

强磁场在 ZnCr_2Se_4 中诱导的各向异性太赫兹共振吸收

张朋 刘政 戴建明 杨昭荣 苏付海

Anisotropic resonance absorptions induced by high magnetic field in ZnCr_2Se_4

Zhang Peng Liu Zheng Dai Jian-Ming Yang Zhao-Rong Su Fu-Hai

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 207501 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20201507

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201507>

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

双磁性中心内嵌富勒烯 $\text{Y}_2\text{C}_2@C_{82}-C_2(1)$ 中的超快自旋动力学行为

Ultrafast spin dynamics in double-magnetic-center endohedral fullerene $\text{Y}_2\text{C}_2@C_{82}-C_2(1)$

物理学报. 2019, 68(2): 023101 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20181887>

拓扑绝缘体中的超快电荷自旋动力学

Ultrafast charge and spin dynamics on topological insulators

物理学报. 2019, 68(22): 227202 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20191433>

强磁场下Sm-Fe薄膜不同晶态组织演化及磁性能调控

Evolutions of different crystalline textures in Sm-Fe film fabricated under high magnetic field and subsequent tuning magnetic properties

物理学报. 2018, 67(9): 097501 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180212>

微米气室铯原子自旋噪声谱

Spin noise spectroscopy of cesium vapor in micron-scale cell

物理学报. 2020, 69(3): 037201 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191623>

钛圆盘阵列增强微测辐射热计太赫兹波吸收特性

Absorption enhancement of terahertz wave in microbolometers by titanium disk array

物理学报. 2019, 68(20): 208501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190902>

InAs/GaSb量子阱中太赫兹光电导特性

Terahertz photoconductivity in InAs/GaSb based quantum well system

物理学报. 2018, 67(18): 187301 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180769>

专题：太赫兹自旋光电子

强磁场在 ZnCr_2Se_4 中诱导的各向异性太赫兹共振吸收*张朋¹⁾ 刘政²⁾ 戴建明²⁾ 杨昭荣³⁾ 苏付海^{2)†}

1) (阜阳师范大学, 信息功能材料结构与器件安徽省高校重点实验室, 阜阳 236037)

2) (中国科学院合肥物质科学研究院, 固体物理研究所, 中国科学院材料物理重点实验室, 合肥 230031)

3) (中国科学院合肥物质科学研究院, 强磁场科学中心, 极端条件凝聚态物理安徽省重点实验室, 合肥 230031)

(2020年9月9日收到; 2020年9月16日收到修改稿)

作为典型的具有螺旋磁结构的材料, ZnCr_2Se_4 承载着诸如磁电耦合、磁致伸缩和负热膨胀等有趣特性, 并可能具备多种不同的量子基态. 本文利用太赫兹时域光谱技术研究了 ZnCr_2Se_4 在低温强磁场 ($T = 4\text{--}60\text{ K}$, $H = 0\text{--}10\text{ T}$) 下的自旋动力学行为. 当外加磁场高于 4 T 时, 可以观察到亚太赫兹频率范围的磁共振吸收, 并呈现出随磁场增加蓝移特征. 当磁场 (\mathbf{H}) 方向垂直于太赫兹波矢 (\mathbf{k}) 方向时, 仅观察到单个共振吸收, 且其磁场行为符合线性拉莫尔进动关系. 这种磁场依赖性对应传统的铁磁共振, 意味着螺旋自旋态在高磁场下演化为线性铁磁态. 然而, 在 \mathbf{H} 和 \mathbf{k} 同时平行于样品的 $\langle 111 \rangle$ 晶向配置下, 当磁场强度高于 7 T 时, 其太赫兹共振明显劈裂为高频和低频两个吸收峰, 并且其高频吸收表现出非线性磁场依赖关系. 这种奈尔温度以下特有的各向异性太赫兹自旋动力学效应可能与最近发现的量子临界区域有关.

关键词: ZnCr_2Se_4 , 自旋动力学, 强磁场, 太赫兹

PACS: 75.50.-y, 76.70.Hb, 07.55.Db, 87.50.U-

DOI: 10.7498/aps.69.20201507

1 引言

以 ACr_2X_4 形式为代表的铬基尖晶石结构化合物是一类典型的强关联电子体系材料, 其中 Cr^{3+} 阳离子具有自旋 $3/2$ 的 $3d^3$ 构型, 随着非磁性离子 A 和 X 类型的变化, Cr^{3+} 磁性离子间距会有所不同, 进而调控 Cr-Cr 离子交换相互作用强度和模式, 形成丰富的自旋排列方式. 该体系材料具有很强的阻挫效应, 在一定温度和磁场条件下可形成自旋冰^[1]、自旋-轨道液体^[2] 和量子临界等复杂基态^[3]. 其中 ZnCr_2Se_4 化合物是该体系的代表性材料. 近二十年来, 随着在 ZnCr_2Se_4 材料中不断发现磁电耦合、负膨胀、磁致伸缩等效应及可能浮现的自旋

