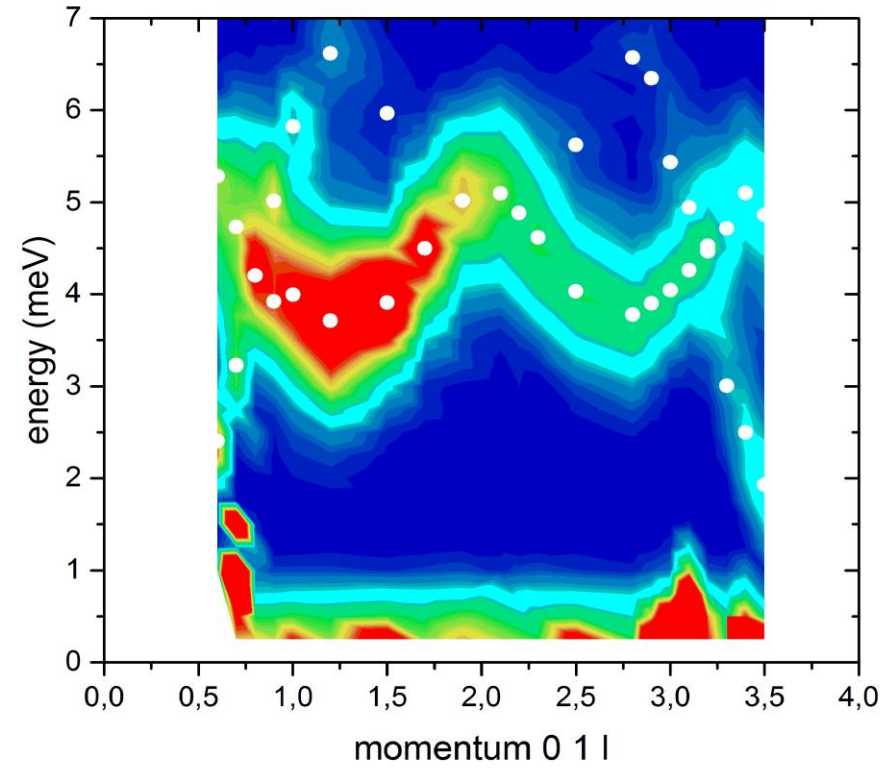
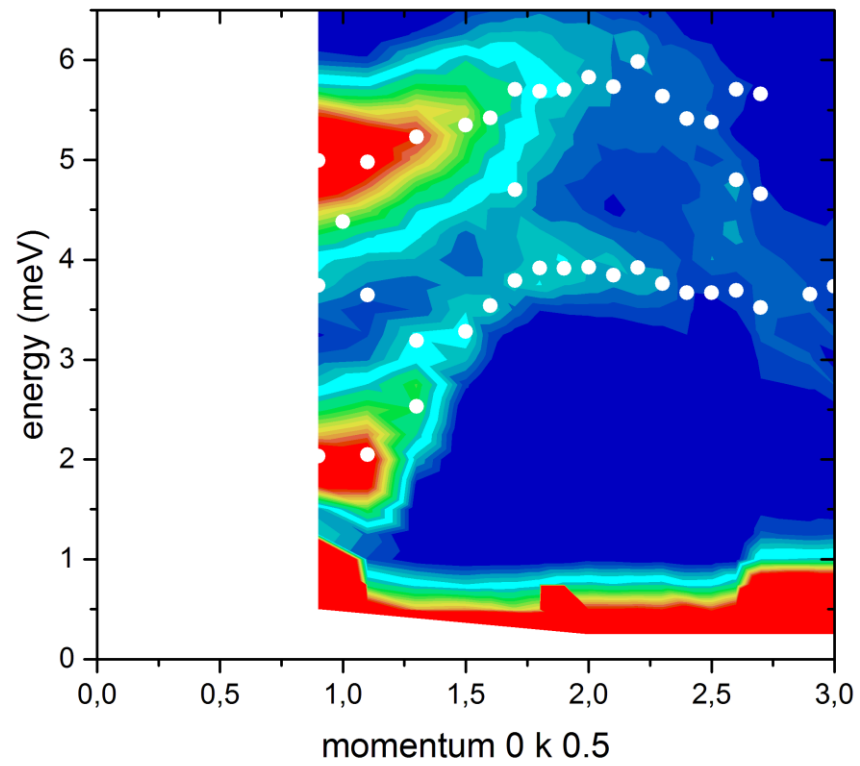
Магнитные моменты Fe^{3+} и Tb^{3+} противоположно направлены и лежат параллельно оси c

Эксперимент



Эксперименты по неупругому рассеянию нейтронов выполнены в институте Лауэ-Ланжевена на приборе IN22. Температуры измерений $T=10\text{K}$ и $T=32\text{K}$, направления $q=[0\ 1\ l]$, $q=[0\ k\ 0.5]$.

Эксперимент



Карты интенсивностей измеренных при $T=10\text{ K}$ для направлений $q=[0\ 1\ l]$, $q=[0\ k\ 0.5]$.

