

DyFeO₃ 中高于 Morin 温度的新型磁相变*

苏浩斌^{1) #} 郑世芸^{2) #} 王宁³⁾ 朱国锋¹⁾ 居学尉^{1) †}
黄峰¹⁾ 曹义明^{2) ‡} 王向峰^{1) ††}

1) (福州大学机械工程及自动化学院, 福建省太赫兹功能器件与智能传感重点实验室, 福州 350108)

2) (曲靖师范学院物理与电子工程学院, 曲靖 655011)

3) (厦门大学, 萨本栋微米纳米科学技术研究院, 厦门 361102)

(2025 年 1 月 2 日收到; 2025 年 1 月 25 日收到修改稿)

稀土正铁氧体 ($R\text{FeO}_3$, R 为稀土原子) 包含 Fe^{3+} 和 R^{3+} 两套磁性离子亚晶格, 存在 $\text{Fe}^{3+}-\text{Fe}^{3+}$, $\text{Fe}^{3+}-R^{3+}$, $R^{3+}-R^{3+}$ 三种相互作用, 它们是稀土正铁氧体丰富磁性的来源. 本文利用时域太赫兹磁光谱, 在 1.6—300 K 的温度范围内, 在不同磁场下, 测量 a -cut DyFeO₃ 单晶样品的吸收光谱, 并分析光谱中铁磁 (FM) 和反铁磁共振 (AFMR) 吸收峰的温度和磁场依赖特性. 在零磁场变温实验中, 我们发现随温度降低在 Morin 温度 (~ 50 K) 出现的温度诱导的自旋重取向 ($\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_1$), 以及在 4 K 温度以下存在一个由于电磁振子导致的宽带吸收. 在 Morin 温度以上, 我们在恒定温度 (70, 77, 90, 100 K) 下测量了样品在 0—7 T 磁场范围的吸收光谱. 实验结果表明, 随着磁场的增大, 存在一个新的磁相变过程 ($\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2$), 相变的临界磁场随温度而变化. 这一相变过程是由于外磁场和 Fe^{3+} -Dy³⁺ 的各向异性交换相互作用导致的内部有效场的相互竞争和对磁矩的协同作用. 本项研究为深入理解稀土铁氧化物的丰富相变和磁电耦合特性, 以及开发相关的自旋电子学器件提供参考.

关键词: 稀土正铁氧体, 太赫兹, 磁共振, 磁相变

PACS: 78.47.J-, 76.30.Kg, 75.30.Kz, 76.50.+g

DOI: [10.7498/aps.74.20250005](https://doi.org/10.7498/aps.74.20250005)

CSTR: [32037.14.aps.74.20250005](https://cstr.cn/32037.14.aps.74.20250005)

1 引言

稀土正铁氧体 ($R\text{FeO}_3$, R 为稀土原子) 具有自旋重取向、超快磁光存储、自旋开关和超辐射相变等奇异的物理特性而备受关注^[1-5]. $R\text{FeO}_3$ 具有正交畸变的钙钛矿结构, 其空间群为 $D_{2h}^{16}-Pbnm$ ^[6]. DyFeO₃ 是稀土正铁氧体家族中的一员, 其包含 Fe^{3+} 和 Dy³⁺ 两套磁性离子亚晶格^[7], $\text{Fe}^{3+}-\text{Fe}^{3+}$, $\text{Fe}^{3+}-$

Dy^{3+} , $\text{Dy}^{3+}-\text{Dy}^{3+}$ 之间的相互作用使其展现出丰富的磁学性质. 在 Néel 温度 (~ 650 K) 以下, $\text{Fe}^{3+}-\text{Fe}^{3+}$ 之间的交换作用使得 Fe^{3+} 自旋磁矩呈现反铁磁有序, 同时由于 DM (Dzyaloshinskii-Moriya) 相互作用使得磁矩发生微小偏转, 产生微弱的宏观磁化^[8,9]. Fe^{3+} -Dy³⁺ 之间的相互作用使得 Dy³⁺ 发生极化, 并且极化程度随温度降低而增大, 促使晶体 ab 平面内的有效各向异性常数减小, 进而导致 Fe^{3+} 自旋结构发生 $\Gamma_4(G_x, A_y, F_z)$ 到 $\Gamma_1(A_x, G_y, C_z)$ 的

* 国家自然科学基金 (批准号: 62105068)、福建省自然科学基金 (批准号: 2023J05096, 2023J01055)、福建省太赫兹功能器件与智能传感重点实验室 (福州大学) 开放基金 (批准号: FPKLTFDIS202304) 和福建省教育厅中青年教师教育科研项目 (批准号: JAT220032) 资助的课题.

同等贡献作者.

† 通信作者. E-mail: juxw@fzu.edu.cn

‡ 通信作者. E-mail: ymcao@mail.qjnu.edu.cn

†† 通信作者. E-mail: xfwang@fzu.edu.cn

相变, 通常称为 Morin-type 自旋重取向 (spin-reorientation transition, SRT)^[10]. 当温度降低到 Dy³⁺ 的 Néel 温度 ($T_N \sim 4.2$ K), Dy³⁺ 从顺磁性变成反铁磁性, 这意味着 Dy³⁺ 过渡到 $\Gamma_5(G_x, A_y)$ 自旋结构. 这一变化不仅使 Fe³⁺-Dy³⁺ 的相互作用进一步增强, 还破坏了晶体磁结构的反演对称性, 允许线性磁电响应^[11].

