Письма в ЖЭТФ, том 107, вып. 10, с. 673 – 678 © 2018 г. 25 мая

Об измерении спин-волновой жесткости в гелимагнетике $Fe_{0.75}Co_{0.25}Si$ методом малоуглового рассеяния нейтронов

С. В. Григорьев[a,b,c], *К. А. Пшеничный*[a,b,c 1)], *Е. В. Алтынбаев*[a,b,c], *С.-А. Зигфрид*[d 2)], *А. Хайнеманн*[d 2)], *Д. Хоннекер*[e 2)], *Д. Мензель*[f 2)]

[a] *Петербургский институт ядерной физики, 188300 Гатчина, Россия*

[b] *Санкт-Петербургский государственный университет, 198504 С.-Петербург, Россия*

[c] *Институт физики высоких давлений им. Л.Ф. Верещагина РАН, 108840 Троицк, Москва, Россия*

[d] *Helmholtz Zentrum Geesthacht, 21502 Geesthacht, Germany*

[e] *Institute Laue Langevin, 38042 Grenoble, France*

[f] *Institut für Physik der Kondensierten Materie, 38106 Braunschweig, Germany*

Поступила в редакцию 9 апреля 2018 г.

Методом малоуглового рассеяния нейтронов измерена спин-волновая жесткость в геликомагнетике с взаимодействием Дзялошинского–Мория $Fe_{0.75}Co_{0.25}Si$ в состоянии, полностью намагниченном внешним полем. Показано, что дисперсия магнонов в этом состоянии имеет анизотропный вид, поскольку картина рассеяния нейтронов представляет собой два круга для нейтронов с получением и потерей энергии магнона соответственно. Центры кругов смещены на величину переданного импульса, ориентированного вдоль приложенного магнитного поля $\mathbf{H}$ и равного волновому вектору спирали $\pm\mathbf{k}_s$ нм$^{-1}$. Радиус кругов напрямую связан с жесткостью спиновых волн магнитной системы, но зависит от величины магнитного поля. Показано, что спин-волновая жесткость A для геликомагнетика равна 46.0 мэВ Å^2 при $T = 0$ K и слабо (на 20 %) убывает с ростом температуры вплоть до критической $T_c = 38$ K.

DOI: 10.7868/S0370274X18100107

В последние годы особый интерес привлекают экзотические спиновые системы, которые формируются в результате баланса между ферромагнитным обменным взаимодействием и антисимметричным обменным взаимодействием Дзялошинского–Мория (ДМ), возникающим из-за отсутствия центра инверсии в кубических кристаллах с пространственной группой $P2_13$ [1, 2]. Именно соотношение между ферромагнитным взаимодействием с константой J и ДМ взаимодействием с константой D определяют величину волнового вектора спиновой спирали или скирмионной решетки $k_s = D/J$ [3–5]. Более того, константы D и J определяют энергетический ландшафт магнитной системы и ее спиновую динамику. Еще одним параметром, характеризующим систему, является величина внешнего магнитного поля H_{C2}, которое необходимо приложить, чтобы превратить спиновую спираль в коллинеарную спиновую структуру (полностью поляризованное состояние). Показано, что разность энергий $g\mu_B H_{C2}$ между полностью поляризованным состоянием и состоянием спирали равна Ak_s^2, где $A = SJ$ – жесткость спиновой волны, а S – упорядоченный спин [6, 7]. Можно оценить жесткость спиновых волн системы, используя соотношение $Ak_s^2 = g\mu_B H_{C2}$. Такая оценка дает величину жескости для соединения $Fe_{0.75}Co_{0.25}Si$ при $T = 0$ K, равную примерно 50 мэВ Å^2 [8].