Теория спиновых волн

1. Запишем Гамильтониан системы:

$$H = -\sum_{ij} J_{ij} \cdot \vec{S}_i \vec{S}_j$$

где S_j – векторный оператор спина, J_{ij} – обменные интегралы. Положительный(отрицательный) знак обмена J_{ij} соответствует антиферромагнитному (ферромагнитному) обменному взаимодействию.

2. Введём операторы повышения и понижения полного спина на единицу $S^+ = S_x + iS_y$ и $S^- = S_x - iS_y$, ось квантования z направлена вдоль направления спина.

3. Подход Гольштейна-Примакова для спиновых операторов:

$$\begin{cases} S_i^+(r_i) = \sqrt{2S}a_i = \sqrt{2S}b_i^+ \\ S_i^-(r_i) = \sqrt{2S}a_i^+ = \sqrt{2S}b_i \\ S_i^z = S - a_i^+ a_i = -S + b_i^+ b_i \end{cases}$$

где a_i, b_i (a_i^+, b_i^+) операторы рождения (уничтожения) спиновой волны в ферромагнитных подрешетках с противоположным направлением спина; i - номер кристаллической подрешетки.

4. Переход к операторам $a_{q,i}, b_{q,i}$ описывающие спиновую волну с волновым вектором q .

$$a_{q,i} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{r_i} a_i(r_i) e^{-iqr_i} \quad b_{q,i} = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{r_i} b_i(r_i) e^{iqr_i}$$

где N – число элементарны ячеек.

Теория спиновых волн

Гамильтониан в виде квадратичной формы по бозонным операторам

$$\hat{H} = \sum_q \sum_{ij} A_{ij}(q)(a_{q,i}^+ a_{q,j} + b_{q,i}^+ b_{q,j}) + \sum_{ij} [B_{ij}(q)a_{q,i} b_{q,j} + h. c.]$$

5. Для нахождения спектра спиновых волн используется уравнение Гейзенберга для операторов "рождения" и "уничтожения" и получается система линейных уравнений вида:

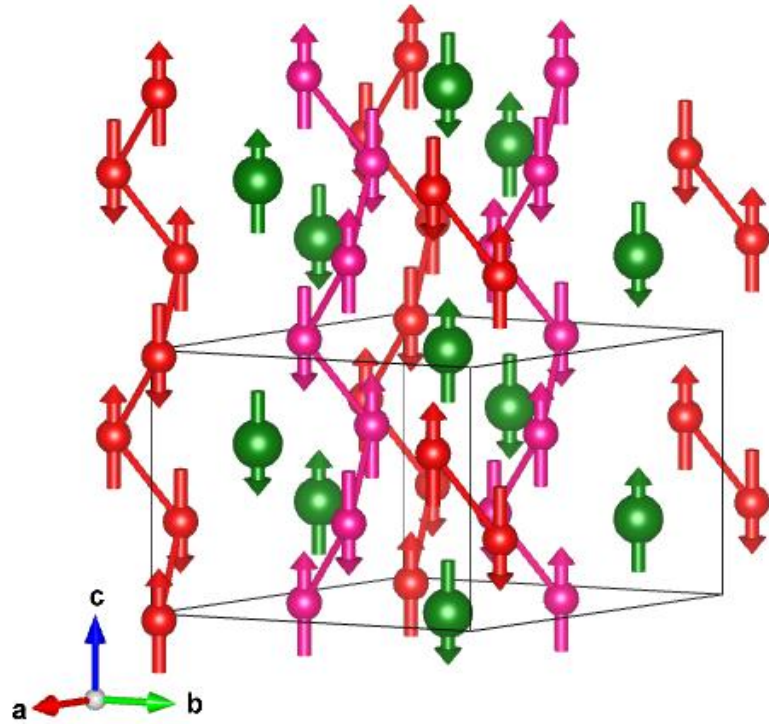
$$\omega^2(q) = (A + B)(A - B)$$

где A и B – матрицы, зависящие от обменных параметров, значений спинов и взаимном расположении взаимодействующих атомов.

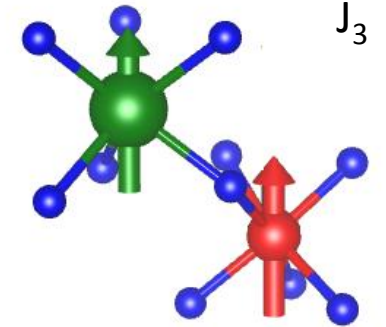
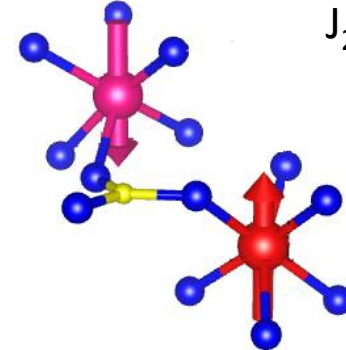
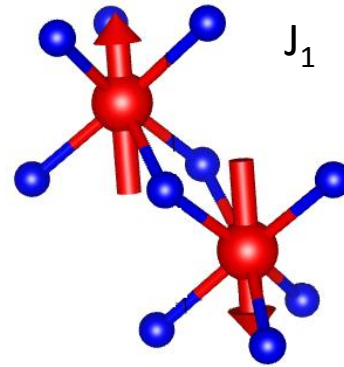
6. В более сложных случаях в расчетах возможно учитывать не гейзенберговский обмен, взаимодействие Дзялошинского-Мория, анизотропию, внешнее поле и т.д.