在以往的研究中, 研究人员使用穆斯保尔光谱^[12]、拉曼散射^[13]、磁光测量^[14]、远红外光谱^[11]等技术研究 DyFeO₃ 中温度和磁场诱导的自旋重取向, 准铁磁 (quasi-ferromagnetic mode, q-FM) 和准反铁磁 (quasi-antiferromagnetic mode, q-AFM) 共振等物理现象. Koshizuka 和 Hayashi^[13] 利用拉曼散射实验发现随着温度从室温降至 50 K 时, DyFeO₃ 中的 q-AFM 共振频率从 0.51 THz 降至 0.15 THz, 相变之后频率随温度降低而向高频移动, q-FM 共振频率则几乎稳定在 0.38 THz. Ereminko 等^[14] 的研究发现, 在 DyFeO₃ Morin 相变温度点以上, 沿 a 轴施磁场会诱导 $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_{12} \rightarrow \Gamma_2$ 的相变过程. 该相变顺序中的 $\Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_{12}$ 的过渡为一阶相变, 伴随铁磁矢量 \mathbf{F} 由晶体的 ac 平面迅速跳变到 bc 平面. 随后 Gnatchenko 等^[15] 和 Balbashov 等^[16] 通过磁光技术进一步测定 20—80 K 范围内 $\Gamma_{12}(\Gamma_{24}) \rightarrow \Gamma_2$ 二阶相变的临界磁场, 并构建了较为完整的 a -cut 的 $H-T$ 相图. Stanislavchuk 等^[11] 使用远红外光谱测量 Dy³⁺ 原子有序下的 q-FM, q-AFM 吸收, 发现了电偶极子磁激发. 近年来, 太赫兹时域光谱 (THz-TDS) 因其在远红外波段优越的信噪比和时域特性在凝聚态物理研究中得到了广泛的应用, 更为重要的是 RFeO₃ 体系的 q-FM 和 q-AFM 共振频率都落在太赫兹区域内^[17-19].

本文使用 THz-TDS 研究了 70—100 K 范围 DyFeO₃ 单晶中两种模式的共振频率和振幅强度对外加磁场依赖性. 根据两种共振模式激发规律, 推断样品内磁结构的变化. 当温度高于 70 K 时, 我们发现了一种新的磁场诱导的相变过程, 即 $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2$, 该发现鲜有报道.

2 实验方法

DyFeO₃ 单晶通过光学浮区法生长而来 (IRF-01-001-05, Quantum Design, Japan). 详细的样品制备过程参见文献 [20]. 沿晶体 bc 平面切割得到

a -cut 样品, 并两面抛光用于 THz 测量. 样品最终厚度为 1.41 mm. 利用 XRD 对 DyFeO₃ 的晶体结构进行表征, 并通过背散射钨靶劳厄衍射仪 (IPX-LC, IPX Co., Ltd, Japan) 测定晶轴方向.

THz 测量系统基于传统的 THz-TDS 系统, 该系统与超导磁体 (SpectromagPT, Oxford Instruments) 相结合, 可提供 0—7 T 的磁场、1.6—300 K 的温度以及 0.15—2 THz 的光谱范围 [21,22]. 系统光源为美国 Coherent 公司的 Astrella 一体化钛蓝宝石飞秒激光放大器 (中心波长为 800 nm, 激光重复频率为 1 kHz, 脉宽为 35 fs, 单脉冲能量为 5 mJ). 利用一对 ZnTe 晶体作为太赫兹发射和探测晶体, 分别通过光整流和电光采样技术产生和探测 THz 信号. 为减少水气吸收的影响, 太赫兹光路被密封并冲入干燥的氮气. 产生的线偏振太赫兹脉冲垂直入射到样品表面, 采集不同温度和磁场下样品和参考 (空气) 的时域信号. 通过傅里叶变化将时域信号变换到频域. 对它们的功率谱进行归一化处理, 得到透射率 (T). 通过公式 $\alpha = -\ln T/d$ 计算样品吸收系数 (α), 其中 d 为样品厚度.

3 结果与讨论

首先介绍法拉第实验构型下 q-FM 和 q-AFM 模式的激发规则. 图 1(a) 为 RFeO₃ 体系 3 个允许相 (Γ_1 , Γ_2 , Γ_4) 的晶胞中 Fe³⁺ 的 4 个自旋磁矩. 通常将磁矩 1, 3 和 2, 4 合成为 S_1 和 S_2 , 其结果如图 1(b). 对于 Γ_1 相, S_1 和 S_2 沿 Y 轴反平行排列, 因此对外宏观磁化强度为零, 而 Γ_2 和 Γ_4 分别在 X 轴和 Z 轴