Спиновая динамика геликомагнетиков с ДМ взаимодействием теоретически исследовалась в работах [6, 10, 9], в которых было показано, что спектр спиновых волн для этих систем является анизотропным: с линейной дисперсией, как в антиферромагнетике, в продольном направлении для $\mathbf{q} \parallel \mathbf{k}_s$ и с квадратичной дисперсией, как в ферромагнетике, в поперечном направлении для $\mathbf{q} \perp \mathbf{k}_s$, при этом $q < k_s$. Еще одной замечательной особенностью магнона в геликомагнетике является его внутренняя многомодовая природа, возникающая в следствии периодического потенциала спиральной структуры.

Интенсивные экспериментальные исследования спин-волновой динамики были предприняты для моносилицида марганца MnSi, архетипического представителя геликомагнетика с ДМ взаимодействием

---

1) e-mail: pshcyrill@mail.ru

2) S.-A. Siegfried, A. Heinemann, D. Honnecker, D. Menzel.

[11–15]. Используя метод трехосной спектроскопии нейтронов, в работах [11, 12] изучался вид дисперсионной кривой магнитных возбуждений в 100 % поляризованной фазе в поле, выше критического H_{C2}. Было показано, что экспериментальные данные при температуре $T = 5$ K хорошо описываются квадратичной дисперсионной зависимостью $\epsilon_q = Aq^2 + \Delta$ с константой жесткости спиновой волны, равной $A = 52 \pm 2$ мэВ Å^2 [11]. Недавние исследования спиновых волн в геликомагнитном состоянии ($H \ll H_{C2}$) продемонстрировали богатое разнообразие спектра возбуждений и его многомодовую структуру [14]. Использование установки неупругого рассеяния нейтронов с высоким разрешением позволило разрешить зонную структуру магнонов в геликомагнетике [15]. Следует отметить, однако, что измерение магнитной динамики геликомагнитных структур методами трехосной спектроскопии нейтронов представляется трудоемкой и времязатратной задачей. Поэтому такие исследования для других соединений гелимагнетиков, таких как $Fe_{1-x}Co_xSi$, еще не проводились.

Предположение, что в намагниченном состоянии гелимагнетик превращается в феромагнетик с соответствующей квадратичной дисперсией [11–13], оказалось неверным. Вид спектра магнонов в гелимагнетиках, намагниченных полем, большим H_{C2}, был впервые получен Катаокой в работе [9]:

$$\epsilon_{\mathbf{q}} = A(\mathbf{q} - \mathbf{k}_s)^2 + g\mu(H - H_{C2}), \tag{1}$$

где $\mathbf{k}_s$ совпадает с ориентацией внешнего магнитного поля и равно D/J. Знак константы Дзялошинского–Мория определяет направление волнового вектора спирали $\mathbf{k}_s$, параллельного или антипараллельного относительно направления поля. Зависимость энергии от импульса $\epsilon_{\mathbf{q}}$ похожа на дисперсию в ферромагнетиках, но имеет три важных отличия. Во-первых, единственный минимум кривой смещается от позиции $\mathbf{q} = 0$ в позицию $\mathbf{q} = \mathbf{k}_s$. Во-вторых, знак константы Дзялошинского–Мория определяет предпочтительное направление распространения спиновых волн. И, в третьих, спин-волновая щель, связанная с магнитным полем, уменьшается на величину $g\mu H_{C2}$.

Недавно был предложен и успешно апробирован на примере MnSi экспресс-метод измерения жесткости спиновых волн в гелимагнетиках в полностью поляризованной фазе ($H > H_{C2}$) с помощью малоуглового рассеяния нейтронов (МУРН) [16, 17]. В работе [16] была экспериментально показана асимметричность дисперсии спиновых волн в гелимагнетиках с ДМ взаимодействием (1). Выводы работы [16], полученные на основе эксперимента по малоугловому рассеянию нейтронов, были подтверждены экспериментами с использованием трехосной спектроскопии нейтронов [18].

