

吉帕级单轴应力下  $Mn_3Sn$  单晶的磁化率增强\*邓珊珊 宋平<sup>†</sup> 刘潇贺 姚森 赵谦毅

(燕山大学理学院, 亚稳材料制备技术与科学国家重点实验室, 河北省微结构材料物理重点实验室, 秦皇岛 066000)

(2024年2月23日收到; 2024年4月28日收到修改稿)

如何在室温下实现非共线反铁磁  $Mn_3Sn$  自旋的调控是一项挑战. 本文通过对  $Mn_3Sn$  单晶施加 GPa 级单轴应力调控其磁结构, 发现随着应力的增大, 晶格常数  $a$  逐渐减小. 此外, GPa 级单轴应力下  $Mn_3Sn$  的磁化率 ( $\chi$ ) 不同于 MPa 级单轴应力下的结果, 其值不再是一个定值, 而是随着应力的增大而增大. 当沿  $[11\bar{2}0]$  方向施加 1.12 GPa 应力后,  $\chi$  达到  $0.0203 \mu_B/(f.u.\cdot T)$ ; 当沿  $[01\bar{1}0]$  方向施加 1.11 GPa 应力后,  $\chi$  达到  $0.0332 \mu_B/(f.u.\cdot T)$ , 为未变形样品的 2.4 倍. 进一步的实验结果表明, GPa 级的单轴应力打破了 kagome 晶格的面内六边形的对称性, 从而改变 Mn 原子间的交换相互作用, 增强体系的反铁磁耦合作用, 使  $\chi$  不再是一个定值. 这一发现将会为反铁磁自旋调控提供新的思路.

**关键词:** 反铁磁, 单轴应力, 单晶, 晶格畸变**PACS:** 75.50.Ee, 75.20.En, 75.30.Gw, 75.47.Np**DOI:** 10.7498/aps.73.20240287

## 1 引言

$Mn_3Sn$  具有非共线反铁磁结构并表现出反常霍尔效应<sup>[1-6]</sup>、拓扑霍尔效应<sup>[7-11]</sup>、反常能斯特效应<sup>[12,13]</sup>和磁光克尔效应<sup>[14,15]</sup>等新奇的物理现象, 这使得  $Mn_3Sn$  成为反铁磁自旋电子学领域研究的热点<sup>[16-19]</sup>.  $Mn_3Sn$  中这些新奇的物理行为与其特殊的反铁磁结构密切相关<sup>[20-27]</sup>. 研究表明,  $Mn_3Sn$  具有  $Ni_3Sn$  型六角密堆积晶体结构, 空间群为  $P6_3/mmc$  且非对称, 其晶胞由沿着  $c$  轴堆叠的两组 Mn 原子和 Sn 原子组成, Mn 原子在  $a$ - $b$  平面形成“kagome”结构(如图 1(a)). 在奈尔温度 ( $T_N \approx 420$  K) 以下, Mn 原子在  $a$ - $b$  平面表现出非共线自旋磁序, 并且相邻 Mn 原子之间的磁矩夹角为  $120^\circ$  (如图 1(b))<sup>[28]</sup>, 这种特殊的非共线反铁磁结构打破了时间反演对称性<sup>[29]</sup>, 使得在  $Mn_3Sn$  这种强关联体系中观察到通常只有在弱关联体系中才能出现

的物理现象. 因此, 理论上通过调控  $Mn_3Sn$  的磁结构(自旋)就能实现对其相关物理性能的调控.

当前反铁磁自旋调控(包括  $Mn_3Sn$  材料)面临的主要技术挑战是: 1) 如何使自旋翻转变得更容易, 即调控反铁磁性的外场要尽可能小<sup>[30]</sup>. 2) 如何在室温下实现大的自旋翻转信号, 这就需要使处于更高能态的反铁磁自旋发生翻转<sup>[31]</sup>. 因此, 能否在室温下实现反铁磁自旋翻转和自旋翻转强度的同时控制? 这成为反铁磁材料走向应用亟待解决的问题<sup>[32,33]</sup>. 为了解决这一关键科学问题, 人们发展了许多反铁磁自旋的调控方法, 包括利用自旋-轨道耦合作用和自旋-晶格耦合作用, 通过电场和光场对反铁磁自旋进行调控<sup>[34,35]</sup>; 利用磁交换耦合作用, 通过磁场对反铁磁自旋进行调控<sup>[36]</sup>; 近几年中, 人们在非共线反铁磁  $Mn_3Sn$  中发现了大的反常霍尔效应<sup>[1]</sup>, 并且这一行为在室温下仍然存在, 这一研究成果使得在室温下实现反铁磁  $Mn_3Sn$  自旋调控成为可能. 在随后的研究工作中, 人们尝试通过

\* 国家自然科学基金(批准号: 52101233, 51931007, U22A20116, 52071279, 52101234, 52371200)、河北省自然科学基金(批准号: E2022203010)和河北省创新能力提升工程(批准号: 22567605H)资助的课题.

<sup>†</sup> 通信作者. E-mail: psong@ysu.edu.cn

各种方法调控  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  的物理性能. 例如, Singh 等<sup>[3]</sup>通过对  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶施加等静压的方式, 将室温下  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  的反常霍尔电阻率由  $3.5 \mu\Omega\cdot\text{cm}$  提高到  $4.5 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ ; Deng 等<sup>[37]</sup>在  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜中实现了室温零磁场下的全电学调控, 他们采用约  $5 \times 10^6 \text{ A/cm}^2$  的小写入电流密度, 实现了  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  的全电流感应确定性开关, 使  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜在室温下表现出大的反常霍尔信号; 另外他们还通过控制温度和 Dzyaloshinskii-Moriya 相互作用实现了  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  自旋织构的调控<sup>[37-40]</sup>; Wang 等<sup>[41]</sup>通过在铁电氧化物 PMN-PT 上集成  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜, 使  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  薄膜材料在几十 mT 的小开关磁场下达到了与块体单晶完全相当的大反常霍尔效应. Ikhlas 等<sup>[42]</sup>最近报道了  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶在 MPa 级别单轴应力下的压磁效应, 表明对  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  施加单轴应力将会产生与应力成正比的净磁矩, 在沿着  $[01\bar{1}0]$  方向施加应力的情况下, 磁化率 ( $\chi$ ) 在 0—270 MPa 范围内是一个定值, 大约为  $0.0125 \mu_B/(\text{f.u.}\cdot\text{T})$ .