液晶等复杂量子基态, 该材料重新受到广泛关注. 在 ZnCr_2Se_4 中, 磁性 Cr^{3+} 离子位于八面体 B 格点, 形成四面体构型 (图 1(a)). Cr^{3+} 离子在八面体晶体场作用下, 其 d 电子态劈裂成更低的 t_{2g} 三重简并态, 呈现出球形电荷分布, 自旋-轨道耦合很弱. ZnCr_2Se_4 磁结构主要由超交换相互作用主导, 表征铁磁 (ferromagnetism, FM) 序的居里-外斯温度为 90 K , 反铁磁 (antiferromagnetism, AFM) 序的奈尔温度为 21 K . 铁磁相互作用由 90° Cr-Se-Cr 交换相互作用控制, 更远相邻的 Cr-Se-Zn-Se-Cr 或 Cr-Se-Se-Cr 交换相互作用主导反铁磁相互作用. 在奈尔温度以下, 由于自旋驱动的 Young-Tyler 效应, ZnCr_2Se_4 会发生自旋-声子耦合^[4], 产生一定的晶格畸变, 由立方相转变为四角相^[5] 或正交相^[6],

* 国家自然科学基金 (批准号: 11774354, 51727806) 和阜阳市应急科技攻关 (批准号: FK20202829) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: fhsu@issp.ac.cn

进而诱导负膨胀、磁致伸缩等效应. 相应地, 其自旋结构呈现出沿 [001] 方向传播的非公度的平面螺旋结构, 在 [001] 面内自旋以铁磁耦合方式排列, 相邻面排列相对角度为 42° [7]. 如图 1(b) 所示, 在外磁场作用下, 其平面螺旋磁结构可以演化为线性铁磁态.

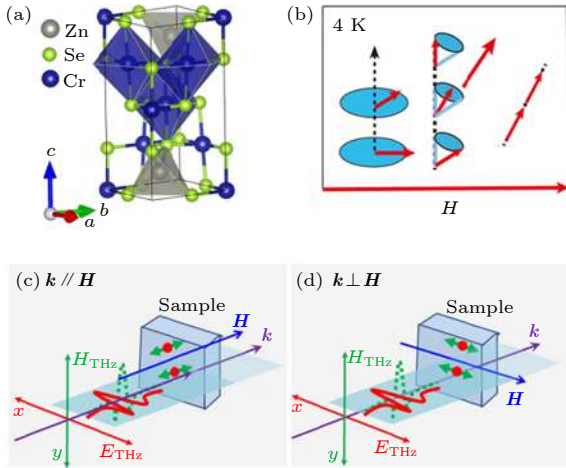


图 1 (a) ZnCr_2Se_4 晶体结构; (b) 外磁场下 ZnCr_2Se_4 磁结构演化; (c) 外磁场下太赫兹透射测量配置示意图, 太赫兹波矢 (\mathbf{k}) 平行于外磁场 (\mathbf{H}) 方向; (d) \mathbf{k} 垂直于 \mathbf{H} 配置, 对于两种测量配置, 太赫兹电场分量始终保持 p 型偏振, 从而确保太赫兹磁场分量和应用的稳态外部磁场保持正交

Fig. 1. (a) ZnCr_2Se_4 crystal structure; (b) the evolution of magnetic structure of ZnCr_2Se_4 under external magnetic field; (c) configuration of THz transmission measurements under external magnetic field, the THz wave vector (\mathbf{k}) is parallel with external magnetic field (\mathbf{H}); (d) the \mathbf{k} is vertical with \mathbf{H} . In both cases, the THz electric field (E_{THz}) is set as p polarization, and therefore the magnetic field component of THz waveform (H_{THz}) is perpendicular with steady external magnetic field.

最近几年有关 ZnCr_2Se_4 的低能磁激发和强磁场下的自旋动力学也开始受到进一步关注. Tymoshenko 等[8] 利用非弹性中子谱在 ZnCr_2Se_4 中观察到 (0 0 qh) 波矢方向的 Goldstone 磁激发模式, 并发现了和量子涨落有关的 0.17 meV 大小的磁子能隙. Felea 等[9] 通过强磁场下声速测量获得自旋声子耦合信息及相图, 并发现在低温和 7—10 T 强磁场范围内出现未知的新型磁结构. Gu 等[3] 系统研究了强磁场下的比热容、热导率等, 并观察到高磁场引起的量子临界相变. 在一定温度或强磁场条件下, 磁性材料中的铁磁共振、亚铁磁共振、反铁磁共振等特征能量处于太赫兹频谱范围内[4,10–12]. 太赫兹波段自旋动力学的研究是理解材料中电荷、轨道、晶格和自旋相互关联、耦合等复杂物理图像的

