

# 基于磁场和温度变化的太赫兹光谱研究 $a$ -cut $\text{YbFeO}_3$ 中的自旋重取向\*

陈盈<sup>1) #</sup> 董志涛<sup>1) #</sup> 郑世芸<sup>2) 3) #</sup> 刘永振<sup>1)</sup> 居学尉<sup>1) †</sup>  
曹义明<sup>2) ‡</sup> 王向峰<sup>1) ††</sup>

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) (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, 秦皇岛 066004)

(2025年10月23日收到; 2025年11月13日收到修改稿)

本文利用时域太赫兹光谱技术研究了  $a$ -cut  $\text{YbFeO}_3$  单晶在温度 (1.6—300 K) 与磁场 (0—7 T) 调控下的自旋重取向 (spin-reorientation transition, SRT) 行为与稀土离子的电子顺磁共振 (electron paramagnetic resonance, EPR) 跃迁. 实验观察到在约 7 K 附近发生温度诱导的 SRT, 表现为磁共振模式的突变. 在 20 K 下, 沿  $a$  轴施加磁场时, 样品经历由  $T_4$  相向  $T_2$  相的不完全相变, 在  $T_{24}$  中间相中同时激发准反铁磁模 (quasi-anti ferro magnetic, q-AFM) 与准铁磁模 (quasi-ferro magnetic, q-FM), 并在低频区 ( $< 0.8$  THz) 识别出  $\text{Yb}^{3+}$  的 Zeeman 子能级间的 EPR 跃迁. 基于自旋动力学模型与晶体场理论, 所有观测模式均获得和实验一致的定量拟合. 该模型揭示了  $\text{Fe}^{3+}$  宏观磁化强度在磁场中的连续转动行为, 阐明了 SRT 的微观机制, SRT 过程源于外磁场与  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  各向异性交换相互作用之间的竞争与协同, 它们共同调制了系统的内部有效场, 决定了中间相的稳定性和 SRT 行为. 本研究证实了温度与磁场对  $\text{YbFeO}_3$  自旋构型的有效调控, 深化了对  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  交换作用机制的理解, 为稀土正铁氧体太赫兹磁光器件的开发提供了重要依据.

**关键词:** 太赫兹光谱, 稀土正铁氧体, 自旋重取向, 交换相互作用

**DOI:** 10.7498/aps.75.20251446

**CSTR:** 32037.14.aps.75.20251446

## 1 引言

磁性材料在信息技术与量子计算中发挥着重要作用<sup>[1-3]</sup>. 传统铁磁材料的磁振子频率通常局限于千兆赫兹 (GHz) 范围<sup>[4]</sup>, 而稀土正铁氧体等反铁磁材料可将磁共振频率扩展至太赫兹 (THz) 范围,

在高速自旋电子学及低功耗信息处理等领域展现出更优越的潜力<sup>[5,6]</sup>. 稀土正铁氧体的化学通式为  $R\text{FeO}_3$  (其中  $R$  代表 Y 或稀土元素), 属于正交晶系, 空间群为  $D_{2h}^{16}-Pbnm$ <sup>[7]</sup>, 其晶体结构为畸变钙钛矿型, 每个单胞中含有 4 个等价的  $\text{Fe}^{3+}$ . 由于 DM (Dzyaloshinskii-Moriya) 相互作用, 磁矩发生微小倾斜,  $\text{Fe}-\text{O}-\text{Fe}$  键角小于  $180^\circ$ , 属于倾斜反铁

\* 国家自然科学基金 (批准号: 51862032, 62501161)、福建省自然科学基金 (批准号: 2023J01055, 2023J05096)、福建省太赫兹功能器件与智能传感重点实验室基金 (批准号: FPKLTFDIS202304)、云南省应用基础研究计划项目 (批准号: 202301AT070243) 和福州大学启动经费 (批准号: XRC-22073) 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

磁体<sup>[8,9]</sup>.  $\text{YbFeO}_3$  是此类材料中的一员, 具有两个磁性亚晶格<sup>[10]</sup>: Fe 亚晶格的 3d 电子与 Yb 亚晶格的 4f 电子, 因此存在  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  以及  $\text{Yb}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  三种不同的超交换相互作用, 这些作用共同决定了材料在不同温度和磁场下的磁性能. 在 Néel 温度 ( $\sim 650$  K) 以下、自旋重取向 (spin-reorientation transition, SRT) 温度 ( $\sim 7$  K) 以上时,  $\text{Fe}^{3+}$  自旋呈  $\Gamma_4$  相结构, 表现为反铁磁有序, 而  $\text{Yb}^{3+}$  自旋呈顺磁性, 与  $\text{Fe}^{3+}$  自旋磁矩平行同向; 当温度低于 SRT 温度时,  $\text{Fe}^{3+}$  自旋结构由  $\Gamma_4$  相转变为  $\Gamma_2$  相, 同时由于自旋翻转,  $\text{Yb}^{3+}$  自旋发生  $180^\circ$  转向, 与  $\text{Fe}^{3+}$  自旋磁矩呈平行反向排列<sup>[11]</sup>.