我们早期的研究工作表明, 在极低温下 ( $\sim 2 \text{ K}$ ), 在反铁磁赤铁矿 (hematite,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) 与反铁磁钛铁矿 (ilmenite,  $\text{FeTiO}_3$ ) 形成的  $(\text{Fe}_2\text{O}_3)_{1-x}(\text{FeTiO}_3)_x$  (HI) 固溶物中, 由于两种不同磁各向异性的反铁磁格子之间的竞争关系, 使得系统的能量不能处于最低而形成一种亚稳态 (通常我们称之为“磁阻挫”)<sup>[43]</sup>. 这种亚稳的磁阻挫态很容易在外场的驱动下发生变磁性转变 (“雪崩式”翻转), 从而出现磁化强度在某一临界磁场下发生突变的磁化跳跃行为. 这一研究成果使我们看到了采用调控磁阻挫途径实现反铁磁自旋翻转的希望. 最近, 一种针对脆性材料

的严重塑性变形技术被建立, 这种技术通过将材料束缚住再对其施加大的单轴应力的方式, 成功地在 NdFeB, SmCo 和 HI 固溶物等脆性材料中实现了微结构控制<sup>[44-52]</sup>和严重塑性变形<sup>[53-55]</sup>.  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶的滑移系统数量很少, 其延展性很差, 是一种脆性材料<sup>[56]</sup>, 我们已经利用此项技术使  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶发生塑性变形, 在单晶中实现了大的应变, 并且在室温下观察到了大的面外铁磁性<sup>[57]</sup>. 由于大的应变会在  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  中引入各向异性应变能, 这种各向异性应变能可以有效改变体系的反铁磁耦合作用, 从而实现对磁结构的调控, 进而调控其与磁结构相关的物性, 例如零场交换偏置行为、拓扑霍尔效应、大的面外铁磁性等<sup>[57-59]</sup>. 因此可推测在  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶中施加 GPa 级别的单轴应力, 其被磁化的难易程度即磁化率将会表现出新的变化规律.

本文采用高压压缩束缚变形技术, 在  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶中施加了 GPa 级别的单轴应力. 我们发现在 GPa 级别的应力下,  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶的  $\chi$  不再是定值, 而是随着应力的增大而增大. 在沿着  $[01\bar{1}0]$  方向施加应力的情况下, 当应力为 0.86 GPa 时,  $\chi \approx 0.0242 \mu_B/(\text{f.u.}\cdot\text{T})$ ; 当应力为 1.11 GPa 时,  $\chi \approx 0.0332 \mu_B/(\text{f.u.}\cdot\text{T})$ , 这一结果也是 Ikhlas 等<sup>[42]</sup>报道的 2.66 倍. 当沿  $[11\bar{2}0]$  方向施加 1.12 GPa 应力后,  $\chi$  也达到了  $0.0203 \mu_B/(\text{f.u.}\cdot\text{T})$ .

## 2 实验方法

本文采用 Sn 助熔剂法制备  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶<sup>[57]</sup>, 首先将原料 Mn 块 (纯度 99.99%) 和 Sn 块 (纯度 99.99%) 以 7:3 摩尔比混合后装入氧化铝坩埚中,

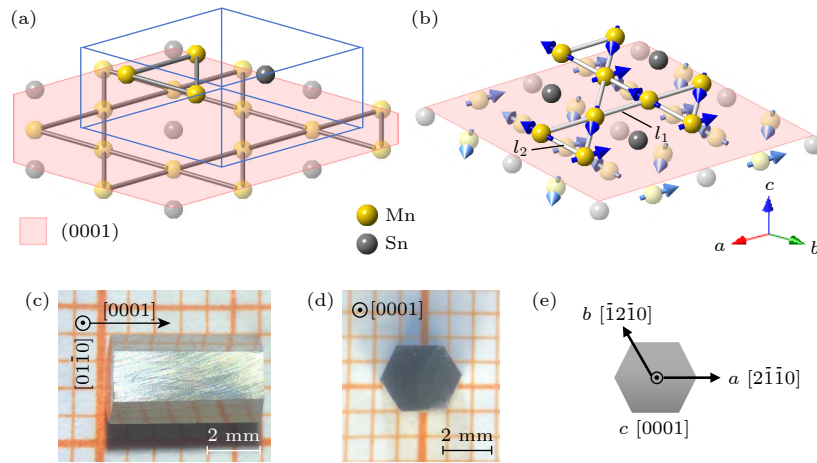


图 1 (a)  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  晶体结构图; (b)  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  磁结构图; (c), (d) Sn 助熔剂法制得的单晶; (e) 晶向标定示意图

Fig. 1. (a)  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  crystal structure diagram; (b)  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  magnetic structure diagram; (c), (d) single crystal obtained by Sn flux method; (e) crystal orientation calibration diagram.

将氧化铝坩埚真空密封在石英管中, 之后将石英管放入马弗炉中, 在 1000 °C 保持 6 h, 再以 1.25 °C/h 的速率降至 900 °C, 然后经过离心得到如图 1(c), (d) 所示的单晶. 单晶为表面呈金属光泽的六棱柱体, 横截面为正六边形, 尺寸约为 3 mm×3 mm×6 mm, 利用能量色散 X 射线谱 (EDX) 确定了单晶的实际成分为  $\text{Mn}_{2.98}\text{Sn}_{1.02}$ , 为了方便表示, 本文中的单晶样品仍然用  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  表示. 晶体的  $[2\bar{1}\bar{1}0]$ ,  $[\bar{1}2\bar{1}0]$ ,  $[0001]$  方向分别代表  $a$ ,  $b$  和  $c$  轴, 如图 1(e) 所示.

本文利用高压束缚变形方式对样品施加 GPa 级别的单轴应力, 其原理如图 2 所示. 首先将  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶打磨成规则的立方体, 为防止单晶样品碎裂, 需要将样品镶嵌在不锈钢圆片中, 然后将其放入不锈钢套中, 最后对样品上下施加 GPa 级的单轴应力, 进行强束缚高应力压缩变形. 本文使用商用 600 kN 的轴向压力机器进行高压束缚变形, 采用 X 射线衍射 (XRD)、透射电子显微镜 (TEM) 对样品的微观结构进行表征, 利用 Rietveld 法拟合 X 射线测试结果, 利用振动样品磁强计 (VSM) 测试样品磁性.

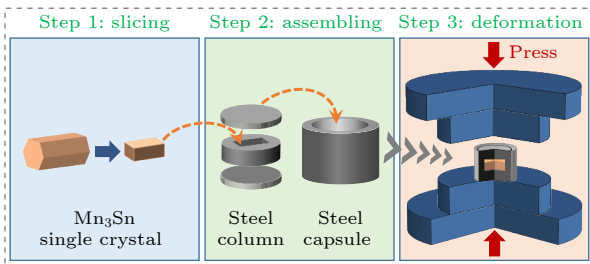


图 2  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶高压变形示意图

Fig. 2. Schematic diagram of  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  single crystal deformation under high pressure.

