

Исследование киральной структуры Y/Dy многослойной системы методом малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов

С. В. Григорьев, А. И. Огороков, Ю. О. Четвериков¹⁾, Д. Ю. Чернышев, Х. Екерлеб⁺²⁾, К. Пранзас⁺²⁾, А. Шрейер⁺²⁾

Петербургский институт ядерной физики РАН
188300 Гатчина, Ленинградская обл., Россия

⁺ GKSS Forschungszentrum, 21502 Geesthacht, Germany

Поступила в редакцию 24 апреля 2006 г.

Методом малоуглового рассеяния поляризованных нейтронов исследована магнитная спиральная структура образца Y/Dy в диапазоне температур от 30 до 190 К. Образец представляет собой последовательность слоев $Y_{50nm}[Dy_{4.3nm}/Y_{2.8nm}]_{350}/Y_{234nm}/Nb_{200nm}Al_2O_3$ (подложка), выращенную как монокристалл с осью [001] гексагональной решетки, перпендикулярной плоскости слоев. Проведенные эксперименты демонстрируют появление магнитного пика ниже $T_N = 165.4$ К, связанного с геликоидальной фазой, причем длина когерентности геликоида оказывается больше толщины слоя Y/Dy. Использование поляризованных нейтронов позволяет разделить поляризационно-зависящий и поляризационно-независящий вклады в магнитное рассеяние. Поляризационно-независящая часть магнитного нейтронного сечения пропорциональна квадрату намагниченности $\langle S_z \rangle^2$, в то время как поляризационно-зависящая часть пропорциональна средней киральности системы $\langle C \rangle = \langle [S_1 \times S_2] \rangle$. Установлены критические индексы для средней киральности $\beta_C = 1.02(1)$ и намагниченности $\beta = 0.39(1)$. Критический индекс намагниченности β для Dy/Y совпадает с индексом, получаемым для объемных образцов Dy. Разница $\beta_C - 2\beta = 0.24(2)$ показывает, что киральность может являться компонентой параметра порядка, не зависимой от намагниченности. Данный эксперимент подтверждает результаты, (PRB **64**(2001) 100402(R)), полученные для критической киральности в Ho.

PACS: 61.12.Ex, 75.40.-s

Введение. Природа фазовых переходов из парамагнитного в гелимагнитное состояние привлекает внимание исследователей как с теоретической, так и с экспериментальной точек зрения. Так, используя результаты ренормгруппового анализа, Мукомель, Крински и Бак, во-первых, сделали вывод, что такой фазовый переход является непрерывным и, во-вторых, что полученные в ходе анализа значения критических экспонент оказались равными $\beta = 0.39$, $\gamma = 1.39$, $\alpha = -0.17$ и $\nu = 0.70$ [1, 2]. В то же время, Кавамура предположил существование нового класса универсальности для геликоидальных магнетиков, характеризующихся величиной $n = 2$ (здесь n – число спиновых компонент, обуславливающее анизотропию) и размерностью $d = 3$ [3, 4]. Модель Кавамуры предсказывает иные значения критических экспонент, то есть $\beta = 0.25$, $\gamma = 1.1$, $\alpha = 0.4$ и $\nu = 0.53$. Большинство экспериментов по фазовым переходам из парамагнитного в геликоидальное состояние были проанализированы, исходя из предположения о том,

что это переход второго рода. Найденные экспериментальные значения критических индексов равны $\beta = 0.39 \pm 0.01$ [5, 6], $\gamma = 1.05 \pm 0.07$ и $\nu = 0.57 \pm 0.05$ [7]. Очевидно, что значения индекса для намагниченности ($\beta = 0.39$) соответствуют предсказаниям Мукомеля и не согласуются с величиной $\beta = 0.25$, предсказываемой Кавамурой. В то же время, наблюдаемое значение индекса ν находится близко к предсказанному Кавамурой. Детальный обзор теоретических и экспериментальных работ, связанных с геликомагнитным переходом в Dy и Ho, дан в работе Плесиса и др. [8].