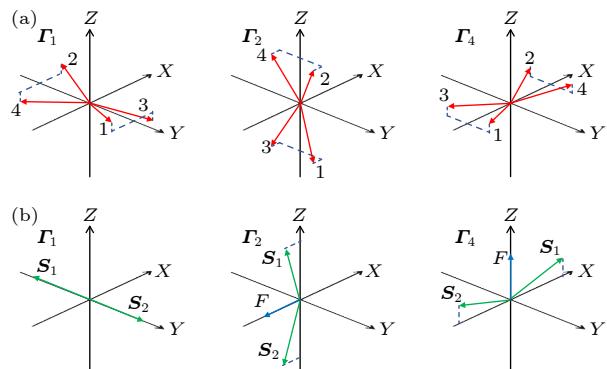


图 1 (a) RFeO₃ 体系中 3 个允许相 (Γ_1 , Γ_2 , Γ_4) 的晶胞中 Fe³⁺ 的 4 个自旋磁矩; (b) 简化后的示意图

Fig. 1. (a) The four spin magnetic moments of Fe³⁺ in the cell of three allowable phases (Γ_1 , Γ_2 , Γ_4) in the RFeO₃ system; (b) simplified schematic diagram.

有宏观磁矩 \mathbf{F} . DyFeO₃ 样品中 q-FM 和 q-AFM 模式在不同构型 (Γ_1 , Γ_2 , Γ_4) 下的激发规则总结在表 1 中 [11,23].

表 1 DyFeO₃ 的 q-FM 和 q-AFM 的选择激发规则 [11,23]

Table 1. Selective excitation rules for q-FM and q-AFM modes in DyFeO₃ [11,23].

Fe phase	Quasi-FM mode	Quasi-AFM mode
$\Gamma_1(A_x, G_y, C_z)$	$H_{\text{THz}}//a$	$H_{\text{THz}}//c$
$\Gamma_2(F_x, C_y, G_z)$	$H_{\text{THz}}//b, H_{\text{THz}}//c$	$H_{\text{THz}}//a$
$\Gamma_4(G_x, A_y, F_z)$	$H_{\text{THz}}//a, H_{\text{THz}}//b$	$H_{\text{THz}}//c$

图 2(a), (b) 分别展示了零磁场下 1.6—300 K 温度范围内 H_{THz} 分别平行样品 c 轴和 b 轴的太赫兹吸收光谱. 晶体在 300 K 温度下处于 Γ_4 相, H_{THz} 平行于晶体 c 轴和 F 矢量. 因此, q-AFM 模式被激发, 在图 2(a) 中观察到位于 0.51 THz 的 q-AFM 吸收峰. 随着温度降低到 70 K, q-AFM 共振频率从 0.51 THz 显著软化到 0.2 THz, 峰值强度也逐渐降低. 低于 70 K, 当频率降低至 0.15 THz 以下时, 受限于我们系统的检测极限, q-AFM 吸收峰无法检测到. 在 50—70 K 的温度范围内, Fe³⁺ 的自旋磁结构经历了从 $\Gamma_4(G_x, A_y, F_z)$ 到 $\Gamma_1(A_x, G_y, C_z)$ 的 Morin 型自选重取向 ($T_M \sim 50$ K). 因此, 在 50 K 以下的 Γ_1 阶段, S_1 和 S_2 沿 b 轴反向平行排列, 导致宏观磁矩为零 ($\mathbf{F} = 0$). 根据表 1 中的激

发规则, 可以知道 $\Gamma_1(A_x, G_y, C_z)$ 相下的 q-AFM (q-FM) 模式只在 H_{THz} 平行 c 轴 (a 轴) 下激发. 因此, 50 K 温度以下的吸收峰归为 q-AFM 模式, 并且 q-AFM 频率随着温度下降往高频移动. 当温度降到 4 K 以下时, q-AFM 频率向更高频率跃迁并且其强度进一步增大. 这是因为 Dy³⁺ 由顺磁性变为反铁磁性, Fe³⁺-Dy³⁺ 之间的相互作用增强, 从而改变了双亚晶格体系的自由能, 影响了 q-AFM 模式的共振频率和强度.

图 2(b) 展示了 H_{THz} 平行晶体 b 轴的吸收光谱. 在 300 K 温度下, H_{THz} 与 F 相互垂直, 激发频率为 0.38 THz 的 q-FM 模式. 在 50—300 K 的范围内, q-FM 峰的共振频率略微向低频移动, 而峰值强度基本保持不变. 当温度低于 50 K 进入 Γ_1 相后, 根据表 1 可知, 该构型不会激发任何模式的磁共振, 因此光谱没有吸收峰. 当温度低于 4 K 的时候, 可以观察到从 0.45—0.9 THz 的宽吸收带. 该吸收带是由于电磁振子吸收所引起的 [11], 归因于 Γ_5 相的 Dy³⁺ 磁结构破坏了反演对称性, 允许线性磁电响应. 沿晶体 a 轴或 b 轴施加的强磁场/升高温度会改变 Fe³⁺ 和 Dy³⁺ 磁矩的磁相互作用, 使其恢复空间反演对称性, 从而使电磁子吸收消失 [11].

图 3 显示了在不同温度 (70 K, 77 K, 90 K 和 100 K) 下, 当 H_{THz} 与晶体的 c 轴平行时, a -cut DyFeO₃ 样品磁场从 0—7 T 的太赫兹吸收光谱.