### 3 结果和讨论

采用 XRD 方法分析样品的晶体结构. 图 3(a), (b) 展示了不同应力 ( $\sigma$ ) 下  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶的 XRD 图. 可以观察到当未施加应力 ( $\sigma = 0$ ) 时, 只有  $(11\bar{2}0)$  和  $(01\bar{1}0)$  晶面族的衍射峰, 未出现其他衍射峰, 样品的晶胞参数为  $a = 5.6740 \text{ \AA}$ ,  $c = 4.5370 \text{ \AA}$ . 另外, 图 3(d), (f) 展示的  $(11\bar{2}0)$  和  $(01\bar{1}0)$  晶面的选区电子衍射 (SAED) 图谱均为规则排列的衍射斑点, 上述结果表明我们制备的样品为纯相的  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶. 在施加应力后的 XRD 图中可以观察到, 沿  $[11\bar{2}0]$  方向施加应力后,  $(11\bar{2}0)$  的晶面中未出现

其他相的峰; 沿  $[01\bar{1}0]$  方向施加应力后, 在  $\sigma$  大于 0.86 GPa 时  $(01\bar{1}0)$  晶面的 XRD 图中出现了微弱的  $(02\bar{2}1)$  和  $(04\bar{4}1)$  峰, 这可能是变形过程中晶面滑移的结果<sup>[56]</sup>. 图 3(a), (b) 插图中展示了晶格常数  $a$  随应力的变化, 沿  $[11\bar{2}0]$  晶向和  $[01\bar{1}0]$  晶向施加应力后, 随着应力的增大  $a$  均减小. 当沿  $[11\bar{2}0]$  方向施加应力时, 随着应力的增大,  $a$  由  $5.6815 \text{ \AA}$  ( $\sigma = 0 \text{ GPa}$ ) 逐渐减小为  $5.6753 \text{ \AA}$  ( $\sigma = 1.12 \text{ GPa}$ ); 当沿  $[01\bar{1}0]$  方向施加应力时, 随着应力的增大,  $a$  由  $5.6778 \text{ \AA}$  ( $\sigma = 0 \text{ GPa}$ ) 逐渐减小为  $5.6766 \text{ \AA}$  ( $\sigma = 1.12 \text{ GPa}$ ). 晶格常数的减小是由于施加应力后单晶中产生了晶格畸变, 而体系的  $[11\bar{2}0]$  方向是体系的能量最低态, 更易受外界应力的影响, 因此沿  $[11\bar{2}0]$  方向施加应力时  $a$  减小的幅度更大<sup>[60]</sup>. 图 3(c), (g) 展示了沿  $[11\bar{2}0]$  方向施加应力前后  $(11\bar{2}0)$  晶面的高分辨透射电子显微镜 (HRTEM) 图, 图 3(h) 是图 3(g) 的放大图, 可以看到变形后样品中产生了层错缺陷. 沿着  $[01\bar{1}0]$  方向施加单轴应力后在样品内部也可以观察到明显的层错, 如图 3(i), (j) 所示.

为了进一步探索在  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶上施加 GPa 级单轴应力对体系磁化率的影响, 测量了不同应力下的  $M$ - $H$  曲线. 图 4(a), (b) 分别展示了  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶在室温下磁场沿着  $[11\bar{2}0]$  和  $[01\bar{1}0]$  方向的  $M$ - $H$  曲线. 可以看出: 未施加应力时  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶的  $M$ - $H$  曲线中存在较小的磁滞; 随着应力的增大磁滞回线包围的面积显著增大, 矫顽力随着应力的增大而逐渐增大. 这可能是源于 GPa 级单轴应力在单晶中引入了层错缺陷, 从而引起了更大的矫顽力钉扎作用<sup>[61]</sup>. 图 4(c), (d) 展示了沿  $[11\bar{2}0]$  和  $[01\bar{1}0]$  方向施加应力时磁化率 ( $\chi$ ) 和剩余磁化强度 ( $M_r$ ) 随  $\sigma$  的变化, 其中  $\chi = \frac{\partial M}{\partial H}$  由第一象限内磁矩 ( $M$ ) 和磁场 ( $H$ ) 的线性关系式  $M = M_r + \chi\mu_0 H$  得到, 沿  $[11\bar{2}0]$  和  $[01\bar{1}0]$  方向施加应力后  $\chi$  和  $M_r$  均随着  $\sigma$  的增大而增大. 这是由于  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  具有非共线反铁磁结构, 当未对其施加应力时,  $a$ - $b$  平面内 Mn 原子磁矩向易轴偏转而存在微弱的铁磁分量, 当沿  $[11\bar{2}0]$  和  $[01\bar{1}0]$  两个方向施加高达 GPa 级单轴应力后, Mn 原子磁矩沿易轴的分量增加, 体系的弱铁磁性增强.

据 Nakatsuji 等<sup>[4]</sup> 的报道, 在对  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  单晶施加 MPa 级单轴应力时, 体系的  $\chi$  始终保持定值,