Теория Кавамуры базируется на предположении, что в случае геликомагнетиков параметр порядка включает наряду с обычной спиновой переменной S_R еще и спиновую киральность C , определяемую как векторное произведение двух лежащих в плоскости (xy) спинов: $C = [S_1 \times S_2]$ [3, 4]. Недавно было также понято, что использование поляризованных нейтронов в экспериментах по рассеянию позволяет выделить киральный вклад, пропорциональный $\langle C \rangle$, и сравнить его температурное поведение ниже T_N со вкладом намагниченности $\langle S \rangle$. Действительно, как

¹⁾ e-mail: Yuri.Chetverikov@pnpi.spb.ru

²⁾ H. Eckerlebe, K. Pranzas, A. Schreyer.

показано в работах [9, 10], упругое рассеяние нейтронов на магнитной спирали ниже T_N может быть представлено в следующем виде:

$$d\sigma/d\Omega = [rF(q)/2]^2 \{S^2(1 + (\hat{\mathbf{q}}\hat{\mathbf{c}})^2) + 2\langle C \rangle (\hat{\mathbf{q}}\mathbf{P}_0)(\hat{\mathbf{q}}\hat{\mathbf{c}})(n_L - n_R)\} \delta(\mathbf{q} - \mathbf{k}), \quad (1)$$

где $\hat{\mathbf{c}} = [\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2]/\langle C \rangle$ – единичный вектор киральности, $\hat{\mathbf{q}} = \mathbf{q}/q$, \mathbf{k} – вектор магнитной спирали и n_L, n_R – уровни заселенности лево- и правосторонней спирали ($n_L + n_R = 1$).

Из (1) видно, что сечение рассеяния нейтронов зависит от начальной поляризации \mathbf{P}_0 , и что можно извлечь поляризационно-независимую часть сечения как

$$\Sigma\sigma(\mathbf{q}) = \sigma(\mathbf{q}, \mathbf{P}_0) + \sigma(\mathbf{q}, -\mathbf{P}_0) \sim S^2(1 + (\hat{\mathbf{q}}\hat{\mathbf{c}})^2), \quad (2)$$

а поляризационно-зависимую часть как

$$\Delta\sigma(\mathbf{q}) = \sigma(\mathbf{q}, \mathbf{P}_0) - \sigma(\mathbf{q}, -\mathbf{P}_0) \sim \langle C \rangle (\hat{\mathbf{q}}\mathbf{P}_0)(n_L - n_R). \quad (3)$$

Для удобства сопоставления двух вкладов в рассеяние мы ввели γ – отношение рассеяния как

$$\gamma = \frac{\Delta\sigma(\mathbf{q})}{\Sigma\sigma(\mathbf{q})} = \frac{2\langle C \rangle (\hat{\mathbf{q}}\mathbf{P}_0)(\hat{\mathbf{q}}\hat{\mathbf{c}})(n_L - n_R)}{S^2(1 + (\hat{\mathbf{q}}\hat{\mathbf{c}})^2)} \sim \frac{\langle C \rangle (\hat{\mathbf{q}}\mathbf{P}_0)(n_L - n_R)}{S^2} \quad (4)$$

для $\mathbf{q} = \mathbf{k} \parallel \mathbf{c}$.

Предполагалось, что температурное поведение переменной $\langle C \rangle$ подобно поведению переменной S^2 . Это должно привести к постоянному γ -отношению во всем температурном диапазоне $T < T_N$. Однако это предположение не подтверждается экспериментальными фактами [11]. Для магнитного перехода в спиральном магнетике Но было обнаружено, что критический индекс средней киральности равен $\beta_C = 0.90(3)$, тогда как для намагниченности $\beta = 0.38(1)$. В работе делается вывод, что ненулевая разница $\beta_C - 2\beta = 0.13(2)$ означает, что киральность является компонентой параметра порядка, не зависящей от намагниченности.

