

$\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶自旋重取向的掺杂效应与磁控效应的太赫兹光谱

任壮 成龙 谢尔盖·固瑞特斯基 那泽亚·柳博奇科 李江涛 尚加敏 谢尔盖·巴里洛 武安华 亚历山大·卡拉什尼科娃 马宗伟 周春 盛志高

Terahertz spectroscopy study of doping and magnetic field induced effects on spin reorientation in $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ single crystals

Ren Zhuang Cheng Long Sergei Guretskii Nadzeya Liubochko Li Jiang-Tao Shang Jia-Min Sergei Barilo Wu An-Hua Alexandra Kalashnikova Ma Zong-Wei Zhou Chun Sheng Zhi-Gao

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 69, 207802 (2020) DOI: 10.7498/aps.69.20201518

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.69.20201518>

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

稀土正铁氧体中THz自旋波的相干调控与强耦合研究进展

Research progress of coherent control of terahertz spin waves and strong coupling in rare-earth orthoferrites

物理学报. 2019, 68(16): 167501 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190706>

太赫兹雷达散射截面的仿真与时域光谱测量

Simulations and time-domain spectroscopy measurements for terahertz radar-cross section

物理学报. 2019, 68(16): 168701 <https://doi.org/10.7498/aps.68.20190552>

专题：太赫兹自旋光电子

Ho_{1-x}Y_xFeO₃ 单晶自旋重取向的掺杂效应与磁控效应的太赫兹光谱*

任壮¹⁾²⁾ 成龙¹⁾²⁾ 谢尔盖·固瑞特斯基³⁾ 那泽亚·柳博奇科³⁾ 李江涛⁴⁾
尚加敏⁴⁾ 谢尔盖·巴里洛³⁾ 武安华⁴⁾ 亚历山大·卡拉什尼科娃⁵⁾
马宗伟¹⁾ 周春¹⁾ 盛志高^{1)†}

1) (中国科学院合肥物质科学研究院, 强磁场科学中心, 合肥 230031)

2) (中国科学技术大学, 合肥 230026)

3) (白俄罗斯国家航空航天局, 科学实用材料研究中心, 明斯克 220072)

4) (中国科学院上海硅酸盐研究所, 上海 200050)

5) (俄罗斯约飞技术研究所, 圣·彼得堡 194021)

(2020 年 9 月 11 日收到; 2020 年 9 月 24 日收到修改稿)

利用自研的磁场下太赫兹时域光谱 (terahertz time-domain spectroscopy, THz-TDS), 系统研究了磁场与非磁性 Y³⁺ 离子掺杂对 HoFeO₃ 单晶中自旋态以及自旋重取向的影响. 结果表明 Y³⁺ 掺杂可以在不改变自旋重取向类型情况下, 有效降低自旋重取向温区, 而且还能降低 Ho_{1-x}Y_xFeO₃ 单晶中低温区准铁磁模式 (q-FM, quasi-ferromagnetic mode) 自旋共振频率以及提升高温区的准反铁磁模式 (q-AFM, quasi-antiferromagnetic mode) 自旋共振频率. 在沿 (110) 方向施加外加磁场 (H_{DC}) 的情况下, 一方面, 发现磁场不仅能有效调控 Ho_{1-x}Y_xFeO₃ 单晶中的 q-FM 共振频率, 而且还能诱导出自旋重取向; 另一方面, 发现温度越接近自旋重取向温区时, 磁诱导自旋重取向的发生越容易, 而且磁诱导效应的临界磁场强度随 Y³⁺ 离子掺杂浓度而增加. 研究表明, THz 光谱数据可以用于检测 HoFeO₃ 中 Y³⁺ 离子的掺杂浓度, 而且 Y³⁺ 掺杂可以使 HoFeO₃ 晶体中的自旋态更加稳定, 不容易受外界磁场的影响. 这一自旋重取向的掺杂效应、磁控效应的研究将有助于理解稀土正铁氧体中的自旋交换作用及其外场调控机制.

关键词: 太赫兹时域光谱, 稀土正铁氧体, 自旋重取向, 自旋共振**PACS:** 78.47.J-, 76.30.Kg, 75.30.Kz, 76.50.+g**DOI:** 10.7498/aps.69.20201518

1 引言

因具有磁光效应、超快磁翻转、多铁性和自旋重取向相变等新奇的物理特性, 稀土正铁氧体 RFeO₃ (R 表示 Y 或稀土元素) 已经成为凝聚态物

理的热点研究对象之一^[1-8]. RFeO₃ 材料中有两种磁性离子: R³⁺ 和 Fe³⁺ 离子. 它们之间存在三种磁相互作用, 分别存在于 Fe³⁺-Fe³⁺, R³⁺-Fe³⁺ 以及 R³⁺-R³⁺ 之间^[9-13]. 这三种作用相互竞争, 产生了丰富的磁相变. 其中一种常见而又有趣的磁相变就是自旋重取向, 也就是 RFeO₃ 材料中的自旋矢量会随

* 国家重点研发计划 (批准号: 2016YFA0401803, 2017YFA0303603)、中国科学院前沿科学重点研究项目 (批准号: QYZDB-SSW-SLH011)、国家自然科学基金 (批准号: 11574316, 51872309, 61805256, 11904367, U1832106, 52011530018)、中国科学院俄乌白特别交流计划、上海市科委科技基金 (批准号: 19520710900) 和白俄罗斯-中国研究框架中的白俄罗斯基础研究基金 (批准号: F20CN-021) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhigaosheng@hmfl.ac.cn

着温度等外场变化而出现重新排布的现象^[8,14–20]. 这一现象一般认为是铁离子 (Fe^{3+}) 和稀土离子 (R^{3+}) 之间的弱相互作用, 以及它们各自子格子磁性行为的 inconsistency 造成的^[8,17]. 自旋重取向代表着自旋态的转变, 不仅可以作为自旋电子学器件中信息的载体, 而且其衍生效应可以为深入挖掘磁性物理机制提供基础. 为此, 自旋重取向相变成为了 RFeO_3 研究中的重要内容, 吸引了广泛的关注^[1,3,14,21–23].