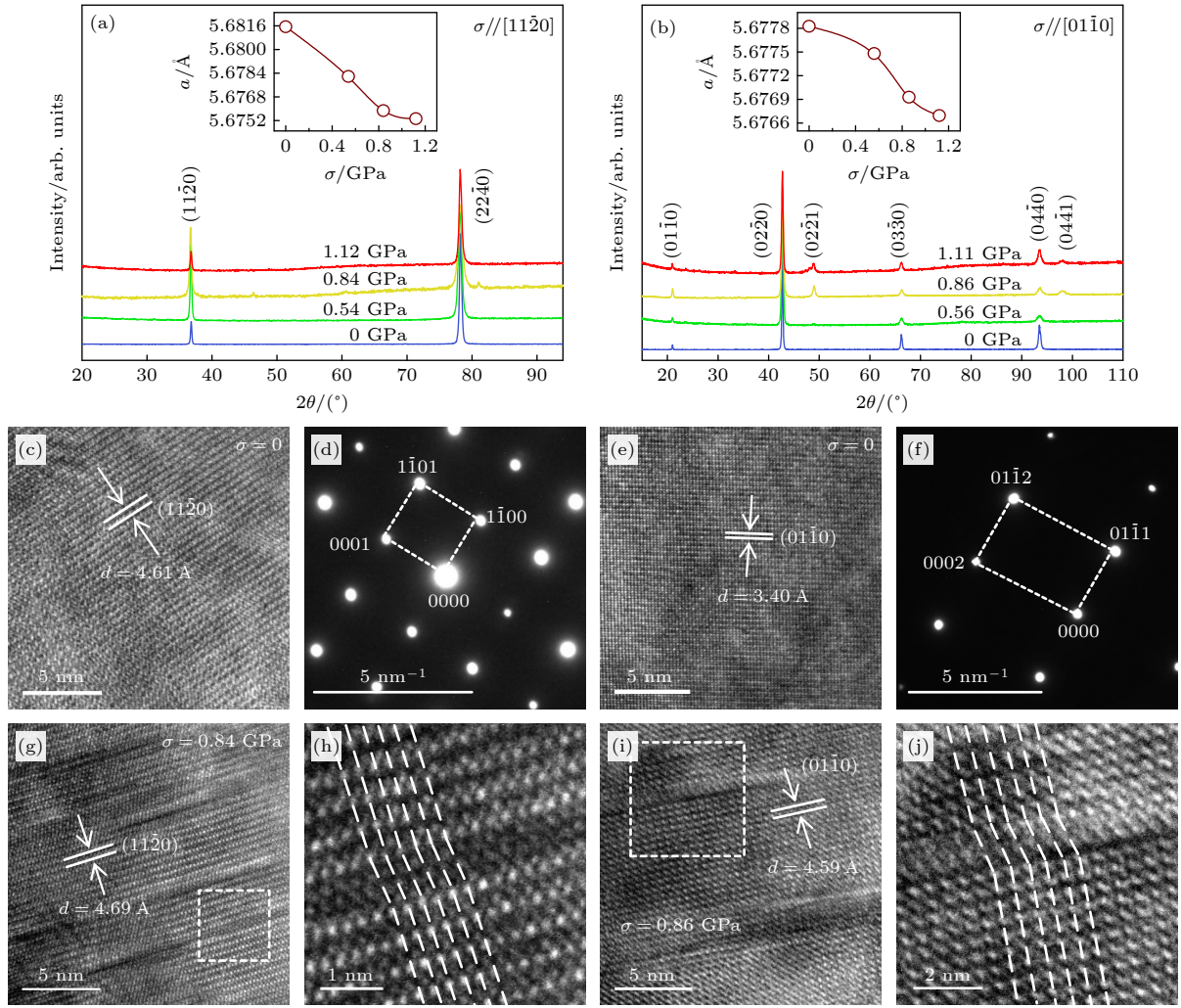


图 3 (a), (b) 沿  $[11\bar{2}0]$ ,  $[01\bar{1}0]$  方向施加应力变形前后的 XRD 图; (c), (e) 变形前  $(11\bar{2}0)$ ,  $(01\bar{1}0)$  晶面的 HRTEM 图; (d), (f) 变形前  $(11\bar{2}0)$ ,  $(01\bar{1}0)$  晶面的 SAED 图; (g), (h) 变形后  $(11\bar{2}0)$  晶面的 HRTEM 图; (i), (j) 变形后  $(01\bar{1}0)$  晶面的 HRTEM 图

Fig. 3. (a), (b) XRD patterns before and after stress deformation along  $[11\bar{2}0]$  and  $[01\bar{1}0]$  directions; (c), (e) HRTEM images of  $(11\bar{2}0)$  and  $(01\bar{1}0)$  crystal faces before deformation; (d), (f) SAED patterns of  $(11\bar{2}0)$  and  $(01\bar{1}0)$  crystal faces before deformation; (g), (h) HRTEM images of  $(11\bar{2}0)$  crystal face after deformation; (i), (j) HRTEM images of  $(01\bar{1}0)$  crystal face after deformation.

体系的  $M_r$  随  $\sigma$  增大而线性增大. 而我们对  $Mn_3Sn$  单晶施加 GPa 级单轴应力后,  $\chi$  随  $\sigma$  的增大而逐渐增大,  $M_r$  随应力的增大先缓慢提升, 在应力超过 0.6 GPa 后迅速增加. 当沿  $[11\bar{2}0]$  方向施加应力时, 随应力增大, 体系的  $\chi$  由  $0.0143 \mu_B/(f.u.\cdot T)$  ( $\sigma = 0$ ) 增至  $0.0203 \mu_B/(f.u.\cdot T)$  ( $\sigma = 1.12$  GPa); 当沿  $[01\bar{1}0]$  方向施加 0.86 GPa 的应力后,  $\chi \approx 0.0242 \mu_B/(f.u.\cdot T)$ , 当施加 1.11 GPa 应力后  $\chi$  达到  $0.0332 \mu_B/(f.u.\cdot T)$ , 为未变形样品的 2.4 倍.

根据 Singh 等<sup>[3]</sup> 的报道, 压力会导致 kagome 平面内 Mn 原子键长发生改变, 从而影响系统内的交换参数. 为了阐明  $Mn_3Sn$  单晶的  $\chi$  随 GPa 级单轴应力增加而增加行为背后的物理机制, 首先计算了不同应力下体系的三聚参数  $\xi = \frac{l_2 - l_1}{l_2 + l_1}$ <sup>[3]</sup>, 其中

$l_1$  和  $l_2$  是对应于由 kagome 子晶格中的 Mn 原子组成的两个等边三角形的键长.  $\xi$  值的大小在表示  $Mn_3Sn$  这样的六角系统的磁态方面起着至关重要的作用,  $\xi = 0$  时表示  $a$ - $b$  平面内 Mn 原子形成理想的 kagome 晶格,  $\xi$  为非零值时表示 Mn 原子形成的三角形的键长变得不相等. 图 5(a), (b) 展示了沿  $[11\bar{2}0]$  和  $[01\bar{1}0]$  方向施加应力时  $\xi$  随  $\sigma$  的变化. 可以看出, 沿不同方向施加应力,  $\xi$  均随  $\sigma$  的增大而逐渐增大, 当沿  $[11\bar{2}0]$  方向施加应力时  $\xi$  甚至发生了符号的改变. 这是因为应力使  $Mn_3Sn$  体系内形成了扭曲的 kagome 晶格, 其中一个 Mn 三角形收缩, 而另一个则膨胀, 随应力增大 Mn 原子组成的两个等边三角形的键长相差越来越大,  $\xi$  也随之逐渐增大.

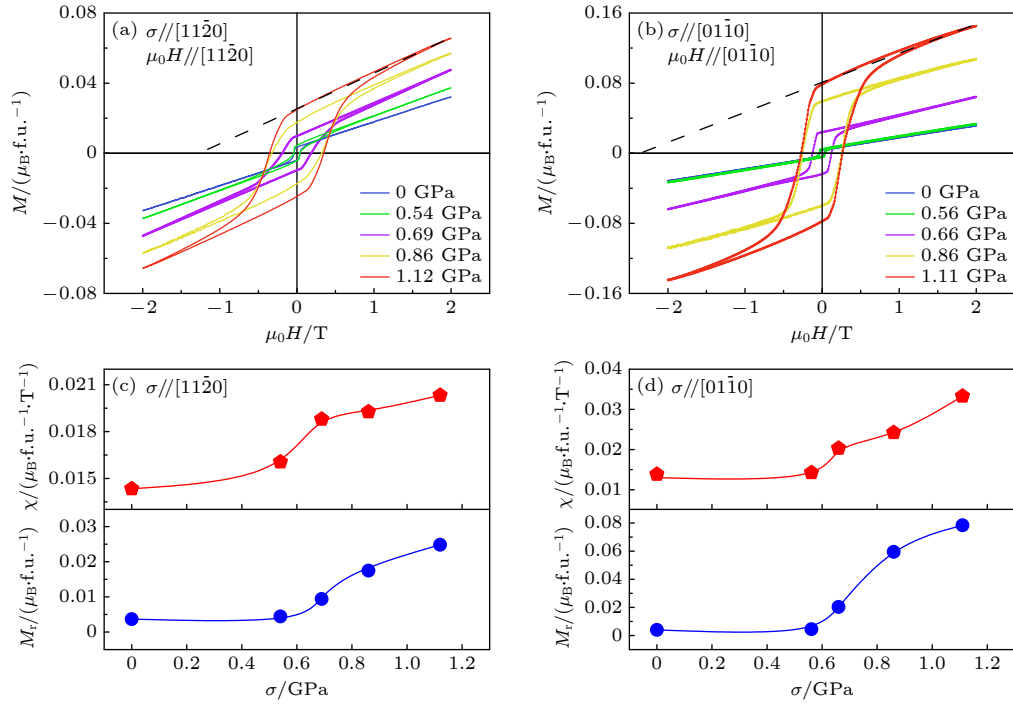


图 4 (a), (b) 沿  $[11\bar{2}0]$ ,  $[01\bar{1}0]$  方向变形前后样品的磁滞回线; (c), (d) 沿  $[11\bar{2}0]$ ,  $[01\bar{1}0]$  方向变形前后样品的磁化率  $\chi$  和剩磁  $M_r$  随应力的变化