Изначально метод был развит для измерения спин-волновой жесткости в [19–22]. Суть метода измерения спин-волновой жесткости с помощью МУРН сводится к тому, что при рассеянии нейтронов на спиновых волнах, удовлетворяющих дисперсионному соотношению (1), волновой вектор рассеянного нейтрона $\mathbf{k}_f$ описывает две сферы в обратном пространстве $(\mathbf{q}_x, \mathbf{q}_y, \mathbf{q}_z)$ (рис. 1). Это является следствием законов сохранения импульса и энергии нейтрона в процессе рассеяния. При этом, из-за того что рассеяние осуществляется под малыми углами, ось обратного пространства $\mathbf{q}_z$ равна неупругой составляющей переданного импульса и пропорциональна переданной энергии ω, а оси $(\mathbf{q}_x, \mathbf{q}_y)$ равны упругой составляющей переданного импульса.

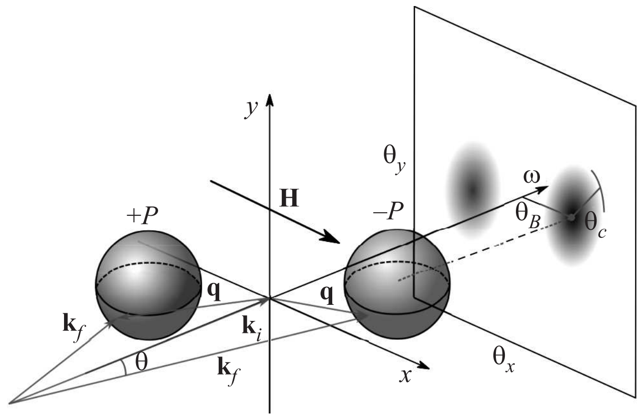

Рис. 1. Схема малоуглового рассеяния нейтронов на спиновых волнах в геликомагнетике, полностью намагниченном полем

Уравнения сфер, представленных на рис. 1 и выраженных в терминах углов рассеяния (θ_x, θ_y), имеют вид:

$$(\widetilde{\omega} - \theta_0)^2 + (\theta_x - \theta_B)^2 + \theta_y^2 = \theta_C^2, \tag{2}$$

$$(\widetilde{\omega} + \theta_0)^2 + (\theta_x + \theta_B)^2 + \theta_y^2 = \theta_C^2, \tag{3}$$

где $\widetilde{\omega} = \omega/2E$ – переданная нейтрону энергия, θ_B – брэгговский угол рассеяния на спиновой спирали, $\theta_0 = \hbar^2(2Am_n)^{-1}$ – параметр, связывающий жесткость спиновых волн A с массой нейтрона m_n. Радиус сферы представлен через угол θ_C, квадрат которого выражается через θ_0 и θ_B и линейно зависит от величины внешнего поля H [16]:

$$\theta_C^2(H) = \theta_0^2 - \frac{\theta_0}{E_i}H + \theta_B^2. \tag{4}$$

В методе малоуглового рассеяния нейтронов интенсивность рассеяния интегрируется по энергии, и поэтому сферы рассеяния проецируются на плоскость (θ_x, θ_y), а детектируемая интенсивность представляет собой два круга, как показано на рис. 1. В случае эксперимента с поляризованными нейтронами, законами сохранения энергии разрешено рассеяние только в одну из сфер в зависимости от направления поляризации нейтронов и знака константы Дзялошинского–Мория системы (см. детальное описание процесса в [16]). В случае рассеяния неполяризованных нейтронов наблюдаются два круга интенсивности.

Центры кругов сдвинуты из начала координат вдоль оси, заданной направлением поля, на угол Брэгга $\pm\theta_B$, а их радиус $\theta_C(H)$ зависит от величины поля (4). Угол θ_C был назван углом отсечки нейтронного рассеяния, а его измеренная в эксперименте величина позволяет решить квадратное уравнение (4) относительно параметра θ_0, а значит и определить жесткость спиновых волн A.