SRT 现象的微观机理与 Fe, Yb 两个磁性亚晶格间的复杂相互作用密切相关. 早期理论研究指出,  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  间的交换作用是驱动 SRT 的关键因素, 而非传统认为的  $\text{Fe}^{3+}$  各向异性的温度依赖性<sup>[12]</sup>. 一个包含对称与反对称交换作用的四亚晶格自旋波模型成功预测了伴随 SRT 出现的软模, 为理解此类相变奠定了理论基础. 随后的实验研究从多角度揭示了 SRT 现象.  $\text{YbFeO}_3$  的穆斯堡尔谱研究证实, 在  $6.55$ — $7.83$  K 温度区间内,  $\text{Yb}^{3+}$  自旋发生连续转动, 且在  $4.2$  K 时其磁矩位于  $ab$  平面内, 与  $a$  轴成约  $27^\circ$  夹角. 该研究明确指出, 在 SRT 过程中,  $\text{Fe}^{3+}$  与  $\text{Yb}^{3+}$  的净磁矩呈反向旋转, 揭示了两个亚晶格间耦合作用的复杂性<sup>[13]</sup>. 通过毫米波磁共振实验, 研究人员在  $\text{YbFeO}_3$  中观测到自旋反转过程中的软模和能隙. 研究发现, 在  $\Gamma_2$  相- $\Gamma_4$  相 SRT 过程中, 软模并非来源于  $\text{Fe}^{3+}$  子系统的反铁磁共振模, 而是由  $\text{Yb}^{3+}$  磁矩的集体振荡所引起, 这一结果揭示了稀土子系统在低温下的动力学行为对 SRT 过程具有主导作用<sup>[14]</sup>. 在外加磁场条件下, SRT 行为展现出新的特征. 在  $4.2$  K 附近施加磁场可诱导  $\text{YbFeO}_3$  发生 SRT, 且无论磁场方向如何,  $\text{Fe}^{3+}$  自旋总是倾向于转向高温相的  $a$  轴方向. 这种现象源于磁场对  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  耦合的削弱, 从而进一步证实了  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  交换相互作用在磁构型中的关键作用<sup>[15]</sup>.

本文使用透射式太赫兹时域光谱研究了  $a$ -cut  $\text{YbFeO}_3$  单晶在  $1.6$ — $300$  K 温度范围及  $20$  K 下磁场诱导的 SRT 行为和  $\text{Yb}^{3+}$  的能级跃迁. 实验重点观测了温度与磁场对  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  交换作用及自旋构型演化的影响. 在  $20$  K 条件下沿  $a$  轴施加  $0$ — $7$  T 磁场时, 观察到  $\text{Fe}^{3+}$  自旋从  $\Gamma_4$  相向  $\Gamma_2$  相

的连续转变, 并在中间相  $\Gamma_{24}$  相时同时激发准反铁磁模 (quasi-anti ferro magnetic, q-AFM) 与准铁磁模 (quasi-ferro magnetic, q-FM) 两种磁共振模式, 即使在  $7$  T 磁场下也未能完成完全相变. 在低频区域 ( $< 0.8$  THz) 观测到两个随磁场增强发生蓝移的吸收峰, 经分析确认源于  $\text{Yb}^{3+}$  的电子顺磁共振 (electron paramagnetic resonance, EPR) 跃迁. 作为 Kramers 离子,  $\text{Yb}^{3+}$  的晶体场劈裂双重态在外磁场作用下产生 Zeeman 分裂, 形成一系列 Zeeman 子能级. 实验观测到的两个共振模式分别对应于不同晶体场能级间 Zeeman 子能级的能级跃迁.

## 2 实验方法

$\text{YbFeO}_3$  单晶通过光学浮区炉 (IRF01-001-05, Quantum Design, Japan) 制备获得. 将单晶沿其晶格  $a$  轴定向切割, 制备得到厚度为  $(1.45 \pm 0.05)$  mm 的片状样品, 并经双面抛光处理至光学级表面平整度. 图 1(a) 展示了采用单晶粉末样品测得的 X 射线衍射 (X-ray diffraction, XRD) 图谱, 并经过 Rietveld 精修后的结果, 目的是为了表征其晶体结构及确保样品相纯度. 与之对应, 图 1(b) 则为沿  $a$  轴方向切割的单晶片状样品所测得的 XRD 衍射图谱, 是为了验证 Laue 定向后晶体切割方向的准确性. 在理想情况下, 粉末样品由无数随机取向的微晶组成, 能够全面反映材料中各晶面的衍射信息. 而单晶片状样品因沿特定晶向切割, 在测试时会使得该取向的衍射峰强度显著增强, 其他晶面的衍射信号则相应减弱甚至消失. 图 1(b) 中出现的所有衍射峰, 其  $2\theta$  角度均与图 1(a) 中的衍射峰位置一致, 证明该  $\text{YbFeO}_3$  单晶样品具有优异的结构质量, 且其切割面严格垂直于  $a$  晶轴.

实验采用自主搭建的时域太赫兹磁光谱系统, 该系统集成了超导磁体 (SpectromagPT, Oxford Instruments)<sup>[16-20]</sup>. 光源为钛蓝宝石飞秒激光放大器 (Astrella, Coherent, Inc.), 中心波长  $800$  nm, 重复频率  $1$  kHz, 脉冲宽度  $35$  fs, 单脉冲能量  $5$  mJ. 激光脉冲垂直入射于 ZnTe 晶体, 通过光学整流效应产生 THz 脉冲, 通过自由空间电光采样技术在 ZnTe 晶体中探测得到<sup>[21]</sup>. 本文用于产生和探测太赫兹波的晶体均为  $(110)$  晶向的 ZnTe 晶

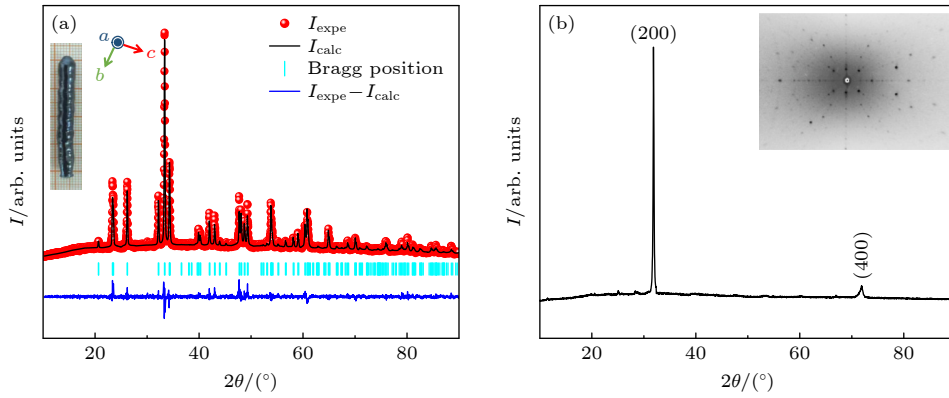


图 1 试样信息 (a)  $\text{YbFeO}_3$  单晶粉末的 X 射线衍射图谱, 包含实验强度、计算强度、差异强度及布拉格衍射位置, 插图为生长得单晶的实物照片; (b) 沿  $a$  轴方向的  $\text{YbFeO}_3$  单晶 X 射线衍射图谱, 插图为对应的劳厄衍射照片

Fig. 1. Sample information: (a) X-ray diffractograms of single-crystal  $\text{YbFeO}_3$  powders, including the experimental, calculated, and difference intensities along with the Bragg positions, with an inset showing a photograph of the as-grown single-crystal; (b) X-ray diffractogram of single-crystal  $\text{YbFeO}_3$  along  $a$ -axis, the inset shows the corresponding Laue photograph.