Fig. 4. (a), (b) Hysteresis loops of samples before and after deformation along  $[11\bar{2}0]$  and  $[01\bar{1}0]$  directions; (c), (d) the changes of magnetic susceptibility  $\chi$  and remanence  $M_r$  of sample demagnetization curve with stress before and after deformation along  $[11\bar{2}0]$  and  $[01\bar{1}0]$  directions.

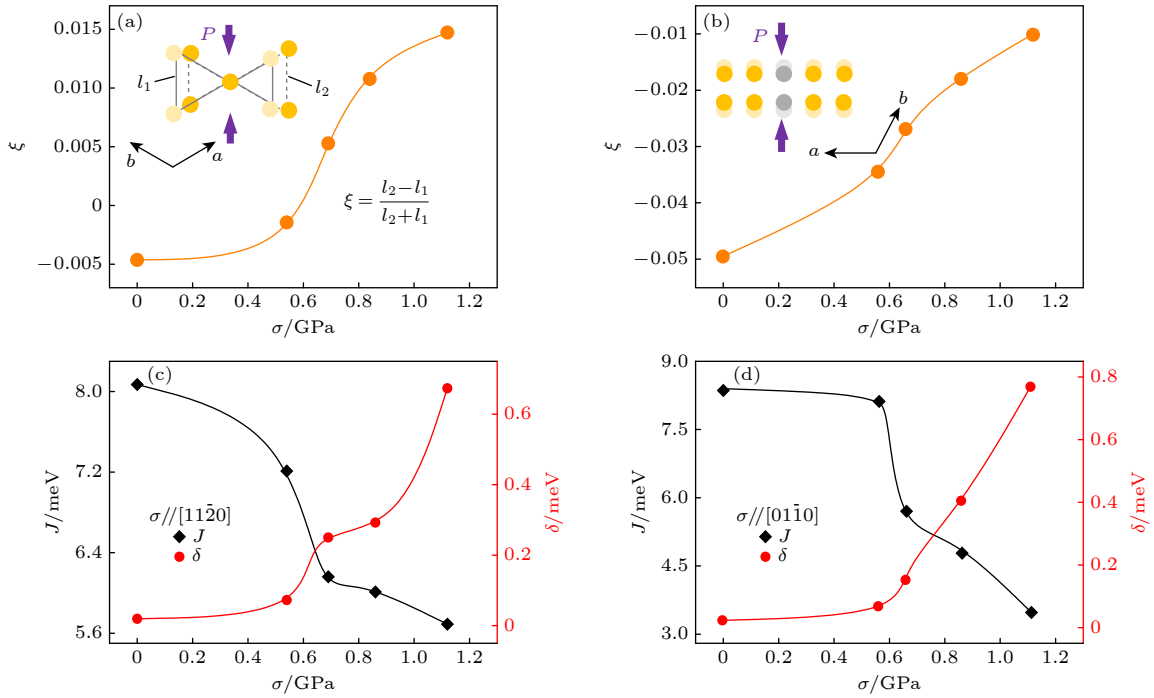


图 5 (a), (b) 沿  $[11\bar{2}0]$ ,  $[01\bar{1}0]$  方向变形前后三聚参数  $\xi$  随应力的变化; (c), (d) 黑色曲线为沿  $[11\bar{2}0]$ ,  $[01\bar{1}0]$  方向施加应力前后单晶的各向同性海森伯交换作用  $J$ , 红色曲线为沿  $[11\bar{2}0]$ ,  $[01\bar{1}0]$  方向施加应力前后单晶的各向异性能  $\delta$

Fig. 5. (a), (b) Changes of trimerization parameters  $\xi$  with stress before and after deformation along  $[11\bar{2}0]$  and  $[01\bar{1}0]$  directions. (c), (d) The black curve shows the isotropic Heisenberg exchange  $J$  of a single crystal before and after stress is applied in along  $[11\bar{2}0]$  and  $[01\bar{1}0]$  directions. The red curve shows the anisotropic energy  $\delta$  of a single crystal before and after stress is applied in  $[11\bar{2}0]$  and  $[01\bar{1}0]$  directions.

通过  $M$  与  $H$  的关系式  $M_{(H)} = \frac{\hbar\gamma S}{2J}(\delta - \varepsilon) + \frac{\hbar^2\gamma^2}{2J}\mu_0 H$  计算出不同应力下各向同性海森伯交换相互作用 ( $J$ ) 及各向异性能 ( $\delta$ ) 的值, 其中  $\varepsilon$  为应变能, 自旋磁矩  $S = 3/2$ , 旋磁比  $\gamma = 2 \mu_B/\hbar$  [62]. 图 5(c), (d) 展示了沿  $[11\bar{2}0]$  和  $[01\bar{1}0]$  方向施加应力时  $J$  和  $\delta$  随  $\sigma$  的变化, 随着  $\sigma$  的增大,  $J$  逐渐减小,  $\delta$  逐渐增大. 变形前  $(11\bar{2}0)$  面内  $J = 8.07$  meV, 施加 1.12 GPa 应力后减小为 5.69 meV. 沿  $[11\bar{2}0]$  方向对  $Mn_3Sn$  单晶施加应力前,  $\delta = 0.02$  meV, 施加 1.12 GPa 应力后  $\delta$  达到 0.67 meV. 沿  $[01\bar{1}0]$  方向施加应力后,  $(01\bar{1}0)$  面内  $J$  随着  $\sigma$  的增大由 8.36 meV 减小到 3.48 meV,  $\delta$  由 0.02 meV 增大到 0.77 meV.  $J$  的减小和  $\delta$  的增大说明对  $Mn_3Sn$  单晶施加 GPa 级单轴应力后, 体系的各向同性减弱, 各向异性增强.