Эксперимент по малоугловому рассеянию нейтронов проводили на установке D11 в Институте Лауэ-Ланжевена (Гренобль, Франция). Использовали неполяризованный пучок нейтронов с длиной волны $\lambda = 0.6$ нм. Магнитное поле (0.02–1.9 Тл) прикладывали вдоль оси Q_x, т.е. перпендикулярно пучку. В качестве образца использовали монокристалл твердого раствора $Fe_{0.75}Co_{0.25}Si$. Температура упорядочения в геликоидальную фазу равна $T_c = 38$ K, а критическое поле перехода в полностью намагниченное состояние равно $H_{C2} = 0.18$ T. Рисунок 2a показывает типичную карту интенсивности малоуглового рассеяния нейтронов при температуре ниже критической T_c и в поле H меньше H_{C2}. На рисунке 2a можно видеть брэгговские рефлексы при $\mathbf{Q} = \pm\mathbf{k}_s$, что обусловлено рассеянием нейтронов на спиральной структуре с волновым вектором $\mathbf{k}_s$. Волновой вектор спирали не зависит от температуры и равен $\mathbf{k}_s = 0.19\,\text{нм}^{-1}$.

При достижении полем значений, превышающих H_{C2}, упругое рассеяние нейтронов (брэгговский пик) полностью исчезает, а остается лишь неупругое рассеяние, сосредоточенное вокруг $\mathbf{Q} = \pm\mathbf{k}_s$ (рис. 2b). Это рассеяние состоит из сильного диффузного (квазиупругого) рассеяния в окрестности брэгговского пика и круглого пятна, ограниченного углом отсечки θ_C. Диффузное рассеяние при $\mathbf{Q} = \pm\mathbf{k}_s$ оказывается максимальным при $H \sim H_{C2}$ и быстро уменьшается с ростом поля. Круглое пятно с центром в $\mathbf{Q} = \pm\mathbf{k}_s$ может наблюдаться в широком диапазоне полей, вплоть до $H_{\text{off}} = \theta_0 E_i$ (в соответствии с (4)). С ростом температуры интенсивность рассеяния на спиновых волнах растет, растет и величина пятна

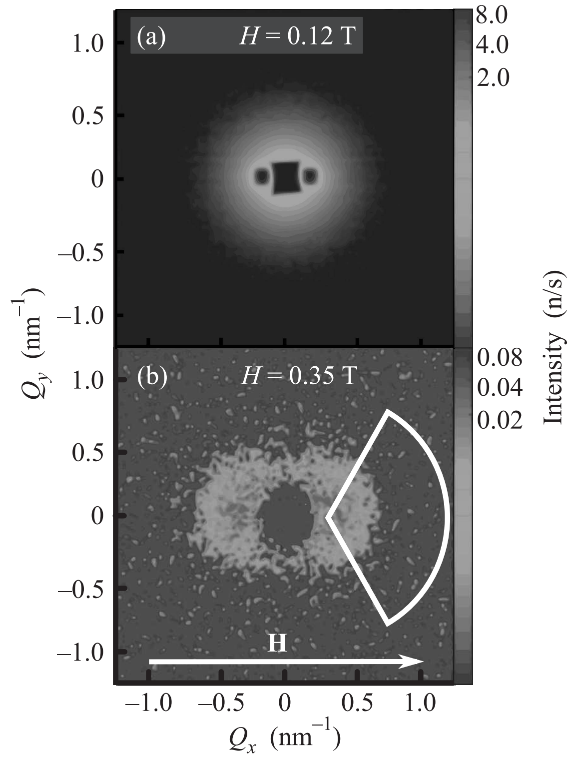

Рис. 2. Двумерные карты малоуглового рассеяния нейтронов при $T = 20$ K: $H = 0.12$ T $< H_{C2}$ (a) и $H = 0.35$ T $> H_{C2}$ (b) соответственно

рассеяния. На рис. 3a–c показаны карты интенсивности рассеяния нейтронов при различных тепературах в поле $H = 0.35$ T. Из этих данных можно легко оценить угол отсечки рассеяния нейтронов θ_C.