$$J = \begin{bmatrix} J_x & 0 & 0 \\ 0 & J_y & 0 \\ 0 & 0 & J_z \end{bmatrix} \quad D = \begin{bmatrix} 0 & D_z & -D_y \\ -D_z & 0 & D_x \\ D_y & -D_x & 0 \end{bmatrix} \quad A_{easy-plane} = \begin{bmatrix} -A_x & 0 & 0 \\ 0 & -A_x & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad B_{mag} = \begin{bmatrix} B_x \\ B_y \\ B_z \end{bmatrix}$$

Моделирование

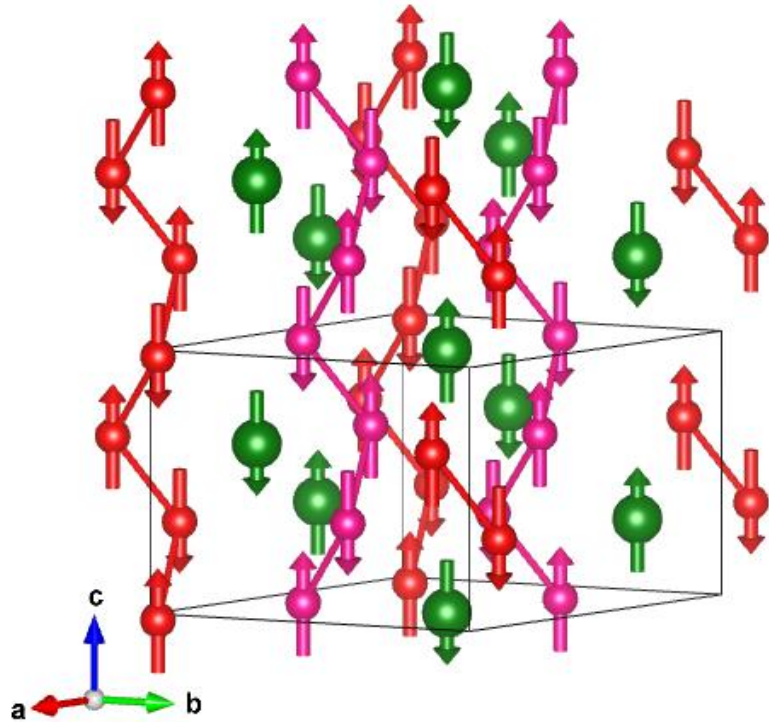


Красным и розовым цветом обозначены атомы Fe, зелёный – Tb, желтый – V, синий – O.



Обозначение обменных параметров и участвующие атомы	Расстояние (Å)
J_1 Fe-Fe, внутри цепочечное	3.185
J_2 Fe-Fe, междцепочечное, ближайшие соседи	4.409
J_3 Fe-Tb, ближайшие соседи	3.788

Моделирование



Красным и розовым цветом обозначены атомы Fe, зелёный – Tb.

Номер координационной сферы	Обозначение обменных параметров и участвующие атомы	Расстояние (Å)	Координационное число Z
1	J_1 Fe-Fe, внутри цепочечное	3.185	2
2	J_3 Fe-Tb, ближайшие соседи	3.788	6
3	J_4 Fe-Tb, в плоскости	4.312	3
4	J_2 Fe-Fe, междоцепочечное, ближайшие соседи	4.409	2
5	J_5 Fe-Fe, междоцепочечное в плоскости	4.870	4
6	J_6 Fe-Fe внутри цепочечное, следующие за ближайшими	5.424	2
7	J_7 Fe-Tb,	5.796	3
8	J_8 Fe-Fe междоцепочечное, следующие за ближайшими	6.091	6

Моделирование

1. Запишем Гамильтониан системы:

$$H = - \sum_{Fe-Fe} J_{ij} \cdot \vec{S}_i \vec{S}_j - \sum_{Fe-Tb} J_{mn} \cdot \vec{S}_m \vec{S}_n$$

Гамильтониан в виде квадратичной формы по бозонным операторам

$$\hat{H} = \sum_q \sum_{ij} A_{ij}(q) (a_{q,i}^+ a_{q,j} + b_{q,i}^+ b_{q,j}) + \sum_{ij} [B_{ij}(q) a_{q,i} b_{q,j} + h.c.]$$