本研究中 GPa 级单轴应力使单晶  $Mn_3Sn$  发生了塑性变形, 在单晶中引入了各向异性应变能, 变形后单晶中发生了晶格畸变, 打破了 kagome 晶格的面内六边形的对称性, 这使得 Mn 原子组成的两个等边三角形的键长发生改变, 从而影响系统内 Mn 原子之间的交换耦合, 促使 Mn 原子磁矩沿易轴偏转, 增强了体系的弱铁磁性. 根据文献 [59] 报道, 在不同温度下应力对  $Mn_3Sn$  多晶磁结构的调控效果不同, 在 50 K 以下, 应力导致  $Mn_3Sn$  出现受挫反铁磁结构, 在 50—400 K 时, 应力抑制了螺旋反铁磁结构, 并诱导了非共面反铁磁结构. 此外, 应力在单晶中引入了各向异性应变能, 增强了体系的各向异性, 导致体系的反铁磁耦合作用增强. 因此, 体系的  $M_r$  与  $\sigma$  不再是简单的线性依赖关系, 并且  $\chi$  不再是定值, 随着应力的增大  $\chi$  逐渐增大.

## 4 结 论

本文采用高压束缚变形技术, 成功地在  $Mn_3Sn$  单晶上施加了高达 GPa 级的单轴应力, 研究结果证明 GPa 级的单轴应力会使  $Mn_3Sn$  单晶的磁化率  $\chi$  不再是一个定值,  $\chi$  会随着应力的增大而增大. 当沿  $[11\bar{2}0]$  方向施加 1.12 GPa 应力后,  $\chi$  达到  $0.0203 \mu_B/(\text{f.u.}\cdot\text{T})$ . 当沿着  $[01\bar{1}0]$  方向施加 0.86 GPa 应力时,  $\chi \approx 0.0242 \mu_B/(\text{f.u.}\cdot\text{T})$ , 当施加 1.11 GPa 应力时,  $\chi \approx 0.0332 \mu_B/(\text{f.u.}\cdot\text{T})$ . 进

一步引入三聚参数  $\xi$  分析  $\chi$  变化的物理机制, 发现 GPa 级的单轴应力打破了 kagome 晶格的面内六边形的对称性, 从而改变 Mn 原子间的交换相互作用, 增强体系的反铁磁耦合作用, 进而使  $\chi$  不再是一个定值. 这一发现将会反铁磁自旋调控提供新的思路.

## 参考文献

- [1] Nakatsuji S, Kiyohara N, Higo T 2015 *Nature* **527** 212
- [2] Li X, Koo J, Zhu Z, Behnia K, Yan B 2023 *Nat. Commun.* **14** 1642
- [3] Singh C, Singh V, Pradhan G, Srihari V, Poswal H K, Nath R, Nandy A K, Nayak A K 2020 *Phys. Rev. Res.* **2** 043366
- [4] Higo T, Qu D R, Li Y F, Chien C L, Otani Y, Nakatsuji S 2018 *Appl. Phys. Lett.* **113** 202402
- [5] Matsuda T, Higo T, Koretsune T, Kanda N, Hirai Y, Peng H, Matsuo T, Yoshikawa N, Shimano R, Nakatsuji S, Matsunaga R 2023 *Phys. Rev. Lett.* **130** 126302
- [6] Bai Y, Wang Z, Lei N, Muhammad W, Xiang L F, Li Q, Lai H L, Zhu Y Y, Wang W B, Guo H W, Yin L F, Wu R Q, Shen J 2022 *Chin. Phys. Lett.* **39** 108501
- [7] Rout P K, Madduri P V P, Manna S K, Nayak A K 2019 *Phys. Rev. B* **99** 094430
- [8] Yan J, Luo X, Lv H Y, Sun Y, Tong P, Lu W J, Zhu X B, Song W H, Sun Y P 2019 *Appl. Phys. Lett.* **115** 102404
- [9] Low A, Ghosh S, Changdar S, Routh S, Purwar S, Thirupathiah S 2022 *Phys. Rev. B* **106** 144429
- [10] Xiong D R, Jiang Y H, Zhu D Q, Du A, Guo Z X, Lu S Y, Wang C X, Xia Q T, Zhu D P, Zhao W S 2023 *Chin. Phys. B* **32** 057501
- [11] Ma H Y, Yin J X, Hasan M Z, Liu J P 2024 *Chin. Phys. Lett.* **41** 047103
- [12] Guo G Y, Wang T C 2017 *Phys. Rev. B* **96** 224415
- [13] Ikhlas M, Tomita T, Koretsune T, Suzuki M T, Nishio-Hamane D, Arita R, Otani Y, Nakatsuji S 2017 *Nat. Phys.* **13** 1085
- [14] Miwa S, Iihama S, Nomoto T, Tomita T, Higo T, Ikhlas M, Sakamoto S, Otani Y, Mizukami S, Arita R, Nakatsuji S 2021 *Small Science* **1** 2000062
- [15] Higo T, Man H, Gopman D B, Wu L, Koretsune T, van't Erve O M J, Kabanov Y P, Rees D, Li Y, Suzuki M T, Patankar S, Ikhlas M, Chien C L, Arita R, Shull R D, Orenstein J, Nakatsuji S 2018 *Nat. Photonics.* **12** 73
- [16] Jungwirth T, Marti X, Wadley P, Wunderlich J 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 231
- [17] Bauer G E W, Saitoh E, Van Wees B J 2012 *Nat. Mater.* **11** 391
- [18] Cui B, Cheng B, Hu J F 2021 *Chin. Sci. Bull.* **66** 2042
- [19] Yan J, Sun Y, Wang C, Shi Z X, Deng S H, Shi K W, Lu H Q 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 167502 (in Chinese) [闫君, 孙莹, 王聪, 史再兴, 邓司浩, 史可文, 卢会清 2014 *物理学报* **63** 167502]
- [20] Zhang Y, Hu X N, Cui C Y, Cui X, Niu F F, Huang X, Wang L Z, Wang Q L 2023 *Acta Phys. Sin.* **72** 128401 (in Chinese) [张源, 胡新宁, 崔春艳, 崔旭, 牛飞飞, 黄兴, 王路忠, 王秋良, 2023 *物理学报* **72** 128401]
- [21] Zhang Z D 2015 *Acta Phys. Sin.* **64** 067503 (in Chinese) [张志东 2015 *物理学报* **64** 067503]