Для определения угла отсечки θ_C интенсивность рассеяния нейтронов была радиально усреднена по угловому сектору 120° с центром, расположенным в точке $\mathbf{Q} = \pm\mathbf{k}_s$, как показано на рис. 2b. Зависимость интенсивности рассеяния от угла $\theta - \theta_B$ представлена на рис. 4 для разных значенй магнитного поля $H = 0.35$ и 0.70 T при $T = 20$ K. Угол отсечки $\theta_C(H)$ получали из экспериментальной зависимости I от $\theta - \theta_B$, аппроксимируя полученные данные следующей функцией: $1/2 - (1/\pi)\arctan(2(\theta - \theta_c)/\delta)$. Положение угла отсечки определялось как центр arctan-функции θ_c. Параметр δ аппроксимирующей функции пропорционален затуханию спиновых волн $\Gamma \approx \approx \delta \cdot E_n$.

Квадрат угла отсечки θ_c^2 показан на вставке на рис. 4 для двух разных значений поля при $T = 20$ K. Используя выражение (4), можно вычислить значение параметра θ_0, а следовательно и спин-волновой жесткости A. Предполагается, что жесткость спиновых волн не зависит от поля в диапазоне приложенных полей. Апроксимация показала, что параметр δ,

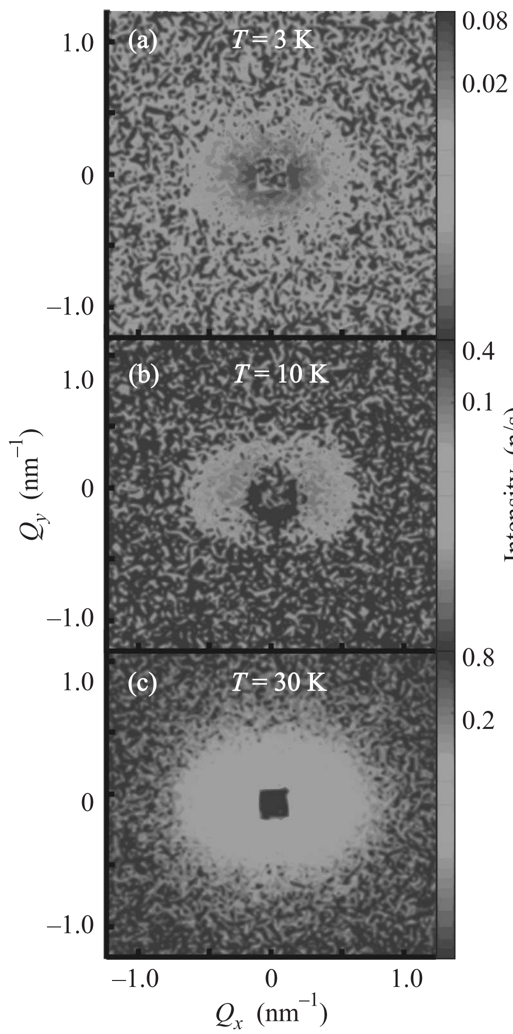

Рис. 3. Двумерные карты малоуглового рассеяния нейтронов при $H = 0.35\,\mathrm{T}$: $T = 3\,\mathrm{K}$ (a), $T = 10\,\mathrm{K}$ (b), $T = 30\,\mathrm{K}$ (c) соответственно

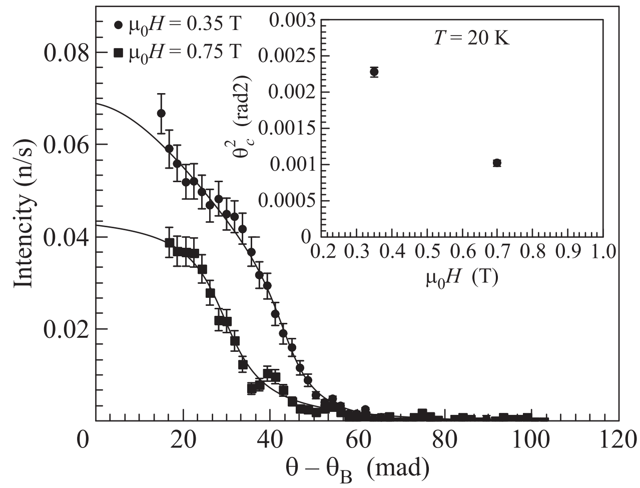

Рис. 4. Интенсивность рассеяния нейтронов, радиально усредненная вокруг центра в точке $Q = k_s$ по угловому сектору в 120°, при $H = 0.35\,\mathrm{T}$ и $H = 0.7\,\mathrm{T}$ при температуре $T = 20$ K. Вставка демонстрирует зависимость квадрата угла отсечки θ_c^2 от магнитного поля H