重要途径, 并桥接了微波和光学波段自旋光电子学[13–16]. 对于 ZnCr_2Se_4 而言, 早期微波波段的自旋共振实验揭示了其螺旋自旋态在 3 T 磁场以下的磁共振行为[17]. 最近几年, 我们研究了强磁场下该材料的太赫兹时域光谱, 观察到了高磁场下铁磁共振相关的磁共振模式及其法拉第旋转效应[18]. 本文进一步研究了不同外磁场方向下的 ZnCr_2Se_4 单晶的太赫兹时域光谱. 研究发现, 在奈尔温度以下, 在磁场方向平行于太赫兹波矢配置下, 其太赫兹透射谱在高于 7 T 磁场下开始出现两个共振吸收, 其间距在 10 T 磁场下可达 0.15 THz. 当磁场方向垂直于太赫兹波矢方向, 始终保持单个磁共振模式. 这种各向异性太赫兹共振吸收发生的磁场-温度区间和最近发现的量子临界区域一致, 这种异常太赫兹自旋动力学现象可能为量子临界的特征行为.

2 实验

ZnCr_2Se_4 单晶样品采用化学气相运输法生长, 所用的运输剂是 CrCl_3 . 首先在手套箱中将高纯度的原料粉末 Zn(99.9%), Cr(99.9%) 和 Se(99.9%) 按摩尔比 1:2:4 的名义组分配比混合均匀后封装在内直径 2 cm, 长度 10 cm 的真空石英管中, 将抽好真空的样品放入 850 °C 高温炉中烧结一周后随炉冷却制备出 ZnCr_2Se_4 多晶样品. 然后将多晶粉末材料与运输剂 CrCl_3 均匀混合后一起密封石英管中后抽高真空放入双温区温度梯度炉中, 冷端和热端的设定温度分别为 850 °C 和 950 °C, 三周后随炉冷至室温制备出所需的单晶样品. X 射线衍射图证明该样品为纯的尖晶石立方相, 其晶格常数 $a = 1.0498$ nm. 经抛光后, 获得大小 2 mm × 2 mm、厚度 1 mm 的单晶样品, $\langle 111 \rangle$ 晶向沿厚度方向.

我们利用强磁场下太赫兹时域光谱(或太赫兹磁光)系统研究其太赫兹透射谱. 借助低温超导磁体 (Spectromag SM4000, Oxford) 产生低温和稳态强磁场条件, 温度范围为 4—60 K, 磁场范围为 0—10 T. 通过中心波长为 800 nm、脉宽为 150 fs、重复频率为 76 MHz 的飞秒激光振荡器 (Mira F900, Coherent) 输出飞秒激光脉冲序列, 激发 GaAs 光电导天线产生宽带太赫兹脉冲. 利用镀金抛物面镜将太赫兹光束聚焦在磁体低温腔内的样品上, 聚焦光斑直径约 1.5 mm. 透过样品的太赫兹脉冲经过

另外两个镀金抛物面镜引导并聚焦到 ZnTe 探测晶体上, 结合自由空间电光采样方式对太赫兹脉冲的电场分量进行相干探测, 获得太赫兹时域脉冲波形. 实验中, 以无样品的空样品架的透射太赫兹信号作为参考信号, 并通过快速傅里叶变换解析出频率域的吸收谱. 如图 1 所示, 在太赫兹磁光光谱实验中, 我们以太赫兹波矢平行 (图 1(c), $\mathbf{k} // \mathbf{H}$) 和垂直于 (图 1(d), $\mathbf{k} \perp \mathbf{H}$) 外部磁场方向两种光路配置进行太赫兹透射测量. 太赫兹电场 (E_{THz}) 和磁场分量 (H_{THz}) 分别沿 x 和 y 方向, 并且 H_{THz} 始终与外磁场方向垂直. 整个太赫兹光谱实验在密闭的有机玻璃罩中开展, 通过不断充入氮气确保环境湿度低于 1%.

3 结果与讨论

图 2(a) 为低温 4 K 条件下, 在不同外磁场强度下测量的 ZnCr₂Se₄ 样品太赫兹透射时域波形, 其中测量配置为 $\mathbf{k} // \mathbf{H}$. 红色曲线代表不经过样品的参考太赫兹波形, 为了直观比较, 其尺度缩小了 1/5. 随磁场强度增大, 透射太赫兹波幅度减小, 更高磁场下在 16—30 ps 区间出现微弱振荡, 暗含着共振吸收动力学行为. 进一步对不同磁场下的透射太赫兹波形进行傅里叶变化, 其相应的太赫兹频谱如图 2(b) 所示. 相对于 0 磁场, 5 T 以上磁场可以看出其太赫兹频谱包含着低频吸收谷, 特别是 8 T 以上磁场, 其频谱发生明显劈裂.