Следует особо отметить, что для выделения средней киральности необходимо, чтобы уровни заселенности правых и левых доменов не были равны ($n_L \neq n_R$). Иногда это достигается за счет внутренних сил, таких как взаимодействие Дзялошинского-Мория в MnSi, где наблюдается только левозакрученная спираль [12, 13]. Известно, что в Dy и Ho спиральные домены (левый и правый) одинаково заселены, так что разницу в уровнях заселения доменов

приходится создавать искусственно. К примеру, в работе [14] неравновесная заселенность была создана в монокристалле Но за счет деформации кручения. Мы использовали многослойную сверхрешетку Y/Dy в качестве образца, предполагая, что деформирующие межслойные напряжения в структуре способны изменить уровни заселенности спиральных доменов.

В данной работе сообщается о критическом рассеянии поляризованных нейтронов на многослойной системе Y/Dy. Важной особенностью таких систем является когерентность несоизмерного магнитного геликоида в пределах нескольких слоев [15, 16]. Ниже T_N исследовалась температурная эволюция двух вкладов в сечение нейтронного рассеяния — поляризационно-независимого и поляризационно-зависимого.

1. Образец. Исследуемый образец представляет собой сверхрешетку, подобную использованной в работах [15, 16]. Образец состоит из последовательности слоев $Y_{50}[Dy_{4.3nm}/Y_{2.8nm}]_{350}/Y_{234nm}/Nb_{200nm}Al_2O_3$ (подложка), созданной методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Слои выращены в плоскости перпендикулярной оси [001] гексагональной структуры Dy и Y как монокристалл. Размер слоистой пластины образца 60×60 мм.

Магнитные свойства объемного диспрозия хорошо известны: ниже критической температуры $T_N = 180$ К спиновая система Dy, имеющего гексагональную кристаллографическую структуру, ферромагнитно упорядочивается в плоскости (ab) , но закручивается вдоль оси c в спираль, несоизмерную с кристаллографической структурой. С понижением температуры период спирали растет от 25 до 40 Å. Ниже температуры Кюри $T_C = 89$ К система трансформируется в ферромагнитную структуру.

Ситуация для сверхрешеток Dy/Y схожа с объемным диспрозием благодаря тому, что Y может рассматриваться как немагнитный аналог Dy. Ниже $T_N = 166$ К появляется когерентная спиновая спираль с характерной длиной когерентности, значительно превышающей толщину двойного слоя Dy/Y, в то время как ферромагнитный переход при $T_C = 89$ К оказывается подавленным [15, 16]. Предполагается, что когерентная спиновая спираль проникает сквозь парамагнитные слои Y благодаря волне зарядовой плотности электронов проводимости, проходящей сквозь слои Y и Dy вдоль оси c .

Из-за несоответствий параметров решеток объемных Y и Dy появляется 1.6% эпитаксиальное растяжение решетки Dy, что приводит к напряжениям в направлении, перпендикулярном плоскости слоев.

Предполагается, что напряжения в решетке Dy способны создать разницу в уровнях заселенности лево- и право-закрученных спиралей, подобно тому как это сделано в [14]. Разница в уровнях заселенности действительно наблюдалась в нашем эксперименте.

2. Экспериментальная установка. Эксперименты по малоугловому рассеянию поляризованных нейтронов проводились на установке SANS-2 исследовательского реактора FRG-1 в Геестхахте (Германия). Использовался пучок поляризованных нейтронов с начальной поляризацией $P_0 = 0.95$, длиной волны $\lambda = 0.49$ нм, отношением $\Delta\lambda/\lambda = 0.1$ и расходимостью пучка 2.5 мрад. Рассеянные нейтроны регистрировались двухкоординатным позиционно-чувствительным детектором с разрешением 256×256 пикселей. Расстояние образец – детектор было установлено так, что диапазон переданных импульсов распространялся от $6 \cdot 10^{-2}$ до 3 нм^{-1} . Интенсивность рассеяния измерялась в температурном диапазоне от 30 до 190 К с точностью, лучшей, чем 0.1 К. Внешнее магнитное поле 10 мТл было приложено перпендикулярно падающему пучку и параллельно оси c образца. Поляризация пучка адиабатически следовала направлению магнитного поля.