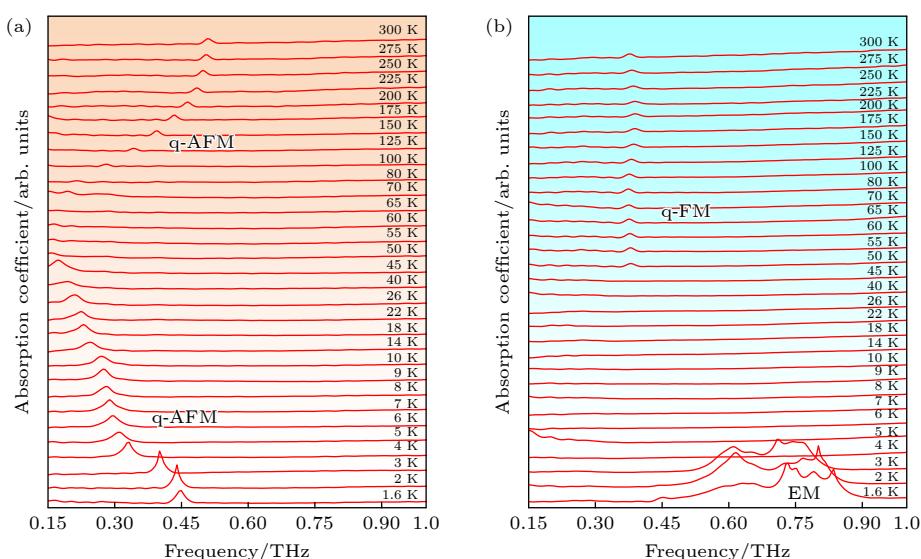


图 2 零磁场下, a -cut DyFeO₃ 样品在不同温度 (1.6—300 K) 的太赫兹吸收光谱 (a) H_{THz} 平行于晶体的 c 轴; (b) H_{THz} 平行于晶体的 b 轴, 为清晰起见, 不同温度的光谱垂直偏移

Fig. 2. Terahertz absorption spectra of a -cut DyFeO₃ samples at different temperatures (1.6–300 K) in zero magnetic field: (a) H_{THz} parallel to the c -axis of the crystal; (b) H_{THz} parallel to the b -axis of the crystal, spectra at different temperatures are shifted vertically for clarity.

光谱中各曲线的磁场间隔为 0.25 T。图中灰色(蓝色)虚线代表 q-AFM(q-FM) 模式的共振频率出现的位置。图 3(a) 为 100 K 时的测量结果。零磁场下，样品处于 Γ_4 相且 H_{THz} 平行 F ，所以激发位于 0.28 THz 的 q-AFM 模式。在 1 T 以下的磁场中，q-AFM 频率和峰值强度保持不变。在 1—2 T 的磁场范围内，q-AFM 峰值强度逐渐减弱消失，同时另一频率为 0.38 THz 的吸收峰出现在光谱中并逐渐增强。这暗示磁矩 F 可能在外磁场影响下向 a 轴偏转。这时， F 与 H_{THz} 之间的夹角 $0^\circ < \theta < 90^\circ$ ，具有平行和垂直于 H_{THz} 的分量，因此同时激发 q-AFM 和 q-FM 两种共振模式，所以在 0.38 THz 的吸收峰为 q-FM 模式。晶体在该磁场范围内为 Γ_{24} 相。两个吸收峰短暂共存后，在磁场大于等于

2 T 时只剩下 q-FM 模式的吸收峰，随着磁场逐渐增大，q-FM 频率向低频移动，并且强度逐渐增强。这表明 F 矢量已经从 ac 平面旋转到 a 轴，经历了从 Γ_{24} 相到 Γ_2 相的转变。磁场从 2—3.5 T 时，q-FM 峰得到进一步强化，表现为强度上升并最终停止。这表明 F 向量在这个磁场区间始终位于 a 轴。当磁场达到 3.75 T，光谱中出现 0.21 THz 的吸收峰，在磁场增大的过程中不仅向低频逐渐移动，而且强度逐渐增大。同样该吸收峰可归为 q-AFM 模式。3.75—5.5 T 范围内双峰共存区间的存在意味着 F 再次从 a 轴回到 ac 平面，晶相重新回到 Γ_{24} 相。当磁场达到 5.5 T 时，0.25 THz 处的 q-FM 吸收峰迅速消失。在 5.5 T 以上，两个吸收峰都消失了并且出现一个新的吸收峰，其频率和强度