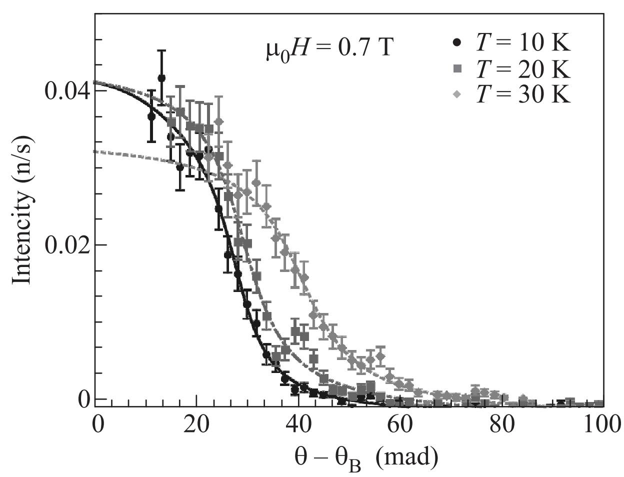

Рис. 5. Интенсивность рассеяния нейтронов, радиально устредненная по угловому сектору в 120° с центром в точке $Q = k_s$, при $T = 10\,\mathrm{K}$, $T = 20\,\mathrm{K}$, $T = 30\,\mathrm{K}$ при поле $H = 0.7\,\mathrm{T}$

связанный с затуханием, мало меняется с ростом поля, а ошибка его определения растет.

Зависимости интенсивности рассеяния нейтронов, радиально усредненной по угловому сектору в 120° с центром в точке $Q = k_s$ при разных температурах в поле $H = 0.7\,\mathrm{T}$, представлены на рис. 5. Видно, что угол отсечки немного растет с температурой, но граница отсечки размывается с ростом температуры. Угол отсечки θ_0, полученный из (4), а также параметр δ, связанный с затуханием спиновых волн и полученный из аппроксимации, представлены на рис. 6 в зависимости от температуры. Рисунок 6 можно легко интерпретировать, поскольку отношение δ/θ равно отношению затухания спиновой волны к энергии спиновой волны Γ/ϵ при $q \sim k_n\theta_0$. Это отношение равно практически нулю при нулевой температуре, растет с температурой и сравнимо с единицей в критической области температур $T \to T_c = 38\,\mathrm{K}$.

Жесткость спиновых волн, полученная из угла отсечки при разных температурах, представлена на рис. 7. Температурная зависимость A была аппроксимирована степенным законом следующего вида: $A(T) = A_0(1 - c(T/T_C)^z)$, где $z = 1.8$, $A_0 = 45.98\,\text{мэВ}\,\text{Å}^2$ и $c = 0.215$. Таким образом, показано, что спин-волновая жесткость A слабо меняется с температурой и вблизи критической температуры T_c равна 0.785 от своего значения при $T = 0\,\mathrm{K}$.

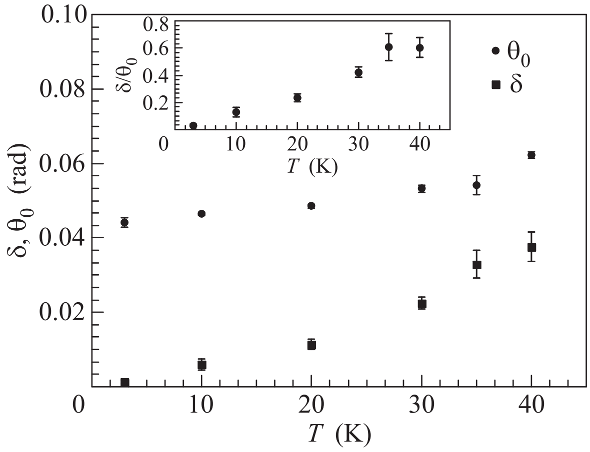

Рис. 6. Температурная зависимость угла отсечки θ_0 и параметра затухания δ в поле $H = 0.35$ T. На вставке показано отношение δ/θ_0