3. Результаты. Образец был расположен таким образом (рис.1), что ось c находилась почти перпендикулярно падающему пучку, то есть в так на-

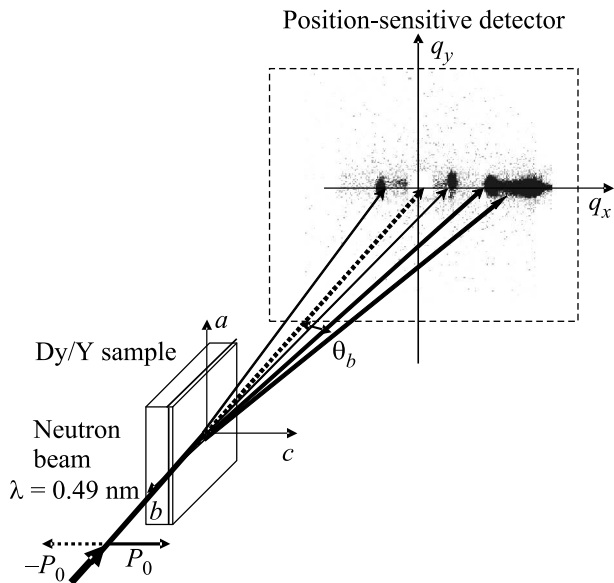


Рис.1. Схема эксперимента

зываемой скользящей геометрии. Вектор рассеяния как сверхрешетки, так и несоизмеренного магнитного геликоида ориентирован перпендикулярно поверхности сверхрешетки, то есть вдоль оси c . Слои в об-

разце не являются идеально плоскопараллельными, образуя заметную мозаичность порядка $2-3^\circ$. Таким образом, условие Брэгга $2d \sin \theta_B / 2 = \lambda$, с $q = 2\pi/d$ может быть выполнено в диапазоне малоуглового рассеяния для нескольких θ сразу. При определенном положении образца эта особенность позволяет нам наблюдать несколько пиков, образованных взаимодействием нейтрона со спиновым геликоидом и ядерной сверхструктурой.

На рис.2а дана контурная карта дифракционных пиков в логарифмической шкале при $T = 150$ К. На

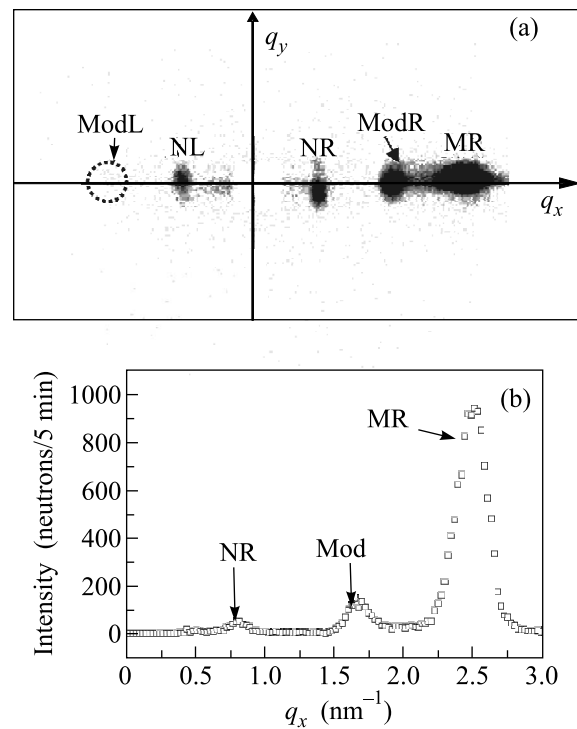


Рис.2. Карта интенсивности нейтронного рассеяния на двухкоординатном детекторе (а) и интенсивность при продольном сканировании волнового вектора, то есть вдоль q_x (б) при $T = 150$ К