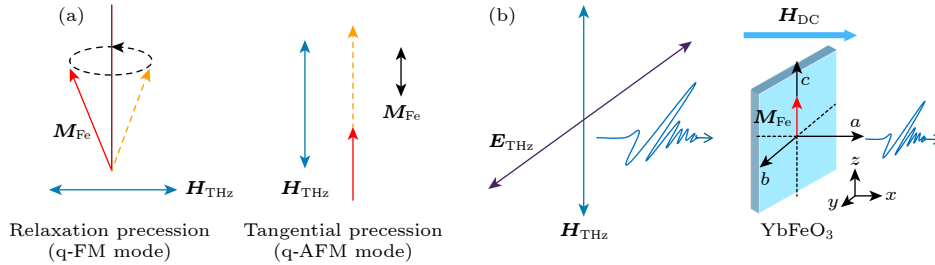


图 2  $\text{YbFeO}_3$  自旋共振模式的激发规则与实验构型 (a) 当  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  分别垂直于或平行于  $\mathbf{H}_{\text{THz}}$  时, 可选择性激发 q-FM 与 q-AFM 模式; (b) 实验几何构型示意图, THz 脉冲垂直入射至样品表面,  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  与  $\mathbf{H}_{\text{THz}}$  方向平行, 且磁场沿  $a$  轴方向施加

Fig. 2. Excitation rules of  $\text{YbFeO}_3$  spin resonance modes and experimental geometry: (a) q-FM and q-AFM modes are selectively excited when  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  is perpendicular or parallel to  $\mathbf{H}_{\text{THz}}$ , respectively; (b) experimental geometry with THz pulses perpendicularly incident on the sample surface,  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  parallel to  $\mathbf{H}_{\text{THz}}$ , and magnetic field applied along the  $a$ -axis.

体, 厚度为 2 mm. 该选择是为了与中心波长为 800 nm 的飞秒激光系统实现最佳匹配, 在保证高灵敏度探测的同时, 兼顾了系统的探测带宽. 整个 THz 光路置于干氮气腔体中以抑制水汽吸收, 可以提供 0—7 T 的磁场、1.6—300 K 的温度以及 0.15—2 THz 的光谱范围.

对  $a$ -cut  $\text{YbFeO}_3$  样品进行温度与磁场的实验研究. 在 Néel 温度以下,  $\text{YbFeO}_3$  中的  $\text{Fe}^{3+}$  存在两种自旋构型, 并具有两种磁子激发模式: 当 THz 磁场分量 ( $\mathbf{H}_{\text{THz}}$ ) 垂直于宏观磁化矢量 ( $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$ ) 时选择性地激发 q-FM, 而当  $\mathbf{H}_{\text{THz}}$  平行于  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  时激发 q-AFM, 如图 2(a) 所示. 图 2(b) 为实验的法拉第实验构型, 外加磁场垂直于  $a$  轴施加,  $\mathbf{H}_{\text{THz}}$  平行于  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$ , 线偏振 THz 脉冲垂直入射到样品表面, 通过傅里叶变换将采集的样品和参考的时域信号变换到频域, 得到传输函数  $H(\omega) = E_s(\omega)/E_r(\omega)$ , 进而求得功率透射率  $T(\omega) = \text{abs}(H(\omega))^2$ . 通过公式

$\alpha = (-\ln T)/d$  计算样品吸收系数  $\alpha$ , 其中  $d$  为样品厚度<sup>[22–24]</sup>.

### 3 结果与讨论

图 3(a) 展示了  $a$ -cut  $\text{YbFeO}_3$  单晶在 1.6—300 K 温度范围内自旋结构的演变过程, 在不同的温度区间使用不同的采集步长, 尤其是自旋重取向转变点 ( $\sim 7$  K) 附近, 每隔 1 K 采集实验数据, 这确保了温度依赖测量数据的可靠性. 随着温度从低温升至高温,  $\text{Fe}^{3+}$  自旋结构经历了由  $\Gamma_2$  相向  $\Gamma_4$  相的连续转变. 在低温相 ( $T < 7$  K) 中,  $\text{Fe}^{3+}$  自旋呈  $\Gamma_2$  构型 ( $\mathbf{G}_z, \mathbf{F}_x$ ),  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  沿  $a$  轴方向排列; 当温度升高至 7 K 以上时,  $\text{Fe}^{3+}$  自旋逐渐过渡为  $\Gamma_4$  构型 ( $\mathbf{G}_x, \mathbf{F}_z$ ),  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  转向  $c$  轴方向. 图 3(b) 为通过透射式太赫兹时域光谱测量数据计算得到的吸收系数  $\alpha$  的堆叠图. 在 SRT 温度附近, 吸收峰出现明显突