一方面, 人们不断探索不同 RFeO_3 体系中自旋重取向相变的不同特征; 另一方面, 人们希望通过各种手段实现对自旋重取向相变的调控, 比如元素掺杂、外场调控等, 以期获取调控规律与潜在应用基础. 已有研究表明, R 位的元素掺杂能有效改变 R^{3+} - Fe^{3+} 交换作用能量, 从而可以调控 RFeO_3 的自旋重取向温区^[9,19,21,24–26]. 元素掺杂一般分为磁性离子掺杂和非磁性离子掺杂. RFeO_3 体系的磁性离子掺杂中最为典型是 Sm^{3+} 离子. SmFeO_3 本身也在 RFeO_3 体系中具有最高的自旋重取向温度 (T_{SR} 约为 480 K). 目前, 人们认为 $\text{Sm}_x\text{R}_{1-x}\text{FeO}_3$ 是实现室温的自旋重取向的最佳材料^[9,11,24,26]. 例如, Wang 等^[11] 生长了高质量的 $\text{Sm}_{0.7}\text{Tb}_{0.3}\text{FeO}_3$ 单晶, 自旋重取向的温区为 330–360 K. 随后, Liu 等^[24] 发现在 Sm^{3+} 离子掺杂的 DyFeO_3 单晶样品中, 样品的自旋重取向温区随着 Sm^{3+} 离子掺杂浓度上升而线性上升. 对于非磁性离子掺杂, 新掺入的离子不会与 Fe^{3+} 产生新的交换作用. 因此在非磁性离子掺杂的 RFeO_3 中, 能更方便地分析 Fe^{3+} - R^{3+} 交换作用对于自旋重取向相变的影响. 在掺杂的非磁性离子中, Y^{3+} 是常见的一种^[13,25]. 例如 2018 年, Li 等^[25] 系统研究了不同浓度 Y^{3+} 掺杂的 ErFeO_3 单晶样品中不同温度磁场下的太赫兹 (terahertz, THz) 吸收谱, 证明了样品中存在着迪克协作耦合效应.

除了掺杂 (化学压力), 磁场是另一种常见的、用于调控 RFeO_3 中自旋重取向相变的手段^[27–30]. 例如, Jiang 等^[28] 利用太赫兹光谱发现, 外加磁场诱导下的 NdFeO_3 单晶中的自旋重取向转变具有强烈的各向异性, 这取决于外加磁场的方向. Guo 等^[27] 研究了 TmFeO_3 单晶中外加磁场分别沿 a 或 c 轴施加时, 准铁磁模式 (q-FM, quasi-ferromagnetic mode) 的共振频率上升或下降, 而准反铁磁模式 (q-AFM, quasi-antiferromagnetic mode) 的共振频率几乎不变. Amelin 等^[23] 研究了 YFeO_3 单晶

中低温磁场下的太赫兹吸收谱, 在 3 K 的温度下沿 a 轴施加到 6.2 T 的磁场可以诱导自旋重取向转变发生. 值得注意的是由于 Y^{3+} 是非磁性离子, YFeO_3 中没有产生温度诱导的 Fe^{3+} 离子的自旋重取向过程.

既然元素掺杂与外加磁场都能有效地调控 RFeO_3 体系中的自旋重取向相变, 那么探索两种方法的差异与其共同作用效果是非常有意义的. 据我们所知, 这一思路还未有人提出. 本文采用太赫兹光谱, 系统研究了变温条件下磁场、非磁性 Y^{3+} 离子掺杂对 HoFeO_3 单晶中 q-FM 和 q-AFM 的共振频率以及自旋重取向的影响. 研究表明非磁性 Y^{3+} 离子的掺入不仅能改变 q-FM 和 q-AFM 的共振频率, 而且能移动自旋重取向发生的温区. 另外, 我们还发现外加磁场不仅能有效地调控 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶中的 q-FM 共振频率, 而且还能诱导出自旋重取向.

2 实验方法

实验中用到的单晶 HoFeO_3 , $\text{Ho}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{FeO}_3$ 和 $\text{Ho}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{FeO}_3$ 采用助溶剂法^[31] 生长获得. 为了有效地获得这些单晶样品中自旋波及其自旋重取向过程, 本文选择了太赫兹时域光谱 (terahertz time-domain spectroscopy, THz-TDS) 技术. 该技术是研究磁性材料的自旋共振和自旋重取向最有效的方法之一, 并且由于 THz 脉冲具有非常小的光子能量 (1 THz, 约为 4.1 meV), 其热效应可以被忽略^[14,32–35].

本文的 THz-TDS 光谱实验是在中国科学院强磁场科学中心自主研制的变温磁场下 THz-TDS 测试系统中完成的. 该系统的温度变化范围为 5–350 K; 磁场变化范围为 0–8 T. 系统所用的光源是 Menlo Systems 公司的飞秒光纤激光器, 输出的中心波长为 780 nm, 脉冲宽度为 120 fs, 重复频率为 80 MHz. 激光被分为两束, 一束作为 THz 脉冲产生光, 聚焦到光电导天线上产生宽谱 THz 脉冲. 透射的 THz 光通过离轴抛物镜改变方向和第二束激光同时聚焦到厚度为 2 mm, (110) 取向的 ZnTe 晶体上, 利用电光取样技术探测 THz 信号. 有效的光谱范围为 0.1–1.5 THz. 在测量过程中, THz 脉冲垂直入射到样品上, 并且所有的样品都固定到一个直径为 2.5 mm 的金属孔上.

选取了 (110) 取向的 HoFeO_3 , $\text{Ho}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{FeO}_3$ 和 $\text{Ho}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{FeO}_3$ 单晶用于 THz-TDS 光谱测量, 厚度分别为 0.5, 0.8 和 0.8 mm, 所有的样品都进行了双面抛光.

3 结果与讨论

HoFeO_3 具有扭曲的钙钛矿结构, 可以用空间群 $D_{2h}^{16}-Pbnm$ 来描述^[16]. 其中 Fe^{3+} 自旋在奈尔温度 ($T_N = 647$ K) 以下反铁磁有序, 由于 Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用导致两套磁亚晶格的磁化 \mathbf{S}_1 和 \mathbf{S}_2 具有约 0.5° 的相对倾斜角度, 并且晶体中具有两种自旋共振模式: 准反铁磁模式 (q-AFM, quasi-antiferromagnetic mode) 和准铁磁模式 (q-FM, quasi-ferromagnetic mode)^[36]. 这两种共振模式的频率都在 THz 范围内, 因此采用 THz 吸收谱可以有效地探测出 q-FM 和 q-AFM 的共振频率及其变化规律, 从而分析出样品中的自旋状态.