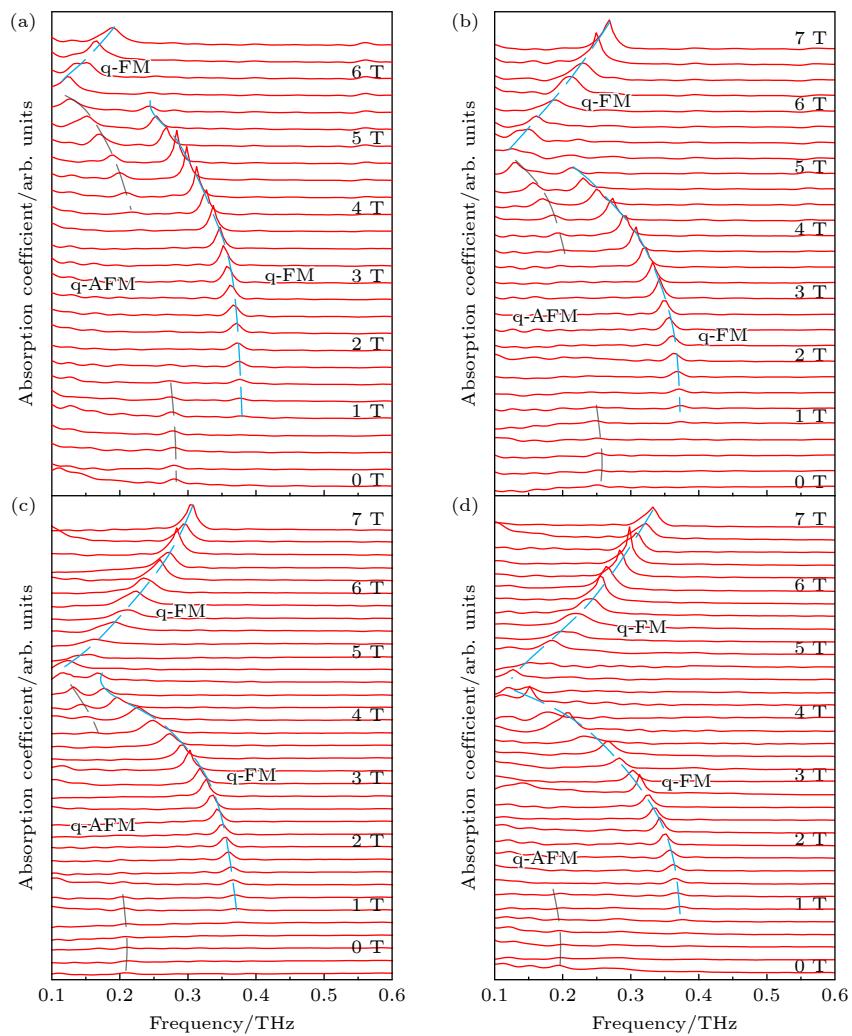


图 3 在 H_{THz} 平行晶体 c 轴和外加磁场沿晶体 a 轴方向的实验构型下， a -cut DyFeO_3 样品在 0—7 T 磁场下的太赫兹吸收光谱，温度分别为 (a) 100 K, (b) 90 K, (c) 77 K, (d) 70 K, 清晰起见，不同磁场的光谱垂直偏移

Fig. 3. Terahertz absorption spectra of the a -cut DyFeO_3 sample under a magnetic field from 0—7 T at various temperatures of (a) 100 K, (b) 90 K, (c) 77 K, and (d) 70 K, when the directions of H_{THz} and the applied magnetic field are along the crystal c axis and a axis, respectively. Spectra are vertically offset for clarity.

随磁场增大而增大, 呈现出与 5.5 T 以下完全不同的趋势。这是因为外加磁场超过 spin-flop 相变的临界值 $B_{\text{cr}} = 5.5 \text{ T}$, 使得 \mathbf{F} 迅速从 ac 平面跳转到回到 a 轴, 即由 Γ_{24} 相跳变到 Γ_2 相。这一相变临界磁场与 Prelorendjo 等^[12] 的研究一致。因此, 光谱中高于 5.5 T 的吸收峰归为 q-FM 模式。**图 3(b)** 所示为 90 K 的吸收光谱与 100 K 时相似, 只是 0—1 T 范围内的 q-AFM 模式较弱, 且上述相变过程同样清晰可见。

图 3(c), (d) 展示了 77 K 和 70 K 的吸收光谱, 与 90 K, 100 K 的光谱有所不同。77 K 的光谱中 q-AFM 吸收峰非常弱, 而 70 K 的光谱中 q-AFM 吸收峰几乎不可见。参考**图 2** 中零磁场下温度依赖的光谱测量结果, 在 50—90 K 区间的 q-AFM 吸收峰强度随温度下降而变得微弱并逐渐接近 THz 系统测量极限 (0.15 THz)。通过**图 2** 中温度依赖的实验数据, 用灰色虚线标出 70 K, 77 K 时 q-AFM 吸收峰的位置。总体上来看, 77 K 的光谱数据仍然清晰地显示上述相变过程。综合 4 张光谱分析, 临界磁场 B_{cr} 从 100 K 的 5.5 T 降至 70 K 的 4.5 T。此外, q-AFM 和 q-FM 模式之间的频率间隙随温度降低逐渐增大。

我们的光谱分析表明, 在 Morin 温度点以上的升磁过程中存在 $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2$ 的相变过程, 其相变示意图如**图 4** 所示。根据 Gnatchenko 等^[15] 的研究, Γ_{24} 到 Γ_{12} 的一阶相变仅存在于 50—66 K 范围内, 在更高温的条件下并不会出现, 因此排除 70—100 K 的过渡区间存在 Γ_{12} 相的可能。Balbashov 等^[16] 使用光谱仪测定沿 DyFeO₃ 晶体 a 轴施加磁场的 q-FM 与 q-AFM 的频率, 给出了 Γ_{24} 过渡到 Γ_4 的临界磁场。但该实验仅测得 2 T 磁场以上的数据, 缺少低磁场下相关的结果, 因而不能完整分析相变过程。我们使用 THz-TDS 测得的共振频率不仅与之高磁场下的数据相符, 还进一步补充了低磁场下的数据, 据此完成分析其相变过程。