变, 这是由  $\text{Fe}^{3+}$  自旋结构变化所引起的磁共振模式改变所致. 在低于 7 K 的  $\Gamma_2$  相中, 吸收峰位于约 0.9 THz, 对应于激发的 q-FM; 当温度升至 7 K 以上时, 吸收峰突变为约 1.2 THz, 对应于  $\Gamma_4$  相中激发的 q-AFM. 随着温度升高, q-AFM 和 q-FM 的频率均呈现降低趋势. 这种温度对磁共振频率的影响主要源于晶体各向异性性能的变化, 温度升高导致磁性离子自旋磁矩的涨落增强, 各向异性性能逐渐减弱. 在 7 K 时, 从图 3(b) 的堆叠图上可以看到同时存在 q-AFM 和 q-FM. 7 K 时的 q-FM 频率略高于 6 K 时的 q-FM 频率, 在 SRT 温度 ( $\sim 7$  K) 附近,  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  各向异性交换相互作用会发生剧烈变化. 低于 7 K,  $\text{Yb}^{3+}$  磁矩与  $\text{Fe}^{3+}$  磁矩牢固地锁定在  $\Gamma_2$  相的平衡方向上, 系统的有效场主要由  $\text{Fe}^{3+}$

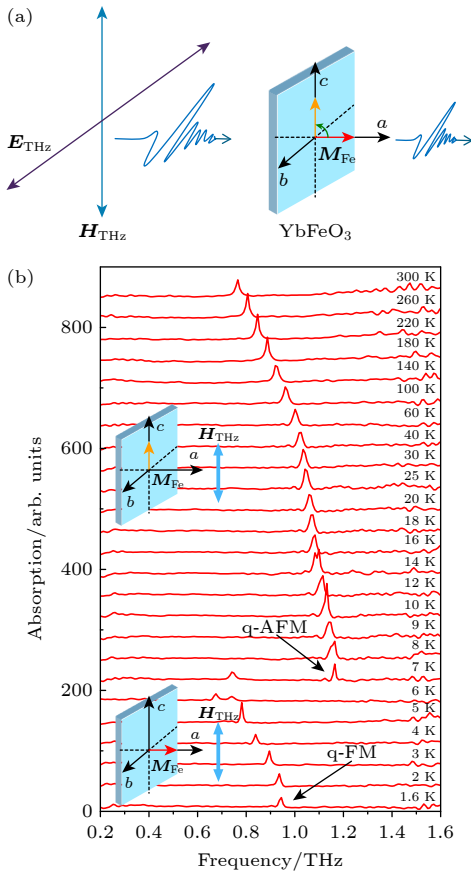


图 3 (a) 温度实验几何构型示意图,  $\text{Fe}^{3+}$  自旋结构由  $\Gamma_2$  相向  $\Gamma_4$  相转变; (b) 温度范围 1.6—300 K 时, 计算得到  $\text{YbFeO}_3$  的吸收系数  $\alpha$  随温度的变化. 温度低于 7 K,  $\text{Fe}^{3+}$  自旋结构为  $\Gamma_2$  相; 高于 7 K,  $\text{Fe}^{3+}$  自旋结构为  $\Gamma_4$  相

Fig. 3. (a) Schematic of the temperature-dependent experimental geometry, illustrating the transition of  $\text{Fe}^{3+}$  spin structure from  $\Gamma_2$  to  $\Gamma_4$ ; (b) calculated absorption coefficient  $\alpha$  of  $\text{YbFeO}_3$  as a function of temperature across the range of 1.6—300 K. The  $\text{Fe}^{3+}$  spin structure adopts the  $\Gamma_2$  configuration below 7 K and transitions to  $\Gamma_4$  above 7 K.

自身的各向异性 and 稳定的  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  交换场决定. 随着温度升高接近 7 K,  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  交换场贡献减弱, 但这个减弱的过程不是单调的, 这导致系统的有效各向异性场在临界点前出现一个微弱的硬化, 从而使得磁振子频率在下降的整体趋势中出现一段小的升高. 结合前期穆斯堡尔谱与磁共振研究结果, 可以确认该温度诱导的 SRT 行为主要受  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  间交换相互作用调控. 随着温度升高,  $\text{Fe}^{3+}$  各向异性场的减弱与  $\text{Yb}^{3+}$  磁矩的顺磁涨落共同作用, 削弱了  $\Gamma_2$  相的稳定性, 从而驱动系统向高温  $\Gamma_4$  相过渡<sup>[13]</sup>.

图 4(a) 展示了在 20 K 温度下, 沿  $\text{YbFeO}_3$  单晶  $a$  轴施加 0—7 T 磁场时吸收系数  $\alpha$  的等高线图, 揭示了两种磁共振模式及 EPR 随磁场变化的频移特性. 图中可观察到 4 条吸收峰, 其中位于 0.2—0.6 THz 频段的两条吸收峰随磁场增强发生蓝移, 这源于  $\text{Yb}^{3+}$  在晶体场劈裂的 Kramers 双重态中 Zeeman 子能级间的 EPR<sup>[25,26]</sup>. 在 0.8—1.2 THz 频段出现的两个吸收峰则对应于磁场诱导的 SRT. 零场条件下仅存在 q-AFM, 随着磁场增强, q-FM 在约 0.75 T 附近被激发, 且两种模式在最高 7 T 磁场范围内持续共存. 根据图 2(a) 所示的激发选择定则, 这一现象表明体系发生了从  $\Gamma_4$  到  $\Gamma_2$  的不完全相变.  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  在  $a$ - $c$  平面内发生旋转, 导致 q-AFM 与 q-FM 被同时激发. 图 4(a) 上方示意图展示了  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  在磁场作用下从  $a$  轴向  $c$  轴方向的转动过程. 在 0.75—7 T 的磁场范围内, 两种磁共振模式的共存表明样品处于  $\Gamma_{24}$  中间相.