HoFeO_3 中倾斜的反铁磁结构导致了非零的铁磁净磁矩 $\mathbf{M} = \mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2$ 和 G 型反铁磁磁矩 $\mathbf{L} = \mathbf{S}_1 - \mathbf{S}_2$. 在自旋重取向转变的温度范围内, HoFeO_3 单晶具有多个磁相变, 其中 T_3 , T_2 和 T_1 ($T_3 < T_2 < T_1$) 分别对应 $\Gamma_2 \rightarrow \Gamma_{12}$, $\Gamma_{12} \rightarrow \Gamma_{24}$, 和 $\Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_4$ 磁相变的特征温度点^[16,20,36]. 当温度 $T < T_3$ 时, 晶体处于 Γ_2 相, \mathbf{L} 平行于晶体的 c 轴, \mathbf{M} 平行于 a 轴. 当 THz 脉冲的磁场分量与 c 轴平行 ($\mathbf{H}_{\text{THz}} // c$), 晶体中的 Γ_2 相对应 q-FM 共振模将被太赫兹谱观察到 (见图 1(a) 中的红色虚线). 从变温的结果可以看到, 该 q-FM 共振模的频率随着温度的上升而下降. 当样品温度上升到 $T_3 < T < T_2$ 温区时, \mathbf{L} 向 (100) 面逐渐旋转, 最终与 c 轴夹角 θ 约为 30° , 此时晶体处于 Γ_{12} 相. 当 $T = T_2$ 时, 晶体发生一阶相变, 反铁磁磁矩矢量突然转向 (010) 面并且保持与 c 轴的夹角 θ , 这种转变导致 \mathbf{M} 从 a 轴转向 c 轴, 沿 c 轴方向出现了非零的净磁矩^[20,36]. 由于在 $\Gamma_2 \rightarrow \Gamma_{12}$ 相变过程中, q-FM 共振频率一直随着温度上升而下降, 并没有明显转变点. 因此, 我们无法确定 $\Gamma_2 \rightarrow \Gamma_{12}$ 相变的转变点^[16,20]. 随着样品温度继续上升至 $T_2 < T < T_1$ 时, \mathbf{L} 从 (010) 面逐渐转向 a 轴, 此时晶体处于 Γ_{24} 相. 当温度 $T_1 < T < T_N$ 时, 晶体处于 Γ_4 相, \mathbf{L} 平行于晶体的 a 轴, \mathbf{M} 平行于 c 轴. 当 $\mathbf{H}_{\text{THz}} // c$ 轴, 样品中 Γ_4 相对应 q-AFM 共振模将被太赫兹谱观察到 (见图 1(a)

中的蓝色虚线). 从变温的结果可以看到, 该 q-AFM 共振模的频率随着温度的上升而上升. 这一结果充分表明, THz 光谱能有效的探测 RFeO_3 体系中的自旋共振与自旋重取向行为.

伴随着 Y^{3+} 的掺入, HoFeO_3 晶体中自旋态的行为略有变化. 由于 Y^{3+} 具有满壳层的电子而不显示磁性, Y^{3+} 的掺杂可以在不引入新的磁结构的情况下降低 $\text{Ho}^{3+}-\text{Fe}^{3+}$ 交换作用的整体强度, 从而会降低自旋重取向转变的温区^[13,23,29]. 我们采用 THz-TDS 透射谱详细研究了不同 Y^{3+} 掺杂浓度下的 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 中的 q-AFM 和 q-FM 共振峰随温度的变化关系 (图 1). 与未掺杂样品的测试条件一致, 太赫兹脉冲的磁场分量与 c 轴平行 ($\mathbf{H}_{\text{THz}} // c$ 轴), 在 Γ_2 和 Γ_{12} 相中激发和探测的是 q-FM 共振峰, 而在 Γ_4 相中激发和探测的是 q-AFM 共振峰. 为了方便, 在这里定义 q-FM 共振峰频率的最低点为 $\Gamma_{12} \rightarrow \Gamma_{24}$ 相变的转变点 T_2 , q-AFM 共振峰频率的最低点为 $\Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_4$ 相变的转变点 T_1 .

通过三个样品的太赫兹光谱测量, 观察到了 Y^{3+} 掺杂对 HoFeO_3 晶体中自旋共振频率与自旋重取向温区的影响. 为了更好地呈现出不同掺杂浓度样品的自旋共振、自旋重取向随温度变化规律, 需要提取样品中自旋波吸收谱. 由于样品在不同温度下的吸收率可以通过 THz 波穿过样品的 THz 幅值 E_S 与自由空间的 THz 幅值 E_R 得出, $(E_S/E_R)^2 = (1-R)^2 \exp(-\alpha d)$ ^[23], 其中 R 为反射系数, α 为吸收系数, d 为样品厚度. 因此样品的吸收率 $A_S = \alpha d = -2 \ln\{E_S/[E_R(1-R)]\}$. 若样品在不同温度下的反射率不变, 可以计算出自旋波的共振吸收谱 $A_{\text{SW}} = A_S - A_0 \propto 1 - (E_S/E_0)$, 其中 E_0 为基线. 在 Y^{3+} 掺杂为 0, 0.2, 0.4 的样品中分别在 60, 45 和 40 K 时, 自旋共振吸收消失, 因此选择这些数据作为基线. 最后基线的吸收率 A_0 可以通过去除 $(E_S/E_0) - 1$ 中的负数值来得出. 样品中自旋波共振吸收峰随温度变化关系详见图 1(d)–(f). 从图 1(d)–(f) 中可以清晰看到低温区 (Γ_2 相) 的 q-FM 共振峰频率随着温度的上升而下降; 高温区 (Γ_4 相) 的 q-AFM 共振峰频率随着温度的上升而上升. 这一特征对于不同掺杂浓度的样品都是适用的.

通过进一步观察, 发现 Y^{3+} 掺杂对 HoFeO_3 晶体中自旋态的影响体现在两个方面. 第一个方面是对共振频率的影响. 在 10 K 时, Y^{3+} 掺杂浓度为 0, 0.2 和 0.4 的共振峰分别出现在 0.63, 0.61 和 0.50 THz,

对应激发的是 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 中 q-FM 模. 这表明 Γ_2 相 q-FM 的自旋共振频率随着 Y^{3+} 掺杂浓度上升而下降. 当温度上升到 80 K 时, Y^{3+} 掺杂浓度为 0, 0.2 和 0.4 的共振峰分别出现在 0.34, 0.37 和 0.42 THz, 对应激发的是 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 中的 q-AFM 模. 这表明 Γ_4 相 q-AFM 的自旋共振频率随着 Y^{3+} 掺杂浓度上升而上升. 当温度 80 K 上升至 300 K 时, q-AFM 共振峰频率分别从 0.34, 0.37 和 0.42 THz 上升至 0.56, 0.57 和 0.56 THz, 并且吸收率上升, 所有单晶都稳定在 Γ_4 相, 且它们的共振频率基本相同.

第二个方面是对自旋重取向温区的影响. 当温度从 10 K 上升至 30 K 时, q-FM 共振峰频率下降, 吸收率基本保持不变, 样品处于 Γ_2 相. 对于

Y^{3+} 掺杂浓度为 0, 0.2 和 0.4 的单晶, q-FM 共振峰分别在温度大于 50, 40 和 30 K 时消失, 对应单晶中发生了 $\Gamma_{12} \rightarrow \Gamma_{24}$ 相转变. 当温度继续上升至 80, 55 和 45 K 时, Y^{3+} 掺杂浓度为 0, 0.2 和 0.4 的 q-AFM 共振峰出现, 对应单晶中发生了 $\Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_4$ 相转变. 这一结果表明, 0, 0.2 和 0.4 的 Y^{3+} 掺杂浓度分别可以使单晶的自旋重取向温区从 50—80 K 下降至 40—55 K 再下降至 30—45 K. 为了进一步对比 Y^{3+} 掺杂对样品自旋态的影响, 提取了 HoFeO_3 , $\text{Ho}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{FeO}_3$ 和 $\text{Ho}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{FeO}_3$ 中 q-AFM 和 q-FM 共振频率随温度的变化关系, 如图 2 所示. 可以清晰地看到, Y^{3+} 掺杂不仅可以降低低温下 q-FM 共振峰频率以及提升高温下 q-AFM 共振峰频率, 而且可以使得自旋重取向温区向低温移动.