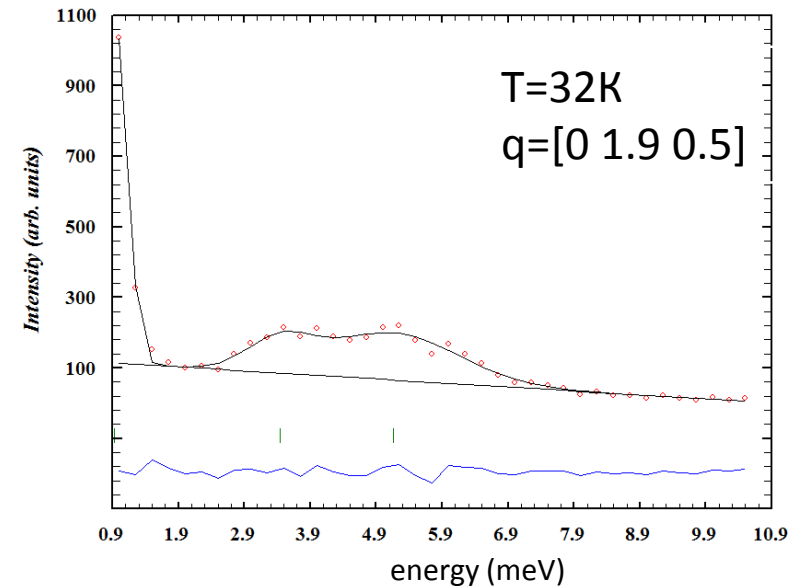
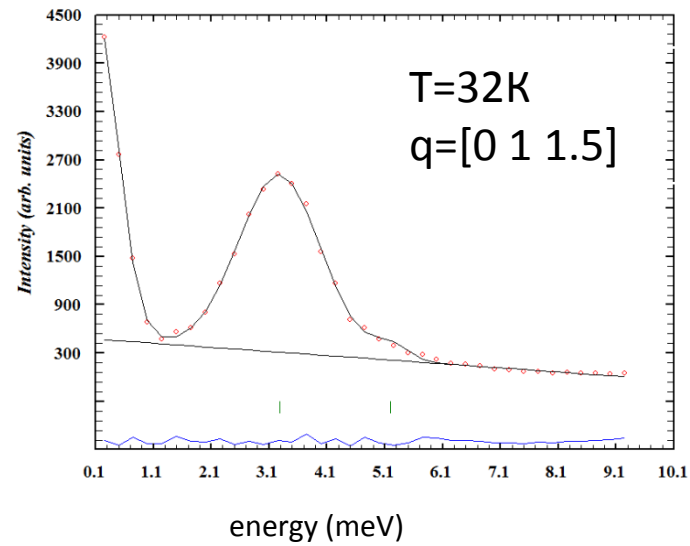
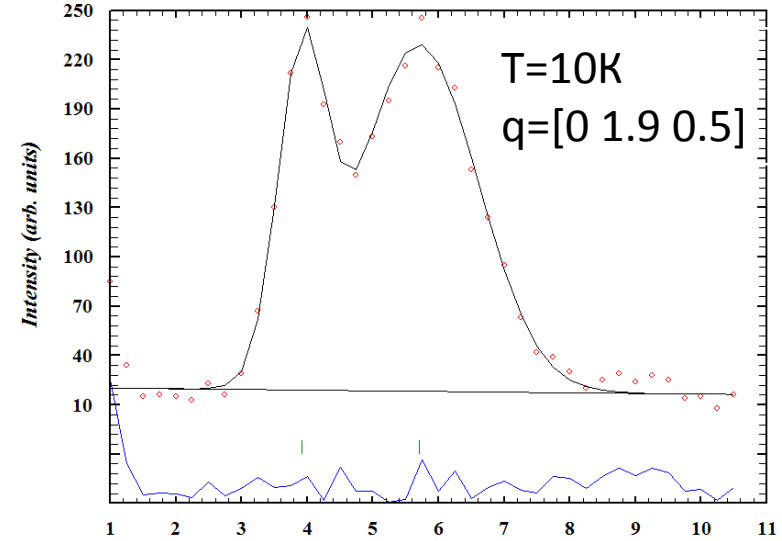
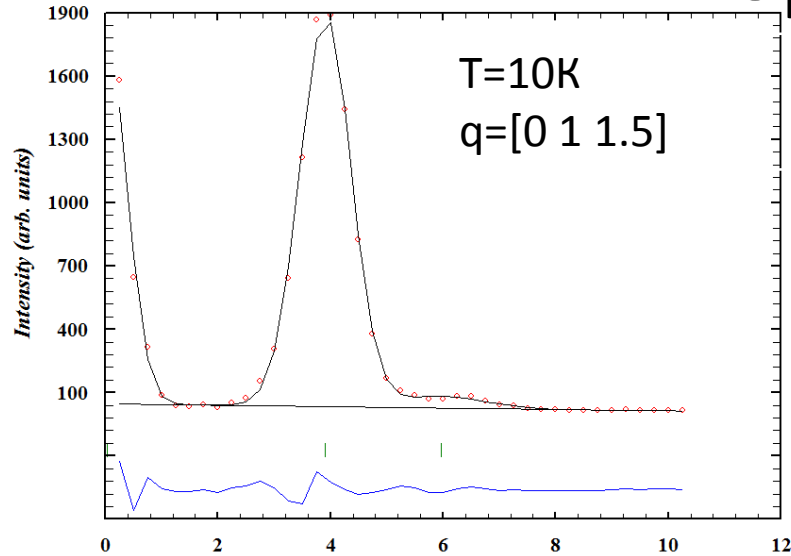
В магнитной ячейки находится 24 магнитных атома, что даёт 24 дисперсионные кривые, а матрицы А и В имеют размерность 48x48.