基于 Wood<sup>[26]</sup> 和 Balbashov 等<sup>[27]</sup> 理论, 计算 EPR 及磁振子模式随磁场的变化关系. 根据  $a$  轴取向的  $\text{RFeO}_3$  晶体的晶体场理论推导,  $\text{Yb}^{3+}$  的能级分裂可表述如下:

$$\Delta\lambda_{ij} = \pm \mu_0 \mu_B \left[ \sum_{\xi} (g_{i,\xi} H_{\text{tot},ij,\xi})^2 \right]^{1/2} + \delta_{i,2} (\mu_0 \mu_B)^2 \sum_{\xi} \Delta D_{\xi} (H_{\text{tot},ij,\xi})^2, \quad (1)$$

其中,

$$H_{\text{tot},ij,x} = H_{\text{eff},ij} \cos \theta_i + H_{\text{DC}} \cos v_i, \quad (2)$$

$$H_{\text{tot},ij,y} = H_{\text{eff},ij} \sin \theta_i - H_{\text{DC}} \sin v_i, \quad (3)$$

式中, 真空磁导率  $\mu_0 = 1$ , 玻尔磁子  $\mu_B = 9.2741 \times 10^{-24} \text{ J} \cdot \text{T}^{-1}$ ,  $\delta_{i,2}$  是克罗内克  $\delta$  函数, 是为了将二次

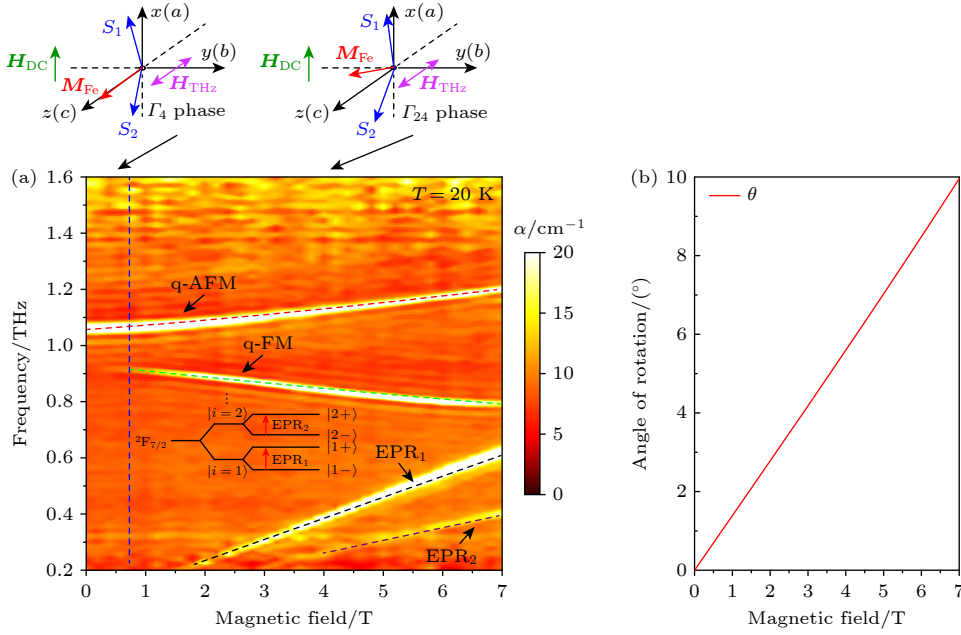


图 4 (a) 20 K 下, q-FM、q-AFM 及 EPR 随磁场变化的频移特性和对应的理论拟合曲线 (上方为相变示意图); (b)  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  旋转角度随磁场的变化

Fig. 4. (a) Magnetic-field-dependent frequency shifts of q-FM, q-AFM, and EPR modes at 20 K with corresponding theoretical fitting curves (schematic of the phase transition shown above); (b) variation of the rotation angle of  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  as a function of magnetic field.

塞曼效应限制在  $i = 2$  的晶体场能级上. 由  $\text{Fe}^{3+}$  亚晶格产生的有效交换场  $H_{\text{eff},ij}$ ,  $H_{\text{eff},ij}$  与  $x_{ij}$  轴的夹角  $\theta_i$ 、 $\text{Yb}^{3+}$  局部位向与  $a$  轴的夹角  $v_i$ 、朗德因子  $g_{i,\xi}$  ( $\xi = x, y, z$ )、各向异性的二次塞曼系数  $D_\xi$  见表 1.

表 1 EPR 的拟合参数  
Table 1. EPR fitting parameters.

	$ i = 1\rangle$	$ i = 2\rangle$
$ H_{\text{eff},ij} (\text{T})$	2.02	1.24
$\theta_i/(\text{°})$	68	66
$v_i/(\text{°})$	13	15
$g_{i,x}$	3	2
$g_{i,y}$	1.7	3.2
$g_{i,z}$	5	1.3
$\Delta D_x(1/J)$	$2.4 \times 10^{22}$	
$\Delta D_y(1/J)$	$0.5 \times 10^{22}$	
$\Delta D_z(1/J)$	$1.7 \times 10^{22}$	

基于 Balbashov 的理论<sup>[23]</sup>, 在 THz 与磁场扰动下的自旋动力学可通过热力学方程进行描述, 采用双亚晶格模型, 可定义简化的热力学势  $\Psi$  为

$$\Psi = A(\mathbf{S}_1 \mathbf{S}_2) + \frac{1}{2}a(S_{1z}^2 S_{2z}^2) + bS_{1z} S_{2z} - \mathbf{S}_1 \mathbf{H}_{\text{DC}} + \mathbf{S}_2 \mathbf{H}_{\text{DC}}, \quad (4)$$

其中,  $A$  表示交换相互作用常数,  $a$  和  $b$  为各向异性常数. 亚晶格的磁化矢量由  $\mathbf{S}_1$  和  $\mathbf{S}_2$  表示,  $S_{1z}$  和  $S_{2z}$  则代表沿  $c$  轴的磁化分量. 磁场沿样品  $a$  轴方向施加.