为进一步证明该共振吸收是磁场诱导的. 我们以零磁场下透过的太赫兹波形的傅里叶变换 $\tilde{E}_0(\omega)$ 为参考信号, 进而提取出低温 ($T = 4$ K) 不同磁场下相对透射率, 即 $\tilde{t}_H(\omega) = \frac{\tilde{E}_H(\omega)}{\tilde{E}_0(\omega)}$. 图 3 为这种相对零磁场下的归一化太赫兹透射幅度 $|\tilde{t}_H(\omega)|$. 如图 3(a) 所示, 在 $\mathbf{k} // \mathbf{H}$ 配置情况下, 当外磁场高于 4 T 时候, 在 0.18 THz 附近开始出现共振吸收, 并随磁场增加呈现出明显蓝移. 特别是, 当磁场高于 7 T 时, 可以观察到两个吸收边, 低能和高能吸收谷都随磁场增大向高能端移动, 但其能量间隔随磁场增大. 作为对比, 我们也在 $\mathbf{k} \perp \mathbf{H}$ 配置下测量了太赫兹透射谱. 可以看出, 尽管其共振峰随磁场增强朝高能方向移动, 但在整个应用的外磁场区间, 太赫兹吸收始终保持单一共振峰. 这种相对零磁场的透射频谱变化, 并结合蓝移效应, 可以确定共振吸收来源于外磁场驱动的磁子激发.

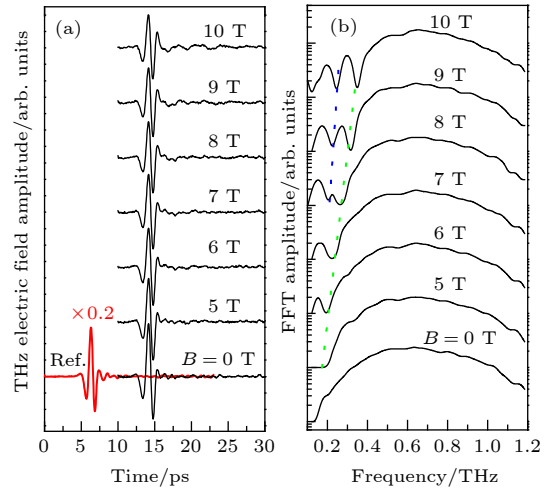


图 2 (a) $\mathbf{k} // \mathbf{H}$ 配置下, 不同外磁场下透过 ZnCr₂Se₄ 单晶样品的 THz 时域波形图, 红色为不加样品时的时域信号, 幅度缩小 5 倍; (b) 这些时域波形图对应的快速傅里叶变换 (FFT), 虚线为表征吸收位置变化的引导线

Fig. 2. (a) In the configuration of $\mathbf{k} // \mathbf{H}$, THz waveforms transmitted through ZnCr₂Se₄ single crystal measured under different magnetic fields at 4 K temperature. The red trace with the 0.2 scale factor is the reference waveform through empty sample holder; (b) corresponding FFT amplitude spectra in frequency domain. The y axis is logarithmic scale. The dotted lines are guides for the eye.

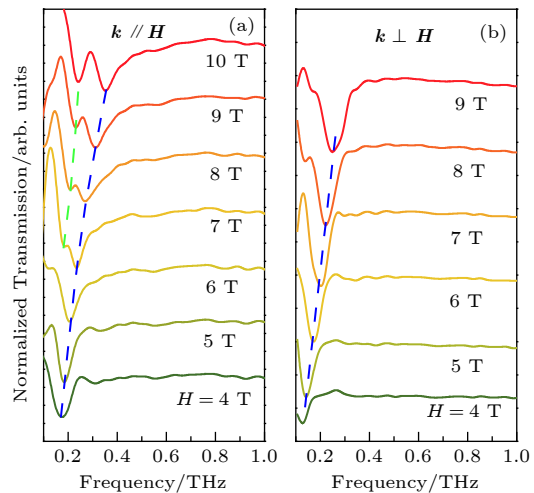


图 3 相对零磁场归一化的太赫兹透射谱 (a) 太赫兹波矢平行磁场配置; (b) 太赫兹波矢垂直磁场配置. 测量温度为 4 K

Fig. 3. Normalized THz transmission spectra with respect to the spectrum without the application of external magnetic field: (a) THz wave vector is parallel with the external magnetic field; (b) THz wave vector is vertical with the external magnetic field. The measurement temperature is 4 K.