DyFeO₃ 有 Fe³⁺ 和 Dy³⁺ 两套磁性离子亚晶格, 存在 Fe³⁺-Fe³⁺, Fe³⁺-Dy³⁺, Dy³⁺-Dy³⁺ 三种相互作用, 它们是稀土正铁氧体 DyFeO₃ 丰富磁性的来源。Cao 等^[24] 的实验研究发现, 在较大的温度范围内, Dy³⁺-Dy³⁺ 相互作用导致稀土离子磁矩方向倾向与 Fe³⁺ 磁矩方向反平行排列。然而, 特定温度和外加磁场能够使两者平行排列, 并引发 Fe³⁺ 磁矩

的自旋翻转等效应。可见, Dy³⁺-Fe³⁺ 相互作用对 DyFeO₃ 磁矩的影响不可忽视。传统的 Herrmann^[25] 反铁磁理论只关注 Fe³⁺-Fe³⁺ 相互作用对磁性的影响。Yamaguchi^[7] 的有效场理论表明, Fe³⁺ 与稀土离子之间磁相互作用的各向异性部分, 即反对称和各向异性对称交换相互作用, 通常是旋转和突变型的自旋重取向的原因。这些各向异性交换相互作用在垂直于这些自旋的方向上为 Fe³⁺ 上自旋 (S_1) 产生一个有效场, 在与上述方向相反的方向上对 Fe³⁺ 下自旋 (S_2) 产生另一个有效场, 这两个有效场的差异会导致磁矩 \mathbf{F} 的旋转。随着温度的降低或者磁场的改变, 由于稀土磁化强度的增大, 该有效场增大, 当 Fe³⁺ 自旋与这些有效场的相互作用能超过 Fe³⁺ 离子自身的各向异性能时, 发生自旋重取向。

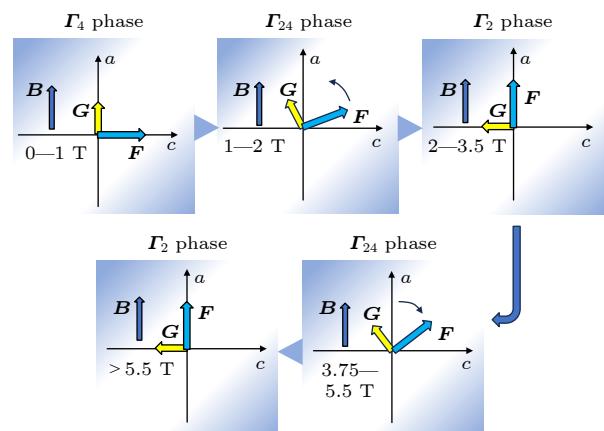


图 4 温度 100 K 时, 0—7 T 磁场范围内, a -cut DyFeO₃ 单晶中 $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2$ 的相变过程

Fig. 4. The phase transition process $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2$ in the a -cut DyFeO₃ single-crystal in a magnetic field range of 0—7 T at 100 K.

根据上述理论, DyFeO₃ 在磁场低于 1 T 时处于 Γ_4 相, 随着磁场增大, 磁矩 \mathbf{F} 在外磁场影响下向 a 轴偏转, 在 1—2 T 范围, 样品处于 Γ_{24} 相。在磁场 2—3.5 T 范围内, \mathbf{F} 在这个磁场区间旋转到 a 轴, 即位于 Γ_2 相。在磁场增强的过程中 (3.75—5.5 T), Dy³⁺ 磁矩方向与 Fe³⁺ 磁矩方向从反平行排列逐渐过渡到平行排列, Fe³⁺-Dy³⁺ 相互作用逐渐增强, 其各项异性能对 S_1 和 S_2 产生不同的有效场。这时, 有效场的作用强于外磁场的作用, 导致样品从 Γ_2 相重新回到 Γ_{24} 相。随着磁场的进一步增强, 外磁场对磁矩 \mathbf{F} 的作用逐渐起主导作用, 最终磁矩 \mathbf{F} 再次旋转到 a 轴, 进入 Γ_2 相。整个 $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2$ 相变过程可以用上述有效场理论解释。

4 结 论

本文利用时域太赫兹磁光谱系统测量了 *a*-cut DyFeO₃ 晶体在不同实验构型下的吸收光谱, 结合 q-FM 和 q-AFM 共振模式的激发规则, 对其温度依赖性和磁场依赖性数据进行解析。在零磁场变温实验中, 我们观察到在低于 4 K 温度下的电磁振子吸收和随温度降低出现在 Morin 温度 (~ 50 K) 下的自旋重取向 ($\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_1$) 现象。在固定温度 ($T = 70, 77, 90, 100$ K) 变磁场实验中, q-FM 和 q-AFM 共振峰呈现复杂变化, 将其归因于一个 $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2$ 的新相变过程。这一相变过程是由于外磁场和 Fe³⁺-Dy³⁺ 的相互作用导致的内部有效场的相互竞争和协同作用。本项研究对深入理解稀土铁氧化物的丰富相变和磁电耦合特性具有重要的意义。