рис.2б показана интенсивность рассеяния при продольном q_x сканировании. Два симметрично расположенных, ближайших к центру ($q = 0$) пика являются отражениями от ядерной периодической структуры. Мы обозначили их как NL-пик слева и NR-пик справа от прямого пучка. Ни позиции, ни интенсивности этих пиков не меняются во всем диапазоне температур. Наиболее интенсивный пик с правой стороны карты возникает из-за рассеяния на спиновом геликоиде. Он обозначен как MR. Этот пик появляется ниже 166 К. С понижением температуры до 100 К период геликоида возрастает с 23.4 до 27.8 \AA и остается постоянным при $T < 100$ К. Пик между NR и

MR появляется в результате модуляции магнитного геликоида ядерной слоистой структурой, он назван ModR. При другом положении образца с левой стороны виден модулированный пик ModL, подобный пику ModR.

Для каждого пика была рассчитана величина P_S , определенная нами как

$$P_S(X) = \frac{\Delta A_X}{\Sigma A_X} = \frac{A_X(P) - A_X(-P)}{A_X(P) + A_X(-P)}, \quad (5)$$

где $A_X(P)$ и $A_X(-P)$ – интегральные интенсивности пика X , измеренные с поляризацией падающего пучка, направленной по и против вектора внешнего поля, соответственно. $\Sigma A_X = A_X(P) + A_X(-P)$ является поляризационно-независящей частью рассеяния, тогда как $\Delta A_X = A_X(P) - A_X(-P)$ – поляризационно-зависящая часть. Для двух ядерных пиков (NR и NL) значения $P_S(\text{NR})$ и $P_S(\text{NL})$ оказались равными нулю. Для других пиков справа (MR, ModR) P_S – положительные величины, тогда как $P_S(\text{ModL})$ – отрицательная величина и по модулю равна $P_S(\text{ModR})$, так что $P_S(\text{ModL}) = -P_S(\text{ModR})$.

Общая интенсивность ΣA_{MR} , или, поляризационно-независящая часть для геликоидального пика MR показана на рис.3 как функция

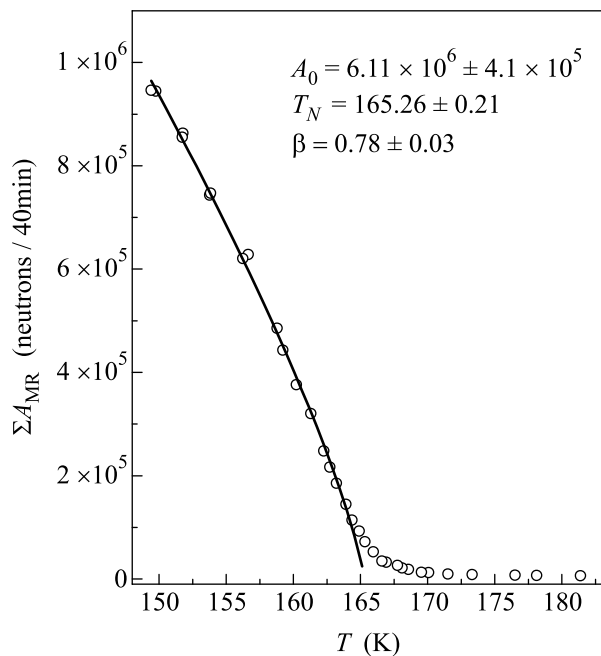


Рис.3. Температурная зависимость интенсивности отражения MR при $T < T_N$ и интенсивности критического рассеяния при $T > T_N$