为了进一步理解平行配置模式下的共振劈裂现象, 选取 4, 20, 45 和 60 K 四个温度点, 开展不同磁场下的太赫兹吸收光谱测量. 首先由样品透射

和参考波形进行傅里叶变换, 获得复数透射率, 即 $\tilde{t}(\omega) = \frac{\tilde{E}_t(\omega)}{\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)}$. 其中, $\tilde{E}_t(\omega)$ 和 $\tilde{E}_{\text{ref}}(\omega)$ 分别代表透射和参考信号. 并利用菲涅耳公式计算出复数折射率 $\tilde{n}(\omega)$, 进而获得吸收系数, 即 $\alpha(\omega) = \frac{2\pi\omega}{c} \text{Im}(\tilde{n}(\omega))$. 如图 4 所示, 在 4 个温度点, 太赫兹吸收谱都表现出共振吸收, 其吸收频率随磁场增加而增加. 在 20 K 温度以下, 高磁场范围可以观察到两个共振峰, 然而对于高于反铁磁转变温度的 45 和 60 K, 没有明显的低频吸收. 需要指出, 不同于图 3(a) 中的相对透射率, 吸收谱难以甄别出 $H = 7$ T 时的共振劈裂. 原因是吸收系数的提取过程是以空样品为参考信号, 信噪比稍低. 另外, 在零磁场条件下, 温度 20 K 以上的吸收曲线于 0.2 THz 附近有一定的吸收, 该吸收在 4 K 低温下得以抑制. 由于测量环境的湿度浮动可能会在低频区引起一些噪声, 并且该吸收频率未呈现出磁场依赖性. 因而, 难以断定为新的磁激发模式, 在本文中不进行详细讨论.

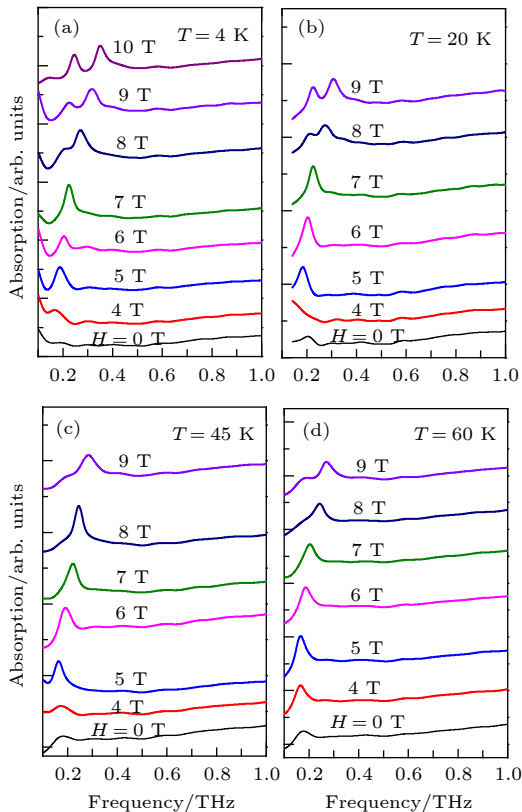


图 4 不同磁场下在如下温度中太赫兹吸收光谱曲线 (a) 4 K; (b) 20 K; (c) 45 K; (d) 60 K

Fig. 4. The THz absorption spectra obtained under different external magnetic fields at temperatures: (a) 4 K; (b) 20 K; (c) 45 K; (d) 60 K.

接下来, 磁共振频率和外磁场的关系示于图 5 中, 其主要磁场行为可归纳如下: 1) 在 $k \perp H$ 配置下, 其共振频率和磁场依赖关系和我们早期工作一致 [18], 该磁共振行为的典型特征是在高磁场下符合拉莫尔进动关系, 并如图 5(a) 所示, 可线性外推至原点. 这种磁共振行为可以通过铁磁共振获得较好的解释. 随着外加磁场增强, ZnCr_2Se_4 中螺旋自旋结构会被抑制, 最终演化为线性铁磁结构, 其磁共振落入太赫兹频段; 2) 在 $k // H$ 配置下, 同等磁场强度, 其共振能量明显高于垂直磁场配置测量值,

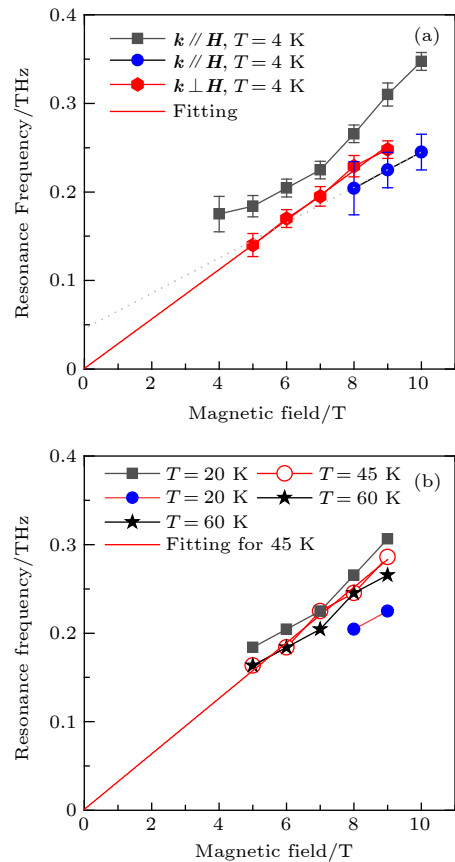


图 5 不同温度下共振频率随磁场的变化示意图 (a) 代表 4 K 温度下 $k // H$ 和 $k \perp H$ 两种配置下测量结果, 红色实线表示根据关系式 $\hbar\omega = g\mu_B H$, 对 $k \perp H$ 配置测量数据的线性拟合, 灰色虚线代表对 $k // H$ 配置下的共振频率的线性外推; (b) $k // H$ 配置下, 20, 45 和 60 K 不同温度的测量结果, 红色实线代表根据关系式 $\hbar\omega = g\mu_B H$, 对 $T = 45$ K 数据的拟合