- [22] Fang H W, Lyu M, Su H, Yuan J, Li Y W, Xu L X, Liu S, Wei L Y, Liu X Q, Yang H F, Yao Q, Wang M X, Guo Y F, Shi W J, Chen Y L, Liu E K, Liu Z K 2023 *Sci. China Mater.* **66** 2032
- [23] An N, Tang M, Hu S, Yang H L, Fan W J, Zhou S M, Qiu X P 2020 *Sci. China Phys. Mech. Astron.* **63** 297511
- [24] Li X K, Jiang S, Meng Q K, Zuo H K, Zhu Z W, Balents L, Belnina K 2022 *Phys. Rev. B* **106** L020402
- [25] Yu T Y, Liu R, Peng Y R, Zheng P Y, Wang G W, Ma X B, Yuan Z H, Yin Z P 2022 *Phys. Rev. B* **106** 205103
- [26] Zhao W S, Huang Y Q, Zhang X Y, Kang W, Lei N, Zhang Y G 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 131205 (in Chinese) [赵巍胜, 黄阳棋, 张学莹, 康旺, 雷娜, 张有光 2018 物理学报 **67** 131205]
- [27] Tan B, Gao D, Deng D F, Chen S Y, Bi L, Liu D H, Liu T 2024 *Acta Phys. Sin.* **73** 067501 (in Chinese) [谭碧, 高栋, 邓登福, 陈姝瑶, 毕磊, 刘冬华, 刘涛 2024 物理学报 **73** 067501]
- [28] Nagamiya T 1979 *J. Phys. Soc. Japan* **46** 787
- [29] Kuroda K, Tomita T, Suzuki M T, Bareille C, Nugroho A A, Goswami P, Ochi M, Ikhlas M, Nakayama M, Akebi S, Noguchi R, Ishii R, Inami N, Ono K, Kumigashira H, Varykhalov A, Muro T, Koretsune T, Arita R, Shin S, Kondo T, Nakatsuji S 2017 *Nat. Mater.* **16** 1090
- [30] Song C, You Y F, Chen X Z, Zhou X F, Wang Y Y, Pan F 2018 *Nanotechnology* **29** 112001
- [31] Baltz V, Manchon A, Tsoi M, Moriyama T, Ono T, Tserkovnyak Y 2018 *Rev. Mod. Phys.* **90** 015005
- [32] Coileáin C Ó, Wu H C 2017 *SPIN* **07** 1740014
- [33] Jungfleisch M B, Zhang W, Hoffmann A 2018 *Phys. Lett. A* **382** 865
- [34] Němec P, Fiebig M, Kampfrath T, Kimel A V 2018 *Nat. Phys.* **14** 229
- [35] Wadley P, Howells B, Železný J, Andrews C, Hills V, Campion R P, Novák V, Olejník K, Maccherozzi F, Dhesi S S, Martin S Y, Wagner T, Wunderlich J, Freimuth F, Mokrousov Y, Kuneš J, Chauhan J S, Grzybowski M J, Rushforth A W, Edmonds K W, Gallagher B L, Jungwirth T 2016 *Science* **351** 587
- [36] Sokolov D A, Kikugawa N, Helm T, Borrmann H, Burkhardt U, Cubitt R, White J S, Ressouche E, Bleuel M, Kummer K, Mackenzie A P, Rößler U K 2019 *Nat. Phys.* **15** 671
- [37] Deng Y C, Liu X H, Chen Y, Du Z, Jiang N, Shen C, Zhang E Z, Zheng H Z, Lu H Z, Wang K Y 2023 *Natl. Sci. Rev.* **10** nwac154
- [38] Liu X H, Feng Q, Zhang D, Deng Y C, Dong S, Zhang E Z, Li W, Lu Q, Chang K, Wang K Y 2023 *Adv. Mater.* **35** 2211634
- [39] Liu X H, Zhang D, Deng Y C, Jiang N, Zhang E Z, Shen C, Chang K, Wang K Y 2024 *ACS Nano* **18** 1013
- [40] Jiang N, Deng Y C, Liu X H, Zhang D, Zhang E Z, Zheng H Z, Chang K, Shen C, Wang K Y 2023 *Appl. Phys. Lett.* **123** 072401
- [41] Wang X N, Feng Z X, Qin P X, Yan H, Zhou X R, Guo H X, Leng Z G G, Chen W Q, Jia Q N, Hu Z X, Wu H J, Zhang X Y, Jiang C B, Liu Z Q 2019 *Acta Mater.* **181** 537
- [42] Ikhlas M, Dasgupta S, Theuss F, Higo T, Kittaka S, Ramshaw B J, Tchernyshyov O, Hicks C W, Nakatsuji S 2022 *Nat. Phys.* **18** 1086
- [43] Song P, Li G K, Ma L, Zhen C M, Hou D L, Wang W H, Liu E K, Chen J L, Wu G H 2014 *J. Appl. Phys.* **115** 213907
- [44] Liu Y G, Xu L, Wang Q F, Li W, Zhang X Y 2009 *Appl. Phys. Lett.* **94** 172502
- [45] Li X H, Lou L, Song W P, Huang G W, Hou F C, Zhang Q, Zhang H T, Xiao J W, Wen B, Zhang X Y 2017 *Adv. Mater.* **29** 1606430
- [46] Huang G W, Zhu G J, Lou L, Yan J C, Song W P, Hou F C, Hua Y X, Zhang Q, Li X H, Zhang X Y 2018 *Mater. Lett.* **217** 219
- [47] Zhang X Y 2020 *Mater. Res. Lett.* **8** 49
- [48] Zhang H T, Zhang T, Zhang X Y 2023 *Adv. Sci.* **10** 2300193
- [49] Lou L, Li Y Q, Li X H, Li H, Li W, Hua Y X, Xia W, Zhao Z, Zhang H T, Yue M, Zhang X Y 2021 *Adv. Mater.* **33** 2102800
- [50] Li X H, Lou L, Li Y Q, Zhang G S, Hua Y X, Li W, Zhang H T, Yue M, Zhang X Y 2022 *Nano Lett.* **22** 7644
- [51] Li X H, Lou L, Song W P, Zhang Q, Huang G W, Hua Y X, Zhang H T, Xiao J W, Wen B, Zhang X Y 2017 *Nano Lett.* **17** 2985
- [52] Huang G W, Li X H, Lou L, Hua Y X, Zhu G J, Li M, Zhang H T, Xiao J W, Wen B, Yue M, Zhang X Y 2018 *Small* **14** 1800619
- [53] Li W, Li L L, Nan Y, Li X H, Zhang X Y, Gunterov D V, Stolyarov V V, Popov A G 2007 *Appl. Phys. Lett.* **91** 062509
- [54] Rong C B, Zhang Y, Poudyal N, Xiong X Y, Kramer M J, Liu J P 2010 *Appl. Phys. Lett.* **96** 102513
- [55] Song P, Yao S, Zhang B X, Jiang B, Deng S S, Guo D F, Ma L, Hou D L 2022 *Appl. Phys. Lett.* **120** 192401
- [56] Kandra J T, Lee J Y, Pope D P 1991 *Mater. Sci. Eng. A* **145** 189
- [57] Zhang B X, Song P, Deng S S, Lou L, Yao S 2023 *Chin. Phys. B* **32** 087502
- [58] Zhao M Y, Guo W, Wu X, Ma L, Song P, Li G K, Zhen C M, Zhao D W, Hou D L 2023 *Mater. Horiz.* **10** 4597
- [59] Deng J J, Zhao M Y, Wang Y, Wu X, Niu X T, Ma L, Zhao D W, Zhen C M, Hou D L 2022 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **55** 275001
- [60] Duan T F, Ren W J, Liu W L, Li S J, Liu W, Zhang Z D 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 082403
- [61] Zhou S Z, Dong Q F 2004 *Super Permanent Magnet: Rare Earth Iron Permanent Magnet Material* (2nd Ed.) (Beijing: Metallurgical Industry Press) pp59–64 (in Chinese) [周寿增, 董清飞 2004 超强永磁体: 稀土铁系永磁材料 (第2版) (北京: 冶金工业出版社) 第59—64页]
- [62] Cable J W, Wakabayashi N, Radhakrishna P 1993 *Solid State Commun.* **88** 161