температуры. Как показано в (2), $\Sigma I(q)$ пропорциональна S^2 . Температурная зависимость

$\Sigma A_{\text{MR}}(T)$ была подогнана скейлинговым выражением $\Sigma A_{\text{MR}}(T) = A_0 \tau^{2\beta}$ в диапазоне $\tau < 0.1$, где $\tau = (T_N - T)/T_N$, а β – критический индекс намагниченности. Установлены величины критической температуры $T_N = 165.3 \pm 0.2$ и критического индекса $\beta = 0.40 \pm 0.01$. Величина β для данной сверхрешетки хорошо совпадает со значением β для объемного Dy [8].

Рис.4 демонстрирует температурную зависимость величины P_S . Для пика MR в диапазоне $T > T_N$ величина P_S колеблется около нуля в пределах ошибки. С уменьшением температуры в диапазоне $158 < T < T_N$ ($\tau < 0.05$) она начинает расти, и становится постоянной при $T < 158$. Как показано в (4), $P_S \sim \langle(C)\rangle/S^2$. Если предположить,

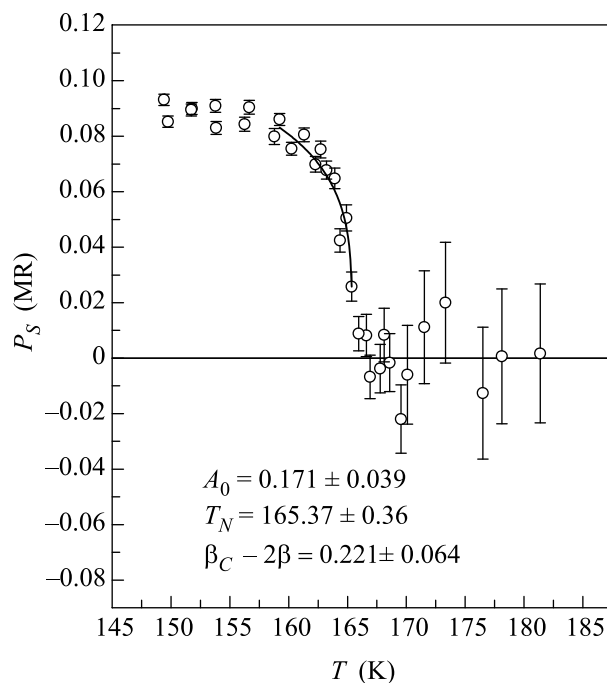


Рис.4. Температурная зависимость поляризации P_S магнитного пика MR

что средняя киральность меняется с температурой как τ^{β_C} , тогда из этого следует, что $P_S \sim \tau^{\beta_C - 2\beta}$. В простейшем случае, когда $\langle(C(T))\rangle = A[S(T)]^2$, P_S не должна зависеть от температуры. Однако экспериментальные данные демонстрируют T -зависимость, которая была подогнана выражением $P_S(\text{MR}) = A_0 \tau^{\beta_C - 2\beta}$. В результате подгонки были получены значения критической температуры $T_N = 165.4 \pm 0.2$ и разницы $\beta_C - 2\beta = 0.22 \pm 0.01$.

Таким образом, критические температуры T_N , полученные из подгонок ΣA_{MR} и $P_S(\text{MR})$, совпадают в пределах ошибок. Критический индекс для средней киральности $\beta_C = 2\beta + 0.22 = 1.02 \pm 0.02$ сильно от-

личается от критического индекса намагниченности 2β .

Заключение. Экспериментально исследован магнитный фазовый переход из парамагнитного в геликоидальное состояние в многослойной системе сверхрешетки Dy/Y. В системе найдено не одинаковое заселение уровней геликоидальных доменов ($n_L - n_R \neq 0$), которое приводит к появлению поляризационной зависимости магнитного рассеяния и возможности изучения киральной составляющей $\langle C \rangle$.