参考文献

- [1] Johnson C E, Prelorendjo L A, Thomas M F 1980 *J. Magn. Magn. Mater.* **15** 557
- [2] Kimel A V, Ivanov B A, Pisarev R V, Usachev P A, Kirilyuk A, Rasing T 2009 *Nat. Phys.* **5** 727
- [3] Yuan S J, Ren W, Hong F, Wang Y B, Zhang J C, Bellaiche L, Cao S X, Cao G 2013 *Phys. Rev. B* **87** 184405
- [4] Kimel A V, Kirilyuk A, Usachev P A, Pisarev R V, Balbashov A M, Rasing T 2005 *Nature* **435** 655
- [5] Bamba M, Li X W, Peraca N M, Kono J 2022 *Commun. Phys.* **5** 3
- [6] White R L 1969 *J. Appl. Phys.* **40** 1061
- [7] Yamaguchi T 1974 *J. Phys. Chem. Solids* **35** 479
- [8] Moriya T 1960 *Phys. Rev.* **120** 91
- [9] Dzyaloshinsky I 1958 *J. Phys. Chem. Solids* **4** 241
- [10] Balbashov A M, Volkov A A, Lebedev S P, Mukhin A A, Prokhorov A S 1985 *Sov. Phys. JETP* **61** 573
- [11] Stanislavchuk T N, Wang Y Z, Janssen Y, Carr G L, Cheong S W, Sirenko A A 2016 *Phys. Rev. B* **93** 094403
- [12] Prelorendjo L A, Johnson C E, Thomas M F, Wanklyn B M 1980 *J. Phys. C: Solid State Phys.* **13** 2567
- [13] Koshizuka N, Hayashi K 1988 *J. Phys. Soc. Jpn.* **57** 4418
- [14] Eremenko V V, Gnatchenko S L, Kharchenko N F, Lebedev P P, Piotrowski K, Szymczak H, Szymczak R 1987 *Europhys. Lett.* **4** 1327
- [15] Gnatchenko S L, Kharchenko N F, Lebedev P P, Piotrowski K, Szymczak H, Szymczak R 1989 *J. Magn. Magn. Mater.* **81** 125
- [16] Balbashov A M, Marchukov P Y, Nikolaev I V, Rudashevskii E G 1988 *Sov. Phys. JETP* **67** 1910
- [17] Peraca N M, Li X W, Moya J M, Hayashida K, Kim D, Ma X X, Neubauer K J, Padilla D F, Huang C L, Dai P C, Nevidomskyy A H, Pu H, Morosan E, Cao S X, Bamba M, Kono J 2024 *Commun. Mater.* **5** 42
- [18] Lin X, Jiang J J, Jin Z M, Wang D, Tian Z, Han J G, Cheng Z X, Ma G H 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 092403
- [19] Makihara T, Hayashida K, Noe II G T, Li X W, Peraca N M, Ma X X, Jin Z M, Ren W, Ma G H, Katayama I, Takeda J, Nojiri H, Turchinovich D, Cao S X, Bamba M, Kono J 2021 *Nat. Commun.* **12** 3115
- [20] Cao Y M, Xiang M L, Zhao W Y, Wang G H, Feng Z J, Kang B J, Stroppa A, Zhang J C, Ren W, Cao S X 2016 *J. Appl. Phys.* **119** 063904
- [21] Ju X W, Zhu G F, Huang F, Dai Z R, Chen Y Q, Guo C X, Deng L, Wang X F 2022 *Opt. Express* **30** 957
- [22] Ju X W, Hu Z Q, Huang F, Wu H B, Belyanin A, Kono J, Wang X F 2021 *Opt. Express* **29** 9261
- [23] Fu Z C, Chen J Y, Shang J M, Lin X, Suo P, Sun K W, Wang C, Li Q X, Luo J L, Wang X B, Wu A H, Ma G H 2024 *Appl. Phys. Lett.* **125** 241102
- [24] Cao S X, Chen L, Zhao W Y, Xu K, Wang G H, Yang Y L, Kang B J, Zhao H J, Chen P, Stroppa A, Zheng R K, Zhang J C, Ren W, Íñiguez J, Bellaiche L 2016 *Sci. Rep.* **6** 37529
- [25] Herrmann G F 1963 *J. Phys. Chem. Solids* **24** 597

A new magnetic phase transition above Morin temperature in DyFeO₃^{*}

SU Haobin¹⁾# ZHENG Shiyun²⁾# WANG Ning³⁾ ZHU Guofeng¹⁾
JU Xuewei¹⁾† HUANG Feng¹⁾ CAO Yiming²⁾‡ WANG Xiangfeng¹⁾††

1) (Fujian Provincial Key Laboratory of Terahertz Functional Devices and Intelligent Sensing,
School of Mechanical Engineering and Automation, Fuzhou University, Fuzhou 350108, China)

2) (School of Physics and Electronic Engineering, Qujing Normal University, Qujing 655011, China)

3) (Pen-Tung Sah Institute of Micro-Nano Science and Technology, Xiamen University, Xiamen 361102, China)

