

Цикл работ:

Новые структурные, магнитные состояния и физические явления в геометрически фрустрированных функциональных магнитных материалах при изменении термодинамических параметров

на конкурс научных работ на премию ОИЯИ за 2021 г. по разделу «Научно-исследовательские экспериментальные работы»

Номинанты:

Козленко Денис Петрович (ЛНФ ОИЯИ)
Голосова Наталья Олеговна (ЛНФ ОИЯИ)
Кичанов Сергей Евгеньевич (ЛНФ ОИЯИ)
Лукин Евгений Валерьевич (ЛНФ ОИЯИ)
Руткаускас Антон Владимирович (ЛНФ ОИЯИ)
Савенко Борис Николаевич (ЛНФ ОИЯИ)
Лис Ольга Николаевна (ЛНФ ОИЯИ)
Белозерова Надежда Махмудовна (ЛНФ ОИЯИ)

Dang Ngoc Toan (Duy Tan University, Vietnam)
Le Hong Khiem (Institute of Physics VAST, Vietnam)

Аннотация к циклу работ:

Функциональные материалы с геометрически фрустрированными магнитными решетками являются одними из наиболее актуальных объектов исследования в современной физике конденсированного состояния, материаловедения, химии. Это связано с тем, что существование нескольких энергетически эквивалентных спиновых конфигураций на геометрически фрустрированных решетках приводит к формированию новых магнитных состояний с необычными физическими свойствами и новых физических явлений, среди которых – состояния спиновой жидкости, спинового стекла и спинового льда, квантовые критические явления, сверхпроводимость, скирмионные состояния, новые типы коллективных магнитных и решеточных возбуждений, фазовых переходов, магнитоэлектрические явления и др.

Данный цикл работ представляет результаты систематического исследования особенностей формирования магнитных и спиновых состояний в нескольких наиболее перспективных группах функциональных магнитных материалов CrBr_3 , FePS_3 , BaYFeO_4 , $\text{Ca}_3\text{Co}_2\text{O}_6$, $\text{Ca}_3\text{Co}_{2-x}\text{Fe}_x\text{O}_6$, Co_3O_4 с геометрически фрустрированными магнитными решетками при вариации термодинамических параметров (температуры в диапазоне 5 – 300 К и давления в диапазоне 0 – 10 ГПа) методом нейтронной дифракции и комплементарными экспериментальными методами, включающими рентгеновскую дифракцию, исследования макроскопических магнитных свойств, Мессбауэровскую и Рамановскую спектроскопию.

Соединения CrBr_3 , FePS_3 являются представителями семейства низкоразмерных ван-дер-ваальсовских магнетиков, особенностью которых является то, что они являются магнитными аналогами графена - уникального двумерного материала, открытие которого было отмечено Нобелевской премией по физике 2010 г. Проведенные на базовой установке ОИЯИ – импульсном реакторе ИБР-2, исследования структурных и магнитных свойств соединения CrBr_3 с помощью метода нейтронной дифракции позволили обнаружить необычные эффекты - аномальное поведение структурных характеристик в области температуры ферромагнитного упорядочения $T_C = 35$ К и отрицательное тепловое расширение объема кристаллической решетки и квазидвумерных ван-дер-ваальсовских слоев в области температур $T < T_C$. Следует отметить, что отрицательное тепловое расширение является сравнительно редким физическим эффектом, обнаруженным лишь

в нескольких классах материалов. Коэффициент линейного теплового расширения атомных слоев в CrBr_3 в области $T < T_c$, $\alpha_l = -1.6 \cdot 10^{-5} \text{ K}^{-1}$, оказался близким к соответствующей величине для графена в области низких температур, что свидетельствует о хорошей совместимости материалов типа CrX_3 и графена с точки зрения перспектив создания гетероструктур на их основе, практическое использование которых может стать важным шагом на пути к разработке передового поколения устройств спинтроники, нанoeлектроники, записи и хранения информации.

В соединении FePS_3 обнаружено существование новой структурной модификации с моноклинной кристаллической структурой в области давлений выше $P = 1 \text{ ГПа}$ (10000 атмосфер). Структурная перестройка при воздействии высокого давления приводит к изменению характера антиферромагнитного упорядочения с квазидвумерного на трехмерный, что проявляется в двукратном уменьшении размера элементарной ячейки магнитной решетки.

В мультиферроике BaYFeO_4 наблюдается спин-индуцированная спонтанная сегнетоэлектрическая поляризация, связанная с особенностями симметрии магнитных состояний. С помощью комбинации методов нейтронной дифракции, исследований макроскопических магнитных свойств и Мессбауэровской спектроскопии детально исследована магнитная фазовая диаграмма и физические свойства данного соединения. Обнаружено существование магнитоупорядоченных состояний типа волны спиновой плотности и циклоиды, а также магнитно разупорядоченной фазы спинового стекла, возникающей ниже $T^* = 17 \text{ К}$. Показано, что BaYFeO_4 является редким примером мультиферроика, в формировании магнитоэлектрических свойств которого большую роль играет разупорядоченная фаза спинового стекла.