Fig. 5. The frequencies at the maxima of the absorption spectra as a function of applied magnetic field at temperatures of 4 K (a), and 20, 45 and 60 K (b). In Fig. 5 (a), the red solid line represents the fitting according to the equation $\hbar\omega = g\mu_B H$. The grey dash line denotes the linear extrapolation for the low-frequency absorption. In Fig. 5 (b), the red solid line is obtained from the fitting to the data taken at $T = 45$ K using the equation, $\hbar\omega = g\mu_B H$.

并且其磁场行为具有非线性特征. 在 7 T 以上磁场, 开始出现低频吸收, 其共振频率低于垂直磁场配置; 3) 在 $\mathbf{k} // \mathbf{H}$ 配置测量下, 4 和 20 K 共振吸收能量几乎相等. 对于高于奈尔温度的高温区域, 不再出现低频共振吸收, 而共振吸收频率接近同等磁场下 4 K 的测量结果, 但其磁场关系接近线性, 并且可线性外推至原点.

早期微波波段的自旋共振实验揭示了 ZnCr_2Se_4 中螺旋自旋态在磁场低于 3 T 的磁共振行为^[17], 其中, 螺旋自旋共振与外加磁场和磁化强度关系为

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \frac{AK(K_0)}{2}M^2 + \frac{A[A-2K(K_0)]}{4}\chi_{[001]}^2H^2, \quad (1)$$

式中, γ 为旋磁比; A 和 $K(K_0)$ 分别代表各向同性和各向异性自旋相互作用常数; $\chi_{[001]}$ 为沿着螺旋磁结构方向易磁化轴. 对于 ZnCr_2Se_4 样品, 结合实验数据, (1) 式可简化为 $(\omega/\gamma)^2 = 1.86 + 0.94H^2$. 随着外磁场进一步增加, 螺旋自旋结构的圆锥角会进一步在磁场诱导下关闭, 在 6 T 磁场以上形成线性排列铁磁自旋态^[19,20]. 因此, 可以预测高磁场下其磁共振会表现为传统的铁磁共振, 并符合简单的拉莫尔进动关系, 即 $\hbar\omega = g\mu_B H$, 其中 μ_B 为玻尔磁子. 事实上, 我们在 $\mathbf{k} \perp \mathbf{H}$ 配置下的测量结果符合这种关系, 根据线性拟合估算出 $g = 2.0$, 与 Cr^{3+} 自由离子 g 因子接近. 对于高温区 ($\mathbf{k} // \mathbf{H}$) 的磁共振行为, 同样可以利用拉莫尔关系进行简单拟合. 然而, 其拟合得到斜率要高于低温区 ($\mathbf{k} \perp \mathbf{H}$), 估算得到 $g = 2.24$, 明显大于低温区参数. 这种 g 因子的变化很可能与自旋-声子耦合有关. 在奈尔温度以下, ZnCr_2Se_4 中自旋驱动 Young-Tyler 效应会导致发生自旋-声子耦合^[4], 产生一定的晶格畸变, 从而改变晶体场及交换相互作用.

需要指出, 最近一些研究组在 TmFeO_3 , ErFeO_3 和 YFeO_3 等磁性体系中观察到太赫兹波段的各向异性磁共振吸收和磁场诱导的新型磁子激发模式, 这类自旋动力学行为来源于晶体各向异性交换作用、Dicke 协同相互作用和自旋重定向等物理效应^[21-23]. 对于低温下 $\mathbf{k} // \mathbf{H}$ 配置下的 ZnCr_2Se_4 的磁共振劈裂行为, 可能存在多种复杂机制. 首先, ZnCr_2Se_4 单晶存在多铁效应, 原则上可能具有太赫兹电场分量耦合引起的电磁振子共振吸收, 并且会强烈依赖于晶向. 然而, 由于磁场大于 7 T 以上, 螺旋自旋结构的张角倾向于关闭, 从而磁电耦合效应消失,