Измерения выполнены при температурах T=10K и T=32K , следовательно в гамильтониане системы требуется использовать средние значения спина Fe³⁺ и полного углового момента Tb³⁺ - $\langle S_{Fe} \rangle$ и $\langle s_{Tb} \rangle$, которые зависят от температуры.

$$m_{Fe} = g_s \mu_B \langle S_{Fe} \rangle \qquad m_{Tb} = \frac{g_j}{(g_j - 1)} \mu_B \langle s_{Tb} \rangle$$

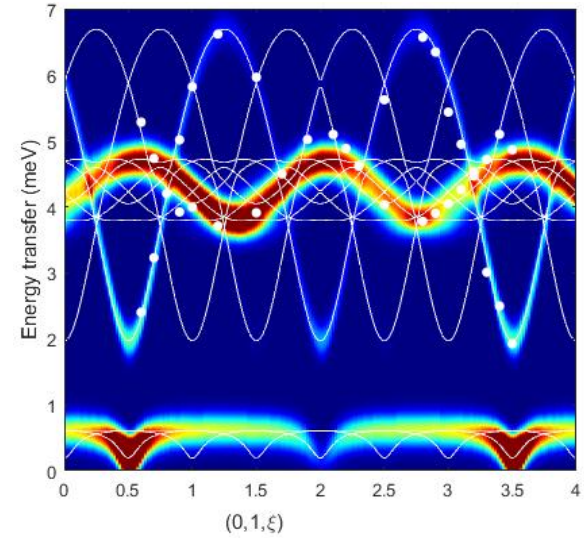
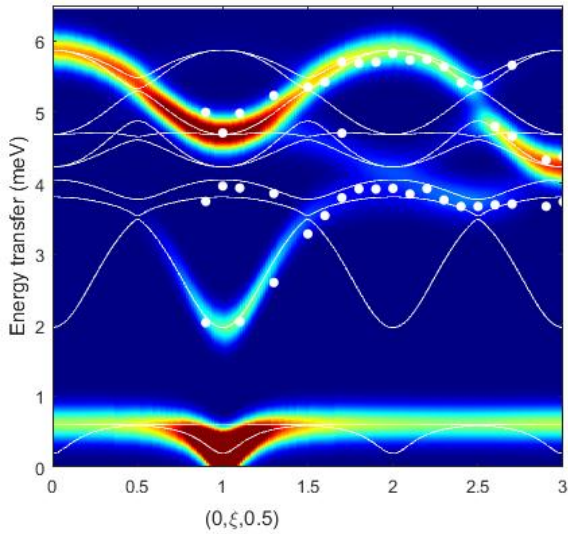
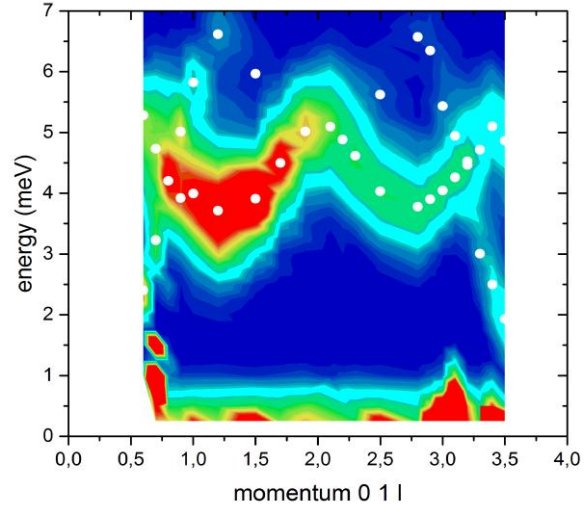
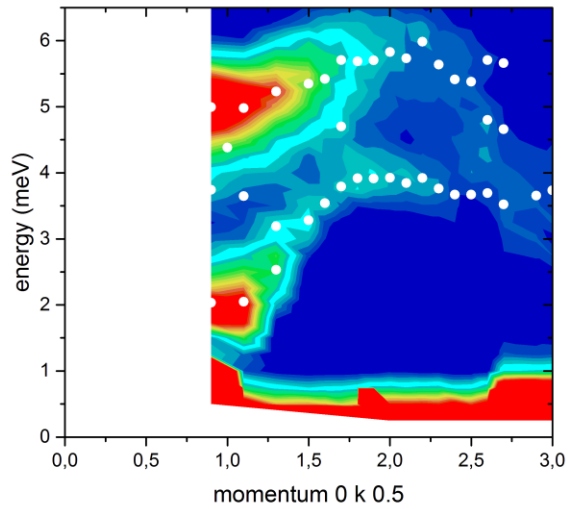
где m_{Fe} и m_{Tb} – магнитные моменты Fe и Tb, соответственно; $g_s = 2$ – спиновый g-фактор Fe; $g_j = \frac{3}{2}$ – фактор Ланде; μ_B – магнетон Бора. Для температуры T=10K средние значения составляют $\langle S_{Fe} \rangle \approx 2.2$ и $\langle s_{Tb} \rangle \approx 2.83$.

Моделирование



Эксперименты по неупругому рассеянию нейтронов выполнены в институте Лауэ-Ланжевена на приборе IN22. Температуры измерений $T=10\text{K}$ и $T=32\text{K}$, направления $q=[0\ 1\ l]$, $q=[0\ k\ 0.5]$.