通过求解 Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程, 可推导出 q-FM 与 q-AFM 的频率表达式:

$$\omega_{1,2}^2 = \frac{1}{2}\gamma^2 \left\{ P + Q + R \mp [(P - Q + R)^2 + 4QR]^{1/2} \right\}, \quad (5)$$

其中,

$$P = H_E(H_{xy} + H'_{A2} \sin^2 \varphi) + H_D^2 - H_{\text{DC}}^2, \quad (6)$$

$$Q = H_E(H_{xz} + 3H_{A2} \sin^2 \varphi) \cos^2 \varphi + H_{\text{DC}}^2 \sin^2 \varphi, \quad (7)$$

$$R = 4H_{\text{DC}}^2 \cos^2 \varphi. \quad (8)$$

$\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  的倾角  $\theta$  满足下列方程:

$$H_E H_{A2} \sin^3 \varphi + (H_E H_{xz} - H_{\text{DC}}^2) \sin \varphi - H_{\text{DC}} H_D = 0, \quad (9)$$

其中,  $\gamma = 1.86 \times 10^7 \text{s}^{-1} \cdot \text{Oe}^{-1}$  为旋磁比,  $H_E = 5 \times 10^4 \text{kOe}$  为交换场系数,  $H_D = 2.3 \times 10^2 \text{kOe}$  为 DM 相互作用场系数,  $H_{xz} = 1.9 \text{kOe}$  和  $H_{xy} = 1.49 \text{kOe}$  分别为  $ac$  平面与  $ab$  平面内的各向异性场,  $H_{A2} = 2 \text{kOe}$  代表  $ac$  平面内的有效双二次各向异性场, 其中  $H_E H'_{A2} = 0$ . 基于上述拟合参数, 可计算出 q-FM 与 q-AFM 随磁场的频移特性.

理论拟合结果如图 4(a) 中虚线所示, 与实验数据高度吻合. 低频区域出现的两条吸收峰可能具有两种起源: 1) 晶体场跃迁, 特指  $\text{Yb}^{3+}$  的 Kramers 双重态之间的共振. 采用指标  $i$  标记各晶体场能级,  $|i=1\rangle$ ,  $|i=2\rangle$  分别表示  $\text{Yb}^{3+}$  在不同晶体场作用下的 Kramers 双重态, 在  $|i=1\rangle \rightarrow |i=2\rangle$  之间的跃迁被称为晶体场跃迁. 然而, 根据  $a$  轴取向  $\text{RFeO}_3$  晶体场能级理论推导<sup>[21]</sup>, 由于  $|i=1\rangle \rightarrow |i=2\rangle$  能级间的跃迁频率超过 2 THz (超过本太赫兹光谱系统的探测上限<sup>[28]</sup>), 该跃迁无法被观测. 2) EPR 跃迁, 晶体场能级  $i$  在磁场作用下分裂为  $|1-\rangle$  和  $|1+\rangle$  能级. 其中  $\text{EPR}_1$  对应  $|1-\rangle \rightarrow |1+\rangle$  跃迁,  $\text{EPR}_2$  对应  $|2-\rangle \rightarrow |2+\rangle$  跃迁. 如图 4(a) 中黑色与紫色虚线所示, EPR 跃迁的理论计算与实验观测高度一致. 在 0.8—1.2 THz 高频区域, q-AFM 与 q-FM 两个吸收峰也通过自旋动力学模型进行了定量拟合, 结果分别以红色与绿色虚线标识. 理论计算不仅准确再现了 q-AFM 在磁场作用下的频移行为, 也很好描述了 q-FM 模式在磁场大于 0.75 T 后被激发并持续存在的演化特征, 进一步证实了样品在磁场诱导下处于  $\Gamma_{24}$  中间相. 当沿  $a$  轴施加磁场时,  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  交换耦合的反对称分量受到显著调制, 导致 DM 相互作用场发生定向偏转. 这种调制作用直接反映在  $\text{Fe}^{3+}$  自旋的受力平衡上, 使其在  $ac$  平面内的转动呈现连续变化的特征. 当磁场从 0 T 增强至 7 T 时, 交换作用能的各向异性分量与 Zeeman 能之间形成动态竞争, 使得系统在  $\Gamma_4$  相与  $\Gamma_2$  相之间建立了一个宽达 0.75—7 T 的亚稳态区域, 即  $\Gamma_{24}$  中间相.  $\Gamma_{24}$  相的稳定存在本质上源于  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  交换作用在磁场干扰下仍能维持其相干长度的临界行为, 从而允许 q-AFM 与 q-FM 两种激发模式在相同磁场区间内共存.

为定量理解磁场对  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  的调控作用, 通过求解 LLG 方程得到了  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  在  $ac$  平面内的倾角  $\theta$  随磁场的变化关系, 如图 4(b) 所示. 在零场条件下,  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  沿  $a$  轴方向 ( $\theta = 0^\circ$ ), 对应  $\Gamma_4$  相; 随着磁场增强,  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  逐渐向  $c$  轴方向旋转, 在 7 T 时倾角增至约  $10^\circ$ . 这一连续转动过程与实验中观测到的 q-AFM 与 q-FM 共存现象相互印证. 综上所述, 理论模型在定量描述磁共振模式频移行为的同时, 也揭示了自旋构型在磁场作用下的连续演化规律, 为理解  $\text{YbFeO}_3$  中磁场诱导的 SRT 过程提供了理论与实验依据.

## 4 结 论

本文利用时域太赫兹光谱技术系统研究了  $a$ -cut  $\text{YbFeO}_3$  单晶在温度 (1.6—300 K) 与磁场 (0—7 T) 调控下的自旋动力学行为. 实验成功观测到温度诱导的 SRT, 在约 7 K 附近表现为共振模式的突变. 在 20 K 的磁场实验中, 观测到由  $\Gamma_4$  相向  $\Gamma_2$  相的不完全相变, 表现为 q-AFM 与 q-FM 在  $\Gamma_{24}$  中间相中的共存现象, 并通过太赫兹频谱清晰识别出来自  $\text{Yb}^{3+}$  的 Zeeman 子能级间跃迁的 EPR. 基于自旋动力学模型与晶体场理论, 对所有观测到的磁振子模式及 EPR 进行了定量拟合, 理论计算与实验数据高度吻合. 该模型揭示了  $\mathbf{M}_{\text{Fe}}$  在磁场作用下的连续旋转行为, 为理解 SRT 的微观机制提供了直观的物理图像. 本研究从实验与理论两方面证实了温度与磁场对  $\text{YbFeO}_3$  自旋构型的有效调控能力, 深化了对  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  交换相互作用机制的理解, 也为基于此类材料的太赫兹频段磁光器件设计提供了重要实验依据.