# Enhancement of magnetic susceptibility of $\text{Mn}_3\text{Sn}$ single crystal under GPa-level uniaxial stress\*

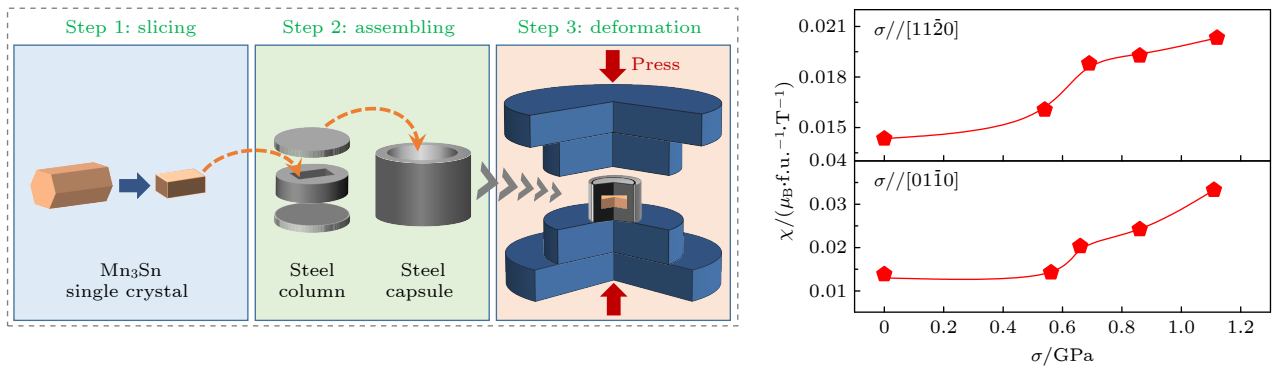
Deng Shan-Shan   Song Ping<sup>†</sup>   Liu Xiao-He   Yao Sen   Zhao Qian-Yi

(State Key Laboratory of Metastable Materials Science & Technology, Key Laboratory for Microstructural Material Physics of Hebei Province, School of Science, Yanshan University, Qinhuangdao 066000, China)

( Received 23 February 2024; revised manuscript received 28 April 2024 )

## Abstract

How to achieve spin control of noncollinear antiferromagnetic  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  at room temperature is a challenge. In this study, we modulate the magnetic structure of  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  single crystals by subjecting them to uniaxial stress at the GPa level using a high-pressure combined deformation method. Initially, the single crystal is sliced into regular cuboids, then embedded in a stainless steel sleeve, and finally, uniaxial stress is applied along the  $[11\bar{2}0]$  direction and  $[01\bar{1}0]$  direction of the  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  single crystal. Under high stress, the single crystal undergoes plastic deformation. Our observations reveal lattice distortion in the deformed single crystal, with the lattice parameter gradually decreasing as the stress level increases. In addition, the magnetic susceptibility of  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  under GPa uniaxial stress ( $\chi$ ) is different from that under MPa uniaxial stress, and its value is no longer fixed but increases with the increase of stress. When 1.12 GPa stress is applied in the  $[11\bar{2}0]$  direction,  $\chi$  reaches  $0.0203 \mu_{\text{B}} \cdot \text{f.u.}^{-1} \cdot \text{T}^{-1}$ , which is 1.42 times that of the undeformed sample. In the case of stress applied along the  $[01\bar{1}0]$  direction,  $\chi \approx 0.0332 \mu_{\text{B}} \cdot \text{f.u.}^{-1} \cdot \text{T}^{-1}$  when the stress is 1.11 GPa. This result is also 2.66 times greater than the reported results. We further calculate the values of trimerization parameter ( $\xi$ ), isotropic Heisenberg exchange interaction ( $J$ ), and anisotropic energy ( $\delta$ ) of the system under different stresses. Our results show that  $\xi$  gradually increases,  $J$  gradually decreases, and  $\delta$  gradually increases with the increase of stress. These results show that the GPa uniaxial stress introduces anisotropic strain energy into the single crystal, breaking the symmetry of the in-plane hexagon of the kagome lattice, which causes the bond length of the two equilateral triangles composed of Mn atoms to change. Thus, the exchange coupling between Mn atoms in the system is affected, the anisotropy of the system is enhanced, and the antiferromagnetic coupling of the system is enhanced. Therefore, the system  $\chi$  is no longer a constant value and gradually increases with the increase of stress. This discovery will provide new ideas for regulating the anti-ferromagnetic spin.



**Keywords:** antiferromagnetic, uniaxial stress, single crystal, lattice distortion

**PACS:** 75.50.Ee, 75.20.En, 75.30.Gw, 75.47.Np

**DOI:** 10.7498/aps.73.20240287

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 52101233, 51931007, U22A20116, 52071279, 52101234, 52371200), the Natural Science Foundation of Hebei Province, China (Grant No. E2022203010), and the Innovation Capability Improvement Project of Hebei Province, China (Grant No. 22567605H).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: [psong@ysu.edu.cn](mailto:psong@ysu.edu.cn)

## 吉帕级单轴应力下 $Mn_3Sn$ 单晶的磁化率增强

邓珊珊 宋平 刘潇贺 姚森 赵谦毅

### Enhancement of magnetic susceptibility of $Mn_3Sn$ single crystal under GPa-level uniaxial stress

Deng Shan-Shan Song Ping Liu Xiao-He Yao Sen Zhao Qian-Yi

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 127501 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20240287

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240287>

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

#### 钴氧化物中晶格与自旋的关联耦合效应研究

Strong spin-lattice entanglement in cobaltites

物理学报. 2023, 72(9): 097502 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230206>

#### 甲脒碘化铅单晶基钙钛矿太阳能电池的研究

High performance perovskite solar cells synthesized by dissolving  $FAPbI_3$  single crystal

物理学报. 2023, 72(1): 018801 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20221461>

#### 双二次交换作用和各向异性对反铁磁体相变温度的影响

Effect of biquadratic exchange and anisotropy on the critical temperature of antiferromagnet

物理学报. 2020, 69(10): 107501 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200077>

#### 自旋为1的双层平方晶格阻挫模型的相变

Phase transition of spin-1 frustrated model on square-lattice bilayer

物理学报. 2022, 71(4): 047501 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211685>

#### 钙钛矿型 $CeTaN_2O$ 的高压制备及其磁性和电学性质

High-pressure synthesized perovskite-type  $CeTaN_2O$  and its magnetic and electrical properties

物理学报. 2024, 73(8): 080702 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240025>

#### $Mn_3Sn$ 薄膜磁相变的输运表征

Transport characterization of magnetic phase transition in  $Mn_3Sn$  thin films

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