进而高磁场会压制磁电耦合^[20]. 因此, 我们观察到的共振吸收和电磁振子无关. 其次, 对于铁磁共振而言, 晶体内在各向异性场也可能增加共振吸收复杂性, 产生不同吸收模式. 然而, 在奈尔温度之上的 45 和 60 K 温度条件下并无明显共振吸收劈裂效应, 说明纯粹依靠铁磁交换作用难以解释. 另外, 在低磁场下, ZnCr_2Se_4 中螺旋磁结构相关的磁共振在磁场沿 (100) 和 (111) 两个方向产生大约不到 25 GHz 的共振差异^[17]. 该频率差远小于我们观察到的共振劈裂数值, 并且随磁场增加引起的螺旋磁结构压制, 这种劈裂会进一步减小. 而我们观察到磁场越强, 高频模和低频模能量差距越大. 因此, 我们观察到的高磁场下的共振劈裂不能通过各向异性交换相互作用进行解释. 值得提及的是, Laurita 等^[10] 在 FeSe_2S_4 材料观察到类似的波矢方向依赖的各向异性太赫兹共振吸收, 并认为这种磁激发来源于自旋-轨道耦合相关的单态-三态激发. 这种纯自旋体系禁戒的磁子跃迁在某些量子临界点 (例如, 自旋轨道液态和长程有序磁结构相的相边界区域) 会出现, 和长程自旋-轨道纠缠有关. 最近, Gu 等^[3] 通过磁化率、比热、热导率测量, 完成了 ZnCr_2Se_4 的低温磁场相图, 特别确立了螺旋态和完全自旋极化态之间的量子临界区域. 而我们观察到共振吸收劈裂区域位于该工作报道的量子临界区内. 如果我们检查低频吸收 ($\mathbf{k} // \mathbf{H}$), 对其进行线性外推 (图 5), 可以发现其对应零磁场的能量大约在 0.04 THz, 和文献^[8] 报道的 ZnCr_2Se_4 中的 Goldstone 模式自旋波能量接近. 考虑到太赫兹在小于 0.1 THz 频谱范围的灵敏度大幅度下降, 很可能在小于 7 T 磁场下依然存在低频吸收, 只是当前系统难以测到. 我们推测, 随外磁场增加, 当进入量子临界区域后, 一些自旋纠缠会导致长程 Goldstone 自旋波和近程 (Cr-Se-Cr 相互作用) 铁磁自旋模式的相互耦合, 导致两个自旋模式磁场依赖性的反转及共振频率间距增加. 然而, 为进一步理解其各向异性以及磁激发选择定则, 还需进一步深入的理论分析.

4 结 论

通过低温强磁场下的太赫兹时域谱方法, 比较了 ZnCr_2Se_4 在太赫兹传播方向平行和垂直磁场配置下的太赫兹频段共振吸收. 观察到了外磁场引起

的磁共振效应. 特别是在低温高磁场区域, 其共振吸收呈现出各向异性效应. 在太赫兹波矢垂直于磁场方向情况下, 太赫兹磁共振表现出线性磁场依赖性, 并符合拉莫尔关系. 然而, 当太赫兹波矢、磁场方向共同平行于晶体的 $\langle 111 \rangle$ 方向时, 相比同等磁场强度, 其共振能量显著增加. 特别在高于 7 T 磁场情况下, 出现高频和低频两个共振模式, 其中高频磁激发在测量范围内表现出非线性磁场行为. 这种共振劈裂的磁场和温度范围在量子临界区域内, 我们推测量子临界区域存在自旋纠缠, 导致具有带隙的 Goldstone 自旋波和铁磁进动模式耦合, 引起低频和高频磁共振模式的进一步分离. 该各向异性太赫兹自旋动力学的深入认识亟待进一步的理论分析.