Результаты и обсуждение



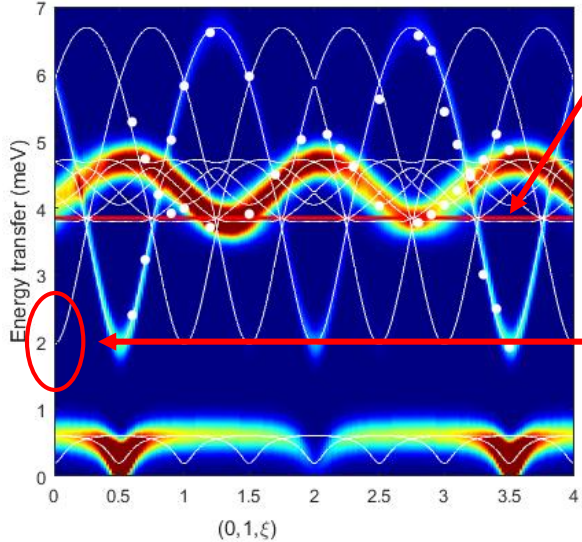
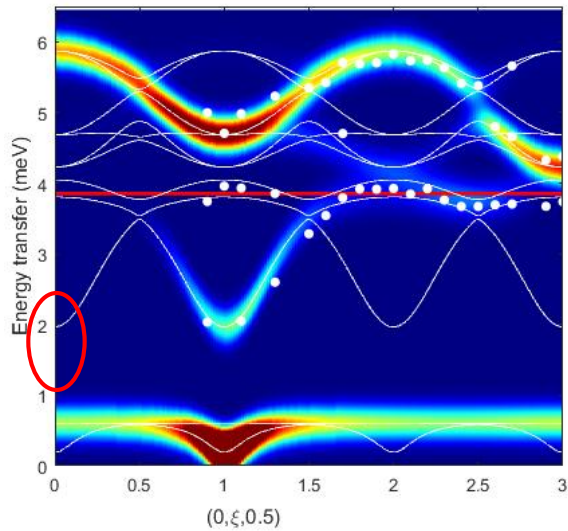
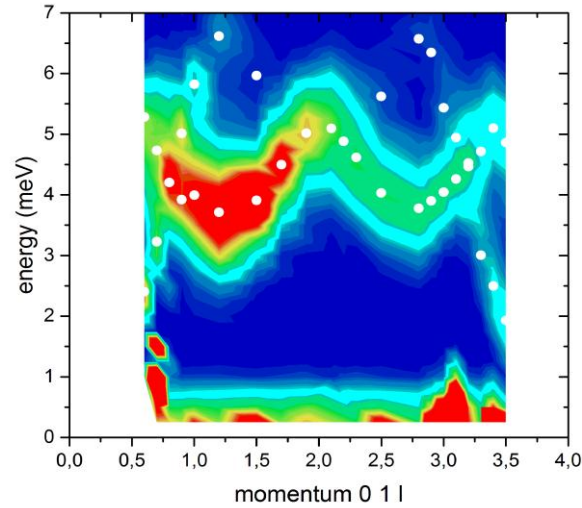
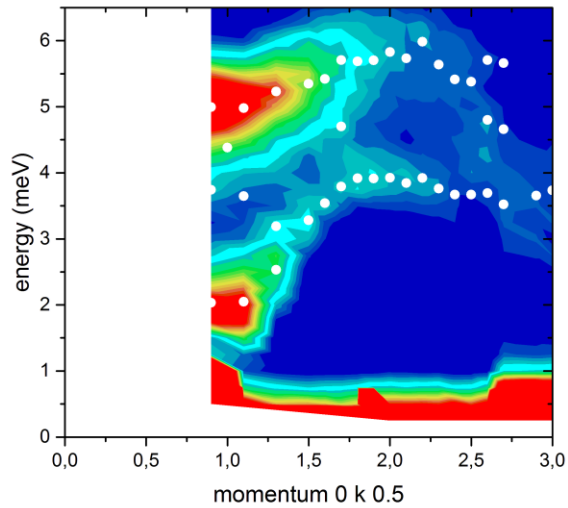
Эксперимент и моделирование дисперсионных кривых при $T=10$ К для направлений $q=[0\ 1\ l]$, $q=[0\ k\ 0.5]$.

M. N. Popova et al., J. Phys.: Condens. Matter 24 (2012)

Обменные параметры	Оптическая спектроскопия	Нейтронная спектроскопия, 10К	Нейтронная спектроскопия, 32 К
J_1 Fe-Fe, внутри цепочечное	0.57	0.73	0.76
J_3 Fe-Tb, ближайшие соседи	-0.022	-0.022	-0.022
J_4 Fe-Tb, в плоскости	-	0.05	0.05
J_2 Fe-Fe, междолинное, ближайшие соседи	0.14	0.17	0.17
J_5 Fe-Fe, междолинное в плоскости	-	0.14	0.15
J_6 Fe-Fe внутри цепочечное, следующие за ближайшими	-	-0.05	-0.07
J_7 Fe-Tb,	-	-	-
J_8 Fe-Fe междолинное, следующие за ближайшими	-	0.14	0.15

Ошибка расчетных обменных параметров не превышает 0.02 мэВ

Результаты и обсуждение



В $\text{TbFe}_3(\text{VO}_3)_4$ ион Tb в основном состоянии является квазидублетом - два близко расположенных синглетных уровня. При этом наблюдается расщепление основного состояния $\Delta_{\text{Tb}}=3.9$ мэВ в эффективном магнитном поле $B=3.9$ Тл.