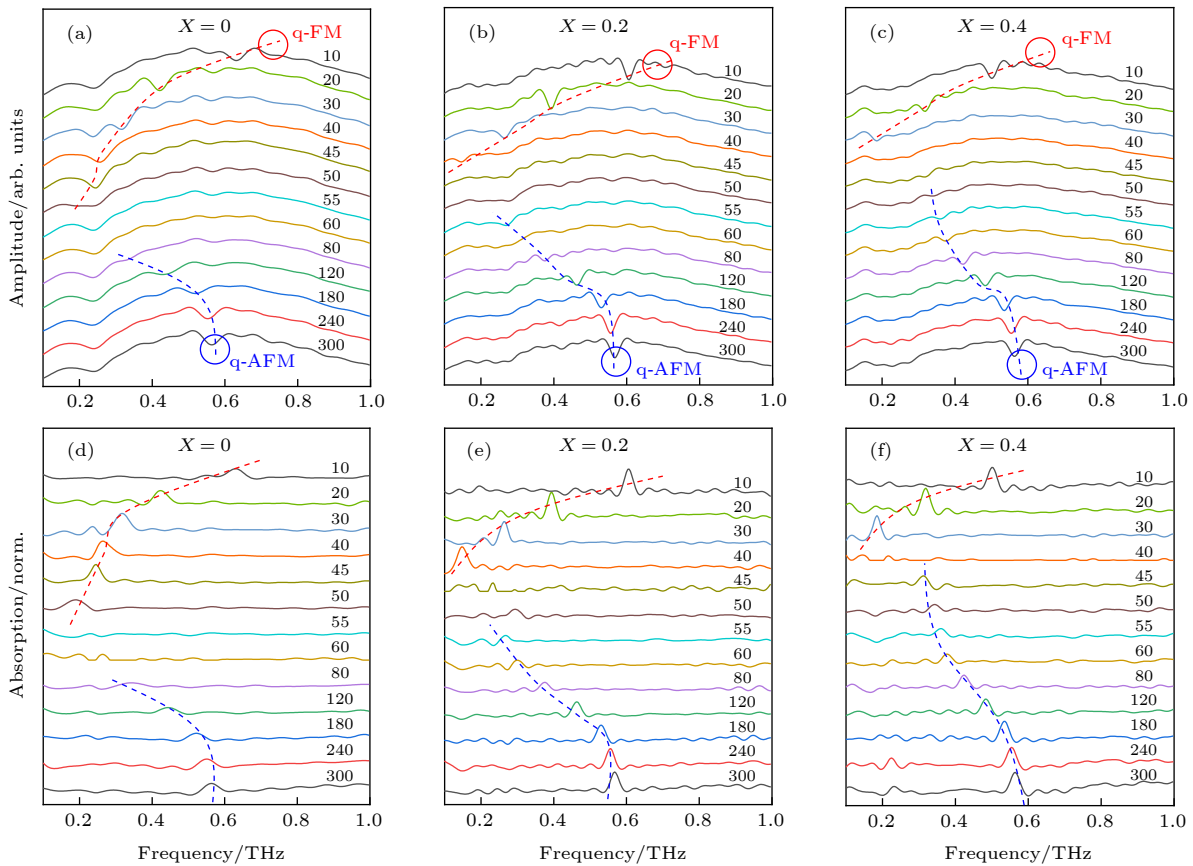


图 1 (a)–(c) 不同温度下 (110) 取向的 HoFeO_3 , $\text{Ho}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{FeO}_3$ 和 $\text{Ho}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{FeO}_3$ 单晶的 THz 透射谱, 入射的太赫兹磁场分量 (\mathbf{H}_{THz}) 平行于晶体的 c 轴, 图中红色和蓝色虚线分别帮助识别准铁磁模式 (q-FM) 共振峰和准反铁磁模式 (q-AFM) 共振峰; (d)–(f) 不同 Y^{3+} 掺杂浓度单晶中的自旋波共振吸收谱随温度的关系. 图中的红色和蓝色的虚线分别代表低温下 q-FM 共振峰和高温下 q-AFM 共振峰随温度的变化

Fig. 1. (a)–(c) THz transmission spectra of the (110) HoFeO_3 , $\text{Ho}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{FeO}_3$, and $\text{Ho}_{0.6}\text{Y}_{0.4}\text{FeO}_3$ single crystals measured at different temperatures, the incident THz magnetic component (\mathbf{H}_{THz}) is aligned along c -axis of the crystal. The dashed red and blue lines are guides to the eye for identifying the quasi-ferromagnetic mode (q-FM) and quasi-antiferromagnetic mode (q-AFM) resonant peaks, respectively; (d)–(f) temperature dependence of THz spin wave resonance absorption spectra of single crystals with different Y^{3+} doping levels. The red dotted lines in the figures represent q-FM resonant absorption peaks change with temperature at low temperature, and the blue dotted lines represent q-AFM resonant absorption peaks change with temperature at high temperature.

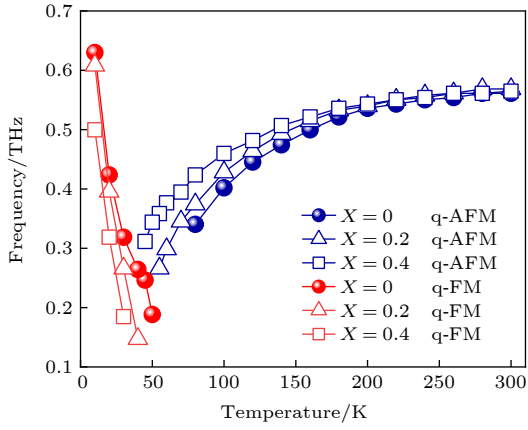


图2 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 中 q-AFM 和 q-FM 共振频率随温度的变化关系, 圆圈、三角和正方形标记分别代表 Y^{3+} 离子掺杂浓度为 0, 0.2 和 0.4 的 (110) 取向的单晶中的共振频率

Fig. 2. The temperature dependence of q-AFM and q-FM resonant frequencies in $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$. Circle, triangle and square markers show resonant frequencies in single crystals with Y^{3+} dopant concentration of 0, 0.2 and 0.4.

q-AFM 和 q-FM 共振频率随温度的变化趋势可以用各向异性性能机制解释^[16]:

$$\Gamma_4 : \begin{cases} \omega_{\text{FM}} = \frac{\gamma}{2\pi}(2H_E K_{ac}/M_0)^{1/2}, \\ \omega_{\text{AFM}} = \frac{\gamma}{2\pi}(2H_E K_{ab}/M_0)^{1/2}, \end{cases} \quad (1)$$

$$\Gamma_2 : \begin{cases} \omega_{\text{FM}} = \frac{\gamma}{2\pi}(2H_E K_{ca}/M_0)^{1/2}, \\ \omega_{\text{AFM}} = \frac{\gamma}{2\pi}(2H_E K_{cb}/M_0)^{1/2}, \end{cases} \quad (2)$$