参考文献

- [1] Harris M J, Bramwell S T, McMorrow D F, Zeiske T, Godfrey K W 1988 *Phys. Rev. Lett.* **79** 2554
- [2] Chen G, Balents L, Schnyder A P 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 096406
- [3] Gu C C, Zhao Z Y, Chen X L, Lee M, Choi E S, Han Y Y, Ling L S, Pi L, Zhang Y H, Chen G, Yang Z R, Zhou H D, Sun X F 2018 *Phys. Rev. Lett.* **120** 147204
- [4] Rudolf T, Kant Ch, Mayr F, Hemberger J, Tsurkan V, Loidl A 2007 *Phys. Rev. B* **75** 052410
- [5] Akimitsu J, Siratori K, Shirane G, Iizumi M, Watanabe T 1978 *J. Phys. Soc. Jpn.* **44** 172
- [6] Hidaka M, Tokiwa N, Fujii M, Watanabe S, Akimitsu J 2003 *Phys. Status Solidi B* **236** 9
- [7] Plumier R J 1966 *J. Appl. Phys.* **37** 964
- [8] Tymoshenko Y V, Onykienko Y A, Müller T, Thomale R, Rachel S, Cameron A S, Portnichenko P Y, Efremov D V, Tsurkan V, Abernathy D L, Ollivier J, Schneidewind A, Piovano A, Felea V, Loidl A, Inosov D S 2017 *Phys. Rev. X* **7** 041049
- [9] Felea V, Yasin S, Gunther A, Deisenhofer J, Krug von Nidda H A, Zherlitsyn S, Tsurkan V, Lemmens P, Wosnitza J, Loidl A 2012 *Phys. Rev. B* **86** 104420
- [10] Laurita N J, Deisenhofer J, Pan LiDong, Morris C M, Schmidt M, Johnsson M, Tsurkan V, Loidl A, Armitage N P 2015 *Phys. Rev. Lett.* **114** 207201
- [11] Shuvaev A M, Travkin V D, Ivanov V Yu, Mukhin A A, Pimenov A 2010 *Phys. Rev. Lett.* **104** 097202
- [12] Jin Z M, Yuan S Y, Li J G, Lin X, Ren W, Cao S X, Ma G H, Yao J S 2019 *Acta Phys. Sin.* **68** 167501 (in Chinese) [金钻明, 阮舜逸, 李炬庚, 林贤, 任伟, 曹世勋, 马国宏, 姚建铨 2019 *物理学报* **68** 167501]
- [13] van Mechelen J L M, van der Marel D, Crassee I, and Kolodiazhnyi T 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 217601
- [14] Kampfrath T, Sell A, Klatt G, Pashkin A, Mährlein S, Dekorsy T, Wolf M, Fiebig M, Leitenstorfer A, Huber R 2011 *Nat. Photonics* **5** 31
- [15] Zhou R Z, Jin Z M, Li G F, Li G F, Ma G H, Cheng Z X, Wang X L, 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 061102
- [16] Liu X M, Xie T, Guo J J, Yang S M, Song Y, Xian Lin, S X Cao, Cheng Z X, Jin Z M, Wu A H, Ma G H, Yao J S 2018 *Appl. Phys. Lett.* **113** 022401
- [17] Siratori K 1971 *J. Phys. Soc. Jpn.* **30** 709
- [18] Zhang P, Su F H, Chen X L, Zhang S L, Mei H Y, Yang Z R, Dai J M, Pi L 2016 *Appl. Phys. Express* **9** 10
- [19] Hemberger J, Krug von Nidda H A, Tsurkan V, Loidl A 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 147203
- [20] Murakawa H, Onose Y, Ohgushi K, Ishiwata S, Tokura Y 2008 *J. Phys. Soc. Jpn.* **77** 043709
- [21] Guo J J, Cheng L, Zhuang R, Zhang W J, Lin X, Jin Z M, Cao S X, Sheng Z G, Ma G H 2020 *J. Phys. Condens. Matter.* **32** 185401
- [22] Li X W, Bamba M, Yuan N, Zhang Q, Zhao Y G, Xiang M L, Xu K, Jin Z M, Wei R, Ma G H, Cao S X, Turchinovich D, Kono J 2018 *Science* **361** 794
- [23] Lin X, Jiang J J, Jin Z M, Wang D Y, Tian Z, Han J G, Cheng Z X, Ma G H 2015 *Appl. Phys. Lett.* **106** 092403

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Anisotropic resonance absorptions induced by high magnetic field in ZnCr_2Se_4 *

Zhang Peng¹⁾ Liu Zheng²⁾ Dai Jian-Ming²⁾
Yang Zhao-Rong³⁾ Su Fu-Hai^{2)†}

1) (*Anhui Key Laboratory of Information Function Materials Structure and Devices, Fuyang Normal University, Fuyang 236037, China*)

2) (*Key Laboratory of Materials Physics, Institute of Solid State Physics, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China*)

3) (*Anhui Province Key Laboratory of Condensed Matter Physics at Extreme Conditions, High Magnetic Field Laboratory, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China*)

(Received 9 September 2020; revised manuscript received 16 September 2020)

Abstract

As a typical helimagnet, ZnCr_2Se_4 possesses fascinating effects including magnetoelectric coupling, magnetostriction, negative thermal expansion, as well as possible diversity in quantum ground states. Here in this work, we investigate magnetic excitation arising from spiral spin structure in ZnCr_2Se_4 single crystal by using terahertz (THz) time domain spectroscopy (THz-TDS) under magnetic fields up to 10 T and at low temperatures. The magnetic resonance absorption is observed in a sub-THz region as the applied magnetic field is above 4 T, featuring the blue shift with magnetic field increasing. As the THz wave vector (\mathbf{k}) is vertical to the external magnetic field (\mathbf{H}), the single resonance frequency conforms well with the linear Larmor relation, corresponding to a spin structure transformation from helical to ferromagnetic state with magnetic field increasing in ZnCr_2Se_4 . However, in the geometry in which both \mathbf{k} and \mathbf{H} are along the $\langle 111 \rangle$ direction of crystal, a well-defined resonance splitting emerges when $H > 7$ T. Especially, the high-frequency absorption shows pronouncedly nonlinear magnetic field dependence. It is suggested that such anisotropic spin dynamics below Néel temperature be linked with the field-driven quantum criticality unveiled in recent work.

Keywords: ZnCr_2Se_4 , spin dynamics, high magnetic field, terahertz

PACS: 75.50.-y, 76.70.Hb, 07.55.Db, 87.50.U-

DOI: 10.7498/aps.69.20201507

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11774354, 51727806) and the Fuyang Key Emergency Science and Technology Project, China (Grant No. FK20202829).

† Corresponding author. E-mail: fhsu@issp.ac.cn