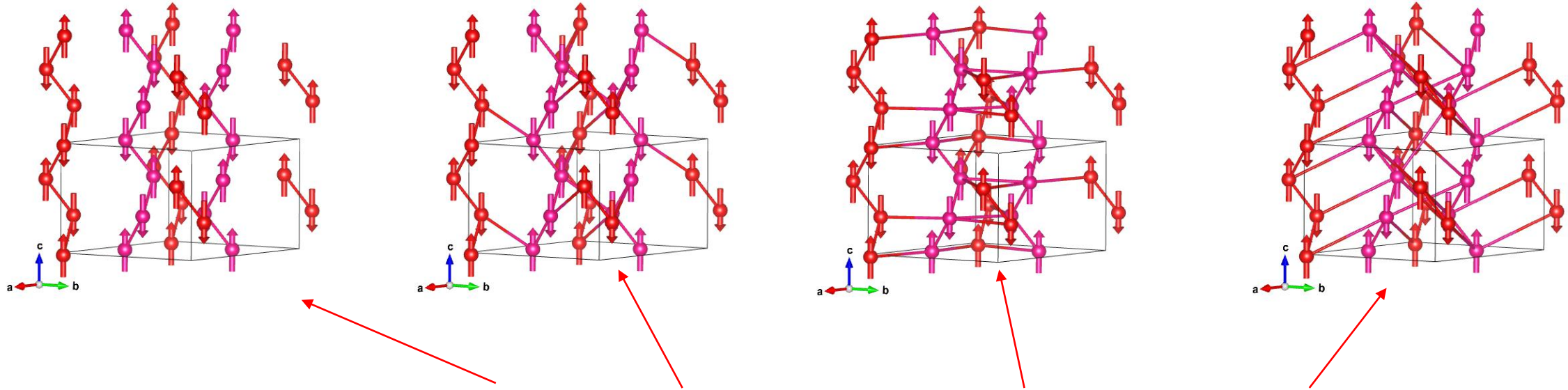
M. N. Popova et al., J. Phys.: Condens. Matter 24 (2012)

Расчётная величина энергетической щели при $q=0$ составляет $\Delta=1.81$ мэВ, что хорошо согласуется с данными полученными методом квазиоптической терагерцовой спектроскопии, где при $q=0$ энергия резонансной моды составляет $\Delta=1.85$ мэВ при $T=10\text{K}$.

Эксперимент и моделирование дисперсионных кривых при $T=10\text{ K}$ для направлений $q=[0\ 1\ l]$, $q=[0\ k\ 0.5]$.

A. A. Mukhin et al., Journal of Experimental and Theoretical Physics, 2011, Vol. 113, No. 1,

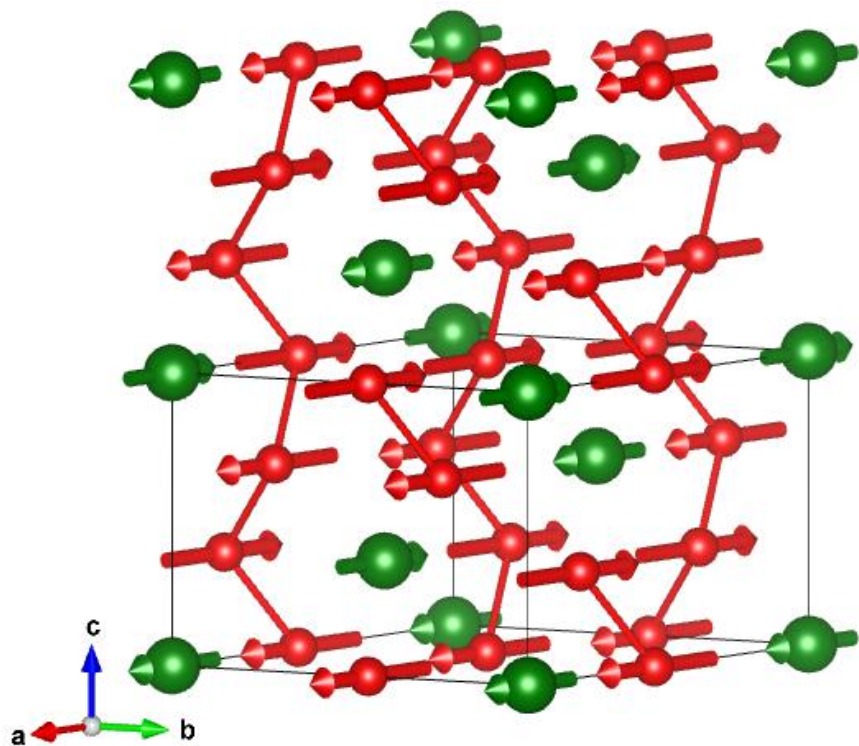
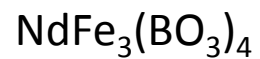
Результаты и обсуждение