## 参考文献

- [1] Chaudhary V, Mantri S A, Ramanujan R V, Banerjee R 2020 *Prog. Mater. Sci.* **114** 100688
- [2] Serrano D, Li H R, Wang S K, Guillod T, Luo M, Bansal V 2023 *IEEE Trans. Power Electron.* **38** 14292
- [3] Nithya R, Thirunavukkarasu A, Sathya A B, Sivashankar R 2021 *Environ. Chem. Lett.* **19** 1275
- [4] Stewart G A, Lampl W 2017 *J. Phys. : Conf. Ser.* **898** 072013
- [5] Wang Y Y, Song C, Zhang J Y, Pan F 2017 *Prog. Nat. Sci. : Mater. Int.* **27** 208
- [6] Jin Z M, Ruan S Y, Li J G, Lin X, Ren W, Cao S X, Ma G H, Yao J Q 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]
- [7] White R L 1969 *J. Appl. Phys.* **40** 1061
- [8] Moriya T 1960 *Phys. Rev.* **120** 91
- [9] Dzyaloshinsky I 1958 *J. Phys. Chem. Solids* **4** 241
- [10] Yamaguchi T 1974 *J. Phys. Chem. Solids* **35** 479
- [11] Ma X X, Yuan N, Luo X, Chen Y K, Kang B J, Ren W, Zhang J C, Cao S X 2021 *Mater. Today Commun.* **27** 102438
- [12] Aring K B, Sievers A J 1970 *J. Appl. Phys.* **41** 1197
- [13] Davidson G R, Dunlap B D, Eibschütz M, van Uitert L G 1975 *Phys. Rev. B* **12** 1681
- [14] Dan'shin N K, Kramarchuk G G, Sdvizhkov M A 1986 *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.* **44** 85
- [15] Brown S R, Hall I 1993 *J. Phys. : Condens. Matter* **5** 4207
- [16] Ju X W, Hu Z Q, Huang F, Wu H B, Belyanin A, Kono J, Wang X F 2021 *Opt. Express* **29** 9261
- [17] 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
- [18] Peng Y, Huang J L, Luo J, Yang Z F, Wang L P, Wu X,

- Zang X F, Yu C, Gu M, Hu Q, Zhang X C, Zhu Y M, Zhuang S L 2021 *Photonix* **2** 1
- [19] Wang N, Zhu G F, Hu Z Q, Cao Y M, Wang X F, Ju X W, Su H B, Huang F 2023 *Infrared Phys. Technol.* **135** 104937
- [20] Lin X, Jin Z M, Li J G, Guo F Y, Zhuang N F, Chen J Z, Dai Y, Yan X N, Ma G H 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 237801 (in Chinese) [林贤, 金钻明, 李炬庚, 郭飞云, 庄乃锋, 陈建中, 戴晔, 阎晓娜, 马国宏 2018 *物理学报* **67** 237801]
- [21] Grischkowsky D, Duling III I N, Chen J C, Chi C C 1987 *Phys. Rev. Lett.* **59** 1663
- [22] Dorney T D, Baraniuk R G, Mittleman D M 2001 *J. Opt. Soc. Am. A* **18** 1562
- [23] Duvillaret L, Garet F, Coutaz J L 2000 *J. Opt. Soc. Am. B* **17** 452
- [24] Duvillaret L, Garet F, Coutaz J L 1999 *Appl. Opt.* **38** 409
- [25] Li X W, Bamba M, Yuan N, Zhang Q, Zhao Y G, Xiang M L, Jin Z M, Ren W, Ma G H, Cao S K, Turchinovich D, Kono J 2018 *Science* **361** 794
- [26] Wood D L, Holmes L M, Remeika J P 1969 *Phys. Rev.* **185** 689
- [27] Balbashov A M, Berezin A G, Gufan Y M, Kolyadko G S, Marchukov P Y, Rudashevskii E G 1987 *Sov. J. Exp. Theor. Phys.* **66** 174
- [28] Morrison C A, Wortman D E 1992 *Opt. Mater.* **1** 195

## Terahertz spectroscopy study of the magnetic field- and temperature-induced spin-reorientation in *a*-cut YbFeO<sub>3</sub>\*

CHEN Ying<sup>1) #</sup> DONG Zhitao<sup>1) #</sup> ZHENG Shiyun<sup>2)3) #</sup> LIU Yongzhen<sup>1)</sup>

JU Xuewei<sup>1) †</sup> CAO Yiming<sup>2) ‡</sup> WANG Xiangfeng<sup>1) ††</sup>

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

<sup>2)</sup> (School of Physics and Electronic Engineering, Qujing Normal University, Qujing 655011, China)

<sup>3)</sup> (State Key Laboratory of Metastable Material Preparation Technology and Science, School of Science, Yanshan University, Qinhuangdao 066004, China)

( Received 23 October 2025; revised manuscript received 13 November 2025 )

### Abstract

The spin-reorientation transition (SRT) in rare-earth orthoferrites provides an important platform for exploring the coupling and manipulation of spin dynamics, which is crucial for developing high-frequency spintronic and terahertz (THz) magneto-optical devices. In this work, we systematically investigate the temperature- and magnetic-field-induced SRT behaviors and the associated electron paramagnetic resonance (EPR) transitions of Yb<sup>3+</sup> ions in *a*-cut YbFeO<sub>3</sub> single crystals by using time-domain terahertz spectroscopy. The temperature-dependent measurements from 1.6 to 300 K show a significant SRT near 7 K, characterized by a sudden shift of the magnetic resonance mode frequency. This indicates a transition of the Fe<sup>3+</sup> spin configuration from the low-temperature  $\Gamma_2$  phase to the high-temperature  $\Gamma_4$  phase, driven primarily by the temperature evolution of the anisotropic Fe<sup>3+</sup>-Yb<sup>3+</sup> exchange interaction.