Одним из интересных представителей структурно сложных оксидов кобальта является соединение $\text{Ca}_3\text{Co}_2\text{O}_6$. Наличие чередующихся октаэдров CoO_6 , содержащих ионы Co^{3+} в LS состоянии и тригональных призм CoO_6 , содержащих ионы Co^{3+} в высокоспиновом HS состоянии, приводит к формированию квазиодномерных спин-цепочечных магнитных структур на фрустрированной магнитной треугольной решетке. При нормальном давлении в $\text{Ca}_3\text{Co}_2\text{O}_6$ формируется антиферромагнитное несоразмерное состояние волны спиновой плотности с вектором распространения $q_{\text{sdw}} = (0, 0, 1.01)$ и температурой Нееля $T_N = 25 \text{ К}$. Также, в области низких температур наблюдалось появление неупорядоченной магнитной фазы, ближний порядок которой характеризуется магнитной корреляционной длиной 128 \AA . При воздействии высокого давления выше 2 ГПа наблюдалось подавление несоразмерной антиферромагнитной фазы и появление новой соразмерной фазы с вектором распространения $q_{\text{caf}} = (0.5, -0.5, 1)$ и $T_{\text{NC}} = 26 \text{ К}$. Аналогичный эффект также наблюдался при замещении кобальта железом: при увеличении концентрации железа в соединениях $\text{Ca}_3\text{Co}_{2-x}\text{Fe}_x\text{O}_6$ обнаружено подавление несоразмерных магнитных состояний. В рамках существующих теоретических моделей проанализирована роль внутрицепочечных и межцепочечных магнитных взаимодействий в механизме наблюдаемого магнитного фазового перехода.

В шпинели Co_3O_4 наличие пространственного упорядочения ионов Co^{3+} в низкоспиновом LS состоянии с октаэдрическим кислородным окружением и Co^{2+} в высокоспиновом HS состоянии с тетраэдрическим кислородным окружением приводит к формированию фрустрированной магнитной решетки типа алмаза, на которой возможно появление уникального состояния спиновой спиральной жидкости. При нормальном давлении наблюдалось формирование сложного магнитного состояния, включающего сосуществование коллинеарной антиферромагнитной фазы и разупорядоченного магнитного состояния, предположительно типа спиновой спиральной жидкости. При повышении давления до 9 ГПа наблюдалось подавление разупорядоченной магнитной фазы и значительное увеличение T_N для антиферромагнитной фазы в 1.5 раза. Выявлена важная роль сверхобменных взаимодействий посредством двух анионов типа А-О-О-А в формировании магнитных свойств.

Работы цикла опубликованы в высокорейтинговых журналах, включая Phys. Rev. X (IF = 15.76), Nature partner journal Quantum Materials (IF = 6.56), Journal of Alloys and Compounds (IF = 5.31), Phys. Rev. Materials (IF = 3.99), Physical Review B (IF = 4.04).

Публикации цикла работ:

- [1]. **D.P. Kozlenko, O.N. Lis, S.E. Kichanov, E.V. Lukin, N.M. Belozeroва, B.N. Savenko** “Spin induced negative thermal expansion and spin-phonon coupling in van der Waals material CrBr₃”, npj Quantum materials 6: 19 (2021).
- [2]. M.J.Coak, D.M.Jarvis, H.Hamidov, A.R.Wildes, J.A.M.Paddison, C.Liu, C.R.S.Haines, **N.T.Dang, S.E.Kichanov, B.N.Savenko**, S.Lee, M.Kratochvilova, S.Klotz, T.Hansen, **D.P.Kozlenko**, J.-G.Park, and S.S.Saxena “Emergent Magnetic Phases in Pressure-Tuned van der Waals Antiferromagnet FePS₃”, Physical Review X 11, 011024 (2021).
- [3]. **N.T. Dang, D.P. Kozlenko**, R.P. Madhogaria, D.T. Khan, L.T.P. Thao, **S.E. Kichanov, B.N. Savenko, A.V. Rutkauskas**, N. Tran, T.L. Phan, **L.H. Khiem**, T. A. Tran, and M.H. Phan “Spin-glass induced ferroelectricity in BaYFeO₄: A high magnetic field study”, Phys. Rev. Materials 5, 044407 (2021).
- [4]. **D. P. Kozlenko, N. T. Dang, N. O. Golosova, S. E. Kichanov, E. V. Lukin**, P. J. Lampen Kelley, E. M. Clements, K. V. Glazyrin, S. H. Jabarov, T. L. Phan, **B. N. Savenko**, H. Srikanth, M. H. Phan “Pressure-induced modifications of the magnetic order in the spin-chain compound Ca₃Co₂O₆”, Physical Review B, 98, 134435 (2018).
- [5]. **N.O. Golosova, D.P. Kozlenko**, D. Nicheva, T. Petkova, **S.E. Kichanov, E.V. Lukin**, G. Avdeev, P. Petkov, **B.N. Savenko** “High pressure effects on the crystal and magnetic structures of Co₃O₄”, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 508, 165360 (2020).
- [6]. R. Das, **N.T. Dang**, V. Kalappattil, R.P. Madhogaria, **D.P. Kozlenko, S.E. Kichanov, E.V. Lukin, A.V. Rutkauskas**, T.P.T. Nguyen, L.T.P. Thao, N.S. Bingham, H. Srikanth, M.H. Phan «Unraveling the nature of Fe-doping mediated inter- and intra-chain interactions in Ca₃Co₂O₆», Journal of Alloys and Compounds, 851, 156897 (2021).