其中 γ 为旋磁比; H_E 为交换场; M_0 为饱和磁矩; K_{ac} , K_{ab} , K_{ca} 和 K_{cb} 为各向异性常数. 当温度从 $T_2 > T > 10$ K 时, K_{ca} 逐渐下降, q-FM 频率逐渐软化. 当 $T > T_2$ 时, K_{ca} 接近 0, q-FM 模式共振峰消失, 单晶发生 $\Gamma_{12} \rightarrow \Gamma_{24}$ 转变. 当温度 $T = T_1$ 时, q-AFM 共振峰出现, 单晶发生 $\Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_4$ 转变, 当样品温度继续上升 $300 \text{ K} > T > T_1$ 时, K_{ab} 增加, q-AFM 频率硬化, 样品稳定在 Γ_4 相. 由于 Y^{3+} 是无磁性的, 与 Fe^{3+} 间无交换作用, Y^{3+} 掺杂只会降低 Ho^{3+} - Fe^{3+} 交换作用能而不会改变 HoFeO_3 中自旋重取向类型. 因此在升温过程中, Y^{3+} 掺杂浓度越高的单晶中的 Ho^{3+} - Fe^{3+} 交换作用能会在越低温度就降低到与 Fe^{3+} - Fe^{3+} 各向异性性能相近从而发生自旋重取向. 如果采用其他离子掺杂也可能有效改变自旋重取向温区, 例如稀土离子 Sm^{3+} 掺杂, 由于在高温下 Sm^{3+} - Fe^{3+} 交换作用能远高于 Ho^{3+} - Fe^{3+} 交换作用能^[9,26], 因此可能会提升 HoFeO_3 中自旋重取向温区; 如果采用稀土离子 Dy^{3+} 掺杂, 可能会

改变 HoFeO_3 的自旋重取向类型, 如 $\text{Dy}_{0.5}\text{Pr}_{0.5}\text{FeO}_3$ 发生了 $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_1 \rightarrow \Gamma_2$ 转变, 而 DyFeO_3 或 PrFeO_3 只能分别发生 $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_1$ 转变或 $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_2$ 转变^[10]. 而当 Y^{3+} 掺杂后, HoFeO_3 的自旋重取向温区下降而自旋重取向类型不变, 这种现象与 $\text{Er}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 中一致^[13]. 而且在温度小于 30 K 时, Ho^{3+} - Fe^{3+} 的交换作用能与 Fe^{3+} - Fe^{3+} 各向异性性能间的差值会随着 Y^{3+} 掺杂浓度上升而减小, 从而导致了 K_{ca} 的降低, 此时 Y^{3+} 掺杂浓度越大, q-FM 共振频率越低; 但是在温度大于 80 K 后, 由于 Ho^{3+} - Fe^{3+} 的交换作用能大于 Fe^{3+} - Fe^{3+} 各向异性性能, Ho^{3+} - Fe^{3+} 的交换作用能与 Fe^{3+} - Fe^{3+} 各向异性性能间的差值会增加, 从而导致了 K_{ab} 的增加, 因此相同温度下, Y^{3+} 掺杂浓度越大, q-AFM 共振频率越高; 但是随着温度的继续上升至远高于自旋重取向温区 ($T = 300$ K) 时, Ho^{3+} - Fe^{3+} 的交换作用能降低至接近零, K_{ab} 完全取决于 Fe^{3+} - Fe^{3+} 各向异性性能, 由于 Fe^{3+} - Fe^{3+} 各向异性性能几乎不随掺杂浓度变化导致 300 K 时, 不同 Y^{3+} 掺杂浓度的 q-AFM 共振频率几乎相等. Y^{3+} 掺杂有效降低了 Ho^{3+} - Fe^{3+} 的交换作用能导致高温下 K_{ab} 降低和低温下 K_{ca} 增加, 从而不仅使 HoFeO_3 的自旋重取向温区下降, 而且使低温 ($T \leq 30$ K) 下 q-FM 共振频率降低以及高温 ($80 \text{ K} \leq T < 300$ K) 下 q-AFM 共振频率提升.

在讨论了 Y^{3+} 掺杂浓度对 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶中自旋共振模式、自旋重取向的影响之后, 接下来探索磁场对该体系自旋态的作用. 我们关注的重点是利用磁场诱导 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶发生自旋重取向, 以及发生自旋重取向过程中磁场强度对不同 Y^{3+} 掺杂浓度单晶中的 q-AFM 模式和 q-FM 模式共振峰的影响. 在 RFeO_3 单晶中, 沿反铁磁矢量 \mathbf{L} 方向施加磁场通常会诱导自旋重取向的发生^[23,27]. 在低温 Γ_2 相时 ($\mathbf{L} // \mathbf{c}$), 沿 \mathbf{c} 轴施加一定大小的磁场会抵消沿 \mathbf{c} 轴方向的各向异性性能, 从而在 K_{ca} 和 K_{cb} 不为 0 的情况下诱导样品发生 $\Gamma_2 \rightarrow \Gamma_4$ 转变, 此时 q-FM 频率降至最低点后消失, q-AFM 出现; 沿 \mathbf{b} 轴施加磁场对样品几乎无影响; 在高温 Γ_4 相时 ($\mathbf{L} // \mathbf{a}$); 沿 \mathbf{a} 轴施加一定磁场同样会在 K_{ac} 和 K_{ab} 不为 0 的情况下诱导样品发生 $\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_2$ 转变, 此时 q-AFM 消失, q-FM 出现并且频率上升. 由于临近自旋重取向温区时, q-AFM 共振峰吸收率较弱, 而 q-FM 具有较强的吸收峰, 因此在 Γ_4 相沿 \mathbf{c} 轴施加磁场, 发生自旋重取向后

Γ_2 相的 q-FM 模式比较容易观察到, 因此选择沿 a 轴有投影分量的 (110) 方向施加磁场.