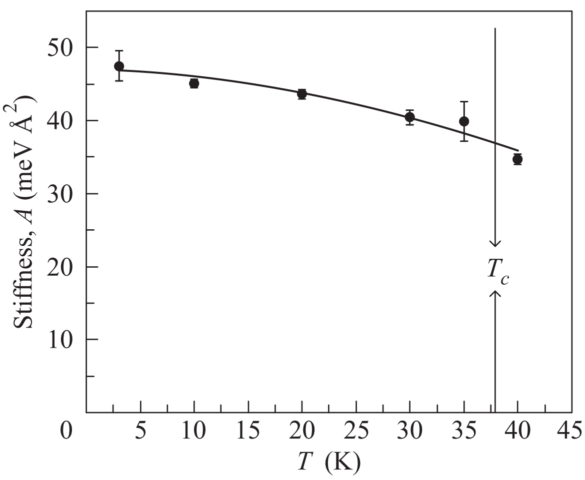

Рис. 7. Температурная зависимость жесткости спиновой волны $A(T)$

Жесткость спиновых волн можно оценить, используя соотношение, связывающее критическое магнитное поле H_{C2} и разность энергий между индуцированной ферромагнитной фазой и гелимагнитным состояниями $g\mu_B H_{C2} = Ak_s^2$ [6, 7]. Подставляя в это выражение значения H_{c2} и k_s, например для $T = 20$ K, получаем оценку для $A_o \simeq 48.0$ мэВ Å^2, которая близка к экспериментально полученной величине $A_0 = 43.5$ мэВ Å^2 для $T = 20$ K. Можно заключить, что выражение, связывающее H_{C2} и k_s, может быть использовано для оценки жесткости спиновой волны в соединении $Fe_{0.75}Co_{0.25}Si$.

В заключение отметим, что в работе экспериментально показана справедливость дисперсионного соотношения спиновых волн (1) для геликомагнетика $Fe_{0.75}Co_{0.25}Si$ с взаимодействием Дзялошинского–Мория в полностью намагниченном состоянии. Несмотря на сходство с ферромагнитной дисперсией, дисперсия гелимагнетика показывает минимум, сдвинутый вдоль оси поля от позиции $\mathbf{q} = 0$ до значения $\mathbf{k}_s$. Анализ рассеяния позволил установить величину жесткости спиновых волн, которая слабо меняется с температурой и равна $A_0 = 45.98$ мэВ Å^2 при $T = 0$ K. Между тем, затухание спиновых волн равно нулю при $T = 0$ и растет с температурой, приближаясь к величине энергии спиновых волн в области критических температур. Рост затухания спиновых волн с приближением к T_c характерен для ферромагнетиков. Однако в работе показано, что при этом не происходит смягчения спектра (спин-волновая жесткость слабо меняется с температурой). По-видимому, такое поведение спин-волновой жесткости с температурой характерно для гелимагнетиков с ДМ взаимодействием, поскольку оно также наблюдалось для образца MnSi [16]. Более того можно заключить, что разрушение дальнего магнитного порядка (спиновой спирали) в этих системах является результатом конкуренции ферромагнитного обменного взаимодействия и взаимодействия Дзялошинского–Мория, а температурных фазовый переход в них следует признать переходом первого рода.

Авторы благодарят за поддержку Российский Научный Фонд (грант # 17-12-01050).