Under an external magnetic field applied along the *a*-axis at 20 K, the system exhibits an incomplete field-induced SRT from the  $\Gamma_4$  phase toward the  $\Gamma_2$  phase. In the intermediate  $\Gamma_{24}$  phase, both the quasi-anti ferro magnetic (q-AFM) and quasi-ferro magnetic (q-FM) modes are simultaneously excited as observed in the THz absorption spectra. Notably, even at a maximum field of 7 T, the transition remains incomplete, indicating the

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51862032, 62501161), the Natural Science Foundation of Fujian Province, China (Grant Nos. 2023J01055, 2023J05096), the Key Laboratory of Terahertz Functional Devices and Intelligent Sensing of Fujian Province, China (Grant No. FPKLTFDIS202304), the Project for Applied Basic Research Programs of Yunnan Province, China (Grant No. 202301AT070243), and the Fuzhou University Startup Funding, China (Grant No. XRC-22073).

# These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: [juxw@fzu.edu.cn](mailto:juxw@fzu.edu.cn)

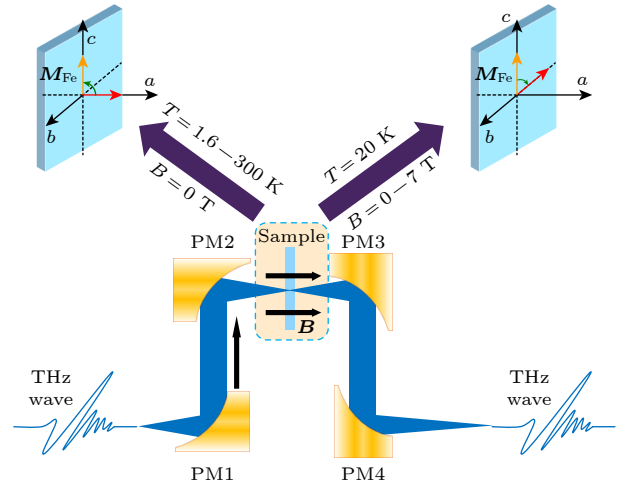
‡ Corresponding author. E-mail: [ymcao@mail.qjnu.edu.cn](mailto:ymcao@mail.qjnu.edu.cn)

†† Corresponding author. E-mail: [xfwang@fzu.edu.cn](mailto:xfwang@fzu.edu.cn)

stabilization of the intermediate phase over a wide field range. In the low-frequency range ( $<0.8$  THz), two absorption peaks exhibiting clear blue shifts with increasing magnetic field are identified as EPR transitions between Zeeman sublevels of the crystal-field-split Kramers doublets of  $\text{Yb}^{3+}$  ions.

All experimental observations, including the temperature- and magnetic-field-dependent frequency responses of the q-AFM and q-FM modes as well as the evolution of the electron paramagnetic resonance signals with magnetic field, are quantitatively described by coupling a spin dynamics model with crystal field theory. The model successfully reproduces the continuous rotation of the macroscopic  $\text{Fe}^{3+}$  magnetization vector within the  $ac$  plane under an applied magnetic field, revealing the microscopic mechanism of the field-induced SRT. The analysis demonstrates that the SRT process results from the competition and synergy between the external magnetic field and the anisotropic  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  exchange interaction, which jointly modulate the internal effective field and determine the stability of the intermediate  $T_{24}$  phase.

In this study, the effective control of spin configurations in  $\text{YbFeO}_3$  is confirmed through temperature and magnetic field, deepening the understanding of the  $\text{Fe}^{3+}$ - $\text{Yb}^{3+}$  exchange interaction mechanism, and offering important experimental insights for designing terahertz functional devices based on rare-earth orthoferrites.



**Keywords:** terahertz spectroscopy, rare-earth orthoferrites, spin-reorientation transition, exchange interaction

**DOI:** [10.7498/aps.75.20251446](https://doi.org/10.7498/aps.75.20251446)

**CSTR:** [32037.14.aps.75.20251446](https://cstr.net.cn/32037.14.aps.75.20251446)



基于磁场和温度变化的太赫兹光谱研究 $a$ -cut  $\text{YbFeO}_3$ 中的自旋重取向

陈盈 董志涛 郑世芸 刘永振 居学尉 曹义明 王向峰

**Terahertz spectroscopy study of the magnetic field- and temperature-induced spin-reorientation in  $a$ -cut  $\text{YbFeO}_3$**

CHEN Ying DONG Zhitao ZHENG Shiyun LIU Yongzhen JU Xuewei CAO Yiming WANG Xiangfeng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 75, 040406 (2026) DOI: 10.7498/aps.75.20251446

CSTR: 32037.14.aps.75.20251446

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.75.20251446>

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 $\text{TmFeO}_3$ 单晶自旋重取向

Magnetic-field-induced spin reorientation in  $\text{TmFeO}_3$  single crystals

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

$\text{DyFeO}_3$ 中高于Morin温度的新型磁相变

A new magnetic phase transition above Morin temperature in  $\text{DyFeO}_3$

物理学报. 2025, 74(8): 087801 <https://doi.org/10.7498/aps.74.20250005>

太赫兹光谱学研究CL-20/MTNP共晶振动特性

Research on vibrational features of CL-20/MTNP cocrystal by terahertz spectroscopy

物理学报. 2024, 73(19): 193201 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240944>

太赫兹光谱在转基因菜籽油鉴别中的应用: 基于改进蜉蝣算法的支持向量机模型

Application of terahertz spectroscopy in identification of transgenic rapeseed oils: A support vector machine model based on modified mayfly optimization algorithm

物理学报. 2024, 73(5): 058701 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20231569>

准二维范德瓦耳斯本征铁磁半导体 $\text{CrGeTe}_3$ 的THz光谱

Quasi-two-dimensional van der Waals ferromagnetic semiconductor  $\text{CrGeTe}_3$  studied by THz spectroscopy

物理学报. 2022, 71(23): 237303 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20221586>

基于 $\text{IrMn/Fe/Pt}$ 交换偏置结构的无场自旋太赫兹源

Field-free spintronic terahertz emitters based on  $\text{IrMn/Fe/Pt}$  exchange bias heterostructures

物理学报. 2022, 71(4): 048703 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211831>