如图 3(a), (e), (i) 所示, 当温度 $T = 20$ K 时, 不同 Y^{3+} 掺杂浓度的 $Ho_{1-x}Y_xFeO_3$ 单晶均处于 Γ_2 相, q-FM 共振峰频率随着磁场增强而线性上升, 铁磁矢量 \mathbf{M}/a 且不发生翻转. 这一特征与相关文献中 $TmFeO_3$ 和 $YFeO_3$ 随磁场的变化一致^[23,27]. 当样品处于高温下 (约 100 K), $Ho_{1-x}Y_xFeO_3$ 单晶均处于 Γ_4 相, 0—2.5 T 的磁场范围内, 虽然 q-AFM 的共振强度略有下降, 但其共振频率基本保持不变 (如图 3(d), (h), (l) 所示). 这是 $Ho_{1-x}Y_xFeO_3$ 分别处于稳定的 Γ_2 相和 Γ_4 相的情况. 当 $Ho_{1-x}Y_xFeO_3$ 单晶处于或接近自旋重取向温区时, 磁场的作用则更为有趣. 我们发现在这一温区磁场不仅能有效调

控自旋共振频率, 还能诱导自旋重取向. 如图 3(b) 所示, 当未掺杂的 $HoFeO_3$ 单晶在 45 K 时, 随着磁场强度增加, Γ_{12} 相对应的 q-FM 共振频率缓慢减小. 当磁场增加到 1 T 时, 发生磁场诱导的自旋重取向 ($\Gamma_{12} \rightarrow \Gamma_2$) 相变. 伴随着磁场强度的进一步增加, Γ_2 对应的 q-FM 共振频率增加, 这与低温 (20 K) 下 Γ_2 相的行为一致. 对于 Y^{3+} 掺杂的 $Ho_{1-x}Y_xFeO_3$ 单晶, 在小磁场和 45 K 条件下的 THz 谱测量不到自旋共振模 (图 3(f), (j)). 当磁场增加到 1 T 时, Γ_2 相对应的 q-FM 共振模开始出现. 这一现象表明, 1 T 的磁场诱导出了自旋重取向. 随着磁场进一步增加, Γ_2 对应的 q-FM 共振频率增加. 从以上实验结果可以看出温度越接近自旋重取向温区, 磁场越容易诱导自旋重取向的发生.

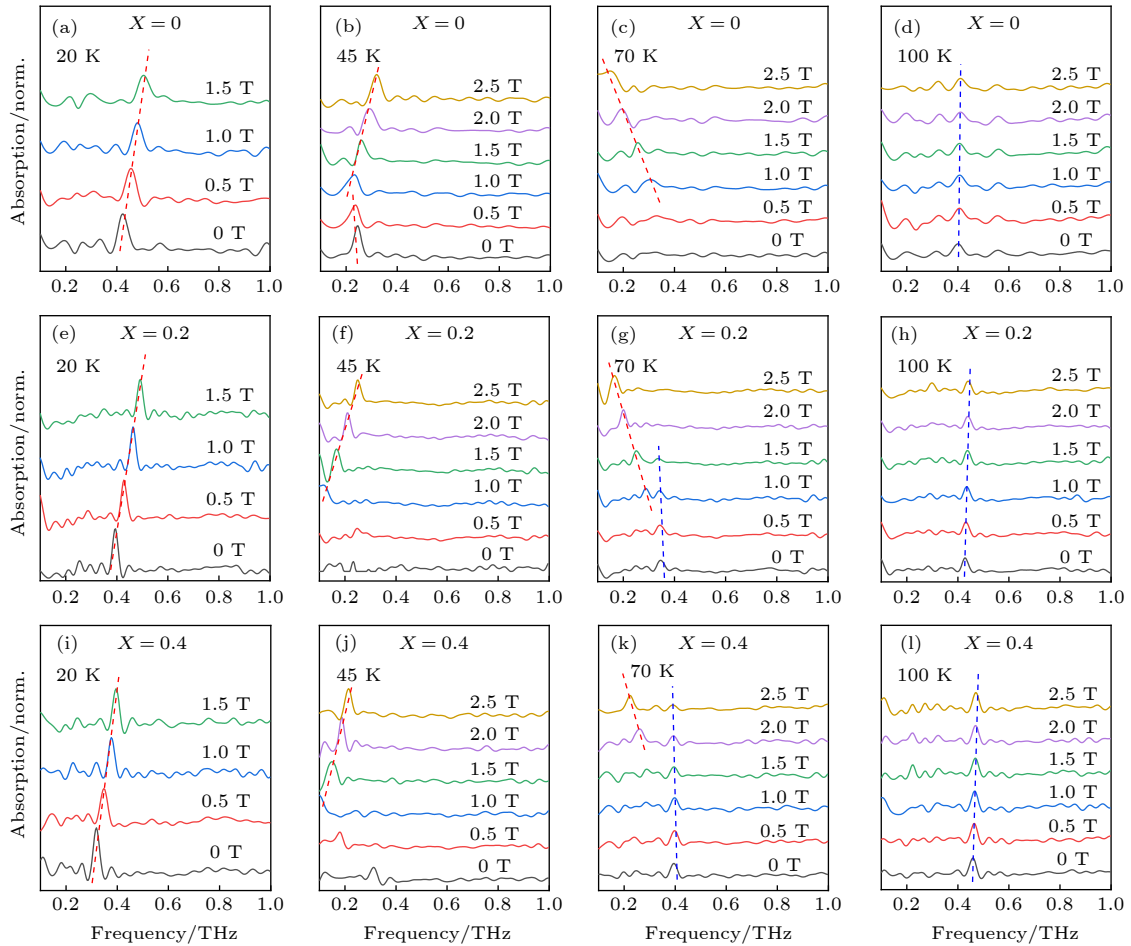


图 3 (a)–(l) $Ho_{1-x}Y_xFeO_3$ 单晶中在不同温度下随磁场变化的自旋波共振吸收谱, 入射的太赫兹磁场分量 (\mathbf{H}_{THz}) 平行于晶体的 c 轴, 外加磁场 \mathbf{H}_{DC} 沿晶体的 [110] 方向, 蓝色和红色的虚线分别表示 q-AFM 共振峰和 q-FM 共振峰随磁场的变化

Fig. 3. (a)–(l) Magnetic field dependence of THz spin wave resonance absorption spectra of $Ho_{1-x}Y_xFeO_3$ single crystals measured at different temperatures. The incident THz magnetic component (\mathbf{H}_{THz}) is aligned along c -axis of crystals, and the external magnetic field \mathbf{H}_{DC} is applied along [110] axis of crystals. The blue and red dotted lines are q-AFM and q-FM resonant absorption peaks change with the applied magnetic field, respectively.

这是由于温度越接近自旋重取向温区, Ho^{3+} - Fe^{3+} 交换作用能就越接近 Fe^{3+} - Fe^{3+} 各向异性, 导致各项异性常数 K_{ac} 和 K_{ab} 更接近 0, 因此只需要很小的磁场就能诱导自旋重取向的发生.