1. O. Nakanishia, A. Yanase, A. Hasegawa, and M. Kataoka, Solid State Commun. **35**, 995 (1980).
2. P.Bak and M. H. Jensen, J. Phys. C **13**, L881 (1980).
3. S. Muhlbauer, B. Binz, F. Jonietz, C. Pfleiderer, A. Rosch, A. Neubauer, R. Georgii, and P. Boni, Science **323**, 915 (2009).
4. C. Pfleiderer, T. Adams, A. Bauer, W. Biberacher, B. Binz, F. Birkelbach, P. Boni, C. Franz, R. Georgii, M. Janoschek, F. Jonietz, T. Keller, R. Ritz, S. Muhlbauer, W. Munzer, A. Neubauer, B. Pedersen, and A. Rosch, J. Phys.: Cond. Matt. **22**, 164207 (2010).
5. S. V. Grigoriev, N. M. Potapova, E. V. Moskvin, V. A. Dyadkin, Ch. Dewhurst, and S. V. Maleyev, JETP Lett. **100**(3), 238 (2014).
6. S. V. Maleyev, Phys. Rev. B **73**, 174402 (2006).
7. A. N. Bogdanov, U. K. Roessler, and C. Pfleiderer, Physica B **359–361**, 1162 (2005).
8. S. V. Grigoriev, S. V. Maleyev, V. A. Dyadkin, D. Menzel, J. Schoenes, and H. Eckerlebe, Phys. Rev. B **76**, 092407 (2007).
9. M. Kataoka, J. Phys. Soc. Jpn. **56**(10), 3635 (1987).
10. D. Belitz, T. R. Kirkpatrick, and A. Rosch, Phys. Rev. B **73**, 054431 (2006).

11. Y. Ishikawa, G. Shirane, J. A. Tarvin, and M. Kohgi, Phys. Rev. B **16**, 4956 (1977).
12. J. A. Tarvin, G. Shirane, Y. Endoh, and Y. Ishikawa, Phys. Rev. B **18**, 4815 (1978).
13. F. Semadeni, P. Boni, Y. Endoh, B. Roessli, and G. Shirane, Physica B **267–268**, 248 (1999).
14. M. Janoschek, F. Bernlochner, S. Dunsiger, C. Pfleiderer, P. Boni, B. Roessli, P. Link, and A. Rosch, Phys. Rev. B **81**, 214436 (2010).
15. M. Kugler, G. Brandl, J. Waizner, M. Janoschek, R. Georgii, A. Bauer, K. Seemann, A. Rosch, C. Pfleiderer, P. Boni, and M. Garst, Phys. Rev. B **115**, 097203 (2015).
16. S. V. Grigoriev, A. S. Sukhanov, E. V. Altynbaev, S.-A. Siegfried, A. Heinemann, P. Kizhe, and S. V. Maleyev, Phys. Rev. B **92**, 220415(R) (2015).
17. S. V. Grigoriev, E. V. Altynbaev, S.-A. Siegfried, K. A. Pschenichnyi, D. Menzel, A. Heinemann, and G. Chaboussant, Phys. Rev. B **97**, 024409 (2018).
18. T. J. Sato, D. Okuyama, T. Hong, A. Kikkawa, Y. Taguchi, Taka-hisa Arima, and Y. Tokura, Phys. Rev. B **84**, 144420 (2016).
19. A. I. Okorokov, V. V. Runov, B. P. Toperverg, A. D. Tretyakov, E. I. Maltsev, I. M. Puzeii, and V. E. Mikhailova, JETP Lett. **43**, 503 (1986).
20. V. Deriglazov, A. Okorokov, V. Runov, B. Toperverg, R. Kampmann, H. Eckerlebe, W. Schmidt, and W. Lobner, Physica B **181–182**, 262 (1992).
21. B. P. Toperverg, V. V. Deriglazov, and V. E. Mikhailova, Physica B **183**, 326 (1993).
22. S. V. Grigoriev, E. V. Altynbayev, H. Eckerlebe, and A. I. Okorokov, J. Surf. Invest.: X-Ray, Synchrotron Neutron Tech. **8**(5), 1027 (2014).