Высказана гипотеза, связывающая появление киральной составляющей рассеяния с наличием напряжений кручения в многослойных системах Y/Dy, появляющихся в процессе кристаллического роста. Альтернативной гипотезой является случайное статистическое распределение числа левых, n_L , и правых, n_R , спиральных доменов, так что $\Delta n = n_L - n_R \sim \sqrt{n_L + n_R}$. В настоящий момент ни одна из гипотез не является хорошо подтвержденной и вопрос требует дальнейшего исследования.

Выявлено, что T -зависимость киральной составляющей рассеяния отличается от T -зависимости некиральной составляющей. Определены критический индекс намагниченности системы $\beta = 0.40$ и критический индекс киральности $\beta_C = 1.02$.

Разница в критических индексах 2β и β_C может быть интерпретирована как появление независимого кирального параметра порядка в соответствии с гипотезой, выдвинутой Кавамура [3, 4]. В этом случае, так же как и в работе [11], предполагается, что $\Delta\sigma(T) \sim \langle C \rangle(T)$, а разница заселенностей $\Delta n = n_L - n_R$ от температуры не зависит (см. (4)).

Возможно другое объяснение разницы в индексах – температурное масштабирование параметра Δn . В этом случае $\Delta\sigma(T) \sim S^2(T)\Delta n(T)$, где $S^2(T) \sim \tau^{2\beta}$, а $\Delta n(T) \sim \tau^{\beta_C - 2\beta}$. Однако эту ги-

потезу необходимо также подтвердить экспериментально.

Авторы выражают благодарность В.П. Плахтию и N.H. van Dijk за полезные обсуждения, Российскому фонду фундаментальных исследований (проекты # 04-02-16342 и # 05-02-19889-ЯФ), Российской федеральной программе “Нейтронные исследования вещества” за оказанную финансовую поддержку, а также институту GKSS (Германия) за гостеприимство.

1. D. Mukamel and S. Krinsky, Phys. Rev. B **13**, 5065 (1976).
2. P. Bak and D. Mukamel, Phys. Rev. B **13**, 5086 (1976).
3. H. Kawamura, J. Appl. Phys. **63**, 3086 (1988).
4. H. Kawamura, Phys. Rev. B **38**, 4916 (1988).
5. P. de V. Du Plessis, C. F. van Doorn, and D. C. van Delden, J. Magn. Magn. Mat. **40**, 91 (1983).
6. G. H. F. Brits and P. de V. Du Plessis, J. Phys. F: Met. Phys. **18**, 2659 (1988).
7. B. D. Gaulin, M. Hagen, and H. R. Child, J. Physique Coll. **49**, (8) 327 (1988).
8. P. de V. Du Plessis, A. M. Venter, and G. H. F. Brits, J. Phys.: Condens. Matter **7**, 9863 (1995).
9. S. V. Maleyev, V. G. Bar'jakhtar, and R. A. Suris, Fiz. Tv. Tela **4**, 3461 (1962).
10. M. Blume, Phys. Rev. **130**, 1670 (1963).
11. V. P. Plakhty, W. Schweika, Th. Bruckel et al., Phys. Rev. B **64**, 100402(R) (2001).
12. И. Е. Дзялошинский, ЖЭТФ **46**, 1420 (1964) [Sov. Phys. JETP **19**, 960 (1964)].
13. P. Bak and M. Jensen, J. Phys. C **13**, L881 (1980).
14. V. I. Fedorov, A. G. Gukasov, V. Kozlov et al., Phys. Lett. A **224**, 372 (1997).
15. M. B. Salamon, S. Sinha, J. J. Rhyne et al., Phys. Rev. Lett. **56**, 259 (1986).
16. Ross W. Erwin, J. J. Rhyne, M. B. Salamon et al., Phys. Rev. B **35**, 6808 (1987).