在讨论完低温相变区 ($T = 45 \text{ K}$) 附近的磁场效应之后, 接下来让我们探索 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶在高温相变区的磁控现象. 在 70 K 这一特征温度下, 未掺杂的 HoFeO_3 单晶处于自旋重取向 ($\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24}$) 相变的临界状态附近. 虽然自旋基态为 Γ_4 相, 但其对应的 q-AFM 自旋波强度很弱. 如图 3(c) 所示, HoFeO_3 单晶在小磁场 THz 谱中不能观察到明显的自旋共振模. 当磁场增加到 1 T 时, Γ_{24} 相对应的 q-FM 共振模开始出现. 这表明, 1 T 的磁场诱导出了自旋重取向 ($\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24}$) 相变. 随着磁场强度进一步增加, Γ_{24} 对应的 q-FM 共振频率线性降低. 对于 Y^{3+} 掺杂的 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶, 情况略有不同. 如图 2 所示, 在 Y^{3+} 掺杂浓度为 0.2 和 0.4 的 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶中, 相变温度 $T_1(\Gamma_{24} \rightarrow \Gamma_4)$ 分别为 $55, 45 \text{ K}$. 因此, 70 K 温度 ($> T_1$) 下的 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶的自旋基态为稳定的 Γ_4 相. 如图 3(g), (k) 所示, 零场和小磁场条件下的 THz 谱可以探测到的明显的 Γ_4 相对应的 q-AFM 共振模. 随着磁场增加, 该 q-AFM 共振模的频率基本不变. 这与 100 K 条件下的磁控行为一致. 当磁场强度增加到 1 T 时, $\text{Ho}_{0.8}\text{Y}_{0.2}\text{FeO}_3$ 单晶的 THz 频谱中出现了 Γ_{24} 对应的 q-FM 共振. 这表明, 磁场诱导出了自旋重取向 ($\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24}$) 相变. 此时铁磁矢量由 \mathbf{M}/c 轴旋转至 \mathbf{M} 与 c 轴和 a 轴成一定夹角. 更为有趣的是, 在 $1.0\text{--}1.5 \text{ T}$ 磁场范围内, Γ_4 相对应的 q-AFM 共振模和 Γ_{24} 相对应的 q-FM 共振模共存 (图 3(g)). 这表明磁场诱导的相变是一个渐进过程, 在 $1.0\text{--}1.5 \text{ T}$ 磁场范围内, 并不是所有自旋都发生了转向. 随着磁场进一步增加 ($> 2 \text{ T}$), 磁场诱导的自旋重取向相变完成, 体系自旋完全处于 Γ_{24} 相. 这一过程中, 磁场诱导出的 Γ_{24} 相所对应的 q-FM 共振模的频率随磁场强度增加而降低. 当 Y^{3+} 掺杂浓度从 0.2 提升至 0.4 , 磁场效应的趋势基本一致. 不同之处在于 Y^{3+} 掺杂浓度为 0.4 的单晶中发生自旋重取向 ($\Gamma_4 \rightarrow \Gamma_{24}$) 的临界磁场强度 (2 T) 比掺杂浓度为 0.2 的情况 (1 T) 要大. 这是由于 Y^{3+} 离子掺杂浓度越大, 单晶中的 Ho^{3+} - Fe^{3+} 交换能越小, 各项异性常数 K_{ac} 和 K_{ab} 也越大, 这导致了单晶越难发生自旋重取向.

4 结 论

本文利用变温变场下的 THz-TDS, 系统研究了非磁性 Y^{3+} 离子掺杂与外加磁场对 HoFeO_3 单晶中自旋态以及自旋重取向的影响. 变温 THz 谱表明 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶中低温区 q-FM 共振频率随着温度的上升而下降; 而高温区的 q-AFM 共振频率随着温度的上升而上升. 随着非磁性 Y^{3+} 离子的掺入, 一方面低温 q-FM 共振频率降低而高温 q-AFM 共振频率得到提升; 另一方面自旋重取向的温区整体向低温移动. 另外, 实验表明磁场不仅能够有效地调控 $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ 单晶中的 q-FM 共振频率, 而且还能诱导出自旋重取向. 这一磁场诱导的自旋重取向效应在晶体的本征自旋重取向温区最为明显, 其磁诱导效应的临界磁场强度随 Y^{3+} 离子掺杂浓度而增加. 这一掺杂效应、磁控效应的研究将有助于理解稀土正铁氧体中的自旋交换作用机制, 并为场控器件的研发提供了相关实验基础.

参考文献

- [1] Kimel A V, Kirilyuk A, Tsvetkov A, Pisarev R V, Rasing T 2004 *Nature* **429** 850
- [2] Kimel A V, Kirilyuk A, Usachev P A, Pisarev R V, Balbashov A M, Rasing T 2005 *Nature* **435** 655
- [3] Kimel A V, Ivanov B A, Pisarev R V, Usachev P A, Kirilyuk A, Rasing T 2009 *Nat. Phys.* **5** 727
- [4] Kirilyuk A, Kimel A V, Rasing T 2010 *Rev. Mod. Phys.* **82** 2731
- [5] Wu A H, Wang B, Zhao X Y, Man P W, Xie T, Xu X D, Su L B 2017 *Sci. Sin. Technol.* **47** 1177 (in Chinese) [武安华, 王博, 赵向阳, 满沛文, 谢涛, 徐晓东, 苏良碧 2017 *中国科学: 技术科学* **47** 1177]
- [6] Jiang G C, Shen H, Xu J Y, Wu A H 2020 *J. Synth. Cryst.* **49** 990 (in Chinese) [蒋国超, 申慧, 徐家跃, 武安华 2020 *人工晶体学报* **49** 990]
- [7] Qin Y, Chen X M 2013 *Prog. Phys.* **33** 353 (in Chinese) [覃莹, 陈湘明 2013 *物理学进展* **33** 353]
- [8] 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, 李炬赓, 林贤, 任伟, 曹世勋, 马国宏, 姚建铨 2019 *物理学报* **68** 167501]
- [9] Zhao W Y, Cao S X, Huang R X, Cao Y M, Xu K, Kang B J, Zhang J C, Ren W 2015 *Phys. Rev. B* **91** 104425
- [10] Wu H L, Cao S X, Liu M, Cao Y M, Kang B J, Zhang J C, Ren W 2014 *Phys. Rev. B* **90** 144415
- [11] Wang B, Zhao X Y, Wu A H, Cao S X, Xu J, Kalashnikova A M, Pisarev R V 2015 *J. Magn. Magn. Mater.* **379** 192
- [12] Wu A H, Wang B, Zhao X Y, Xie T, Man P W, Su L B, Kalashnikova A M, Pisarev R V 2017 *J. Magn. Magn. Mater.* **426** 721
- [13] Yuan N, Li R B, Yu Y S, Feng Z J, Kang B J, Zhuo S Y, Ge