(Received 2 January 2025; revised manuscript received 25 January 2025)

Abstract

Rare-earth orthoferrites ($R\text{FeO}_3$) have received significant attention due to their intricate magnetic interactions and potential applications in ultrafast spintronic devices. Among them, DyFeO₃ exhibits rich magnetic phase transitions driven by the interplay between Fe³⁺ and Dy³⁺ sublattices. Previous studies mainly focused on temperature-induced spin reorientation near the Morin temperature ($T_M \sim 50$ K), but there has been limited exploration of magnetic phase behavior under external fields above T_M . This work aims to systematically investigate the temperature- and magnetic-field-dependent magneto-dynamic properties of *a*-cut DyFeO₃ single crystals, with an emphasis on identifying novel phase transitions and elucidating the underlying mechanisms involving Fe³⁺-Dy³⁺ anisotropic exchange interactions. High-quality *a*-cut DyFeO₃ single crystals are grown using the optical floating zone method and characterized by X-ray diffraction (XRD) and Laue diffraction. Time-domain terahertz spectroscopy (THz-TDS) coupled with a superconducting magnet (0–7 T, 1.6–300 K) is employed to probe the ferromagnetic resonance (FM) and antiferromagnetic resonance (AFMR) modes. By analyzing the frequency trends in the spectra, the response of internal magnetic moments to external stimuli can be inferred. In the zero magnetic field experiment, it is found that the temperature induced spin reorientation ($\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_1$) occurs at Morin temperature (~ 50 K) with temperature decreasing. A broadband electromagnetic absorption (0.45–0.9 THz) occurs below 4 K, which is attributed to electromagnons activated by broken inversion symmetry in the Dy³⁺ antiferromagnetic state. Above the Morin temperature, the absorption spectra of the sample are measured at constant temperatures (70, 77, 90, 100 K) and magnetic fields ranging from 0 to 7 T. The experimental results show that with the increase of magnetic field, a new magnetic phase transition occurs ($\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2 \rightarrow \Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_2$), and the critical magnetic field of the phase transition varies with temperature. The phase transitions arise from the competition between external magnetic fields and internal effective fields generated by anisotropic Fe³⁺-Dy³⁺ exchange. These findings contribute to the further understanding of the magnetoelectric effects in $R\text{FeO}_3$ systems and provide a roadmap for using field-tunable phase transitions to design spin-based devices.

Keywords: rare-earth orthoferrite, terahertz, magnetic resonance, magnetic phase transition

PACS: 78.47.J-, 76.30.Kg, 75.30.Kz, 76.50.+g

DOI: [10.7498/aps.74.20250005](https://doi.org/10.7498/aps.74.20250005)

CSTR: [32037.14.aps.74.20250005](https://cstr.ia.ac.cn/32037.14.aps.74.20250005)

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 62105068), the Natural Science Foundation of Fujian Province, China (Grant Nos. 2023J05096, 2023J01055), the Key Laboratory of Terahertz Functional Devices and Intelligent Sensing of Fujian Province, China (Grant No. FPKLTFDIS202304), and the Education and Scientific Research Foundation for Young Teachers in Fujian Province, China (Grant No. JAT220032).

These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: juxw@fzu.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: ymcao@mail.qjmu.edu.cn

†† Corresponding author. E-mail: xfwang@fzu.edu.cn



DyFeO₃中高于Morin温度的新型磁相变

苏浩斌 郑世芸 王宁 朱国锋 居学尉 黄峰 曹义明 王向峰

A new magnetic phase transition above Morin temperature in DyFeO₃

SU Haobin ZHENG Shiyun WANG Ning ZHU Guofeng JU Xuewei HUANG Feng CAO Yiming
WANG Xiangfeng

引用信息 Citation: [Acta Physica Sinica](#), 74, 087801 (2025) DOI: 10.7498/aps.74.20250005

CSTR: 32037.14.aps.74.20250005

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250005>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

磁场诱导的TmFeO₃单晶自旋重取向

Magnetic-field-induced spin reorientation in TmFeO₃ single crystals

物理学报. 2024, 73(1): 017801 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231322>

Mn₃Sn薄膜磁相变的输运表征

Transport characterization of magnetic phase transition in Mn₃Sn thin films

物理学报. 2024, 73(6): 067501 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231766>

有机阳离子插层调控二维反铁磁MPX₃磁性能

Tuning magnetic properties of two-dimensional antiferromagnetic MPX₃ by organic cations intercalation

物理学报. 2024, 73(5): 057501 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20232010>

二氧化钒相变对太赫兹反谐振光纤谐振特性的影响及其应用

Effect of phase transition of vanadium dioxide on resonance characteristics of terahertz anti-resonant fiber and its applications

物理学报. 2021, 70(16): 168701 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210084>

相变材料与超表面复合结构太赫兹移相器

Terahertz phase shifter based on phase change material–metasurface composite structure

物理学报. 2021, 70(7): 074201 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201495>

基于相变材料的慢光和吸收可切换多功能太赫兹超材料

Switchable multifunctional terahertz metamaterial with slow-light and absorption functions based on phase change materials

物理学报. 2023, 72(8): 084202 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20222336>