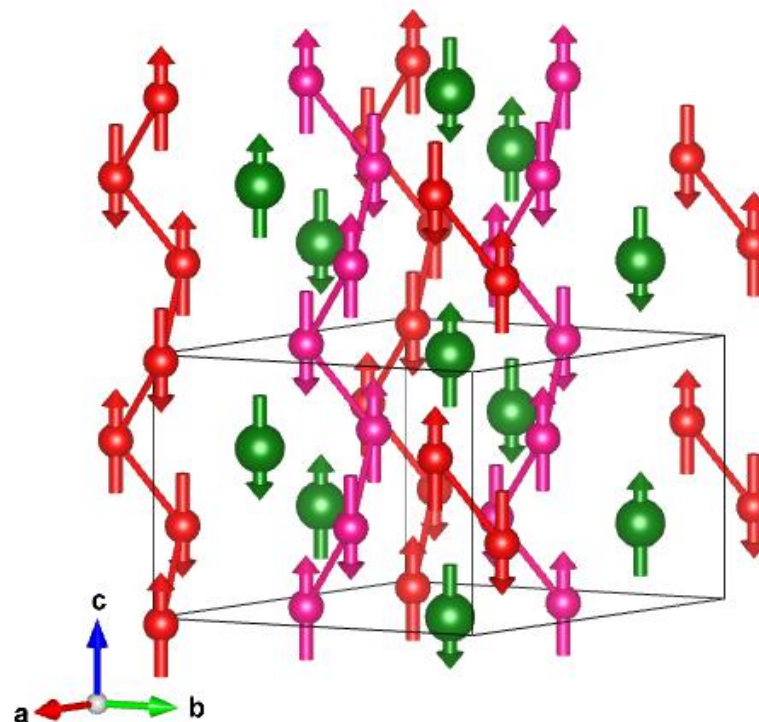
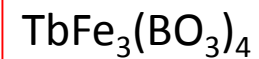
	J1 Fe-Fe, мэВ	J2 Fe-Fe, мэВ	J3 Fe-R, мэВ	J4 Fe-R, мэВ	J5 Fe-Fe, мэВ	J6 Fe-Fe, мэВ	J8 Fe-Fe, мэВ
Нейтронная спектроскопия $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$	0.73	0.17	-0.022	0.05	0.14	-0.05	0.14

Сумма обменных взаимодействий внутри цепочки и между цепочками в соседних слоях - J1, J2 и J8 ферромагнитно упорядочивает моменты в плоскости a-b несмотря на антиферромагнитный обмен J5.

Сравнение $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ и $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$



Лёгкоплоскостная магнитная структура $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$, красным цветом обозначены атомы Fe, зелёным – Nd. Пространственная группа $R32$, $T_N=30\text{K}$, $k=[0\ 0\ 3/2]$.



Лёгкоосная магнитная структура $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$, красным и розовым цветом обозначены атомы Fe, зелёным – Tb. Пространственная группа $P3_121$, $T_N=41\text{K}$, $k=[0\ 0\ 1/2]$.

Сравнение $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ и $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$

	J1 Fe-Fe, мэВ	J2 Fe-Fe, мэВ	J3 Fe-R, мэВ	J4 Fe-R, мэВ	J5 Fe-Fe, мэВ	J6 Fe-Fe, мэВ	J8 Fe-Fe, мэВ
Оптическая спектроскопия $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$	0.57	0.14	-0.022	-	-	-	-
Оптическая спектроскопия $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$	0.54	0.16	0.04	-	-	-	-
Нейтронная спектроскопия $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$	0.73	0.17	-0.022	0.05	0.14	-0.05	0.14
Нейтронная спектроскопия $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$	0.71	0.17	0.04	-0.05	0.16	-0.02	0.14

В обоих соединениях $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$ и $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ обмены внутри подсистемы Fe одинаковые в пределах ошибки измерений и не влияют на лёгкоосный или лёгкоплоскостной тип упорядочения.

В лёгкоосном $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$ ион Tb является изинговским ионом с компонентами g фактора $g_x = g_y = 0$ и $g_z = 17,5$. В лёгкоплоскостном $\text{NdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ ион компоненты g фактора Nd соответствуют $g_x = g_y = 2,4$ и $g_z = 0,9$. Таким образом анизотропия g фактора редкоземельного иона определяет тип упорядочения в редкоземельной подсистеме, которая через обмен Fe-R упорядочивает железную подсистему.

M. N. Popova et al., J. Phys.: Condens. Matter 24 (2012)

M. N. Popova et al., PRB, 75, 224435 (2007).

Заключение

Проведены эксперименты по неупругому рассеянию нейтронов, предложена модель описывающая дисперсионные зависимости в данном соединении, рассчитаны величины обменных взаимодействий.

Показано, что определяющий вклад в энергию дают только четыре обменных взаимодействия внутри подсистемы железа, при этом за счет конкуренции этих обменов магнитные моменты железа ферромагнитно упорядочиваются в плоскости a - b несмотря на наличие антиферромагнитного обмена между ионами.

Определяющую роль в формировании типа магнитной структурой «легкая плоскость» или «легкая ось» играет анизотропия редкоземельной подсистемы.

Благодарю за внимание