- J Y, Zhang J C, Cao S X 2019 *Front. Phys.* **14** 13502
- [14] Yamaguchi K, Kurihara T, Minami Y, Nakajima M, Suemoto T 2013 *Phys. Rev. Lett.* **110** 137204
- [15] Jiang J J, Jin Z M, Song G B, Lin X, Ma G H, Cao S X 2013 *Appl. Phys. Lett.* **103** 062403
- [16] Zeng X X, Fu X J, Wang D Y, Xi X Q, Zhou J, Li B 2015 *Opt. Express* **23** 31956
- [17] Yuan N, Cao S X 2019 *Chin. J. Nat.* **41** 0253 (in Chinese) [袁宁, 曹世勋 2019 自然杂志 **41** 0253]
- [18] White R L 1969 *J. Appl. Phys.* **40** 1061
- [19] Suemoto T, Nakamura K, Kurihara T, Watanabe H 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 042404
- [20] Balbashov A M, Kozlov G V, Lebedev S P, Mukhin A A, Pronin A Y, Prokhorov A S 1989 *Sov. Phys. JETP* **68** 629
- [21] Liu M, Cao S X, Yuan S J, Kang B J, Lu B, Zhang J C 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 147601 (in Chinese) [刘明, 曹世勋, 袁淑娟, 康保娟, 鲁波, 张金仓 2013 物理学报 **62** 147601]
- [22] Afanasiev D, Ivanov B A, Kirilyuk A, Rasing T, Pisarev R V, Kimel A V 2016 *Phys. Rev. Lett.* **116** 097401
- [23] Amelin K, Nagel U, Fishman R S, Yoshida Y, Sim H, Park K, Park J G, Room T 2018 *Phys. Rev. B* **98** 174417
- [24] Liu X M, Jin Z M, Zhang S N, Zhang K L, Zhao W Y, Xu K, Lin X, Cheng Z X, Cao S X, Ma G H 2018 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **51** 024001
- [25] Li X W, Bamba M, Yuan N, Zhang Q, Zhao Y G, Xiang M L, Xu K, Jin Z M, Ren W, Ma G H, Cao S X, Turchinovich D, Kono J 2018 *Science* **361** 794
- [26] Wu A H, Zhao X Y, Man P W, Su L B, Kalashnikova A M, Pisarev R V 2018 *J. Cryst. Growth* **486** 169
- [27] Guo J J, Cheng L, Ren Z, Zhang W J, Lin X, Jin Z M, Cao S X, Sheng Z G, Ma G H 2020 *J. Phys. Condens. Matter* **32** 185401
- [28] Jiang J J, Song G B, Wang D Y, Jin Z M, Tian Z, Lin X, Han J G, Ma G H, Cao S X, Cheng Z X 2016 *J. Phys. Condens. Matter* **28** 116002
- [29] 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
- [30] Nikitin S E, Wu L S, Sefat A S, Shaykhutdinov K A, Lu Z, Meng S, Pomjakushina E V, Conder K, Ehlers G, Lumsden M D, Kolesnikov A I, Barilo S, Guretskii S A, Inosov D S, Podlesnyak A 2018 *Phys. Rev. B* **98** 064424
- [31] Barilo S N, Ges A P, Guretskii S A, Zhigunov D I, Ignatenko A A, Luginets A M, Shapovalova E F 1991 *J. Cryst. Growth* **108** 309
- [32] Kampfrath T, Sell A, Klatt G, Pashkin A, Mahrlein S, Dekorsy T, Wolf M, Fiebig M, Leitenstorfer A, Huber R 2011 *Nat. Photonics* **5** 31
- [33] Yamaguchi K, Nakajima M, Suemoto T 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 237201
- [34] Kampfrath T, Tanaka K, Nelson K A 2013 *Nat. Photonics* **7** 680
- [35] Grishunin K, Huisman T, Li G Q, Mishina E, Rasing T, Kimel A V, Zhang K L, Jin Z M, Cao S X, Ren W, Ma G H, Mikhaylovskiy R V 2018 *ACS Photonics* **5** 1375
- [36] Afanasiev D, Ivanov B A, Pisarev R V, Kirilyuk A, Rasing T, Kimel A V 2017 *J. Phys. Condens. Matter* **29** 224003

SPECIAL TOPIC—Terahertz spintronic optoelectronics

Terahertz spectroscopy study of doping and magnetic field induced effects on spin reorientation in $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ single crystals^{*}

Ren Zhuang¹⁾²⁾ Cheng Long¹⁾²⁾ Sergei Guretskii³⁾ Nadzeya Liubochko³⁾Li Jiang-Tao⁴⁾ Shang Jia-Min⁴⁾ Sergei Barilo³⁾ Wu An-Hua⁴⁾Alexandra Kalashnikova⁵⁾ Ma Zong-Wei¹⁾ Zhou Chun¹⁾ Sheng Zhi-Gao^{1)†}1) (*High Magnetic Field Laboratory, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China*)2) (*University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China*)3) (*Scientific-Practical Materials Research Centre of NAS of Belarus, Minsk 220072, Belarus*)4) (*Shanghai Institute of Ceramics, Chinese Academy of Sciences, Shanghai 200050, China*)5) (*Ioffe Technologies Institute, St. Petersburg 194021, Russia*)

(Received 11 September 2020; revised manuscript received 24 September 2020)

Abstract

In this paper, the effects of magnetic field and nonmagnetic Y^{3+} doping on spin state and spin reorientation in HoFeO_3 single crystal are systematically studied by the self-developed terahertz time-domain spectroscopy (THz-TDS) under magnetic field. By doping nonmagnetic Y^{3+} , we find that the spin reorientation temperature range decreases. Meanwhile, we also find the type of spin reorientation of HoFeO_3 does not change with Y^{3+} doping, indicating that the Y^{3+} doping can exchange the interaction energy of $\text{Ho}^{3+}\text{-Fe}^{3+}$ without introducing any new magnetic structure. Moreover, the resonance frequency of quasi-ferromagnetic mode (q-FM) decreases with temperature increasing in the low temperature range, while the resonance frequency of quasi-antiferromagnetic mode (q-AFM) increases with temperature increasing in the high temperature range in $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ single crystals. With the external magnetic field (H_{DC}) applied along the (110) axis, on the one hand the magnetic field can not only tune the resonant frequency of q-FM but also induce the spin reorientation in $\text{Ho}_{1-x}\text{Y}_x\text{FeO}_3$ single crystals, and on the other hand this magnetic field induced spin reorientation phenomenon can happen more easily if the temperature approaches to the intrinsic spin reorientation temperature range of the single crystals. Besides, the critical magnetic field induced spin reorientation increases with the doping of Y^{3+} increasing. Our research shows that THz spectroscopy data can be used to detect the doping concentration of Y^{3+} ions in HoFeO_3 ; in addition, Y^{3+} doping can make the spin state in HoFeO_3 crystal more stable and not easily affected by external magnetic fields. We anticipate that the role of doping and magnetic field in spin reorientation transition will trigger great interest in understanding the mechanism of the spin exchange interaction and the mechanism of external field tuning effect in the vast family of rare earth orthoferrites.

Keywords: terahertz time-domain spectroscopy, rare earth orthoferrites, spin reorientation, spin resonance**PACS:** 78.47.J-, 76.30.Kg, 75.30.Kz, 76.50.+g**DOI:** 10.7498/aps.69.20201518

^{*} Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant Nos. 2016YFA0401803, 2017YFA0303603), the Key Research Program of Frontier Sciences, Chinese Academy of Sciences (Grant No. QYZDB-SSW-SLH011), the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 11574316, 51872309, 61805256, 11904367, U1832106, 52011530018), the Special Exchange Program for Russia-Ukraine-Belarus, Chinese Academy of Sciences, the Shanghai Committee of Science and Technology, China (Grant No. 19520710900), and the Basic Research Funds of Belarus in Frame of Belarus-China Research (Grant No. F20CN-021).

[†] Corresponding author. E-mail: zhigaosheng@hmfl.ac.cn